

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА МЕЧЕНЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ И ПРИКЛАДНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Ю. Н. Копач *, *М. Г. Сапожников*

Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

Метод меченых нейтронов (ММН) состоит в облучении объекта исследования быстрыми нейтронами с энергией 14,1 МэВ, которые образуются в реакции $d + t \rightarrow \alpha + n$. Мечение нейтронов происходит при регистрации α -частицы специальным детектором, встраиваемым в нейтронный генератор. Применение ММН в экспериментах по изучению ядерных реакций с быстрыми нейтронами дает ряд важных преимуществ, в частности уменьшение фона за счет регистрации событий в совпадении с α -частицами. Изучение спектров γ -квантов, образующихся в реакциях неупругого рассеяния нейтронов, позволяет проводить элементный анализ облучаемого объекта. В настоящее время ММН имеет широкое практическое применение для дистанционного неразрушающего анализа элементного состава вещества.

The tagged neutron method (TNM) consists in irradiating the object with fast neutrons with an energy of 14.1 MeV, which are formed in the reaction $d + t \rightarrow \alpha + n$. Neutron tagging is carried out by registering an α particle emitted in the direction opposite to the direction of neutron emission by a special detector built in the neutron generator. The use of the TNM in experimental investigations of nuclear reactions with fast neutrons provides a number of important advantages, in particular, background reduction due to registration of events in coincidence with α particles. The study of the spectra of gamma quanta formed in the reactions of inelastic neutron scattering makes it possible to carry out an elemental analysis of the irradiated object. At present, the TNM technology is widely used in various practical applications for remote nondestructive analysis of the elemental composition of a substance.

PACS: 25.40.Fq; 21.10.-k; 29.40.-n

ВВЕДЕНИЕ

Метод меченых нейтронов (ММН) дает возможность проводить неразрушающий элементный анализ вещества на расстоянии без отбора пробы. Он состоит в облучении объекта анализа пучками быстрых

* E-mail: kopatch@nf.jinr.ru

нейтронов с энергией 14,1 МэВ, которые образуются в реакции столкновения дейтерия d с тритием ${}^3\text{H}$:



Типичная энергия дейтрона в используемых нейтронных генераторах составляет порядка 100 кэВ. При таких энергиях нейтрон и α -частица (ядро ${}^4\text{He}$) разлетаются практически под углом 180° (рис. 1). Поэтому если зарегистрировать направление разлета α -частицы, то с хорошей точностью можно определить направление импульса нейтрона. Детектирование α -частицы осуществляется многосекционным детектором, встраиваемым в нейтронную трубку. Такая процедура называется мечением нейтронов.

Быстрый нейтрон с энергией 14,1 МэВ попадает в вещество объекта исследования и взаимодействует с ядрами вещества, главным образом, в реакциях неупругого рассеяния ($n, n'\gamma$). Поскольку каждый химический элемент имеет свой характерный γ -спектр, то можно провести элементный анализ исследуемого объекта.

Важная особенность ММН состоит в возможности осуществлять совпадения между сигналами от α -частицы и γ -кванта. Когда в одной из секций (пикселе) α -детектора появляется сигнал от α -частицы, открывается окно совпадений, внутри которого регистрируется как время прихода, так и энергия γ -квантов. Знание номера α -пикселя позволяет определять положение облучаемой области в направлении, перпендикулярном импульсу меченого нейтрона. Это дает уникальную возможность отбирать γ -кванты только из исследуемого объекта, что существенно (до 200 раз) подавляет фон от окружающей среды.

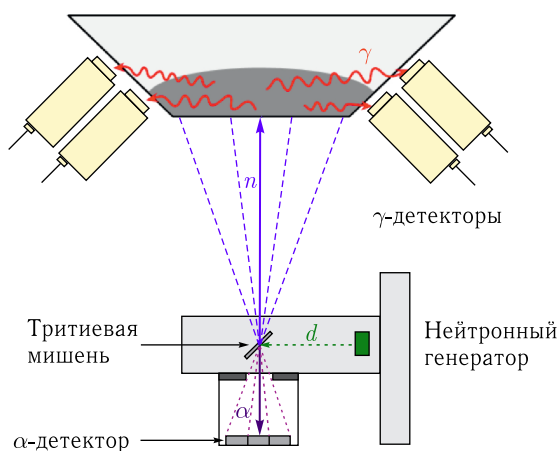


Рис. 1. Схематическое представление метода меченых нейтронов

ММН также позволяет отбирать γ -кванты из облучаемых областей вдоль направления импульса меченого нейтрона. Поскольку в реакции (1) образуются монохроматичные нейтроны с энергией 14,1 МэВ, которая соответствует скорости нейтрона порядка 5 см/нс, то, зная время пролета между приходом α -частицы и появлением γ -кванта, можно определить координату области испускания γ -кванта вдоль импульса нейтрона. Таким образом, ММН дает возможность проводить элементный анализ объекта по всем трем координатам.

Нейтроны с энергией 14,1 МэВ имеют большую проникающую способность. Важно также, что γ -кванты, образующиеся в реакциях неупругого рассеяния нейтронов, имеют энергии порядка 1–7 МэВ и обладают значительной проникающей способностью. Для иллюстрации: 41,3% γ -квантов от характеристической линии углерода 4,43 МэВ и 8,9% нейтронов с энергией 14,1 МэВ проходят образец угля толщиной 300 мм и плотностью 1 г/см³ [1]. Эти факторы позволяют с помощью ММН получать информацию об элементном составе большого объема вещества. В отличие от рентгеновских методов, с помощью которых получают сведения об элементном составе нескольких миллиметров поверхности пробы, при использовании ММН предоставляются данные о концентрации элементов, усредненной по всему объему пробы толщиной несколько десятков сантиметров.

Разработка и исследования ММН велись с самого первого момента наблюдения реакции (1) в 1948 г. В англоязычной литературе этот метод иногда называют АРІ (Associated Particle Imaging). Подробную информацию о первых экспериментах по ММН, проводившихся на ускорителях типа Ван де Граафа, можно найти в монографии [2]. Экспериментальные работы по ММН начали проводиться в Объединенном институте ядерных исследований (ОИЯИ) с 1999 г., когда на ускорителе типа Ван де Граафа Лаборатории нейтронной физики (ЛНФ) была собрана установка с 4-секционным детектором α -частиц (α -детектором) [3]. В этой первой установке использовался ионный пучок D_2^+ с энергией 450 кэВ, который направлялся на мишень из тритида титана TiT_2 , расположенную под углом 45° к оси пучка. Интенсивность нейтронного пучка составляла $(1-5) \cdot 10^7$ с⁻¹. Альфа-детектор представлял собой четыре независимых сцинтилляционных счетчика размером 10 × 10 мм. Для этой установки была разработана электроника сбора данных. Изучены характеристики различных сцинтилляторов, применявшихся для α -детектора.

Дальнейшее развитие работы по ММН получили в связи с появлением портативного нейтронного генератора, который по заказу ОИЯИ был разработан во Всероссийском научно-исследовательском институте автоматики им. Н. Л. Духова (ФГУП «ВНИИА», Москва) [4]. Если ускоритель типа Ван де Граафа ЛНФ размещался в 6-метровой башне, то размеры портативного генератора составляли всего лишь 30 см, а масса — 8 кг, что дало возможность использовать такой прибор в самых

разных экспериментальных установках. Дальнейшее развитие техники портативных генераторов позволило увеличить интенсивность нейтронного пучка до $2 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, число меченых пучков — до 256, продлить ресурс нейтронного генератора до 1500 ч.

В этой работе суммируются основные результаты, полученные в ходе исследований, проводимых в ОИЯИ с помощью ММН, и сообщается о различном практическом их применении.

Рассмотрим основные особенности ММН более детально.

В.1. Реакция $d + t \rightarrow \alpha + n$. Зависимость сечения реакции $d + t \rightarrow \alpha + n$ от энергии дейтрона показана на рис. 2.

Видно, что сечение реакции (1) довольно большое и достигает порядка 5 б при энергии дейтрона в области 100 кэВ.

Энергия нейтрона, образующегося в реакции (1), составляет 14,1 МэВ, α -частицы — 3,5 МэВ. Процесс идет с выделением энергии $Q = 17,59 \text{ МэВ}$.

При энергии дейтрона 100 кэВ угол разлета между нейтроном и α -частицей меняется в узком интервале: от 172 до 180° . С уменьшением энергии дейтрона угол разлета будет меняться в еще меньшем диапазоне. Так, для $T_d = 50 \text{ кэВ}$ угол разлета находится в интервале $174\text{--}180^\circ$.

В.2. Временное распределение. Одной из главных отличительных особенностей ММН является возможность получения информации о времени прихода сигнала от γ -квантов. Это позволяет существенным образом уменьшить фон и отсеять γ -кванты, которые не имеют отношения к объекту исследования, а возникают от посторонних предметов, окружающих источник нейтронов.

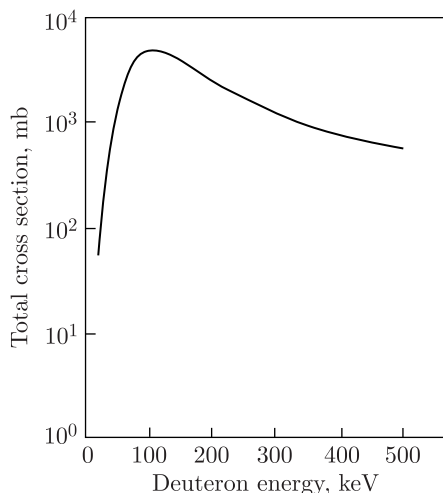
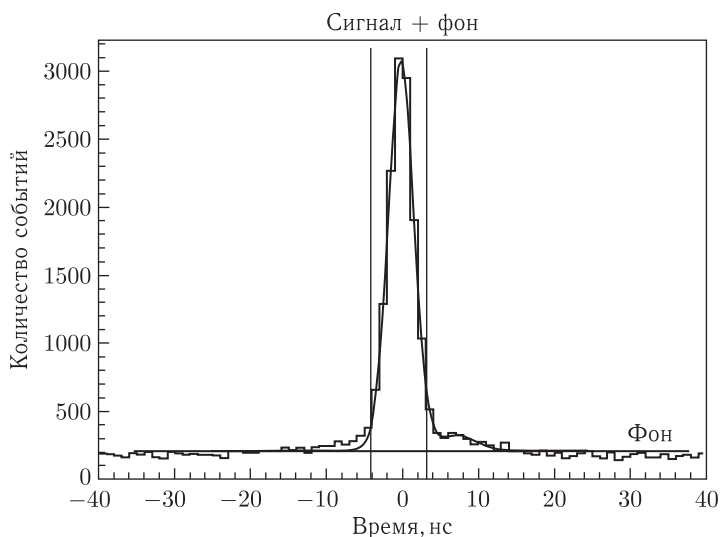


Рис. 2. Зависимость сечения реакции $d + t \rightarrow \alpha + n$ от энергии дейтрона


 Рис. 3. Временное распределение сигналов γ -квантов

На рис. 3 показано типичное распределение сигналов γ -квантов при облучении образца нейтронным генератором со встроенным α -детектором. Спектр набран в окне совпадений 100 нс, которое открывается в момент прихода α -частицы. Видно, что сначала приходят случайные γ -кванты от окружающих объектов, они имеют равномерное распределение по времени, образуя так называемую полку случайных совпадений. Затем приходят γ -кванты от объекта исследований, они образуют ярко выраженный пик, который может в 7–10 раз превосходить амплитуду полки случайных совпадений. Нулевая точка отсчета выбирается на временном спектре так, чтобы совпадать с максимумом пика сигналов от исследуемого объекта.

Кроме того, до и после основного пика имеются небольшие побочные пики, которые обуславливаются рассеянием нейтронов на элементах конструкции установки и сигналами рассеянных нейтронов, попадающих в α -детектор после прихода γ -квантов от объекта.

Важно отметить, что энергетические спектры γ -квантов из полки случайных совпадений и в области основного пика сильно различаются.

На рис. 4 показаны энергетические распределения γ -квантов из области случайных совпадений и от сигнала пробы почвы [5]. В первом случае имеем монотонный спектр от фона с характерными линиями железа 1,24 и 1,81 МэВ и пиком 2,22 МэВ от захвата тепловых нейтронов на водороде. В энергетическом спектре сигнала от пробы хорошо видны линии кислорода 2,74, 3,09, 3,68, 3,84 и 6,15 МэВ, кремния 1,78, 2,24 и 2,84 МэВ и углерода 4,44 МэВ (см. обсуждение в п. В.3).

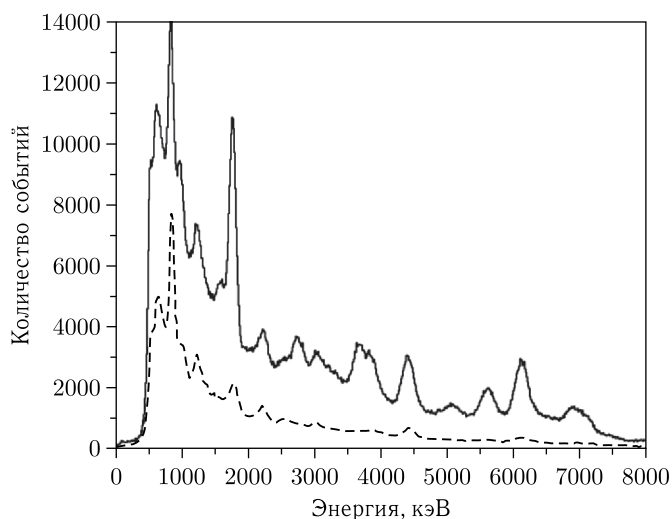


Рис. 4. Энергетическое распределение γ -квантов из области случайных совпадений (штриховая линия) и от сигнала пробы почвы (сплошная линия) [5]

В.3. Характеристические спектры элементов. Реакции неупругого рассеяния быстрых нейтронов приводят к возбуждению ядер исследуемого вещества. Это возбуждение снимается испусканием γ -квантов, энергетический спектр которых уникален для каждого химического элемента. На рис.5 показаны энергетические спектры некоторых распространенных элементов и оксидов.

Как видно из рис.5, в спектре углерода доминирует линия излучения γ -квантов с энергией 4,44 МэВ. Кроме того, четко виден пик одиночной утечки γ -квантов с энергией 0,511 МэВ, соответствующий энергии 3,93 МэВ. Столь простая форма γ -спектра углерода существенно упрощает задачу его распознавания.

Также на рис.5 показан энергетический спектр характеристического излучения для кислорода. Он был построен при облучении образца воды. Доминирующими являются линии 6,13 и 3,684 МэВ.

В табл.1 приведены данные по сечениям возбуждения линий кислорода в соответствующих реакциях неупругого рассеяния [6, 7].

Из данных табл.1 видна важная особенность быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ: сечения их неупругого взаимодействия с кислородом довольно велики, для линии 6130 кэВ они составляют $(148,0 \pm 10,0)$ мб. Еще больше величина сечения для линии 4438 кэВ углерода — порядка 180 мб. Значительные сечения взаимодействия порядка 200–400 мб имеются у быстрых нейтронов и с другими легкими элементами, такими как азот, фосфор, алюминий. На рис.6 показаны сечения наиболее сильных линий породообразующих элементов.

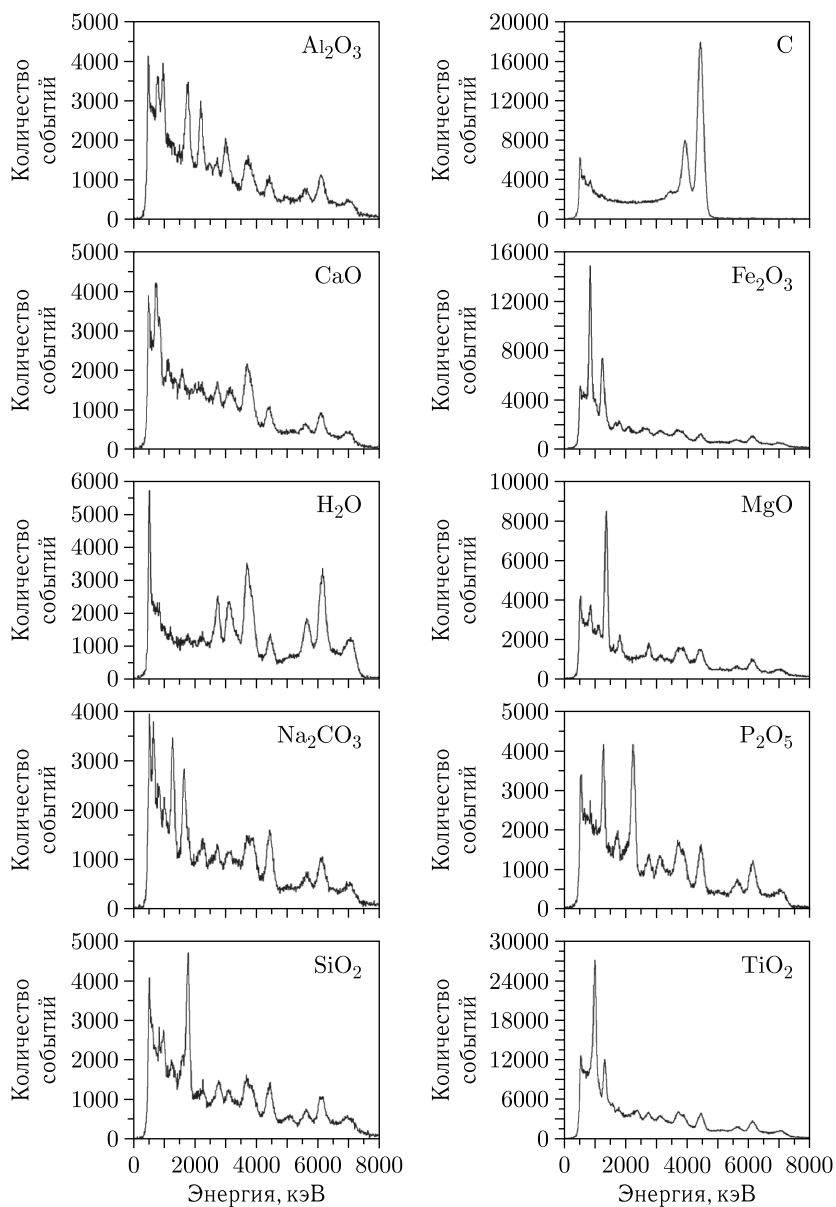


Рис. 5. Энергетические спектры γ -квантов при облучении образцов Al_2O_3 , C, CaO, Fe_2O_3 , H_2O , MgO, Na_2CO_3 , P_2O_5 , SiO_2 , TiO_2 нейтронами с энергией 14,1 МэВ

Таблица 1. Сечения γ -линий в ^{16}O

E_γ , кэВ	Реакция	σ , мб
7117	$(n, n')^{16}\text{O}$	$53,4 \pm 5,4$
6917	$(n, n')^{16}\text{O}$	$47,1 \pm 4,5$
6130	$(n, n')^{16}\text{O}$	$148,0 \pm 10,0$
4438	$(n, \alpha)^{13}\text{C}$	$17,2 \pm 2,2$
3854	$(n, n'\alpha)^{12}\text{C}$	$33,8 \pm 4,4$
3684	$(n, \alpha)^{13}\text{C}$	$57,6 \pm 5,4$
3089	$(n, \alpha)^{13}\text{C}$	$22,0 \pm 2,1$
2742	$(n, n')^{16}\text{O}$	$38,0 \pm 3,9$
1955	$(n, n')^{16}\text{O}$	$6,1 \pm 3,9$
1755	$(n, n')^{16}\text{O}$	$6,8 \pm 1,2$

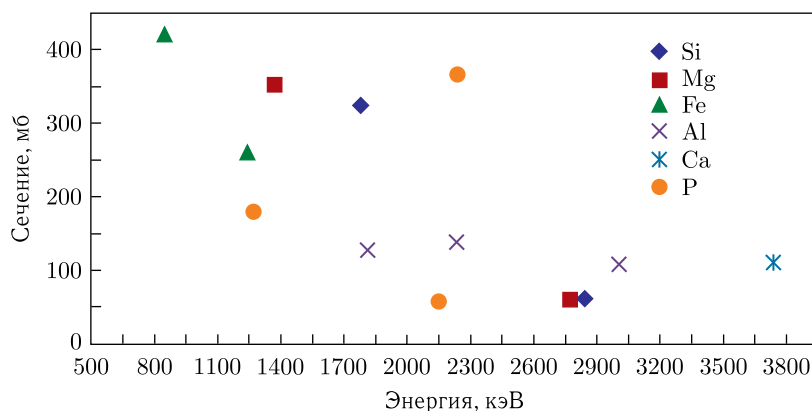


Рис. 6. Сечения возбуждения нейтронами с энергией 14,1 МэВ наиболее значительных линий Si, Mg, Fe, Al, Ca, P

Однако важно отметить, что сечения неупругого рассеяния быстрых нейтронов, как правило, в несколько раз меньше, чем сечения реакций захвата тепловых нейтронов. Исключение составляют сечения неупругого рассеяния быстрых нейтронов на легких элементах. Именно поэтому, например, при проведении обследования нефтяных скважин методом нейтронного каротажа принято [8], что концентрации тяжелых элементов, таких как Cl, S, Cu, K, Na, Ni, Ti, определяются при захвате тепловых нейтронов, тогда как реакции неупругого рассеяния быстрых нейтронов лучше всего подходят для определения концентрации C, O, Al, Fe, P, Mg, Si.

На рис. 6 хорошо видно, что линии некоторых элементов имеют близкие значения по энергии, например линии 2180 кэВ алюминия и фосфора или линии алюминия и кремния в области 1840 кэВ. Это усложняет

определение элементной концентрации для веществ, содержащих такие элементы.

Далее, из табл. 1 видно, что в характеристическом спектре γ -квантов при облучении быстрыми нейтронами присутствуют линии не только от простой реакции $A(n, n'\gamma)A$, но и от более сложных процессов неупругого рассеяния. Например, при облучении кислорода идут реакции типа $(n, \alpha)^{13}\text{C}$, в которых возбуждается углеродная линия 4438 кэВ (правда, с небольшим сечением). Поэтому при измерении спектра обычной воды может показаться, что в ней есть углерод. Это говорит о том, что задача восстановления элементного состава по характеристическим спектрам чистых элементов далеко не проста.

Необходимо отметить, что не у всех элементов характеристические спектры имеют одну или несколько ярко выраженных линий, как на рис. 5. Например, спектр золота при энергиях более 1 МэВ представляет собой совершенно монотонную зависимость, что делает невозможным определение концентрации золота с помощью ММН. Такая же ситуация складывается для спектров серебра, платины и других тяжелых металлов.

В.4. Преимущества ММН. Главное отличие ММН от других нейтронных методов — возможность получения информации о времени пролета γ -квантов. Это позволяет отбирать γ -кванты по времени пролета и тем самым выделять только те, которые были испущены из области исследуемого объекта.

Подавление фона. Наличие временной информации приводит к двум важным эффектам для улучшения отношения сигнал/фон. Во-первых, можно выделить область временного спектра, соответствующую приходу γ -квантов только от исследуемого объекта. Во-вторых, энергетический спектр γ -квантов от исследуемого объекта можно очистить от примеси случайных совпадений.

К чему приводит это преимущество, можно видеть по результатам, приведенным на рис. 7, где показаны энергетические спектры γ -квантов от облучения образца апатитовой руды массой 500 г. Также показан спектр фона установки, когда образец был убран. График на рис. 7, а получен при облучении образца, когда мечение нейтронов не проводилось. Видно, что спектры (образец + фон) и просто фон в такой постановке опыта практически неразличимы. Сигнал от образца массой 500 г в такой установке зафиксировать практически невозможно, а тем более определить его элементный состав. На графике (рис. 7, б) показан энергетический спектр образца и фона при облучении мечеными нейтронами. Видно, насколько улучшились условия регистрации. В данном опыте с применением ММН увеличилось отношение сигнал/фон в (176 ± 290) раз по сравнению с обычным нейтронным анализом.

Еще более наглядно преимущества ММН видны по результатам, показанным на рис. 8, где приведены спектры, полученные при облучении

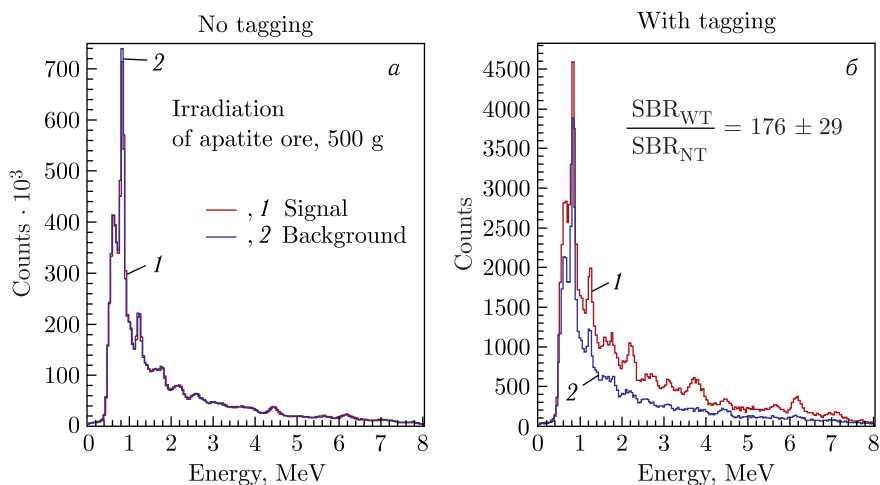


Рис. 7 (цветной в электронной версии). Энергетические спектры γ -квантов от облучения образца апатитовой руды массой 500 г (красные линии, 1), синими линиями (2) показан спектр фона установки, когда образец был убран: а) результаты без мечения нейтронов; б) с использованием ММН

пробы апатитовой руды массой 30 кг. Красной линией (1) показан энергетический спектр γ -квантов, отобранных в области временного пика, приведенного на рис. 3, т.е. γ -квантов, которые в основном вылетели из вещества пробы. Черной линией (2) показан спектр всех событий вне области временного пика от пробы, т.е. спектр фона от материала установки и ее окружения. Логарифмический масштаб на рис. 8 только подчеркивает разницу в количестве событий. Видно, что фоновые события намного (почти на фактор 200) превосходят полезные события.

Повышение точности определения элементных концентраций. Основным принципом нейтронного элементного анализа является то, что количество γ -квантов с энергией характеристической линии элемента пропорционально концентрации данного элемента. Однако при облучении быстрыми нейтронами вещества, состоящего из нескольких элементов, может получиться, что в области характеристической линии одного элемента могут оказаться γ -кванты, образованные от ядерных реакций с другим элементом. Наличие временной информации позволяет выделить вклад от фоновых процессов.

Самый простой пример — облучение объекта, в котором есть ядра как алюминия, так и водорода. Неупругое рассеяние нейтронов приводит к возбуждению ядер ^{27}Al , которое снимается испусканием γ -квантов с энергиями 844, 1015, 2211 и 3004 кэВ. Тепловые нейтроны эффективно захватываются на водороде с образованием γ -квантов с энергией 2233 кэВ. Поэтому в области пика алюминия 2211 кэВ обязательно бу-

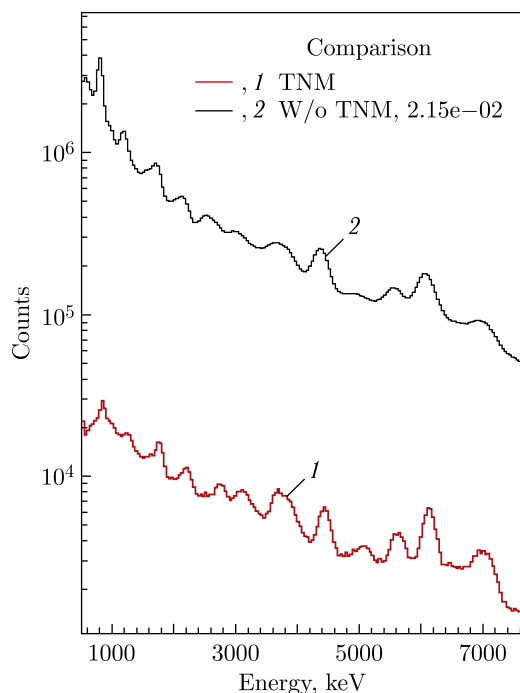


Рис. 8 (цветной в электронной версии). Спектр γ -квантов от пробы апатитовой руды (красная линия, 1) и фона от окружающей среды (черная линия, 2)

дут γ -кванты от захвата на водороде и концентрация алюминия, определенная по числу событий в пике 2211 кэВ, будет зависеть от влажности материала объекта.

Таких примеров наложения линий от захвата тепловых нейтронов на линии от неупругого рассеяния быстрых нейтронов можно привести достаточно много. ММН дает возможность учесть вклад реакций с тепловыми нейтронами, поскольку есть информация о времени прихода γ -квантов, и отделить этот фоновый сигнал от полезного.

3D-элементный анализ. Наличие α -детектора позволяет измерить длительность временного интервала между сигналами с α - и γ -детекторов и, зная скорость нейтрона (5 см/нс для нейтрона с энергией 14,1 МэВ), установить расстояние от источника нейтронов до точки, из которой был выпущен γ -квант. Поэтому ММН позволяет определить не только элементный состав образца, усредненный по зоне облучения, но и локальную концентрацию элемента в разных зонах как на поверхности, так и в глубине исследуемого образца. Эта особенность важна для такого применения, как нахождение опасных веществ (п. 3.4) или обнаружение алмазов в кимберлите (п. 3.1). Некоторые задачи планетологии

(например, поиск льда под поверхностью Марса) тоже могут решаться с помощью ММН (п. 3.7).

Большая проникающая способность. В ММН используются быстрые нейтроны с энергией 14,1 МэВ, которые имеют достаточно большую проникающую способность по сравнению с медленными и тепловыми нейтронами. Кроме того, в реакциях неупругого рассеяния образуются достаточно жесткие γ -кванты с энергиями 1–7 МэВ. В совокупности все это обеспечивает получение данных об элементном составе значительного объема вещества. В отличие от рентгеновских методов анализа или лазерной спектроскопии, с помощью которых получают сведения об элементном составе всего лишь нескольких миллиметров поверхности, глубинность применения ММН составляет порядка 30 см материала плотностью 1–2 г/см³. Для конвейерных анализаторов на основе ММН типичный объем вещества, для которого получены данные об элементном составе, — 40 × 40 × 30 см.

Хорошая чувствительность к концентрациям легких элементов С, N, O, P. Быстрые нейтроны с энергией 14,1 МэВ, которые используются в ММН, имеют большое сечение взаимодействия с легкими ядрами, что позволяет хорошо определять концентрации таких элементов, как С, N, O, P. Это является преимуществом ММН по сравнению с использованием тепловых нейтронов или методами рентгенофлуоресцентного анализа (РФА), которые эффективны только для элементов с существенно большим атомным номером.

Для практического применения ММН особенно важна его способность прямого определения концентрации кислорода. Это дает возможность, с одной стороны, устанавливать влажность пробы, а с другой — правильно находить концентрации элементов, независимо от влажности пробы (см. п. 3.2.2).

Отсутствие пробоподготовки. Практика показала, что анализаторы на основе ММН способны работать с пробами, взятыми прямо из карьера или привезенными с поля, без какой-либо пробоподготовки — сушки или дробления (см. п. 3.2.1).

Постоянство потока нейтронного генератора. Нейтронные анализаторы с радиоактивными источниками должны учитывать естественное падение интенсивности нейтронного потока со временем. В нейтронном генераторе за счет увеличения ускоряющего напряжения интенсивность нейтронного потока может поддерживаться постоянной на протяжении всего времени его эксплуатации. Когда ресурс нейтронного генератора заканчивается, он просто перестает включаться. Вплоть до этого момента можно поддерживать постоянную интенсивность нейтронного потока.

Возможность простого выключения нейтронного генератора. Нейтронный генератор в отличие от радиоактивного источника можно выключать при проведении каких-либо работ по обслуживанию конвейера в районе размещения анализатора. Например, можно установить

блокировку излучения при прохождении сотрудника мимо анализатора. Это полностью решит вопросы радиационной безопасности.

Мониторирование потока нейтронов. Очень важное преимущество ММН состоит в возможности эффективного мониторинга потока нейтронов по числу срабатываний α -детектора. Знание числа испущенных нейтронов очень помогает при различных калибровочных экспериментах, измерениях сечений взаимодействия нейтронов, исследованиях степени радиационных повреждений.

1. УСТАНОВКА НА ОСНОВЕ ММН

В состав типичной установки на основе ММН обязательно входят три компонента: источник нейтронов — нейтронный генератор со встроенным α -детектором, γ -детекторы характеристического излучения и электроника сбора данных. В зависимости от условий работы в состав установки может входить также биологическая защита.

1.1. Нейтронный генератор со встроенным α -детектором. Техника нейтронных генераторов получила широкое распространение для целей каротажа нефти. Типичный каротажный нейтронный генератор работает в импульсном режиме, в нем отсутствует устройство для меченя нейтронов — α -детектор. Нейтронный генератор для ММН создает постоянный поток нейтронов и обязательно содержит встроенный α -детектор. Интенсивность потоков нейтронов у типичных коммерческих генераторов варьируется от 10^7 до 10^8 с^{-1} , однако имеются лабораторные dt-генераторы с интенсивностью до $5 \cdot 10^9$ с^{-1} [9].

Типичный α -детектор изготавливается из кремния, однако имеются разработки α -детекторов из арсенида галлия. Важной особенностью α -детектора является его гранулярность и размер пикселя. Основные характеристики α -детекторов различных нейтронных генераторов (НГ) приведены в табл. 2.

Размер пикселя α -детектора определяет размер пучка меченых нейтронов. Если предположить, что размер пятна дейтронного пучка на мишени намного меньше по сравнению с размером пикселя, то размер D

Таблица 2. Характеристики α -детекторов различных нейтронных генераторов

Тип НГ	Материал α -детектора	Число меченых пучков	Размер пикселя, мм	Расстояние между пикселями, мм
ИНГ-27 [10]	Si	9	10,0	1,0
Sodern, Euritrack [11]	Si	64	5,8	0,2
API-120 [12]	YAP	256	3,0	—
ИНГ-27-64 [13]	Si	64	6,0	1,0
ИНГ-27-256 [14]	AsGa	256	4,0	0,1

пучка нейтронов на расстоянии L от мишени НГ определяется из простых геометрических соображений:

$$D = d \frac{L}{l}, \quad (2)$$

где d — размер пикселя α -детектора; l — расстояние α -детектора до тритиевой мишени.

Размер меченого пучка D и число пикселей α -детектора n , в свою очередь, определяют пространственный размер области S , находящейся в плоскости, перпендикулярной вектору импульса нейтрона:

$$S = nD. \quad (3)$$

Пространственный размер области по направлению вектора импульса нейтрона определяется временным разрешением системы α - γ -совпадений. Типичные значения временного разрешения составляют 2–4 нс. При скорости нейтрона 5 см/нс это соответствует расстоянию вдоль импульса нейтрона порядка 10–20 см.

Таким образом, можно определить элементарный объем, обычно называемый вокселем, который характеризует возможности установки по определению элементного состава вещества. Для корректного анализа элементного состава размер исследуемой области должен быть больше размера вокселя.

В табл. 3 приведены характеристики вокселя для нейтронного генератора ИНГ-27. Для портативных генераторов ИНГ-27 нами было проверено и выявлено, что размер пучка меченых нейтронов соответствует расчетам по формуле (2). Для измерений пространственного размера меченых пучков был использован сцинтилляционный профилометр. Он состоял из 16 полос пластикового сцинтиллятора шириной 7,5 мм каждая. Профилометр размещался на расстоянии 570 мм от мишени нейтронного генератора. Измерялось пространственное распределение 16 меченых пучков, которые создавались совпадениями сигналов с 16 вертикальных полос профилометра с одним пикселем α -детектора. Измеренные величины аппроксимировались гауссианами. Изучались нейтронные

Таблица 3. Характеристики вокселя для нейтронного генератора ИНГ-27. $l = 62$ мм, $d = 10$ мм. Масса вокселя рассчитана для $\rho = 1$ г/см³ и временного разрешения 2 нс

Расстояние L , см	Размер вокселя D , см	Масса вокселя m , г
5	0,8	8
10	1,6	16
20	3,2	32
30	4,8	48
50	9,0	90
100	16,0	160

генераторы производства ФГУП «ВНИИА» с пикселями размером 2, 4 [14] и 10 мм [10]. Для α -детектора с пикселем размером 10 мм все измеренные данные полностью совпали с расчетными по формуле (2). Для α -детекторов с малым размером пикселя ситуация более сложная. На рис. 9 показаны результаты аппроксимации гауссианами пространственных распределений меченых пучков, создаваемых α -детекторами с пикселями размером 2 и 4 мм.

Результаты измерений пространственных распределений меченых пучков на расстоянии $L = 570$ мм сравниваются с расчетными данными для точечного дейтронного пучка, приведенными в табл. 4. Видно, что для α -детектора с пикселем 4 мм размеры меченого пучка (ширина пика и расстояние между пиками) находятся в определенном согласии с расчетными значениями в предположении о точечном характере дейтронного пучка. Тогда как для α -детектора с пикселем 2 мм результаты, приведенные в табл. 4, показывают, что, хотя расстояние между пиками уменьшилось в полном соответствии с геометрическими расчетами по

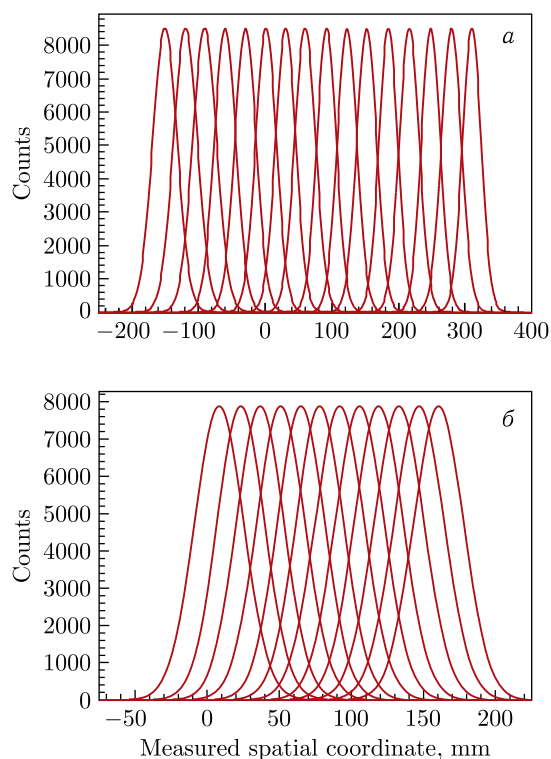


Рис. 9. Результаты аппроксимации гауссианами пространственных распределений 16 меченых пучков для α -детектора с пикселями 4 (а) и 2 мм (б)

Таблица 4. Размеры вокселя для α -детекторов с пикселями разного размера

Параметр	Значение	
	Размер пикселя, мм	2
Расстояние между максимумами пиков D , мм	$13,8 \pm 0,6$	$30,7 \pm 0,4$
Ширина пиков FWHM, мм	$40,0 \pm 0,9$	$36,6 \pm 0,8$
Размер вокселя для точечного дейтронного пучка D , мм	14,8	38

формуле (2), ширина пучков практически не изменилась по сравнению с пикселем 4 мм. Это означает, что размеры пикселя стали сравнимыми с размерами дейтронного пучка на мишени и дальнейшее уменьшение размера пикселя не приведет к уменьшению размеров пучка нейтронов. Поэтому для ИНГ-27 размер пикселя 4 мм можно считать оптимально наименьшим.

Важной характеристикой нейтронного генератора является срок его службы. Для генератора ИНГ-27-8-9, в состав которого входят два блока нейтронной трубки, он составляет 1500 ч при интенсивности $5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Рекордное время работы одной нейтронной трубки генератора ИНГ-27-8-9 в настоящее время составляет 1127 ч. Нейтронный генератор А-120М фирмы ThermoFisher имеет ресурс 1200 ч при интенсивности $1 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Наибольшее время жизни у нейтронных генераторов фирмы Sodern — до 10 000 ч.

1.2. Гамма-детекторы. В качестве детектора γ -квантов на основе ММН используются различные сцинтилляционные детекторы. Основные требования, которые к ним предъявляются, следующие:

- высокая эффективность регистрации γ -квантов в диапазоне энергий от 1 до 10 МэВ;
- низкая чувствительность к нейтронному фону;
- хорошее энергетическое и временное разрешение в указанном диапазоне энергий γ -квантов;
- малое время высвечивания сцинтиллятора.

В настоящее время наиболее часто используются детекторы γ -квантов на основе неорганических сцинтилляторов NaI(Tl), BGO и LaBr₃(Ce). Основные характеристики этих сцинтилляторов приведены в табл. 5.

Йодит натрия, активированный таллием, является одним из наиболее распространенных сцинтилляторов, применяемых для регистрации γ -излучения. Его отличительной особенностью является высокий световыход, определяющий хорошее энергетическое разрешение, которое составляет $\sim 7\%$ для γ -квантов с энергией 662 кэВ. К недостаткам кристалла NaI(Tl) следует отнести гигроскопичность, хрупкость, а также высокую чувствительность к нейтронному фону.

Таблица 5. Характеристики сцинтилляторов [15]

Параметр	Кристалл		
	NaI(Tl)	BGO	LaBr ₃ (Ce)
Плотность, г/см ³	3,67	7,13	5,29
Эффективный атомный номер Z	50	75	47
Радиационная длина, см	2,59	1,12	1,88
Время высвечивания, нс	245	300	20
Длина волны в максимуме спектра, нм	410	480	356
Световыход относительно NaI, %	100	21	130
Коэффициент преломления	1,85	2,15	1,9
Температура плавления, °С	651	1050	788
Радиационная стойкость, Гр	10 ³	10 ³ –10 ⁴	—
Гигроскопичность	Да	Нет	Да

Детекторы на основе кристалла бромида лантана LaBr₃(Ce) имеют больший световыход и лучшее энергетическое разрешение (~ 2,9% на линии 662 кэВ [16]) по сравнению с кристаллом NaI(Tl). Малое время высвечивания кристалла (~ 20 нс) позволяет применять γ -детекторы в условиях большой загрузки без существенного ухудшения их энергетического разрешения. Временное разрешение системы α - γ -совпадений составляет ~ 1,1 нс [17].

Основным преимуществом детекторов на основе кристалла германата висмута BGO (Bi₄Ge₃O₁₂) является самая большая эффективность регистрации γ -квантов по сравнению с кристаллами NaI(Tl) и LaBr₃(Ce), поскольку, как видно из данных табл. 5, кристаллы BGO имеют самую высокую плотность и наибольший эффективный атомный номер.

Зависимость эффективности регистрации γ -квантов от энергии γ -квантов видна из данных табл. 6 для трех кристаллов одинакового размера 3 × 3". В качестве реперной выбрана эффективность NaI при энергии 1,33 МэВ, с которой сравниваются все остальные.

Также видно, что эффективность регистрации γ -квантов для BGO всегда больше по сравнению с другими кристаллами. Причем, естественно, чем больше энергия γ -квантов, тем преимущества BGO становятся

Таблица 6. Эффективность регистрации (по пику полного поглощения) γ -квантов с энергиями 0,368, 1,33 и 6 МэВ по отношению к эффективности регистрации γ -квантов с энергией 1,33 МэВ детектором с кристаллом NaI [10]

Кристалл	Энергия, МэВ		
	0,368	1,33	6
NaI	2,8	1,0	0,26
LaBr ₃	2,9	1,4	0,46
BGO	3,6	2,5	1,36

все заметнее. При энергиях порядка 4–6 МэВ эффективность регистрации γ -квантов у ВГО почти в 5 раз больше, чем у NaI, и почти в 3 раза превышает эффективность регистрации LaBr₃. Это означает, что время набора статистики, необходимой для достижения заданной точности анализа, у детекторов на основе ВГО в 3–5 раз меньше, чем у детекторов NaI или LaBr₃. К тому же стоимость детектора на основе LaBr₃ намного больше, чем на основе ВГО.

Основной недостаток ВГО-детекторов — резкая зависимость световыхода и времени высвечивания кристалла от температуры. При изменении температуры кристалла от 0 до 40 °С длительность сцинтилляционной вспышки уменьшается от 400 до 200 нс, а световыход падает более чем в 2 раза [18]. Значение температурного коэффициента изменения световыхода зависит от качества кристалла и находится в интервале от 1 до 1,6 %/°С.

Эти особенности разных детекторов γ -квантов определяют тактику их применения. Например, в проекте С-BORD, предназначенном для досмотра крупногабаритных грузов на таможне [19, 20], используются детекторы и с LaBr₃, и с NaI. Причем первые предназначены для регистрации γ -излучения от запрещенных ядовитых веществ (мышьяк, бром, йод) с энергиями меньше 500 кэВ, тогда как детекторы с NaI используются для обнаружения взрывчатых веществ, дающих характерные линии в области 4–6 МэВ (углерод, кислород, азот) и обычных веществ (железо, кремний, алюминий и др.).

Для компенсации зависимости световыхода детекторов на основе ВГО используются различные приемы — от термостатирования объемов, в которых находятся детекторы [21], до температурной коррекции отклика γ -детекторов [22].

Для прецизионной γ -спектрометрии применяются спектрометры на основе детекторов из особо чистого германия (ОЧГ, или HPGe). Основу такого спектрометра составляет полупроводниковый ОЧГ-детектор, обладающий рекордным энергетическим разрешением, приближающимся к 0,1 % при энергиях γ -квантов порядка нескольких мегаэлектронвольт [23]. Детекторы на основе ОЧГ практически не применялись до последнего времени в комбинации с ММН, так как помимо их основного преимущества — высокого энергетического разрешения — эти детекторы обладают рядом недостатков:

- низким временным разрешением, снижающим эффективность подавления фона за счет совпадений;
- сравнительно низкой эффективностью и высокой стоимостью по сравнению со сцинтилляционными детекторами;
- необходимым охлаждением германиевого кристалла до азотных температур;
- сравнительно низкой радиационной стойкостью, что приводит к ухудшению разрешения при длительном облучении быстрыми нейтронами;

— сравнительно низкой загрузочной способностью по сравнению со сцинтилляционными детекторами.

Тем не менее рекордно высокое энергетическое разрешение таких детекторов, превышающее типичное разрешение сцинтилляционных детекторов более чем на порядок, делает их использование в ряде случаев оправданным, в том числе с применением ММН, несмотря на вышеуказанные недостатки [24, 25].

1.3. Электроника. В экспериментах с мечеными нейтронами для накопления данных использовались полностью цифровые системы сбора данных (так называемые оцифровщики), каждая из которых представляет собой систему аналогово-цифровых преобразователей, тактируемых одним генератором тактовой частоты, что позволяет получать и сохранять в промежуточную память измеренные значения напряжения с привязкой по времени (такту). Накопленные таким образом осциллограммы импульсов считываются управляющей электроникой, в некоторых случаях с ними выполняются математические операции, после чего осциллограммы или параметры импульсов передаются в компьютер через последовательный интерфейс. В экспериментах с мечеными нейтронами использовались два типа оцифровщика: АДСМ и ЦРС (цифровой регистратор сигналов).

Оцифровщик АДСМ разработан ООО «Афрес» (Дубна). Имеются несколько модификаций оцифровщика, в работах с мечеными нейтронами использовались модели на основе интерфейса PCI-express с 32 и 64 каналами. Оцифровщик выполнен в виде одной или нескольких PCI-e плат, встроенных в мощный компьютер, работающий на основе ОС Linux. Тактовая частота 32-канального оцифровщика — 100 МГц, 64-канального — 62,5 МГц. В АДСМ реализована встроенная схема совпадений, разработанная, по сути, специально под ММН. Для реализации такой схемы входные каналы оцифровщика, которые подсоединены к выходам встроенного в ИНГ-27 α -детектора, помечаются как α -каналы, а каналы, подсоединенные к выходам детекторов γ -квантов, — как γ -каналы. Задаются параметры схемы совпадений, такие как ширина и временной сдвиг окна совпадений, минимальная и максимальная множественности, а также параметры считывания импульсов — длина оцифровки и предзаписи. Стартом схемы совпадений служит срабатывание одного из γ -каналов. Наличие схемы совпадений позволяет передавать на компьютер оцифрованные формы только сигналов, участвовавших в совпадении, что позволяет выдерживать высокую входную загрузку. Обработка сигналов происходит на компьютере с определением точной временной привязки, амплитуды и ширины сигнала.

Оцифровщик ЦРС разработан в ЛНФ ОИЯИ в сотрудничестве с С. В. Алпатовым. Он имеет несколько модификаций: ЦРС-2, ЦРС-8, ЦРС-32 и ЦРС-128 соответственно на 2, 8, 32 и 128 каналов. Все модели ЦРС поддерживают интерфейс USB-3 для высокоскоростной

Таблица 7. Характеристики оцифровщиков, используемых в экспериментах с мечеными нейтронами

Характеристика	ADCM	ЦРС
Число каналов	16/32/64	2/32/8/128
Разрядность АЦП, бит	14	11/16
Частота оцифровки, МГц	100/66	200/100
Диапазон входных амплитуд, В	$-1 \div 1$	$-1 \div 1$
Скорость передачи данных, МБ/с	~ 250	$\sim 190/380$
Тип интерфейса	PCI-e	USB-3
Тип передачи данных	Форма сигнала	Параметры сигнала
Тип анализа данных	Программа на ПК	ПЛИС
Максимальная скорость счета, событий/с	$\sim 10^5$	$\sim 5 \cdot 10^6$

передачи данных на компьютер. Тактовая частота оцифровщиков ЦРС-2 и ЦРС-32 — 200 МГц, ЦРС-8 и ЦРС-128 — 100 МГц. Отличительной особенностью оцифровщиков ЦРС является возможность обработки и определения параметров сигналов на уровне встроенной в оцифровщик программируемой логической интегральной схемы (ПЛИС), что позволяет существенно увеличить пропускную способность прибора по сравнению с ADCM. Основные характеристики оцифровщиков ADCM и ЦРС представлены в табл. 7.

Большая часть экспериментов была поставлена с использованием ADCM, а все эксперименты с γ -спектрометром на основе ОЧГ были проведены с использованием системы ЦРС.

2. ИЗМЕРЕНИЯ ВЫХОДОВ И УГЛОВЫХ КОРРЕЛЯЦИЙ НЕЙТРОНОВ И ГАММА-КВАНТОВ В ПРОЕКТЕ TANGRA

Прецизионное исследование реакций неупругого рассеяния нейтронов на ядрах различных веществ играет важную роль не только в физике фундаментальных исследований, но и в решении целого ряда задач прикладного характера. Эти исследования позволяют, например, осуществить корректный выбор конструкционных материалов, используемых в качестве передней стенки термоядерных реакторов, и выбор эффективной радиационной защиты ядерных объектов.

Важным преимуществом ММН для такого рода исследований является возможность мониторинга потока меченых нейтронов практически со 100%-й эффективностью. Более того, за счет введения $(\alpha-\gamma)$ -, $(\alpha-n')$ -, $(\alpha-n'\gamma)$ -совпадений уровень фона понижается более чем в 200 раз. Таким образом, указанные возможности ММН позволяют проводить прецизионные исследования процессов типа (n, n') , $(n, n'\gamma)$ $(n, \alpha'\gamma)$ и др. с широким диапазоном ядер по массовому числу.

В ОИЯИ ведутся экспериментальные исследования с использованием ММН в рамках проекта TANGRA (TAGged Neutrons and Gamma-RAs) [26, 27]. Были проведены измерения выходов γ -квантов с помощью детектора на основе ОЧГ и угловых распределений γ -квантов с использованием многодетекторных систем на основе сцинтилляторов NaI(Tl) и BGO, а также угловых распределений упруго- и неупругорассеянных нейтронов с использованием пластиковых сцинтилляционных нейтронных детекторов. Во всех экспериментах применялся нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным 64-пиксельным (8×8) кремниевым детектором α -частиц производства ФГУП «ВНИИА». Результаты измерений опубликованы в работах [25–41].

2.1. Измерение выходов γ -квантов. ММН может быть успешно применен для определения выходов γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с различными элементами. Определение выходов важно как для библиотек ядерных данных, так и для быстрого элементного анализа с использованием нейтронов с энергией 14,1 МэВ.

Наиболее удобным инструментом для определения выходов является спектрометр высокого разрешения на основе ОЧГ. Применение такого рода детекторов позволяет идентифицировать близко лежащие уровни, разделение которых становится практически невозможным с помощью сцинтилляционных детекторов, энергетическое разрешение которых гораздо хуже. В сравнении энергетические спектры γ -квантов для образца из железа, полученные с помощью сцинтилляционного BGO-детектора и полупроводникового ОЧГ-детектора, показаны на рис. 10.

Использование спектрометра высокого разрешения в комбинации с ММН дает дополнительные преимущества: позволяет подавить фон от окружения, а также однозначно определить, откуда испущена каждая из наблюдаемых γ -линий — из мишени-образца или из окружающих материалов.

Для набора γ -спектров с высоким разрешением использовался детектор на основе ОЧГ ORTEC_GMX30_83_PL_S [42]. Схема установки в этой конфигурации приведена на рис. 11. Из-за малой по сравнению со сцинтилляторами эффективности детектор размещался на минимально возможном расстоянии от образца. Для защиты детектора от попадания прямых нейтронов из генератора использовался свинцовый коллиматор толщиной 18 см. В качестве образца брали различные материалы, как правило, в виде порошка или гранул, которые засыпали в прямоугольный контейнер из алюминия толщиной 0,2 мм. Высота контейнера составляла 14 см, а ширина и толщина варьировались от 4 до 8 см в зависимости от плотности и поглощающей способности исследуемого материала. Высота образца была выбрана таким образом, чтобы он полностью перекрывал все меченые пучки по вертикали. Таким образом, ОЧГ-детектор позволя-

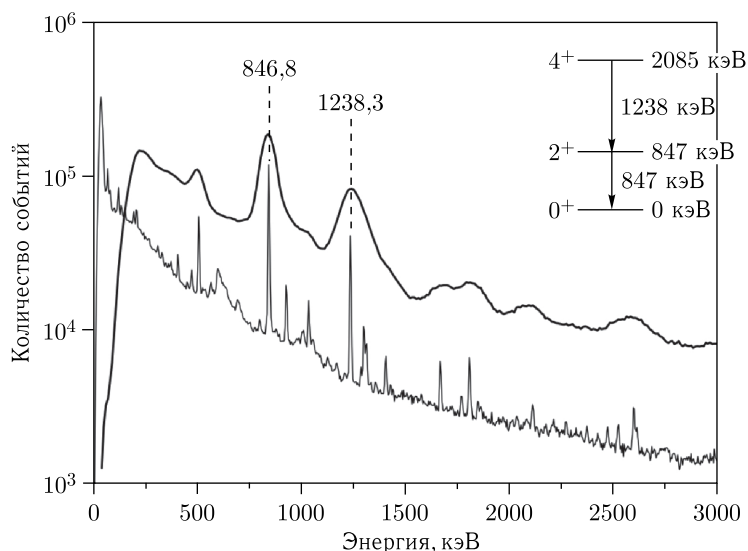


Рис. 10. Энергетические спектры γ -квантов для железа, полученные с помощью детекторов на основе BGO (верхний спектр) и ОЧГ (нижний спектр)

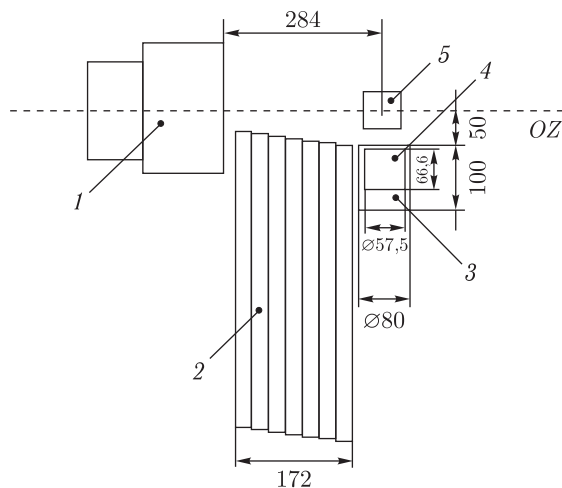


Рис. 11. Схема экспериментальной установки с детектором на основе ОЧГ (вид сверху): 1 — нейтронный генератор ИНГ-27; 2 — свинцовый коллиматор; 3 — ОЧГ-детектор; 4 — кристалл ОЧГ; 5 — облучаемый образец. Все размеры приведены в миллиметрах

ет проводить измерения выходов γ -излучения для большого количества линий и впоследствии получать сечения излучения γ -квантов отдельных энергий.

Таблица 8. Параметры ОЧГ-детектора

Параметр	Значение
Соотношение площади фотопика к комптону (^{60}Co)	62:1
Относительная эффективность (^{60}Co), %	36
FWTM/FWHM (^{60}Co)	1,9
FWFM/FWHM (^{60}Co)	2,7

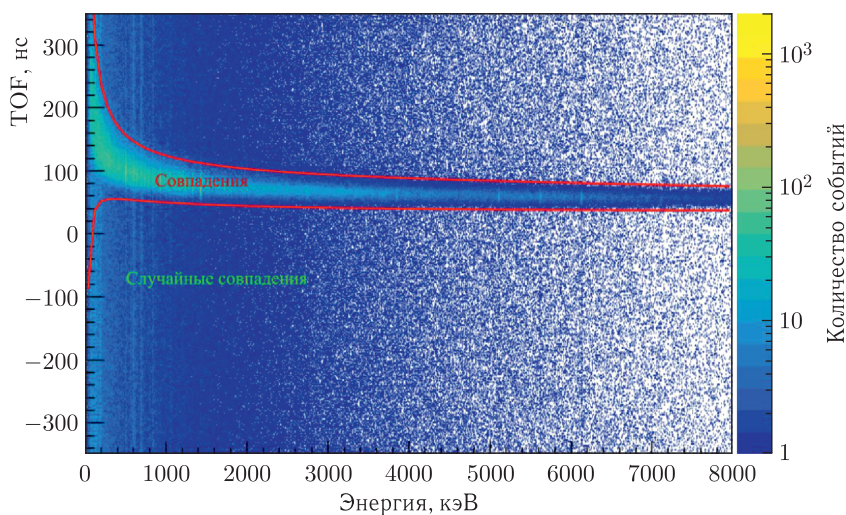


Рис. 12 (цветной в электронной версии). Полный амплитудно-временной спектр, полученный в эксперименте с образцом оксида хрома. Границы энергетически-временного окна совпадений показаны красными линиями

Параметры ОЧГ-детектора, гарантированные изготовителем, приведены в табл. 8.

При анализе данных, полученных на установке с ОЧГ-детектором, строились двумерные спектры время–амплитуда (рис. 12), на которых выбиралось окно α – γ -совпадений. События внутри окна совпадений соответствуют реакциям, проходящим под действием меченых нейтронов в образце, а вне этого окна — фоновым событиям от взаимодействия немеченых нейтронов с окружением образца, т. е. случайным совпадениям.

На рис. 13 показаны фрагменты энергетических спектров γ -квантов в окне совпадений (А) и вне этого окна, т. е. спектр случайных совпадений (Б). Спектр вне окна совпадений нормировался соответствующим образом, с учетом ширины окна случайных совпадений и ширины окна совпадений. Так как спектр случайных совпадений не меняется во времени, при такой нормировке спектр Б является подложкой (фоновым спектром) для спектра А. Спектр В на рис. 13 соответствует «чистому»

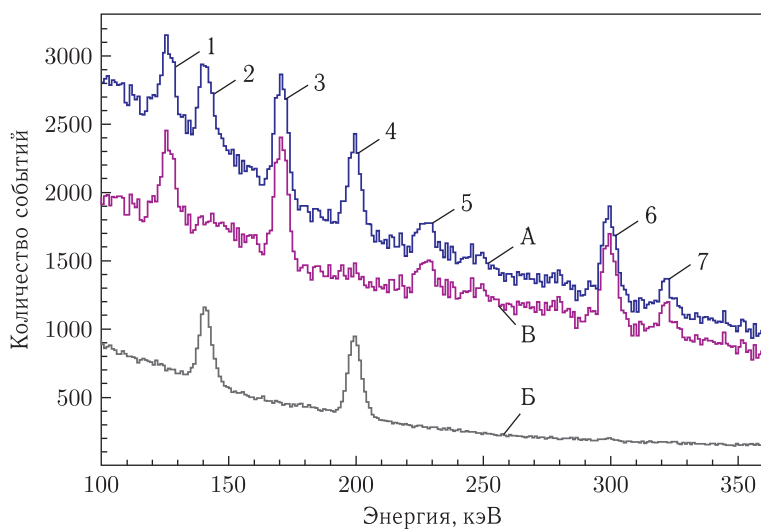


Рис. 13. Фрагмент энергетического спектра γ -квантов, измеренного ОЧГ-детектором для образца Cr_2O_3 : А — события в окне совпадений; Б — фон случайных совпадений в этом же окне; В — чистый спектр за вычетом фона случайных совпадений

Таблица 9. Энергии пиков, наблюдаемых на рис. 13, и сечения образования, рассчитанные с помощью кода TALYS [43]

Номер пика	Энергия, кэВ	Реакция	Сечение σ , мб
1	124,5	$^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$	6,4
	125,1		12,1
2	140,1	$^{209}\text{Bi}(n, n')^{209}\text{Bi}$	4,4
	140,3	$^{209}\text{Bi}(n, 2n)^{208}\text{Bi}$	101,2
3	169,3	$^{16}\text{O}(n, \alpha)^{13}\text{C}$	23,1
4	200,0	Фон	—
5	226,2	$^{50}\text{Cr}(n, p)^{50}\text{V}$	10,7
6	298,2	$^{16}\text{O}(n, p)^{15}\text{N}$	22,5
7	320,1	$^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$	8,6

энергетическому спектру за вычетом случайных совпадений. Видно, что методика совпадений с мечеными нейтронами позволяет легко и надежно отделять γ -линии от образца (пики 1, 3, 5, 6, 7) от фоновых γ -линий (пики 2 и 4). Список наблюдаемых γ -линий представлен в табл. 9.

После выбора корректного временного окна и вычитания спектра случайных совпадений определяются площади фотопиков из чистого спектра совпадений для нахождения выходов γ -квантов. Так как германиевый

детектор обладает хорошим энергетическим разрешением, то отсутствует необходимость в таких достаточно сложных подходах аппроксимации γ -спектров, как функция отклика, и при обработке данных с ОЧГ-детектора фотопики аппроксимировались гауссианами на плоской подложке. Пример аппроксимации спектра, полученного с помощью ОЧГ-детектора при облучении оксида хрома, приведен на рис. 14.

Основным результатом экспериментов с ОЧГ-детектором являются выходы γ -квантов отдельных энергий. Информация об эффективности детектора и коэффициенте ослабления γ -лучей является критически важной для их получения. Так как излучение γ -квантов имеет довольно протяженную область, расположенную близко к детектору, использование экспериментальных значений эффективности, получаемых в результате измерений с калибровочными изотопными источниками, оказывается некорректным. Кроме того, из-за большой протяженности излучающей области не представляется возможным разделить эффективности регистрации γ -лучей и коэффициенты их поглощения, так как они индивидуальны для любой точки излучения γ -квантов. Исходя из этого был введен коэффициент $\varepsilon(E_\gamma)$, представляющий собой свертку эффективности детектора и поглощения в образце такой, что

$$N_\gamma = \varepsilon(E_\gamma)N_{\gamma 0}, \quad (4)$$

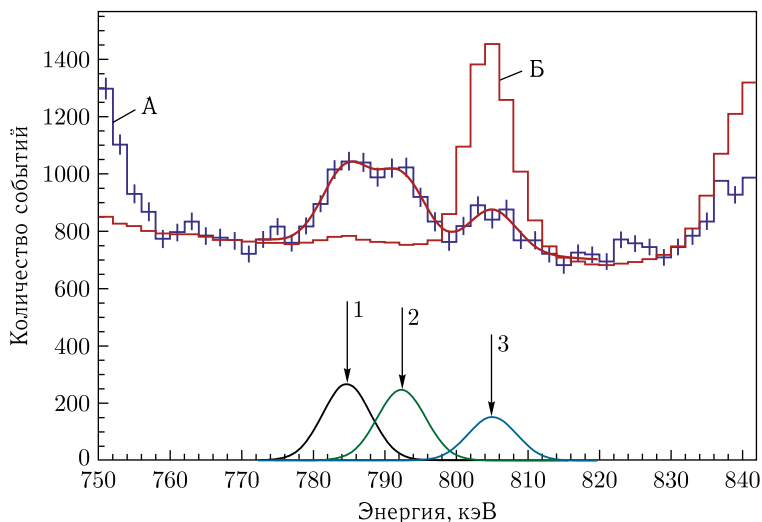


Рис. 14 (цветной в электронной версии). Пример аппроксимации γ -спектра, полученного с помощью ОЧГ-детектора при облучении образца из оксида хрома (синяя гистограмма, А), в сравнении со спектром антисовпадений (красная гистограмма, Б): 1 — пик 783,3 кэВ, реакция $^{50}\text{Cr}(n, n')^{50}\text{Cr}$; 2 — пик 791,3 кэВ, реакция $^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$; 3 — фон

где N_γ — количество зарегистрированных детектором γ -квантов, а $N_{\gamma 0}$ — число рожденных в образце γ -квантов. Коэффициент $\varepsilon(E_\gamma)$ определялся как функция энергии γ -квантов при моделировании экспериментальной установки с помощью Geant4 [43]. При этом расчетные зависимости эффективности детектора от энергии нормировались на экспериментальные значения, определенные в результате калибровочных измерений со стандартными источниками γ -излучения.

Здесь и далее выходами γ -квантов называются величины, соответствующие сечениям излучения γ -лучей конкретных энергий для данного элемента, нормированным на сечение для наиболее сильной линии в спектре для этого же элемента. Экспериментально выход γ -квантов Y_i с энергией E_i определяется как

$$Y_i = \frac{N_i}{N_0}, \quad (5)$$

где N_i — количество испущенных образцом γ -квантов с энергией E_i ; N_0 — количество испущенных образцом γ -квантов с энергией E_0 (наиболее интенсивная линия в спектре). Практика показывает, что величины сечений излучения γ -квантов, которые можно найти в публикациях, значительно отличаются друг от друга вне пределов ошибок, что, по-видимому, объясняется погрешностями при определении нейтронного потока. При определении же выходов вероятность ошибки значительно меньше из-за того, что на их величины будут влиять только неточности относительных коэффициентов поглощения γ -лучей веществом образца и относительных эффективностей детекторов.

Пересчет сечений излучения γ -квантов, полученных в других экспериментах или рассчитанных в TALYS [44], в выходы для сравнения с результатами наших измерений выполнялся по следующей формуле:

$$Y_i = \frac{\eta_j \sigma_i^\gamma}{\eta_0 \sigma_0^\gamma}, \quad (6)$$

где η_j — доля j -го элемента в естественной смеси изотопов; σ_i^γ — сечение излучения γ -кванта энергии E_i ; η_0 — доля элемента в естественной смеси изотопов; σ_0^γ — сечение излучения γ -кванта энергии E_0 , на которую происходит нормировка.

В табл. 10 в качестве примера приведены параметры γ -переходов для хрома, полученные при измерении с образцом Cr_2O_3 . Выходы отдельных γ -линий были определены по формуле (5) и нормированы на линию 1434,1 кэВ. Неопределенности в определениях выходов приводятся с учетом статистических и систематических погрешностей. Из приведенных в табл. 10 данных видно, что выходы для 13 γ -переходов нами были определены впервые, из них шесть γ -переходов соответствуют реакции $^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$ и по одному переходу — реакциям $^{50}\text{Cr}(n, p)^{50}\text{V}$, $^{50}\text{Cr}(n, n')^{50}\text{Cr}$, $^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$, $^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$, $^{52}\text{Cr}(n, d)^{51}\text{V}$, $^{53}\text{Cr}(n, n')^{53}\text{Cr}$ и $^{54}\text{Cr}(n, n')^{54}\text{Cr}$. Для некоторых линий мы не смогли корректно определить индивидуальные выходы, так как соседние γ -линии находятся

Таблица 10. Параметры измеренных γ -переходов для хрома. Звездочкой помечены неразделенные γ -переходы. Для γ -переходов, которые выделены жирным шрифтом, определены угловые распределения

E_γ , кэВ	Реакция	J_i^P (E_i , кэВ)	J_j^P (E_j , кэВ)	Y_γ , %		
				Наша работа	[46]	[6]
124,4	$^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$	1^+ (141,6)	2^+ (17,2)	2,4(0,5)	—	—
226,3	$^{50}\text{Cr}(n, p)^{50}\text{V}$	5^+ (226,2)	6^+ (0)	3,0(0,6)	—	—
320,1	$^{52}\text{Cr}(n, d)^{51}\text{V}$	$5^-/2$ (320,1)	$7^-/2$ (0)	2,2(0,8)	—	1,8(0,1)
567,0	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	4^+ (4039,2)	3^+ (3472,2)	5,0(0,9)	—	—
600,2	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	5^+ (4015,5)	4^+ (3415,3)	10,0(1,6)	—	—
645,7*	$^{52}\text{Cr}(n, p)^{52}\text{V}$	3^+ (793,5)	4^+ (147,8)	8,5(1,0)	—	8,9(0,3)
647,5*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	4^+ (3415,3)	4^+ (2767,8)	—	—	—
704,5	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	3^+ (3472,2)	4^+ (2767,8)	—	—	5,4(0,2)
744,2*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	6^+ (3113,9)	4^+ (2369,6)	12,3(1,5)	16,3(2,9)	9,1(0,3)
749,1*	$^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$	$3^-/2$ (749,1)	$7^+/2$ (0)	—	—	5,4(0,2)
783,3	$^{50}\text{Cr}(n, n')^{50}\text{Cr}$	2^+ (783,3)	0^+ (0)	4,2(0,5)	—	—
791,3	$^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$	3^- (4563,0)	2^+ (3771,7)	2,9(0,5)	—	—
834,9	$^{54}\text{Cr}(n, n')^{54}\text{Cr}$	2^+ (834,9)	0^+ (0)	3,1(0,4)	—	—
848,2	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	5^+ (3615,9)	4^+ (2767,8)	7,3(0,5)	—	—
935,5	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	4^+ (2369,6)	2^+ (1434,1)	33,5 (0,8)	26,9(3,8)	30,3(1,2)
1164,6	$^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$	$9^-/2$ (1164,6)	$7^-/2$ (0)	—	—	4,6(0,2)
1246,3*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	5^+ (3615,9)	4^+ (2369,6)	5,8(0,9)	—	5,0(0,2)
1247,7*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	5^+ (4015,5)	4^+ (2767,8)	—	—	—
1289,5	$^{53}\text{Cr}(n, n')^{53}\text{Cr}$	$7^-/2$ (1289,5)	$3^-/2$ (0)	3,3(0,7)	—	—
1333,7	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	4^+ (2767,8)	2^+ (1434,1)	26,4(0,8)	22,1(4,0)	26,2(1,0)
1434,1	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	2^+ (1434,1)	0^+ (0)	100	100	100
1530,7	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	2^+ (2964,8)	2^+ (1434,1)	6,8(0,6)	9,5(3,0)	5,1(0,2)
1727,7*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	2^+ (3161,7)	2^+ (1434,1)	5,7(0,7)	—	3,3(0,1)
1730,4*	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	3^- (4100,0)	4^+ (2369,6)	—	—	—
2038,2	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	3^+ (3472,2)	2^+ (1434,1)	1,7(0,5)	—	—
2257,7	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	4^+ (4627,3)	4^+ (2369,6)	1,1(0,5)	—	—
2337,6	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	2^+ (3771,7)	2^+ (1434,1)	2,1(0,6)	—	—
3128,9	$^{52}\text{Cr}(n, n')^{52}\text{Cr}$	3^- (4563,0)	2^+ (1434,1)	2,0(0,7)	—	—

Примечание. Энергии γ -квантов E_γ , а также спины, четности и энергии J^P (E) начального (i) и конечного (j) состояний взяты из [45]. Для измеренных в данной работе свойств γ -переходов приводятся только статистические погрешности. Измеренные выходы γ -переходов Y_γ сравниваются с результатами расчетов в TALYS-1.9 и с известными опубликованными данными.

близко друг от друга и не разделяются. Такие пары линий помечены в таблице звездочкой, для них приводится суммарный выход для двух линий. Следует отметить, что их суммарные выходы хорошо согласуются с известными опубликованными данными и расчетами в TALYS-1.9.

Также можно добавить, что линия с энергией 704,5 кэВ, соответствующая реакции $^{52}\text{Cr}(n, n)^{52}\text{Cr}$, а также линия 1164,6 кэВ, соответствующая реакции $^{52}\text{Cr}(n, 2n)^{51}\text{Cr}$, наблюдавшаяся в работе [46] и присутствующая в базе данных TALYS-1.9, нами не были обнаружены.

Мы предполагаем, что эти линии находятся ниже нашего порога чувствительности по сечению. Для γ -переходов, которые выделены жирным шрифтом, были определены угловые распределения.

В целом наблюдается приемлемое согласие по выходам между нашими измерениями и опубликованными данными, за исключением дублета 1727,7–1730,4 кэВ, что, по-видимому, объясняется тем, что в работе [6] приводится выход только для одной линии.

2.2. Измерение угловых распределений γ -квантов. Для измерения угловой анизотропии испускания γ -квантов в реакциях под действием нейтронов с энергией 14,1 МэВ в проекте TANGRA использовались две детекторные системы: «Ромашка» на основе сцинтилляторов NaI(Tl) и «Ромаша» на основе сцинтилляторов BGO.

Установка «Ромашка» (рис. 15) была первой детекторной системой, использованной в проекте TANGRA. Она состояла из 22 детекторов на основе NaI(Tl), расположенных по окружности радиусом 36,5 см с шагом 15° .

Сами детекторы представляют собой шестигранные призмы длиной 20 см с расстоянием между противоположными ребрами 9 см. Детекторы были установлены вертикально, что обеспечило высокую эффективность регистрации γ -квантов низких и средних (до 2 МэВ) энергий. Для предотвращения попадания нейтронов из генератора напрямую в детектор

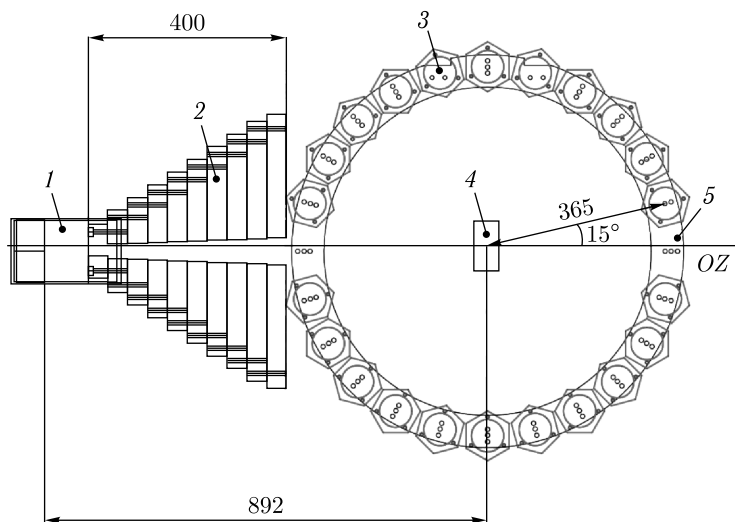


Рис. 15. Схема экспериментальной установки с детекторной системой «Ромашка»: 1 — нейтронный генератор ИНГ-27; 2 — стальной коллиматор; 3 — γ -детектор, входящий в массив из 22 γ -детекторов на основе NaI(Tl); 4 — облучаемый образец, установленный на столике; 5 — алюминиевое кольцо, служившее опорой для детекторов. Все размеры приведены в миллиметрах

использовался стальной коллиматор толщиной 20 см. С одной стороны, коллиматор сокращал число фоновых событий, а с другой — не позволял использовать больше одного нейтронного пучка, что упрощает процедуру обработки данных, но в то же время сокращает количество точек в измеренном угловом распределении, ведь каждый используемый нейтронный пучок образует свой набор углов между налетающими нейтронами и γ -квантами, регистрируемыми системой. Кроме того, плотность потока нейтронов, попадающих на образец, была снижена из-за большого расстояния от источника. Опыт работы с установкой «Ромашка» показал, что желательно, во-первых, увеличить радиус детекторной системы для улучшения разделения нейтронов и γ -квантов по времени пролета, а во-вторых, подобрать другой тип детектора для исследования возбужденных состояний легких ядер, испускающих высокоэнергетические γ -кванты при распаде.

Следующей версией экспериментальной установки стала «Ромаша» (рис. 16), с ее помощью была проведена большая часть экспериментов по измерению угловых распределений γ -излучения. Она состоит из 18 BGO-детекторов ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$), расположенных по окружности радиусом 75 см с шагом 14° . Чувствительный элемент детекторов — цилиндр из

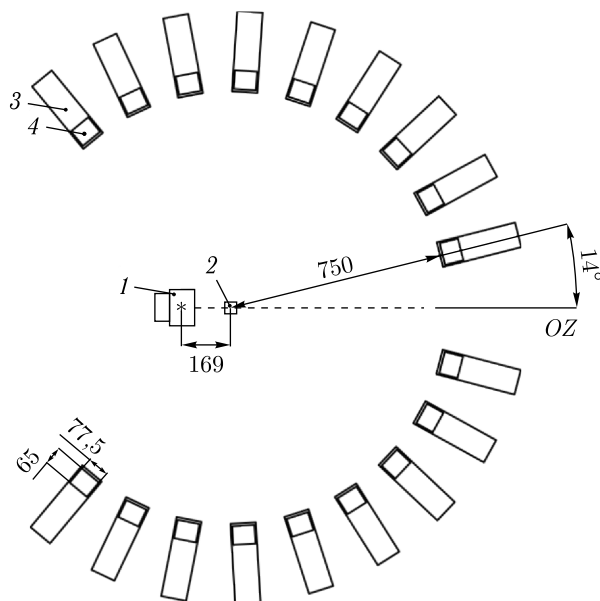


Рис. 16. Схема экспериментальной установки с детекторной системой «Ромаша»: 1 — нейтронный генератор ИНГ-27; 2 — мишень; 3 — γ -детектор, входящий в массив из 18 γ -детекторов на основе BGO «Ромаша»; 4 — кристалл BGO. Все размеры приведены в миллиметрах

германата висмута диаметром 7,75 см и высотой 6,5 см. Эффективность ВГО-детекторов выше, чем у NaI(Tl)-детекторов аналогичных размеров, и γ -кванты высоких энергий регистрируются значительно лучше.

При измерении угловых распределений γ -квантов ММН позволяет не только отделять полезные события от фоновых, но и определять вклады различных компонентов фона в полный спектр зарегистрированных событий. На рис. 17 в качестве примера показан фрагмент времяпролетного спектра ВГО-детектора, где стартом служит сигнал от одного из пикселей α -детектора, встроенного в нейтронный генератор ИНГ-27. На этом рисунке хорошо видны пик от γ -квантов из образца (выделен фиолетовыми вертикальными линиями) и пик от неупругорассеянных нейтронов справа от него. Гамма-кванты от нейтронов отделены не полностью, поэтому необходимо учитывать вклад нейтронов в γ -окно (синий участок, 2). Синие вертикальные линии показывают область, в которой выбирались события для оценки вклада фона от нейтронов. Для оценки фона от ближайшего окружения образца (корпус нейтронного генера-

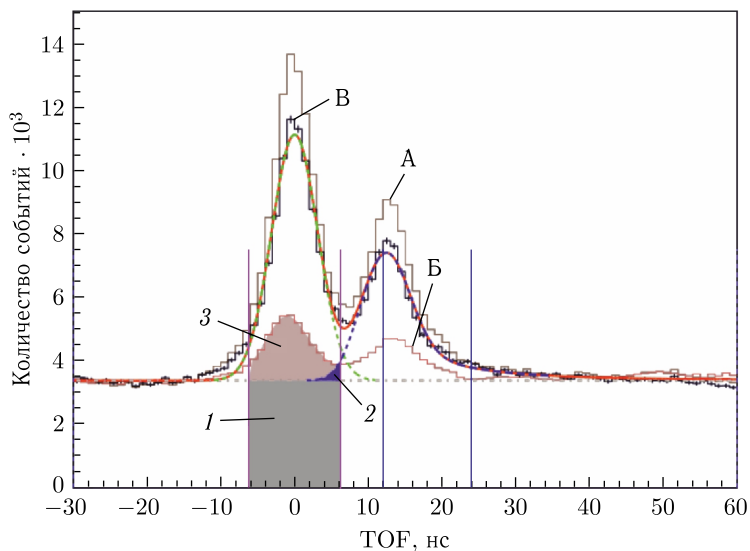


Рис. 17 (цветной в электронной версии). Пример определения различных типов фона во времяпролетном спектре, зарегистрированном ВГО-детектором γ -квантов в совпадении с меченым пучком: А — полный спектр от образца; Б — фоновый спектр, измеренный без образца; В — разностный (чистый) спектр (образец минус фон). Вертикальные фиолетовые линии показывают γ -окно шириной $\pm 2\sigma_\gamma$, синие линии — нейтронное окно. Цифрами обозначены фоновые компоненты, присутствующие в γ -окне: 1 — фон случайных совпадений; 2 — фон от нейтронов, рассеянных на образце и ближайшем окружении; 3 — фон от γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с ближайшим окружением образца

тора, элементы конструкции, держатель образца и т.п.) проводилось отдельное измерение без образца (гистограмма Б). Для каждого из компонентов фона строился энергетический γ -спектр, который вычитался из полного энергетического спектра.

Полученный после всех вычитаний фона «чистый» энергетический спектр γ -квантов описывался с помощью функции отклика детектора на основе BGO из работы [38]. Пример подгонки такого спектра с помощью функции отклика для образца оксида хрома приведен на рис. 18. Цифрами указаны положения γ -пику, участвующих в подгонке. Для подгонки спектра выбирались достаточно сильные γ -переходы, энергии которых были определены в измерениях с германиевым детектором.

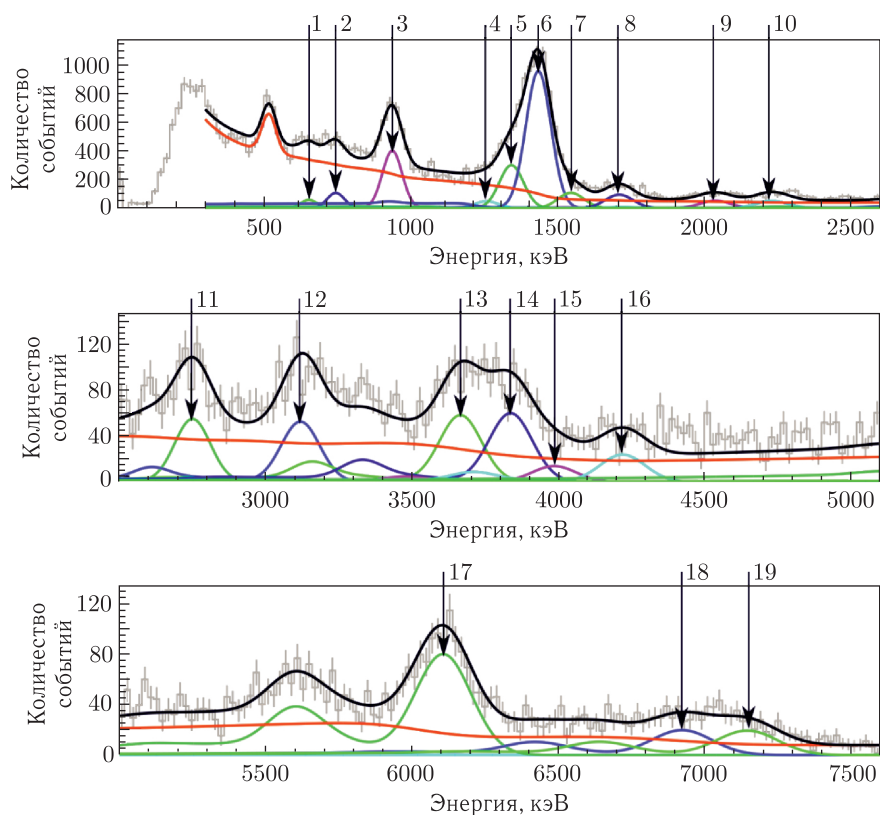


Рис. 18. Применение функции отклика для подгонки энергетического спектра образца оксида хрома, полученного с помощью BGO-детектора под углом $\sim 33^\circ$ к меченому нейтронному пучку. Стрелками указаны положения фотопиков для характеристических γ -линий

Угловые распределения γ -квантов, измеренные в данной работе, представляют собой нормированные дифференциальные сечения:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\Theta) = \frac{\sigma^\gamma}{4\pi} W(\theta), \quad (7)$$

где величина $W(\theta)$ определяется по формуле

$$W(\theta) = 1 + \sum_{I=2,4,\dots}^{2J} a_I P_I(\cos \theta) \quad (8)$$

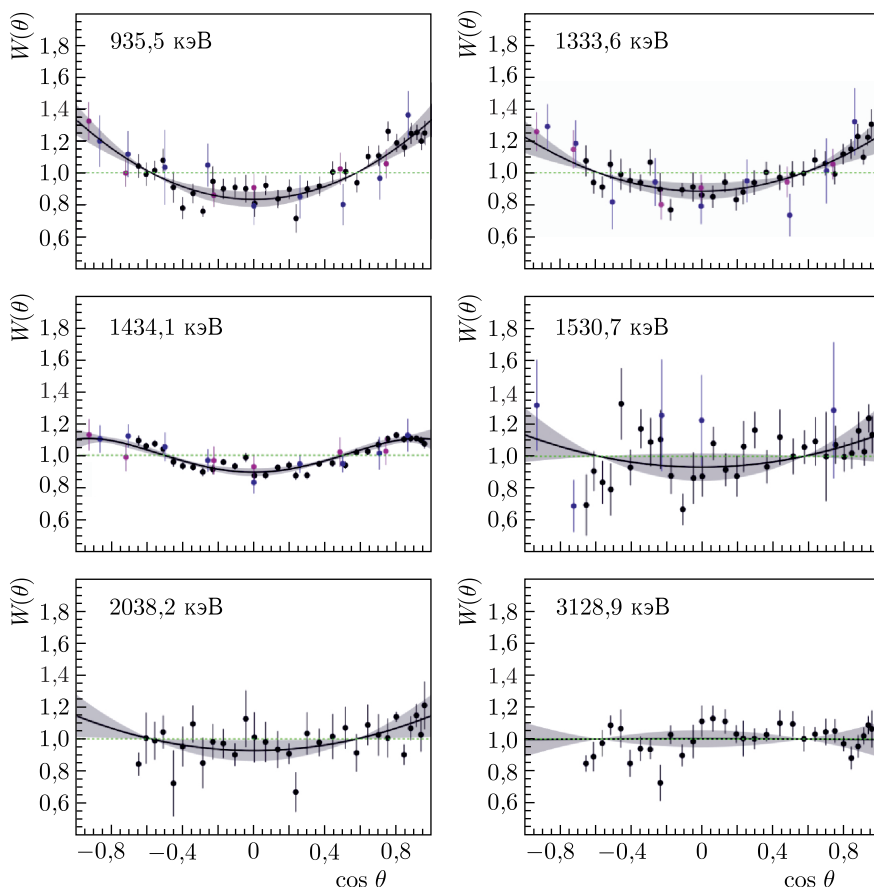


Рис. 19 (цветной в электронной версии). Угловые распределения γ -квантов для переходов в ядрах хрома: черные точки — наши данные; синие — данные из работы [46]; фиолетовые — из [47]; черная сплошная кривая — аппроксимация наших данных полиномами Лежандра по формуле (8); зеленая штриховая — угловое распределение из ENDF/B-8 [48]. Серой полосой обозначен 95%-й доверительный интервал для аппроксимации наших данных с учетом неопределенностей полученных нами параметров угловой анизотропии

и описывает угловое распределение γ -квантов, т.е. зависимость дифференциального сечения от угла θ между налетающим нейтроном и испускаемым γ -квантом. Суммирование в формуле (8) производится от 2 до $2J$, т.е. до удвоенной мультипольности γ -кванта, степени полиномов Лежандра $P_l(\cos \theta)$ принимают только четные значения.

Для построения угловых распределений γ -квантов с энергией E_γ использовались значения площадей фотопиков из функции отклика, зарегистрированных под соответствующим углом и поправленных на коэффициент, учитывающий особенности покрытия образца нейтронным пучком, эффективность детектора и поглощение γ -квантов веществом образца и оболочкой детектора. Соответствующие коэффициенты рассчитывались по методу Монте-Карло с помощью программного пакета Geant4 индивидуально для каждого из образцов.

На рис. 19 в качестве примера приведены кривые угловых распределений γ -квантов для переходов в ядрах хрома. Для всех исследуемых образцов строились такого рода угловые корреляции для всех γ -переходов, наблюдаемых в спектрах, измеренных с помощью детектора на основе NaI(Tl) или BGO. Параметры угловой анизотропии определялись только для наиболее сильных переходов, для которых статистическая точность была достаточной для надежного определения коэффициентов разложения по полиномам Лежандра. В табл. 11 приведены параметры угловой анизотропии γ -квантов для ядер хрома, полученные в измерениях с образцом Cr_2O_3 , в сравнении с результатами работ [46] при $E_n = 14,2$ МэВ и [47] при $E_n = 14,6$ МэВ. Видно, что ошибки наших данных, представленных на рис. 19, меньше, чем ошибки данных других авторов. Это отражается и в меньших погрешностях для коэффициентов

Таблица 11. Коэффициенты разложения по полиномам Лежандра для углового распределения γ -квантов, испускаемых при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с хромом

$E_{\gamma g}$, кэВ	Источник	a_2	a_4
935,5	Наша работа	$0,34 \pm 0,02_{\text{стат}} \pm 0,02_{\text{сист}}$	*
	Abbondanno, 1973 [46]	$0,35 \pm 0,09$	*
	Oblozinsky, 1992 [47]	$0,27 \pm 0,06$	*
1333,6	Наша работа	$0,23 \pm 0,02_{\text{стат}} \pm 0,02_{\text{сист}}$	*
	Abbondanno, 1973 [46]	$0,41 \pm 0,09$	*
	Oblozinsky, 1992 [47]	$0,30 \pm 0,05$	*
1434,1	Наша работа	$0,16 \pm 0,01_{\text{стат}} \pm 0,01_{\text{сист}}$	$-0,06 \pm 0,02_{\text{стат}} \pm 0,02_{\text{сист}}$
	Abbondanno, 1973 [46]	$0,18 \pm 0,05$	$-0,06 \pm 0,07$
	Oblozinsky, 1992 [47]	$0,13 \pm 0,03$	$0,03 \pm 0,04$
1530,7	Oblozinsky, 1992 [47]	$-0,12 \pm 0,31$	*
	Наша работа	$0,14 \pm 0,05_{\text{стат}} \pm 0,02_{\text{сист}}$	*
2038,2	Наша работа	$0,15 \pm 0,04_{\text{стат}} \pm 0,04_{\text{сист}}$	*
3128,9	Наша работа	$0,01 \pm 0,03_{\text{стат}} \pm 0,02_{\text{сист}}$	—

углового распределения (см. табл. 11). Значения коэффициентов a_2 для всех γ -линий находятся в приемлемом согласии между собой. Некоторое отличие для линии 1333,6 кэВ вряд ли можно считать существенным. Следует отметить, что для линий 935,5, 1333,6, 1530,7, 2038,2 кэВ мы обнулили коэффициент a_4 , так как его неопределенность оказалась больше, чем сам коэффициент. То же самое было сделано при определении этого коэффициента для данных из работ [46, 47], в табл. 11 они обозначены звездочкой. Следует отметить, что для этого ядра оценочные данные по угловой анизотропии в ENDF/B-8 [48] отсутствуют.

2.3. Измерение угловых распределений нейтронов, рассеянных на ядрах углерода. Для измерения угловых распределений упруго и неупругорассеянных нейтронов была собрана установка, состоящая из 20 детекторов на основе пластикового сцинтиллятора EJ-200 [49] размером $80 \times 80 \times 300$ мм, расположенных по окружности радиусом 204 см с шагом 15° (рис. 20). Углы 90° и 270° были пропущены из-за большого самопоглощения в образце. В качестве образца использовалась графитовая пластина размерами $2 \times 44 \times 44$ см и плотностью $1,74 \text{ г/см}^3$.

Так как детекторы нейтронов располагались в горизонтальной плоскости, вертикально расположенные пиксели в α -детекторе генератора ИНГ-27 были объединены в стрипы и анализ угловых распределений нейтронов проводился отдельно для каждого стрипа. Для каждой комбинации детектор–стрип была получена зависимость количества регистри-

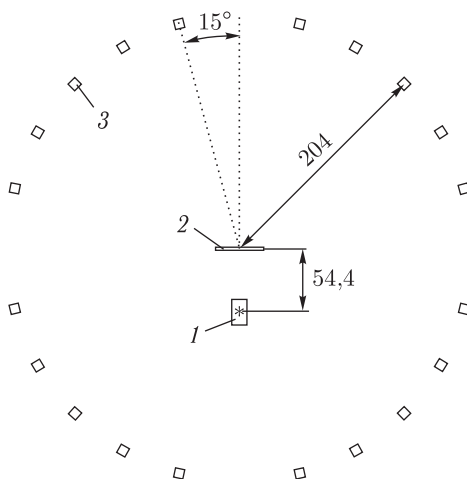


Рис. 20. Схема экспериментальной установки с пластиковыми сцинтилляционными детекторами: 1 — нейтронный генератор ИНГ-27; 2 — мишень; 3 — нейтронные детекторы, входящие в массив из 20 пластиковых сцинтилляционных детекторов. Все размеры приведены в миллиметрах

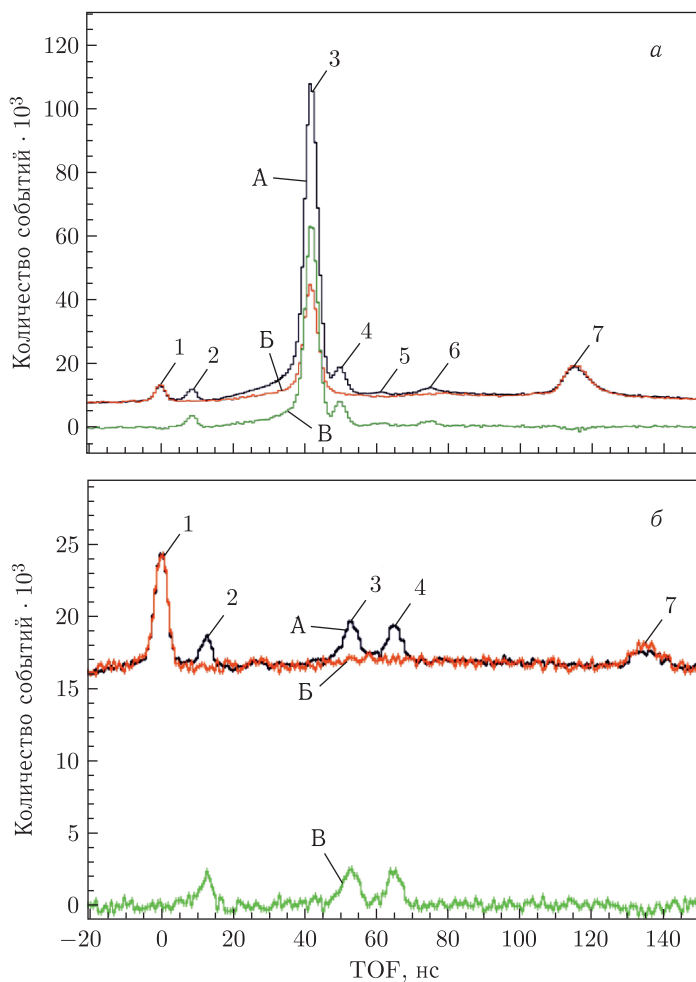


Рис. 21. Времяпролетные гистограммы, полученные в эксперименте TANGRA по рассеянию нейтронов на графитовом образце, для угла рассеяния нейтрона $\theta_{\text{lab}} = 36^\circ$ (а) и $\theta_{\text{lab}} = 170^\circ$ (б): А — гистограммы, полученные при измерении с графитовым образцом; Б — гистограммы, полученные при измерении фона без образца; В — итоговые гистограммы, полученные после процедуры вычитания; 1 — пик γ -квантов, исходящих от конструктивных элементов генератора; 2 — пик γ -квантов, испускаемых образцом; 3 — пик нейтронов, рассеянных по каналу (n, n_0) ; 4, 5, 6 — пики нейтронов, рассеянных по каналам (n, n_1) , (n, n_2) и (n, n_3) ; 7 — пик γ -квантов, испускаемых одной из стен экспериментального зала

руемых событий от разности между временем срабатывания детектора нейтронов и временем срабатывания стрипа γ -детектора — времяпролетная гистограмма. Кроме того, при обработке данных были объединены события, приходившие из двух зеркально-симметричных комбинаций, таких, что углы рассеяния нейтрона $\theta_{\text{стат}}$ для обеих комбинаций имели близкие значения. Таким образом, в данном эксперименте мечение нейтронов α -частицами использовалось в качестве стартового сигнала для построения времяпролетных спектров. Для корректного определения фона было проведено измерение без образца.

Примеры времяпролетных гистограмм для одной из комбинаций детектор–стрип, образующей угол 36° , приведены на рис. 21.

Площади пиков на времяпролетных спектрах определялись путем подгонки с помощью функций Гаусса и гладкой подложки. Пики, соответствующие рассеянию нейтронов на втором и третьем уровнях возбуждения углерода, были исключены из анализа ввиду малой статистики. Для всех пиков были определены поправки на многократное рассеяние нейтронов в толстом образце, которые рассчитывались при моделировании в Geant4.

В результате такой обработки данных были определены площади пиков во времяпролетных спектрах для детекторов под разными углами, соответствующих упругому рассеянию и рассеянию на первое возбужденное состояние. Для сравнения полученных угловых распределений с дифференциальными сечениями рассеяния нейтронов на ядрах ^{12}C из работ других авторов наши значения были нормированы на данные из работ [50–52] для углового рассеяния нейтронов в диапазоне углов от 10° до 50° , где число рассеянных нейтронов максимально. Нормированные угловые распределения, полученные нами, в сравнении с дифференциальными сечениями рассеяния нейтронов из других работ приведены на рис. 22, а, б. Для наших значений указаны статистические погрешности.

Полученные нами угловые распределения в целом хорошо согласуются с другими экспериментальными данными, за исключением небольших различий в упругом канале в диапазоне углов около 90° .

Экспериментальные данные были использованы для получения значений оптических параметров и квадрупольной деформации β_2 , подходящих выбранному для ^{12}C модельному описанию [41]. Результаты расчета с подобранными в результате аппроксимации наших данных параметрами в сравнении с расчетом TALYS по умолчанию показаны на рис. 22, в, г. Описание в TALYS дифференциальных сечений рассеяния нейтронов при использовании параметров, заданных по умолчанию, не может считаться удовлетворительным. В этом случае наблюдается серьезная недооценка вероятности неупругого рассеяния нейтронов и вклада в дифференциальные сечения прямых процессов ядерной реакции. При использовании в расчетах метода связанных каналов во вращательном приближении возбуждения уровней совместно с подобранными параметрами оптиче-

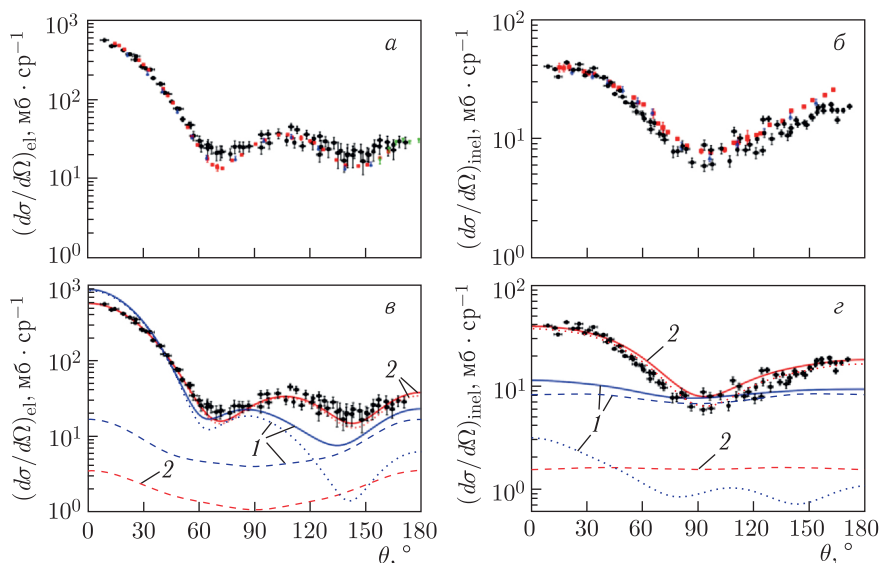


Рис. 22 (цветной в электронной версии). Полученные нами угловые распределения рассеянных нейтронов для основного состояния (*a, в*) и первого возбужденного состояния ядра ^{12}C (*б, г*) в сравнении с дифференциальными сечениями из других работ (*а, б*) и модельным расчетом TALYS 1.9 во вращательном приближении уровней (*в, г*). Экспериментальные данные: черные кружки — наша работа; красные квадраты — [50]; синие треугольники — [51]; зеленые перевернутые треугольники — [52]. Результаты расчета в TALYS: синие линии (1) — с использованием параметров по умолчанию; красные линии (2) — с использованием параметров, полученных при аппроксимации наших данных; сплошная линия — дифференциальное сечение; пунктирная линия — вклад прямых процессов; штриховая линия — вклад процессов, идущих через составное ядро

ского потенциала и β_2 расчет в пределах погрешностей сходится с экспериментальными данными, при этом вклад прямых процессов в рассеяние нейтронов на ^{12}C становится подавляющим.

3. ПРАКТИЧЕСКОЕ ПРИМЕНЕНИЕ ММН

3.1. Обнаружение алмазов в кимберлите. В настоящее время технологический процесс добычи алмазов состоит в измельчении кимберлитовой руды и пропускании ее через различного рода сепараторы, которые отбирают алмазы, раскрывшиеся из породы. Кимберлитовая порода проходит несколько стадий измельчения до тех пор, пока крупность ее не уменьшится до размера 0,2 мм. Естественно, что при таком повторном дроблении раскалываются не только камни кимберлитовой породы, но и сами алмазы. Причем чем крупнее алмаз, тем значительнее потери

его ценности из-за повреждений. Утверждается, что практически все крупные алмазы (массой 50 и более карат) имеют те или иные повреждения или просто раскалываются. Стоимость алмаза нелинейным образом зависит от его массы. В докладе [53] приводится случай находки двух алмазов массой 19,46 и 51,27 карат, первоначально составлявших один алмаз, который был расколот в процессе сепарации. Стоимость первого алмаза составляла 215 тыс. долларов, второго — 6 млн 900 тыс. долларов. Если бы этот камень не был расколот, то стоимость его оценивалась бы в 17 млн 700 тыс. долларов. То есть за счет этого повреждения потеря ценности только для одного камня составила 10 млн долларов.

ММН дает уникальную возможность обнаружить алмазы внутри крупных образцов кимберлитовой породы без ее разрушения. Поскольку алмазы практически полностью состоят из углерода, то методика их обнаружения заключается в нахождении избытка углерода в какой-либо области образца кимберлита. Для этого надо решить задачу определения элементной концентрации для разных пространственных областей объекта. Среди нейтронных методов такую задачу может решить только ММН, поскольку только он предоставляет данные о пространственном расположении исследуемой области.

Результаты применения ММН для поиска алмазов приведены в работах [54–58]. На первом этапе исследований АК «АЛРОСА» (Мирный) предоставила нам 33 образца кимберлита общим весом 55 кг для отработки методики обнаружения алмазов. Линейный размер образцов составлял 15–20 см, масса 1–2 кг. Образцы облучались лабораторной установкой, состоящей из шести γ -детекторов на основе ВГО и нейтронного генератора с α -детектором, который создавал 64 меченых пучка.

При облучении образцов в 32 случаях не было замечено превышения локальной концентрации углерода. Наблюдаемое отклонение от среднего по всем образцам не превышало $2,5\sigma$, где σ — ошибка определения концентрации углерода. Однако в образце № 17 было обнаружено превышение локального содержания углерода над средним от $3,3$ до $5,8\sigma$ в зависимости от ракурса, под которым облучался образец.

После возвращения образцов в г. Мирный образец № 17 был расколот. В нем обнаружили два неоднородных алмазных включения диаметром до 7 мм, состоящих из мелких частиц размером от 1 до 2 мм (рис. 23).

Таким образом, экспериментально была продемонстрирована способность ММН обнаруживать алмазы, заключенные внутри кимберлитовой породы.

В работе [55] был изучен важный вопрос: не приводит ли облучение быстрыми нейтронами к изменению свойств алмаза, которое могло быть сочтено за попытку облагораживания алмаза. Для изучения влияния нейтронного излучения специалистами Научно-исследовательского геологического предприятия (НИГП) АК «АЛРОСА» из продукции текущей добычи трубок «Мир», «Айхал», «Удачная» была отобрана коллекция из 90 алмазов, которые подверглись облучению пучками нейтронов с энер-



Рис. 23. Алмазные включения в образце кимберлита № 17

гией 14,1 МэВ. Оптико-спектроскопические исследования кристаллов были выполнены в НИГП АК «АЛРОСА» до и после облучения. Также была проконтролирована наведенная радиационная активность при облучении образцов.

Коллекция алмазов была разделена на шесть партий по 15 кристаллов. При облучении все шесть партий были загружены в общую сборку, из которой по прошествии определенного времени вынималось по одной партии. Время облучения партии варьировалось от 4 с до 32 мин. Образцы алмазов устанавливались на расстоянии 43 см от мишени нейтронного генератора. Интенсивность нейтронного пучка при облучении составляла $I = 3,2 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$.

В результате оптико-спектроскопических исследований алмазов после облучения не было обнаружено никаких изменений ни в визуальных свойствах алмазов, ни в спектрах ИК-поглощения, ни в спектрах фотолюминесценции. Возможное объяснение состоит в том, что плотность интегрального потока (флюенс) нейтронов за время экспозиции менялась от $\Phi = 5,51 \cdot 10^3 \text{ см}^{-2}$ до $\Phi = 2,64 \cdot 10^6 \text{ см}^{-2}$. Соответственно, интегральная плотность энергии за время облучения не превышала $E = 3,71 \cdot 10^{13} \text{ эВ} \cdot \text{см}^{-2}$. Это почти на три порядка меньше, чем порог плотности энергии, выше которого начинают возникать изменения в алмазе. По данным работы [59] он составляет $E \sim 10^{16} \text{ эВ} \cdot \text{см}^{-2}$. Отметим, что при реальной работе нейтронного сепаратора время облучения не превышает 10 с, поэтому алмаз не может получить плотность энергии более $E = 2 \cdot 10^{11} \text{ эВ} \cdot \text{см}^{-2}$.

Для проверки работоспособности метода в производственных условиях был создан пилотный образец сепаратора. Он состоял из системы подачи руды и нейтронного модуля, которые размещались в 20-футовом

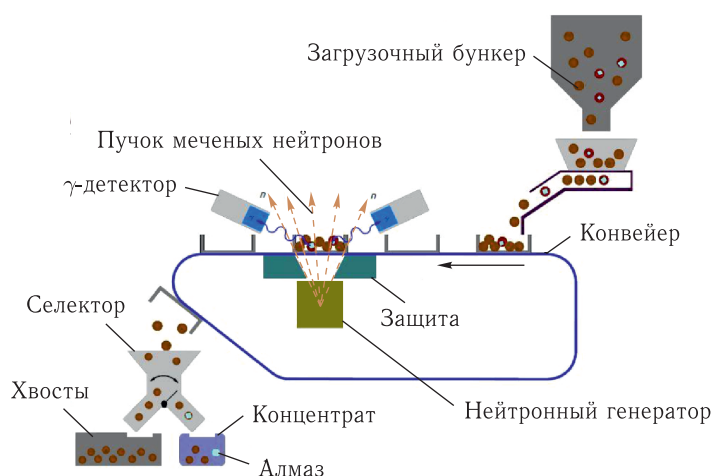


Рис. 24. Общая схема пилотного сепаратора

транспортном контейнере. Общая схема пилотного сепаратора показана на рис. 24.

Кимберлитовая руда загружалась в загрузочный бункер объемом 2 т. Дозатор породы подавал руду из загрузочного бункера на лоточный конвейер, который перемещал ее в нейтронный модуль для анализа. В нейтронном модуле лоток с рудой облучался пучками быстрых меченых нейтронов. С помощью системы γ -детекторов, расположенных над лотком с рудой, происходила регистрация характеристического γ -излучения. Информация с γ - и α -детекторов поступала в систему анализа и принятия решения. По итогам анализа выдавался сигнал на перемещение данного лотка породы либо в бункер концентрата для алмазосодержащей руды, либо в бункер хвостов с пустой породой.

Управление установкой было полностью автоматизировано. Оператор только запускал систему подачи руды, весь дальнейший процесс анализа пробы, а также выгрузка его в хвосты или концентрат происходила без его участия.

Нейтронный модуль содержал источник быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ и систему из 22 γ -детекторов, регистрирующих характеристическое излучение. Нейтронный генератор был разработан ФГУП «ВНИИА» специально для данного проекта. Он создавал 256 меченых пучков с интенсивностью до $I = 1 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$. Максимальная потребляемая мощность была 40 Вт. Время жизни нейтронного генератора — 800 ч.

Встроенный α -детектор представлял собой полупроводниковый позиционно-чувствительный детектор на основе арсенида галлия. Он содержал 16 вертикальных и 16 горизонтальных стрипов, которые формировали 256 пикселей шириной 4 мм каждый. Мертвая зона между стрипами составляла 0,1 мм.

В систему регистрации γ -излучения входили 22 детектора на основе ВГО толщиной 65 мм и диаметром 76 мм. Энергетическое разрешение всей системы детекторов на линии 4,44 МэВ было $\Gamma_E = (4,42 \pm 0,14) \%$. Временное разрешение системы α - γ -совпадений, усредненное по всей совокупности γ -детекторов, равнялось $\Gamma_t = (4,82 \pm 0,12)$ нс.

Поскольку алмазы практически полностью состоят из углерода, то сигналом алмаза считалось локальное превышение концентрации углерода в какой-либо зоне лотка с кимберлитом. Весь лоток делился на 256 зон (вокселей), в каждой из которых определялась концентрация углерода и сравнивалась со средней концентрацией углерода по всему лотку. Размер вокселя D в направлении, перпендикулярном импульсу нейтрона, определяется размером пикселя α -детектора d , расстоянием между α -детектором и тритиевой мишенью l и расстоянием между тритиевой мишенью и лотком с кимберлитовой породой L . Значения этих параметров приведены в табл. 12.

Размер вокселя является важным параметром, определяющим минимальный размер алмаза, который может быть зарегистрирован установкой. В пилотном образце можно было детектировать алмазы от 9 мм и больше.

На рис. 25 показан энергетический спектр γ -квантов от кимберлитовой руды из различных месторождений. Синей линией (1) показан спектр руды из трубки им. Карпинского Ломоносовского ГОК (Архангельск) [56], цветными линиями (2–4) — из трех трубок месторождения Летсенг (Лесото).

Стрелкой показана линия углерода 4,44 МэВ (спектр чистого углерода приведен на рис. 5). Видно, что этот пик не очень велик для спектров кимберлитов из разных месторождений. Концентрация углерода в кимберлитовой руде не очень значительна. Однако видно, что углерода в кимберлитовых рудах Архангельска больше, чем в кимберлите Летсенга, что приводит к худшей эффективности отбора из-за ложных срабатываний.

Таблица 12. Основные параметры пилотного сепаратора

Параметр	Значение
Расстояние до лотка L , мм	134
Расстояние до α -детектора l , мм	60
Размер пикселя α -детектора d , мм	4
Матрица α -детектора	16 × 16
Размер α -детектора, мм	64 × 64
Размер зоны облучения, мм	143 × 143
Размер вокселя D , мм	8,93
Масса руды в лотке, кг	2,5
Время анализа, с	6,0
Производительность, т/ч	1,5

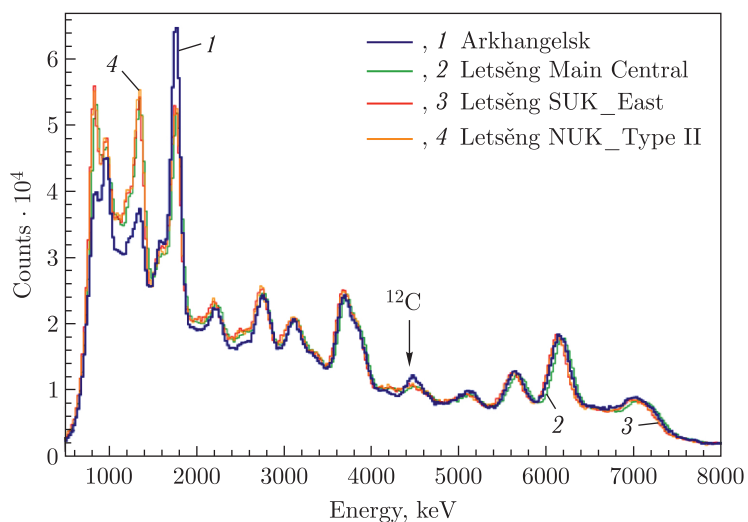


Рис. 25 (цветной в электронной версии). Энергетический спектр γ -квантов от кимберлитовой руды

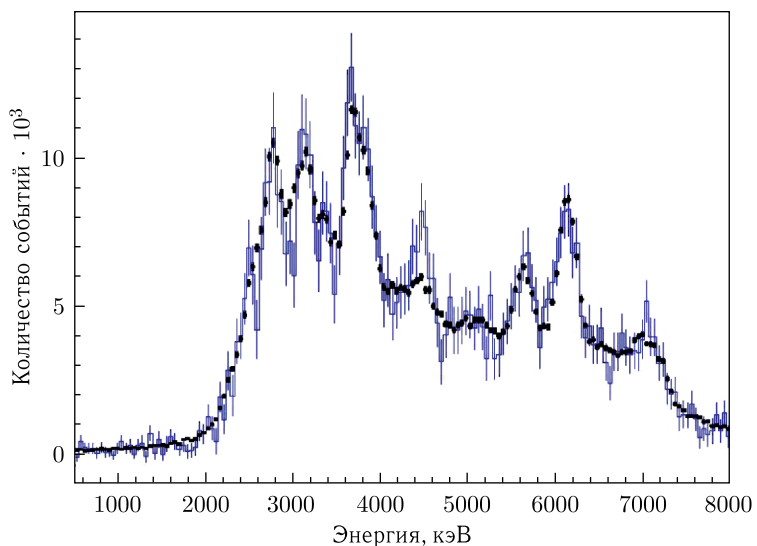


Рис. 26. Энергетический спектр вокселя, в котором находился имитатор алмаза размером 8 мм (гистограмма с ошибками). Черные точки — спектр всего лотка с образцами кимберлитовой руды крупностью 50 мм

Для изучения вероятности нахождения алмаза внутри отдельных кимберлитовых камней были сделаны отверстия, в которые вставлялись имитаторы, сделанные из синтетических алмазов. Они имели форму

Таблица 13. Вероятность нахождения алмаза в кимберлитовой руде разной крупности (запись «-А + Б» означает, что максимальный линейный размер не превышает значения А, а минимальный размер — Б)

Размер имитатора, мм	Размер кимберлитовой руды, мм	Вероятность обнаружения
8	-30 + 6	0,95
12	-75 + 40	0,96
16	-75 + 40	0,99
16	-90 + 50	0,97
20	-150 + 100	0,95

цилиндра, диаметр которого равнялся высоте. Размеры имитаторов менялись от 8 до 20 мм. На рис. 26 представлен энергетический спектр лотка с образцами кимберлитовой руды крупностью 50 мм, внутри одного образца был помещен имитатор алмаза размером 8 мм [56]. Наблюдается четкий сигнал от линии углерода в области 4,44 МэВ.

Результаты изучения возможностей установки при обнаружении алмазов в руде разной крупности приведены в табл.13. Интенсивность нейтронного генератора в этих исследованиях составляла $3,2 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Определялся минимальный размер алмаза, обнаруживаемый в руде за фиксированное время с вероятностью более 95 %.

Видно, что размер минимально детектируемого алмаза составляет 8 мм для руды крупностью 30 мм.

Размеры самого большого куска руды, подвергнутого исследованиям, составляли $160 \times 90 \times 90$ мм, внутри него находился имитатор алмаза 14 мм. То есть соотношение между крупностью руды и размером алмаза, который в ней обнаруживается данной установкой, составило около 10 : 1.

Тестирование пилотного сепаратора на месторождении им. М. В. Ломоносова (Архангельская обл.) показало следующие характеристики:

- производительность сепаратора 1060 кг/ч;
- минимальный размер имитатора алмаза 8 мм;
- вероятность ложных обнаружений 3 %;
- вероятность обнаружения алмаза 95 %;
- в руде крупностью -90 + 50 мм можно находить алмазы размером более 12 мм;
- в руде крупностью -150 + 100 мм можно находить алмазы размером более 20 мм;
- потребление электроэнергии 0,6 кВт/т руды.

Пилотный сепаратор успешно выдержал проверку в полевых условиях, однако для практического применения необходимо повысить его производительность до уровня 10–30 т/ч. В настоящее время разработан проект сепаратора производительностью 5 т/ч.

3.2. Анализ элементного состава фосфатных руд. ММН с успехом был применен для решения задачи определения элементного состава фосфатных руд в полевых условиях. В настоящее время при разработке карьера или горной выработки постоянно ведется отбор проб с их последующим анализом. Как правило, он проводится рентгеновскими спектрометрами или методами химического анализа. В любом случае для проведения измерений этими методами требуется существенная пробоподготовка. Образцы руды высушивают, дробят и истирают до необходимой крупности. В работе [60] был предложен новый способ определения элементного состава образцов руды, основанный на ММН, который не требует традиционной пробоподготовки. Он позволяет определять элементный состав проб большой массы (до 10 кг), большой крупности (до 300 мм) в полевых условиях. Для таких измерений была создана установка АГП-Ф, на которой с 2019 г. успешно проводится анализ образцов магнетитовых, апатитовых и апатит-штаффелитовых руд Ковдорского месторождения [60]. Установка размещалась в 20-футовом контейнере, оснащенный системой климат-контроля. Общий вид установки показан на рис. 27.

В состав установки входит нейтронный модуль, шкаф электроники и рабочее место оператора. В нейтронном модуле размерами $1200 \times 1200 \times 1200$ мм размещены портативный нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным 9-пиксельным α -детектором и система из 12 γ -детекторов на основе кристалла ВГО.

Измерения проб проводились без какой-либо пробоподготовки, образец помещался в измерительный лоток установки в том же мешке, в котором проба была взята из карьера. Типичные размеры образца в измерительном лотке $150 \times 150 \times 130$ мм.

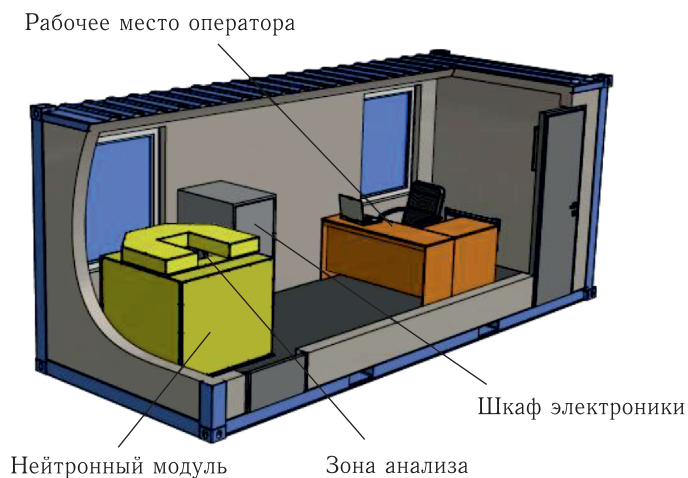


Рис. 27. Схема размещения установки АГП-Ф в транспортном контейнере

Пробы апатит-штаффелитовой, магнетитовой и апатитовой руды для этих испытаний были взяты из различных мест Ковдорского ГОК: с рудных складов, из забоев в карьере, от шлама буровзрывных скважин. Крупность проб составляла 30 мм. Масса пробы менялась в пределах 1–2 кг.

3.2.1. Процедура определения элементного состава. Обработка спектров γ -квантов проводилась по методике, которая была подробно изложена в работе [61]. Для анализа γ -спектр каждого образца раскладывался на отдельные составляющие путем подгонки его суммой опорных γ -спектров от восьми элементов (Si, Mg, Fe, Al, Ca, C, O, P), которые были измерены предварительно.

Для тонкого образца из одного элемента число γ -квантов N_f , попадающих в γ -детектор в результате взаимодействия нейтронов с атомами этого элемента, можно вычислить по следующей формуле:

$$N_f = \frac{N_{\text{in}} \rho N_{\text{Av}} l}{A} \sigma W, \quad (9)$$

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

В случае образца, состоящего из j различных элементов, формула (9) преобразуется для суммирования по всем элементам j , принимая следующий вид:

$$N_f = N_{\text{in}} \rho l \sum_j \frac{N_{\text{Av}}}{n_j A_j} \sum_j n_j w_j \sigma_j, \quad (10)$$

где N_{in} — число падающих на образец нейтронов; ρ — плотность образца; l — толщина образца; N_{Av} — число Авогадро; σ_j — сечение взаимодействия для элемента j в образце; n_j — количество ядер элемента j в образце; w_j — вероятность регистрации γ -спектра от элемента j в образце γ -детектором; A_j — атомный номер элемента j в образце.

Энергетический спектр γ -квантов от облучения образца быстрыми нейтронами с энергией примерно 14,1 МэВ представляется в виде суммы спектров отдельных γ -линий, спектра континуума и спектра фона:

$$F(E) = \sum_j N_j \left(\sum_{i=1}^{i=n_j} \sigma_{ij}(E) P_{ij}(E) + R_j^{\text{cont}} F_j^{\text{cont}}(E) \right) + BG(E), \quad (11)$$

где N_j — параметр, определяющий содержание элемента j в образце, причем данный параметр пропорционален числу атомов элемента в образце и является единым для всех γ -линий i элемента j ; n_j — количество γ -линий i у элемента j ; $\sigma_{ij}(E)$ — сечение рождения γ -квантов с энергией E , соответствующей γ -линии i , при взаимодействии нейтрона с элементом j ; P_{ij} — функция отклика γ -детектора, соответствующая

γ -линии i элемента j ; $F_j^{\text{cont}}(E)$ — амплитуда спектра континуума, который наблюдается при высоких энергиях возбуждения практически для всех ядер, кроме легчайших; R_j^{cont} — нормировочный коэффициент для спектра континуума; $BG(E) = Ae^{-BE}$ — функция фона; A и B — параметры подгонки.

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

$$P_{ij}(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_i^r \varepsilon} G(E_i, \sigma_i^r) + \frac{R^{\text{es}} N_i^{\text{es}}}{\sqrt{2\pi} \sigma_i^{\text{es}}} G(E_i - 511, \sigma_i^{\text{es}}) + \frac{N_i^{\text{es}2}}{\sqrt{2\pi} \sigma_i^{\text{es}2}} G(E_i - 1022, \sigma_i^{\text{es}2}) + RC(E_i, E), \quad (12)$$

где $\sigma_i^r = A_e \sqrt{E_i}$ — энергетическое разрешение γ -детектора, соответствующее пику полного поглощения при энергии γ -кванта E_i ; A_e — параметр фита; ε — эффективность регистрации γ -квантов с энергией, соответствующей пику полного поглощения, причем зависимость этого параметра от энергии γ -кванта устанавливается в результате моделирования отклика γ -детектора методом Монте-Карло; σ_i^{es} , $\sigma_i^{\text{es}2}$ — энергетические разрешения γ -детектора, соответствующие пикам однократной и двукратной утечек γ -квантов с энергией 0,511 МэВ из кристалла сцинтиллятора γ -детектора; N_i^{es} и $N_i^{\text{es}2}$ — параметры, определяющие амплитуды пиков утечек; R — подстроечный коэффициент для амплитуды функции $C(E_i, E)$.

Зависимость отношений N_i^{es}/N_j и $N_i^{\text{es}2}/N_i^{\text{es}}$ от энергии γ -квантов также устанавливалась по результатам моделирования, однако для подстройки использовался параметр R^{es} .

Вклад от комптоновского рассеяния и многократных взаимодействий γ -квантов с кристаллом сцинтиллятора γ -детектора определяется путем аппроксимации его функцией $C(E_i, E)$, параметры которой зависят от энергии и определяются по результатам моделирования.

Оценив относительные доли элементов в образце по формуле

$$v_j = N_j / \sum_i N_i \quad (13)$$

и предполагая соблюдение соотношения

$$\sum_j v_j = 1, \quad (14)$$

можно вычислить массовые доли элементов в образце:

$$w_j = \frac{v_j m_j}{\sum_j v_i m_i}, \quad (15)$$

где m_j — атомный вес элемента j .

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

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

Таким образом, для определения элементного состава исследуемого образца фитируются шесть общих параметров спектра $A, B, A_e, R^{\text{es}}, R, R^{\text{cont}}$ и несколько параметров N_j , непосредственно связанных с концентрациями отдельных химических элементов.

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

Таким образом, исходно определялась массовая концентрация отдельного элемента, затем для удобства сопоставления с данными химического анализа делался пересчет в оксиды.

3.2.2. Результаты измерений. Энергетический спектр γ -квантов при облучении нейтронами образцов фосфатной руды приведен на рис. 28. Экспериментальные данные показаны точками с ошибками, цветные линии соответствуют вкладам от разных элементов, синяя линия (1) обозначает суммарный вклад от всех элементов. Красная линия (2) показывает вклад от фосфора, и хорошо видно, что спектр фосфора доминирует двумя большими пиками от линий 1266 и 2234 кэВ. Большое сечение возбуждения этих линий является залогом успеха применения ММН для анализа фосфатной руды.

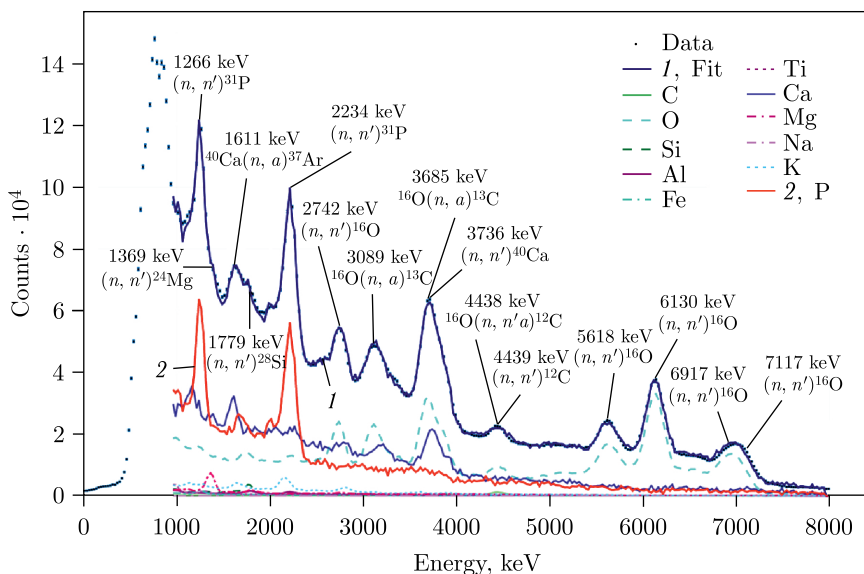


Рис. 28 (цветной в электронной версии). Энергетический спектр γ -квантов при облучении нейтронами образца фосфатной (апатитовой) руды

Для оценки точности измерений было выполнено 11 последовательных измерений каждой из 12 проб (пяти проб апатит-штаффелитовой руды и семи проб магнетитовой и апатитовой руды). Время измерения одной пробы составляло 15 мин. По результатам измерений вычислялось среднеквадратичное отклонение (СКО) повторяемости σ_r :

$$\sigma_r = \sqrt{\sum_i (C_i - C)^2 / (n - 1)}. \quad (16)$$

Здесь C_i — массовая концентрация оксида в i -м измерении; C — среднее значение массовой концентрации; n — число измерений.

Абсолютные и относительные значения СКО σ_r приведены в табл. 14.

Пробы из карьера зачастую имеют значительную влажность. Интересно определить, влияет ли влажность пробы на измеряемые значения элементных концентраций.

Таблица 14. Абсолютные и относительные значения СКО повторяемости σ_r

Параметр	Al ₂ O ₃	CO ₂	CaO	Fe ₂ O ₃	MgO	P ₂ O ₅	SiO ₂
Диапазон содержания, %	2–18	1–22	2–40	5–69	1–19	2–28	3–37
Среднее содержание M , %	5,2	4,2	16,5	29,9	9,9	7,7	18,2
Абсолютное СКО σ_r , %	0,57	0,37	0,67	0,51	0,23	0,41	0,40
Относительное СКО σ_r/M , %	10,9	8,8	4,1	1,7	2,3	5,3	2,2

Для решения этих задач пробы с естественной влажностью измерялись в том виде, в каком они были взяты непосредственно из карьера. Затем пробу сушили в сушильных шкафах. Далее сухую пробу измеряли и рассчитывали влажность исходя из разности масс:

$$W = \frac{m_{\text{wet}} - m_{\text{dry}}}{m_{\text{wet}}} \cdot 100 \%, \quad (17)$$

где m_{wet} — масса влажной пробы; m_{dry} — масса пробы после высушивания.

Затем проба дробилась до крупности –2 мм и снова измерялась. Измерения влажной, сухой и дробленной проб проводились с разницей в 1 сут.

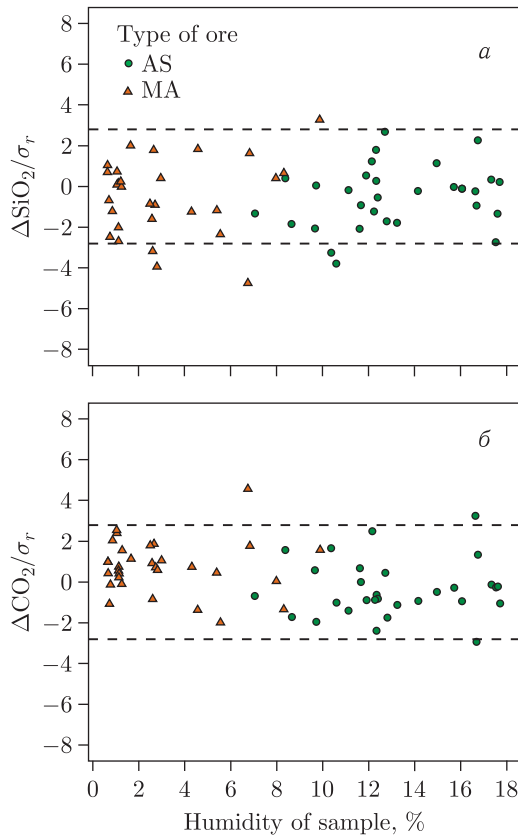


Рис. 29. Разность Δ значений массовых концентраций SiO_2 (а) и CO_2 (б), определенных для влажной и сухой проб. Штриховые линии соответствуют значениям предела повторяемости $R = \pm 2,8\sigma_r$. Треугольниками показаны значения разности для проб апатитовой и магнетитовой руды (МА), кружками — для проб апатит-штаффелитовой руды (AS)

Всего таким образом было измерено 30 проб апатит-штаффелитовой руды и 30 проб магнетитовой руды.

На рис. 29, 30 показана разность Δ значений массовых концентраций, определенных для влажной пробы и по измерениям той же пробы после сушки. По оси абсцисс отложена влажность пробы. Для удобства восприятия Δ отложена в единицах σ_r . Штриховыми линиями нанесены значения предела повторяемости $R = \pm 2,8\sigma_r$, которые на уровне достоверности 95 % определяют возможную величину разброса Δ , вызванную чисто статистическими ошибками.

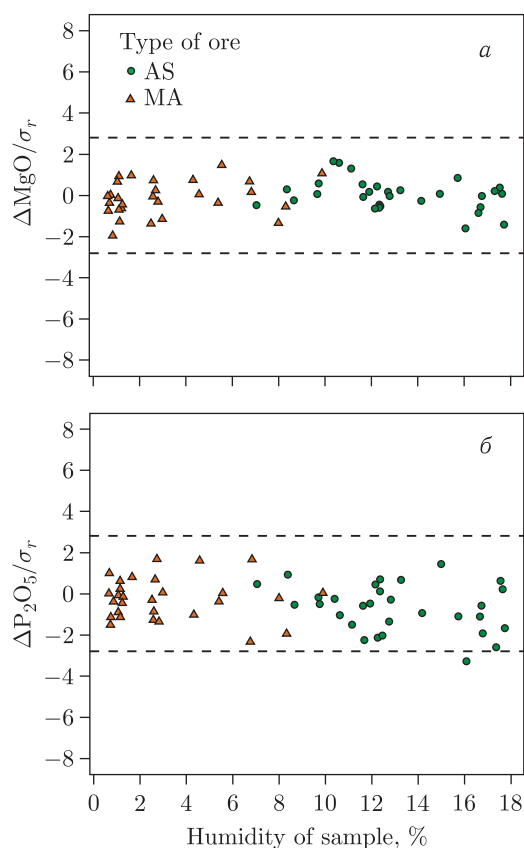


Рис. 30. Разность Δ значений массовых концентраций MgO (а) и P₂O₅ (б), определенных для влажной и сухой проб. Штриховые линии соответствуют значениям предела повторяемости $R = \pm 2,8\sigma_r$. Треугольниками показаны значения разности для проб апатитовой и магнетитовой руды (МА), кружками — для проб апатит-штаффелитовой руды (AS)

Видно, что образцы апатит-штаффелитовой руды взяты из места карьера с высокой влажностью, тогда как пробы апатитовой и магнетитовой руды имели не очень значительную влажность.

Результаты, приведенные на рис. 29, 30, позволяют заключить, что для всех оксидов разность между массовыми концентрациями, измеренными во влажной и сухой пробах, не превышает предела повторяемости даже при влажности пробы 20 %.

Для того чтобы изучить зависимость от крупности руды, образцы крупностью –30 мм измерялись, затем дробились до крупности –2 мм и измерялись вновь. Всего таким образом было измерено 30 проб. На рис. 31 приведены результаты измерений массовой концентрации P_2O_5 . Видно, что все точки группируются вдоль диагонали равных значений. Это означает, что элементные концентрации пробы воспроизводятся одинаково, вне зависимости от крупности пробы. Подтверждением этого факта является и то, что данные наилучшим образом аппроксимируются простой линейной формулой с нулевым интерсептом и коэффициентом наклона, близким к единице:

$$Y_{(-30 \text{ мм})} = 1,02X_{(-2 \text{ мм})} - 0,007. \quad (18)$$

Тот факт, что результаты анализа с помощью ММН не зависят от крупности руды, нашел свое подтверждение и при измерениях с апатитовой рудой большей крупности. Изменялись пробы из забоев и со складов рудников Кировского филиала АО «Апатит». Крупность материала

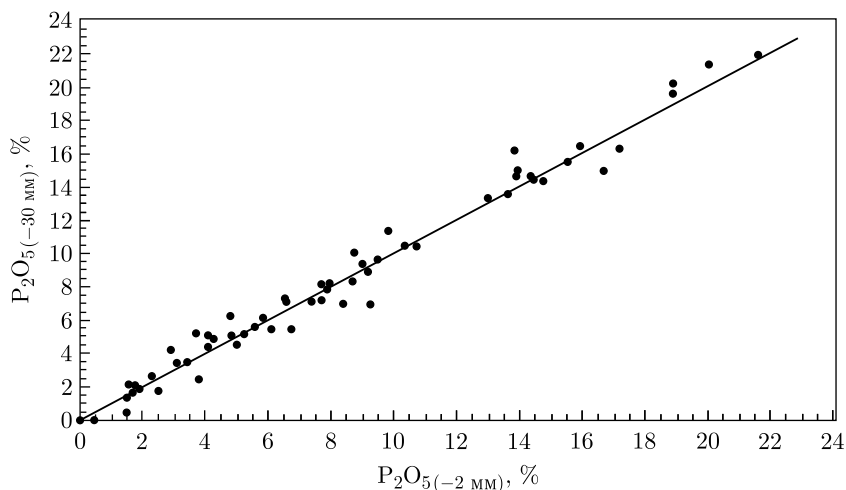


Рис. 31. Результаты измерений массовой концентрации P_2O_5 . По оси Y приведены результаты для проб крупностью –30 мм, а по оси X — результаты измерений тех же образцов, измельченных до крупности –2 мм. Диагональ равных значений показана сплошной линией

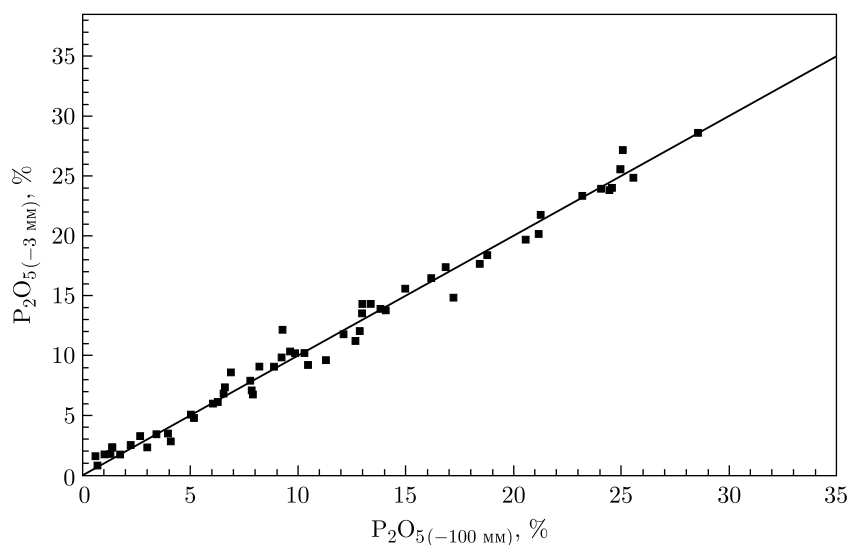


Рис. 32. Результаты измерений массовой концентрации P_2O_5 : по оси X — для проб крупностью -100 мм, а по оси Y — для тех же образцов, измельченных до -3 мм. Диагональ равных значений показана сплошной линией

составляла до 100 мм, вес проб до $5-7$ кг. Пробы такой крупности измерялись, затем дробились до -3 мм и измерялись повторно. Всего было проведено 58 таких двойных определений.

Результаты измерений приведены на рис. 32. Видно, что данные для образцов разной крупности с хорошей точностью совпадают.

Полученный результат имеет большое значение для применения ММН, связанного с анализом образцов руды большой крупности. Он показывает, что в силу большой проникающей способности быстрых нейтронов с энергией $14,1$ МэВ они взаимодействуют с ядрами всего объема пробы, а не только некоторого поверхностного слоя. Поэтому происходит естественное усреднение элементной концентрации по всему материалу пробы и значения концентраций становятся одинаковыми для пробы как большой крупности, так и размолотой до -3 мм.

3.3. Анализ минерального сырья на конвейере. Для многих производственных процессов, связанных с добычей и переработкой минерального сырья, важно знание элементного состава вещества, идущего по конвейеру. Как правило, эта задача решается регулярным отбором проб и их последующим анализом химическими методами. Основными недостатками такой процедуры являются длительное время анализа (от 2 до 5 ч) и проблемы с представительностью пробы. За 1 ч типичный конвейер переносит порядка 1000 т сырья. Масса пробы, отбираемой в течение этого времени, не превышает 10 кг, из которых для химическо-

го анализа отбирается навеска, равная 1 г. Насколько хорошо данные по навеске отражают элементный состав всей массы вещества, прошедшего за время отбора пробы, всегда вызывает вопросы.

ММН позволяет проводить элементный анализ вещества на конвейере в режиме реального времени и получать информацию об элементном составе сырья через каждую минуту. Большая проникающая способность быстрых нейтронов дает возможность размещать нейтронный модуль под рабочей лентой конвейера и определять элементный состав сырья через ленту конвейера.

Общая схема установки АПП-К-1, разработанной для анализа агломерационной шихты, показана на рис. 33. Источником нейтронов является генератор ИНГ-27 с 9-пиксельным α -детектором. Блоки γ -детекторов размещаются под лентой с обеих сторон конвейера. В каждом блоке находятся по семь γ -детекторов на основе кристалла ВGO.

На рис. 34 показаны для сравнения временные распределения для пробы агломерационной шихты массой 30 кг, покоящейся на ленте конвейера, и для движущейся шихты. Видно, что для сырья, движущегося по конвейеру, сохраняются все основные черты временного распределения для меченых нейтронов: имеется хорошо выраженный пик от вещества на конвейере на фоне плато случайных совпадений.

Важно, что ширина пика сигнала для движущегося и покоящегося материала практически одинакова: для покоящейся пробы временное разрешение составляет $\Gamma_t(\text{стат.}) = 4,88 \pm 0,01$, а для движущейся шихты $\Gamma_t(\text{дин.}) = 4,90 \pm 0,01$.

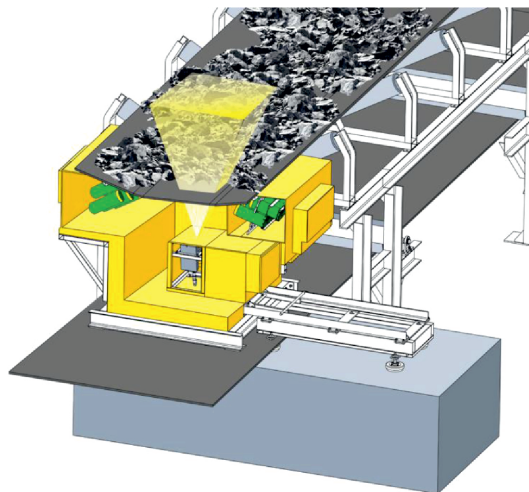


Рис. 33. Общая схема конвейерной установки АПП-К-1

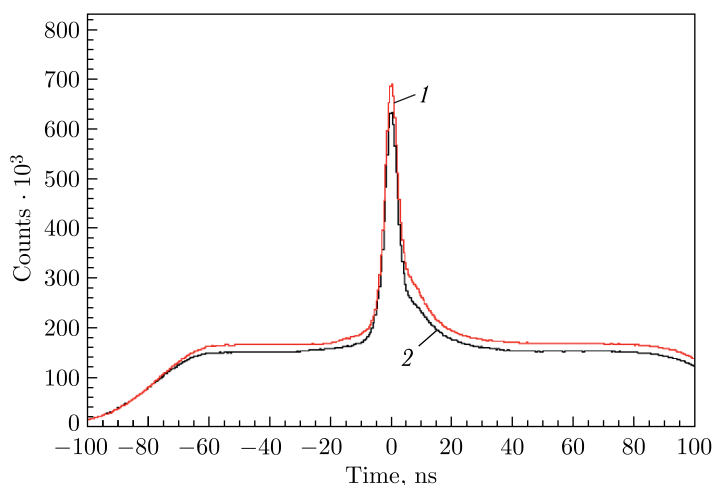


Рис. 34 (цветной в электронной версии). Временные распределения для пробы шихты массой 30 кг, покоящейся на ленте конвейера (красная линия, 1), и для движущейся шихты (черная линия, 2)

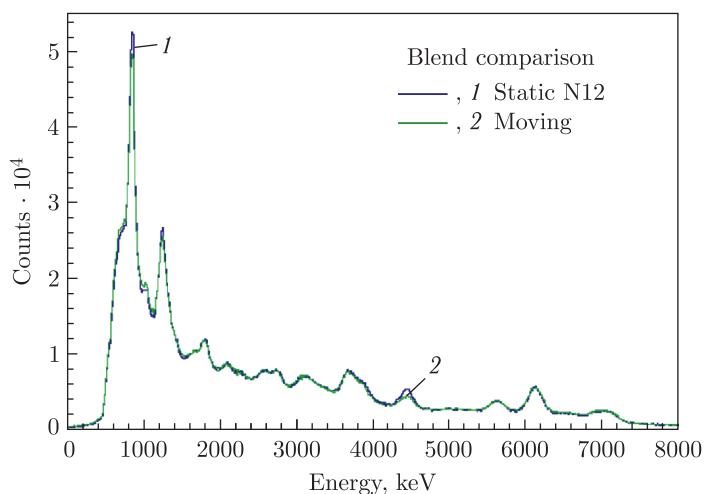


Рис. 35 (цветной в электронной версии). Энергетический спектр γ -квантов для пробы шихты массой 30 кг, покоящейся на ленте конвейера (синяя линия, 1), и для движущейся шихты (зеленая линия, 2)

Это дает возможность правильно определять энергетический спектр движущейся шихты и корректно вычислять массовые концентрации отдельных элементов. На рис. 35 энергетический спектр движущейся шихты сравнивается со спектром покоящейся пробы.

Эти спектры не должны быть подобны, поскольку концентрации элементов в шихте и пробе могут отличаться, но хорошо видно, что в движущейся шихте все линии от основных элементов совпадают с линиями элементов покоящейся пробы.

В металлургии очень важная задача состоит в поддержании постоянного элементного состава агломерата, используемого для выплавки чугуна. Ключевым параметром является значение основности — отношения CaO/SiO_2 , изменение которого во времени стараются избежать. Снижение среднеквадратичного отклонения основности агломерата всего лишь на 0,01 приводит к экономии кокса на 0,13–0,19 % и приросту производительности чугуна на 0,22–0,33 % [62].

Поскольку агломерационная шихта состоит из нескольких компонентов (железорудного концентрата, кокса, известняка и др.), химический состав которых может довольно сильно меняться в зависимости от используемого сырья, то задача получения агломерата с постоянной основностью является довольно сложной. В настоящее время информация об основности приходит к дозирующему шихты через несколько часов, причем в ряде случаев уже после того, как шихта пройдет агломерационную машину. Поэтому корректирующие воздействия (например, изменение расхода известняка) можно вносить только в новую порцию сырья.

На рис. 36 показано поведение основности шихты в условиях реального производства, определенное с помощью анализатора АГП-К-1. Видно, что в течение одного часа величина основности может меняться от 1,8 до 1,2 и обратно, тогда как ее целевое значение должно быть порядка $1,6 \pm 0,1$. Причина таких колебаний состоит в том, что в производственном процессе постоянно происходит изменение как соотношения между компонентами шихты, так и химического состава отдельных компонентов. Все это приводит к отклонению элементного состава агломерата от целевого значения.

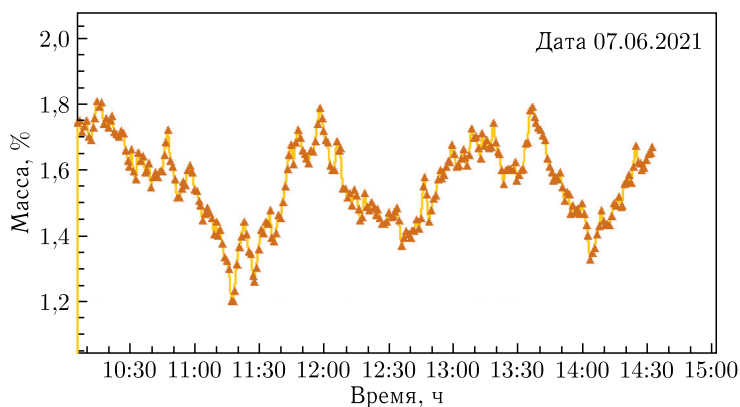


Рис. 36. Поведение основности шихты в зависимости от времени

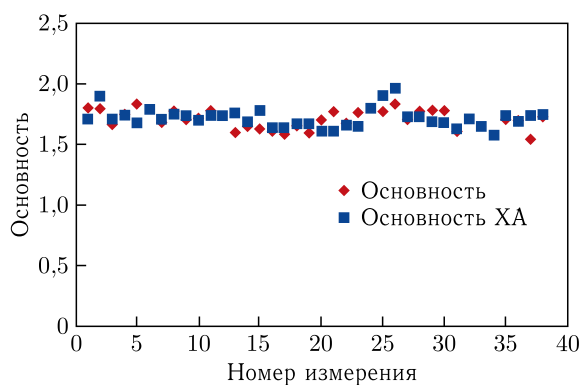


Рис. 37 (цветной в электронной версии). Результаты химического анализа (синие квадраты) в сравнении с результатами анализатора АГП-К-1 (красные ромбы). Каждая точка на графике соответствует усреднению результатов в течение 2 ч

Важно отметить, что временной интервал между точками на рис. 36 составляет 1–2 мин. Получать информацию об элементном составе шихты с такой частотой ранее было невозможно. Теперь же появляется возможность корректировать отклонения основности различными управляющими воздействиями. На рис. 37 показаны в сравнении результаты химического анализа (ХА) и результаты анализатора на основе ММН. Каждая точка на графике соответствует усреднению результатов в течение 2 ч. Это связано с тем, что проба для химического анализа отбирается порциями в течение 2 ч.

Видно, что согласие с результатами химического анализа вполне разумное. Такая же картина наблюдается и для массовых концентраций CaO и SiO_2 (рис. 38).

Анализатор АГП-К используется не только для анализа агломерационной шихты, но и для анализа фосфатной руды. На рис. 39 показан вид

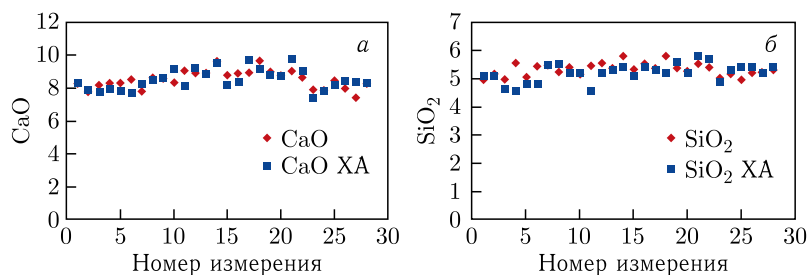


Рис. 38 (цветной в электронной версии). Результаты химического анализа (синие квадраты) в сравнении с результатами анализатора АГП-К-1 (красные ромбы) для массовых концентраций CaO (а) и SiO_2 (б). Каждая точка на графике соответствует усреднению результатов в течение 2 ч

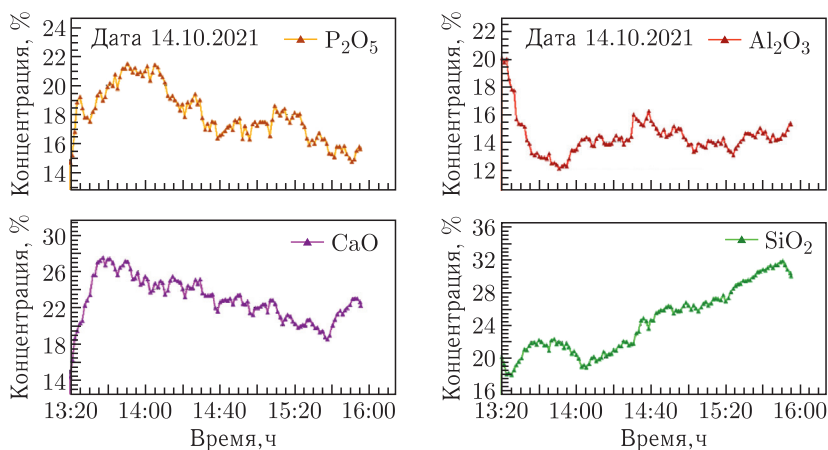


Рис. 39. Окно интерфейса АГП-К для показа изменения концентраций P_2O_5 , Al_2O_3 , CaO , и SiO_2

интерфейса оператора при работе анализатора на конвейере с апатитовой рудой.

Временной интервал между точками составляет 40 с. Однако при необходимости его можно выбрать в диапазоне от 5 мин до 2 ч. Этот режим удобен для просматривания общих трендов изменения элементной концентрации. Диапазон изменения концентрации P_2O_5 составляет 2–38 %. Погрешность измерения концентрации P_2O_5 (повторяемость) характеризуется абсолютным СКО $\sigma = 0,25$ %. Сходимость с результатами химического анализа для P_2O_5 имеет относительное СКО менее 5 %.

Использование поточного анализатора на основе ММН позволяет получать информацию об элементном составе минерального сырья на конвейере в режиме реального времени, что дает возможность осуществлять полную автоматизацию процесса приготовления сырья, обеспечить необходимое постоянство его характеристик.

Конвейерный анализатор на основе ММН АГП-К может быть также использован для анализа угля. Тут у него есть важное преимущество перед рентгеновскими или РФА-анализаторами, которые обычно определяют зольность угля, т. е. содержание тяжелых элементов в золе. Анализаторы на основе ММН дают возможность определять качество угля двумя методами — через прямое определение концентрации углерода и через зольность суммированием концентрации тяжелых элементов в пересчете на их оксиды.

Кроме того, уникальная возможность ММН определять концентрацию кислорода позволяет находить влажность угля. Это очень важно для разного практического применения. Наконец, зная содержание углерода, серы и оценивая долю водорода в угле, можно рассчитать удельную (низ-

Таблица 15. Точности измерений параметров угля анализатором АГП-К: σ_r — абсолютное СКО, $\sigma_r^{\text{отн}} = \sigma_r/A$ — относительное СКО, A — среднее значение переменной в диапазоне содержания

Параметр	Крупность, мм	σ_r , %	$\sigma_r^{\text{отн}}$, %
Массовая концентрация углерода	0–20	0,16	0,29
	20–100	0,12	0,23
Зольность	0–100	0,13	0,35
Влажность W^r , %	0–20	0,64	4,57
Удельная (низшая) теплота сгорания Q_i^r , ккал/кг	0–20	59,4	1,14

шую) теплоту сгорания угля. Полученные точности измерений приведены в табл. 15.

3.4. Детекторы взрывчатых веществ. ММН очень хорошо подходит для задачи обнаружения взрывчатых и других опасных веществ в различных объектах досмотра. Дело в том, что, как отмечалось в п. В.3, ММН хорошо определяет концентрации легких элементов — углерода, кислорода, азота. Взрывчатые вещества (ВВ) отличаются от обычных именно высоким содержанием азота и большим значением отношения С/О. Наркотические вещества характеризуются аномально большим отношением С/О. Отличие опасных веществ от обычных хорошо видно на своеобразной диаграмме Далитца (рис. 40), где по осям отложены концентрации С, N и О.

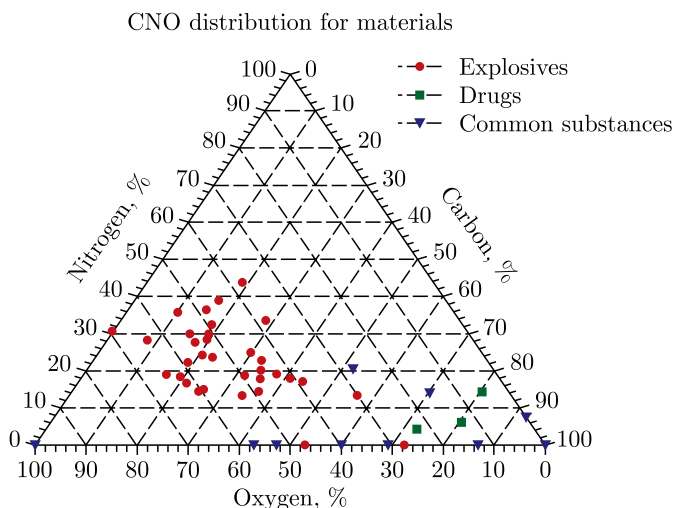


Рис. 40 (цветной в электронной версии). Химический состав взрывчатых веществ (красные кружки), наркотиков (зеленые квадраты) и обычных веществ (синие треугольники)

Видно, что ВВ находятся в основном в центре этой диаграммы Давитца, наркотики — в правом углу, тогда как обычные вещества (ОВ) заселяют нижнюю часть треугольника с малыми значениями концентрации азота. Однако разделение между ОВ и ВВ не является точным, что в совокупности с ошибками измерений оказывается причиной ложных срабатываний.

Главное преимущество детекторов на основе ММН перед газоанализаторами состоит в том, что детектор определяет не только факт возможного наличия ВВ, но и точное положение ВВ в объекте досмотра. Герметичность упаковки или наличие экранирующих веществ не играет большой роли для быстрых нейтронов, что позволило использовать детекторы на основе ММН также для досмотра морских контейнеров. Естественно, наличие резких запахов, сбивающих досмотровых собак, никак не влияет на обнаружение ВВ. Очень важное отличие детекторов на основе ММН от рентгеновских сканеров состоит в том, что обнаружение подозрительных веществ проходит в автоматическом режиме, без участия оператора.

На основе ММН были разработаны различные модификации детекторов взрывчатых веществ: переносной [63], стационарный [10], для заминированных автомобилей, подводный, портал для досмотра крупногабаритных грузов [11], а также мобильный детектор для досмотра грузовых вагонов.

Одной из последних разработок в этой области является система RRTNIS (Rapidly Relocatable Tagged Neutron Inspection System) [20] для досмотра крупногабаритных грузов. Эта система создана в рамках проекта Евросоюза C-BORD, основная цель которого состояла в разработке комплекса различных детекторов для таможенного досмотра. В состав комплекса входили детекторы радиации, газоанализаторы, рентгеновский сканер, фотоядерная установка и система на основе ММН RRTNIS (рис. 41).

Нейтронный модуль системы RRTNIS смонтирован на подъемной платформе. В отличие от предыдущей системы таможенного контроля Euritrack [65, 66], которая представляла собой неподвижный портал, нейтронный модуль RRTNIS может менять высоту подъема. Масса модуля составляет 5 т, размеры $270 \times 250 \times 220$ см. Он работает по целеуказанию, которое выдается рентгеновским сканером. Время досмотра одного целеуказания 20 мин. Детектирование γ -квантов производится сборкой из 20 NaI-детекторов размерами $5 \times 5 \times 10''$, предназначенными для регистрации γ -квантов большой энергии (более 3 МэВ) и четырьмя LaBr₃(Ce)-детекторами $3 \times 3''$ для эффективной регистрации низкоэнергетических γ -квантов. Детекторы на основе NaI позволяют с хорошей точностью измерять характеристические спектры следующих элементов: С, N, O, Si, Cl, Ca, Al, Fe, Cu, Zn, Pb. Детекторы на основе LaBr₃ позволяют измерять спектры элементов As, Br, I, характеристические линии которых находятся при низких энергиях.



Рис. 41. Модуль системы RRTNIS



Рис. 42. Мобильный досмотровый комплекс ДНТ

Другая установка, в основе которой также используется ММН, — это мобильный досмотровый комплекс ДНТ (рис. 42).

Таблица 16. Основные характеристики комплексов для досмотра крупногабаритных грузов

Параметр	Euritrack	C-BORD	ДНТ
Интенсивность нейтронного генератора (НГ), с ⁻¹	10 ⁷	5 · 10 ⁷	8 · 10 ⁷
Время жизни НГ, ч	2000	2000	1500
Производитель НГ	Sodern (Франция)	Sodern (Франция)	ВНИИА (Москва)
Число γ -детекторов	22	24	24
Время анализа, мин	20	20	15
Вес нейтронного модуля, кг	—	5000	1300
Тип размещения	Портал	Стационарный	Мобильный
Минимально детектируемая масса, кг	70–100	20	2 (за 5 мм стали)

Его нейтронный модуль установлен на погрузчике, что позволяет осуществлять досмотр крупногабаритных грузов по целеуказанию, которое обеспечивает рентгеновский сканер. В табл. 16 приведены для сравнения основные характеристики систем Euritrack, C-BORD и ДНТ.

3.5. Подводные детекторы. Моря и океаны, к сожалению, довольно часто используются для захоронения различных ядовитых отходов. На морском дне также можно найти большое количество мин и торпед. Причем иногда ВВ уже полностью вымыты из трещины в проржавевшем металлическом корпусе и никакими способами нельзя определить, представляет ли подозрительный объект на дне угрозу взрыва. Детекторы на основе ММН применялись и для обследования подозрительных объектов на морском дне [1, 64, 67, 68].

В рамках проекта UNCOSS [67, 68] был создан подводный аппарат, внутри которого размещался нейтронный генератор с α -детектором и γ -детектором $3 \times 3''$ на основе NaI(Tl). Первоначально аппарат был жестко соединен с клеткой, которая опускалась на предмет досмотра, что обеспечивало стационарную геометрию. Затем спускаемый аппарат был снабжен моторами, обеспечивающими его фиксацию над объектом досмотра. Именно правильное позиционирование составляет основную трудность для работы подводных нейтронных детекторов, поскольку необходимо удерживать детектор на минимальном расстоянии от объекта в течение достаточно длительного времени (10–15 мин), необходимого для набора статистики. Минимальное расстояние до объекта, по оценкам работ [67, 68], составляет 5–10 см. При этом массы ВВ в досматриваемых объектах составляли от нескольких килограммов до нескольких десятков килограммов.

Для проведения измерений с целью определения вероятности обнаружения различных опасных веществ под водой была разработана и создана экспериментальная установка, состоящая из модуля досмотра

и модуля контроля [64]. Экспериментальная установка предназначена для работы под водой на глубине не более 10 м.

Модуль досмотра представлял собой конструкцию, выполненную в виде трех сосудов: блока нейтронного генератора, блока регистрирующей электроники и питания и блока γ -детектора (рис. 43). Все блоки соединены между собой герметичными жгутами и кабелями. Модуль досмотра сконструирован на несущей раме. Габаритные размеры модуля досмотра составляют $1200 \times 1200 \times 420$ мм (Д \times Ш \times В), масса — 75 кг.

В состав основных узлов установки входит источник быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ — портативный нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным 9-секционным кремниевым α -детектором. Испытания проводились в акватории Пунатского залива (Хорватия). Аппарат погружался на глубину 2 и 3 м.

Были проведены 28 измерений с шестью веществами (меламином, ТНТ, гексогеном, ТАТР, ипритом, заринном) в различных экранирующих условиях (пластик, сталь). Имитаторы ВВ помещались в корпус авиабомбы (30 кг ТНТ), артиллерийского снаряда (7 кг ТНТ), мины (2 кг ТНТ), стальных сосудов (30 кг ТНТ). Измерения показали хорошую работу установки: произошло распознавание всех ВВ (в том числе безазотистых), расположенных вплотную к нейтронному модулю. Минимально детектируемая масса составила 80 г за время 6 мин. Максимальная дистанция обнаружения составила 10 см для объекта массой 1 кг и 24 см для объекта массой 30 кг (время измерения менее 20 мин). Были об-



Рис. 43. Модуль досмотра для подводной установки [64]

наружены сильнодействующие ядовитые вещества (СДЯВ), такие как иприт и зарин. Проверено, что экранировка сталью толщиной 20 мм препятствует обнаружению ВВ и СДЯВ.

3.6. Определение массовой концентрации углерода в почве.

В условиях изменения климата и повышения уровня CO_2 в атмосфере все большее внимание уделяется связыванию органического углерода в почве и исследованиям роли почвы в качестве поглотителя углерода. Связывание углерода в растениях и почвенных системах дает возможность смягчить парниковый эффект, однако взаимосвязь между запасами углерода в почве и фиксацией углерода в естественной и антропогенной растительности остается одной из наименее изученных проблем. В связи с этим важной становится разработка методики определения углерода в почве, с помощью которой можно достаточно оперативно получать сведения о концентрации углерода на больших участках почвы.

Обычно концентрацию углерода в почве определяют химическими методами «сухого» или «мокрого» сжигания пробы [69]. Для «мокрого» сжигания пробы (метод Тюрина) допускается 20%-я относительная погрешность результатов анализа (на уровне доверительной вероятности $P = 0,95$) при массовой доле органического вещества до 3% [69]. Метод «сухого» сжигания пробы значительно точнее, но требует больших затрат времени, поскольку на одно определение необходимо 2,5–3 ч [70]. Кроме того, он требует существенной пробоподготовки.

В последнее время для анализа элементного состава почвы привлекают методы лазерной (LIBS) и инфракрасной (NIRS) спектроскопии [71, 72]. Основной недостаток этих методов состоит в том, что с их помощью получают представление об элементном составе только небольших участков поверхностного слоя почвы: глубиной от 0,1 до 1 см.

Этих недостатков нет при использовании нейтронных методов анализа, в частности ММН [73–76]. Так, в работах [74, 75] обсуждаются результаты испытаний мобильной установки с нейтронным генератором, работающим в импульсном режиме с энергией нейтронов 14,1 МэВ и измеряющим концентрацию углерода по спектрам γ -квантов в реакциях неупругого рассеяния нейтронов (PFTN-метод). Спектры γ -квантов регистрируются тремя NaI-сцинтилляторами $12,7 \times 12,7 \times 15,2$ см. Прицеп с установкой транспортируется по всему полю. Показано, что эта процедура позволяет снять карбоновую карту поля размером 2,5 га за 8 ч, тогда как стандартная процедура с отбором проб и их последующим химическим анализом занимает 2–3 недели [73]. Сравнение установок, использующих ММН и PFTN, показало, что лучшее подавление фона для ММН приводит к тому, что минимально детектируемая концентрация углерода оказывается в 2,4 раза меньше, чем при использовании PFTN [74].

Проблемы, возникающие при определении концентрации углерода в почве, хорошо видны на примере опытов с прототипом установки для

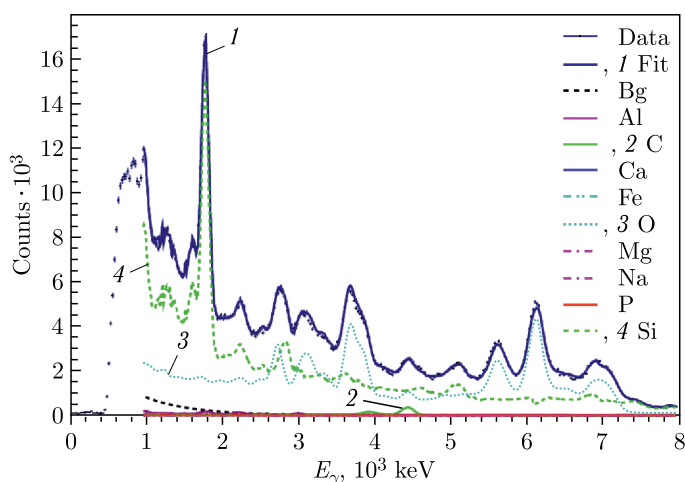


Рис. 44 (цветной в электронной версии). Энергетический спектр γ -квантов образца почвы

определения элементного состава почвы [5]. В его состав входили портативный нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным 9-пиксельным α -детектором, система из шести γ -детекторов на основе BGO, система сбора данных, блок питания детекторов и нейтронного генератора.

На рис. 44 приведен типичный энергетический спектр γ -квантов образца почвы. Точками с ошибками показаны экспериментальные данные. Разными цветами обозначены вклады от энергетических спектров отдельных элементов. Синей линией (1) показан суммарный вклад от всех элементов. Видно, что основной вклад в спектр почвы вносят вклады от кислорода (голубая пунктирная линия, 3), кремния (зеленая штриховая линия, 4) и углерода (зеленая сплошная линия, 2). Вклады от всех остальных элементов, присутствующих в фите, оказались равными нулю.

Хорошо видно, насколько мал вклад углерода в общий спектр. В данной пробе почвы его концентрация составила 1,7 %, что является довольно типичным значением для обычной почвы.

Спектр углерода, получаемый в реакции $^{12}\text{C}(n, n'\gamma)^{12}\text{C}^*$, довольно прост (см. рис. 5, С). В нем доминирует линия с энергией 4,44 МэВ. Однако необходимо учитывать, что при взаимодействии с ядрами кислорода быстрые нейтроны могут инициировать реакцию $^{16}\text{O}(n, n'\alpha)^{12}\text{C}^*$ с последующим снятием возбуждения $^{12}\text{C}^*$ через испускания γ -кванта с энергией 4,44 МэВ. Соответствующий пик хорошо виден на спектре кислорода (см. рис. 5, H₂O). Также в спектре кремния (см. рис. 5, SiO₂) в области 4,50 МэВ виден пик от γ -квантов, образующихся при снятии возбуждения $^{28}\text{Si}^*$ в реакции $^{28}\text{Si}(n, n'\gamma)^{28}\text{Si}^*$. Учет этих факторов важен для определения с хорошей точностью концентрации углерода в почве.

Таблица 17. Значения абсолютного (σ_r) и относительного ($\sigma_r^{\text{отн}}$) СКО повторных измерений для проб с концентрацией углерода 3,3 и 1,7 %

Образец	Среднее содержание, %	σ_r , %	$\sigma_r^{\text{отн}}$, %
С	3,30	0,16	4,7
	1,70	0,12	6,9
О	52,01	0,45	0,9
	52,62	0,65	1,2
Si	44,65	0,29	0,6
	39,23	0,63	1,6

Для определения возможностей аппаратуры были установлены точности измерения в смысле повторяемости. Для этого несколько образцов массой 30 кг измеряли 12 раз по 30 мин.

В табл. 17 приведены абсолютное (σ_r) и относительное ($\sigma_r^{\text{отн}}$) значения СКО повторяемости измерений, рассчитанные по формулам

$$\sigma_r = \sqrt{\frac{\sum_i (C_i - C)^2}{n - 1}}, \quad (19)$$

$$\sigma_r^{\text{отн}} = \frac{\sigma_r}{C} \cdot 100\%, \quad (20)$$

где n — число измерений; C — среднее значение массовой концентрации углерода по всем измерениям; C_i — значение массовой концентрации углерода в i -м измерении.

Таким образом, абсолютная погрешность повторных измерений массовой концентрации углерода в почве составила в среднем 0,14 %, кремния — 0,46 %, кислорода — 0,55 %.

Прототип установки для определения углерода в почве был испытан и в динамическом режиме. Для этого прицеп с прототипом транспортировался по полю на тракторе и сравнивались характеристики спектров почвы в статическом и динамическом режимах. Временные распределения и энергетические спектры для обоих режимов показаны в сравнении на рис. 45 и 46 соответственно.

На рис. 45 четко видны выраженный пик от γ -квантов вещества почвы и полка случайных совпадений слева от пика. Отсутствие полки случайных совпадений справа от пика объясняется намеренным загромождением параметров системы сбора данных, которая не успевала полностью обрабатывать собираемые данные.

Также на рис. 45 видно, что временные спектры измерений в статическом и динамическом режимах практически полностью совпадают. Это очень важный результат, поскольку совпадение временных спектров или хотя бы наличие четко выраженного пика от почвы является необходимым условием для корректного измерения элементного состава почвы.

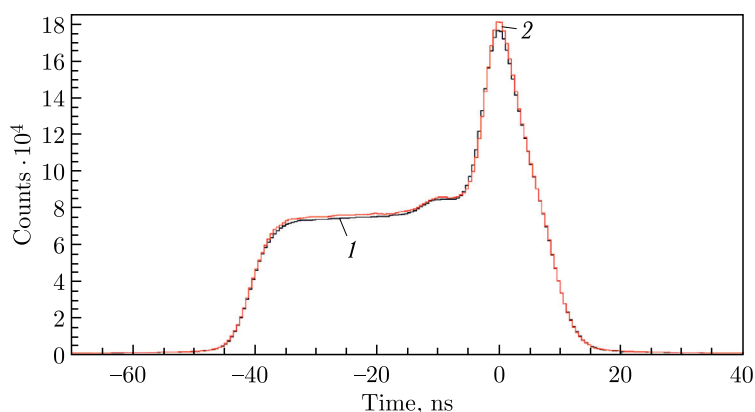


Рис. 45 (цветной в электронной версии). Временные распределения в случае динамического (черный, 1) и статического (красный, 2) режимов

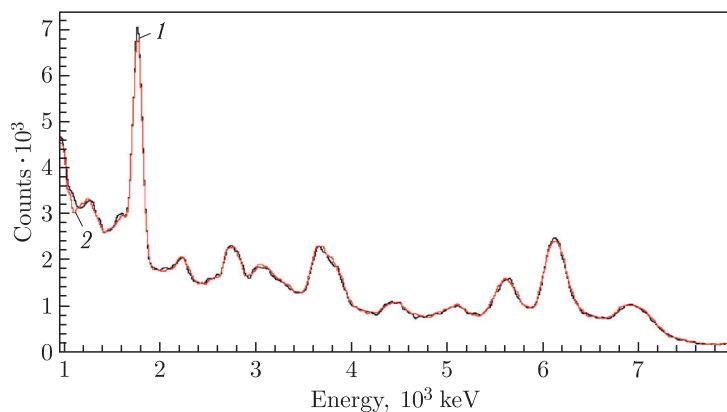


Рис. 46 (цветной в электронной версии). Энергетические спектры γ -квантов образца почвы в случае динамического (черный, 1) и статического (красный, 2) режимов

На рис.46 видно, что спектры γ -квантов образца почвы в случае динамического и статического режимов практически полностью совпадают, что доказывает корректность проведения измерений с движущимся нейтронным модулем.

3.7. Использование ММН в планетологии. Гамма- и нейтронная спектроскопия активно используются для определения элементного состава поверхности планет Солнечной системы. Примером может служить марсианская миссия NASA Curiosity [77], в которой марсоход нес нейтронный генератор производства ФГУП «ВНИИА» и был оборудован нейтронными счетчиками на основе ВаF₃. Основная задача миссии состояла в поиске воды под поверхностью Марса, что достигалось изме-

рениями нейтронов альbedo. С использованием нейтронного генератора в сочетании с γ -спектрометром можно получить больше информации об элементном составе поверхности планеты. Однако, если спектрометр размещается на массивном ровере или около космического аппарата, то возникает типичная проблема фона от этих предметов, который по абсолютной величине намного превосходит сигнал от поверхности планеты. Использование ММН позволяет преодолеть эту проблему, чему было посвящено исследование [78].

Авторы собрали установку из нейтронного генератора с 9-пиксельным α -детектором и γ -детектора $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ на полигоне, имитирующем элементный состав марсианского грунта. Вещество космического аппарата имитировалось алюминиевыми грузами, размещенными около нейтронного генератора. Облучение проводилось в двух режимах: в режиме мечения нейтронов и без него. Оказалось, что в режиме мечения результаты определения элементных концентраций практически не зависели от того, были вокруг расположены фоновые предметы или нет. В стандартном режиме облучения нейтронного облучения число событий в линии Al возрастало в 3 раза, если вокруг нейтронного генератора размещалось несколько сот килограммов алюминия.

В работе [79] изучалась способность установки на меченых нейтронах давать информацию об элементном составе под поверхностью марсианской почвы. Для этого в состав сборки, имитирующей марсианский грунт, на глубине 12 см был добавлен слой полиэтилена толщиной 5 см. Авторы показали, что вариации состава углерода действительно показывают значительное увеличение углерода на глубине порядка 10–15 см, что позволило им сделать вывод о том, что пространственное разрешение установки составляет порядка 5 см по вертикали.

3.8. Элементный анализ человека и животных *in vivo*. Облучение человека и животных быстрыми нейтронами проводилось для определения концентраций таких основных элементов, входящих в состав тела, как N, Ca, P, K, Na, Cl. Большая работа в этом направлении была проделана в лаборатории INVA (*in vivo* neutron activation) в BNL (США) [80–82]. В частности, измеренные *in vivo* концентрации углерода, кальция и азота дают возможность определить массу жира в теле. По концентрации азота восстанавливается масса протеина тела, межклеточная жидкость определяется по концентрации натрия и хлора, мышечная масса тела связана с концентрацией калия, масса скелета зависит от концентрации кальция [82]. Исследования, продолжавшиеся более 20 лет, показали возможность определения элементных концентраций в теле пациента с относительной точностью 1–3% [82].

В качестве примера рассмотрим, как провели измерения для определения концентрации азота в теле пациента *in vivo* [80]. Источником нейтронов являлся $^{238}\text{PuBe}$ с интенсивностью $I = 2,3 \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$ и средней энергией нейтрона $E = 4,5 \text{ МэВ}$. Источник размещался под кроватью

с пациентом на расстоянии 50 см. Гамма-кванты регистрировались двумя NaI(Tl)-детекторами размером $15,24 \times 15,24$ см, которые располагались над пациентом. Кровать смещалась относительно источника нейтронов для того, чтобы можно было проводить измерения в разных точках тела пациента. Измерения проводились в восьми точках тела (от плеч до колен) в течение 20 мин. Всего было облучено 14 мужчин, каждый из которых получил полную дозу облучения 260 мкЗв. Определена массовая доля азота, которая составила $N = (3,38 \pm 0,15) \%$ от мышечной массы тела.

В работе [81] изучалась возможность определения массовой концентрации железа в печени и сердце *in vivo*. В работе [83] описываются опыты по определению жира, протеина и воды в пробах мяса овец, по измерению массовой концентрации углерода, кислорода и азота. Нейтронный генератор с α -детектором облучал пробы потоком нейтронов с энергией 14,1 МэВ с интенсивностью $I = 1 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$. Гамма-кванты регистрировались четырьмя NaI(Tl)-детекторами размером 15×15 см. Показано, что, облучая пробу массой 40 кг, можно достигать удовлетворительной точности в определении массовых концентраций азота, углерода и кислорода за 15 мин, при этом проба получает дозу 30 мкЗв, что в 10 раз меньше, чем при всех других способах определения элементного состава нейтронными методами.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Метод меченых нейтронов — сравнительно новая технология дистанционного неразрушающего анализа элементного состава вещества. Хотя общие физические принципы ММН были известны уже в 1940–1950-е гг., развитие технологии сдерживалось отсутствием портативных нейтронных генераторов со встроенными α -детекторами. Эксперименты с использованием ММН проводились, главным образом, на ускорителях типа Ван де Граафа. При практическом применении доминировало использование метода PGNAА (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis), в котором источником нейтронов служит распад радиоактивных элементов, таких как ^{252}Cf . Однако основным недостатком PGNAА является отсутствие информации о времени прилета γ -квантов. Это приводит к тому, что невозможно разделить полезный сигнал от исследуемого вещества и фоновый сигнал от окружающей среды. Причем, как правило, фоновый сигнал в сотни раз больше полезного. ММН лишен этого недостатка и, как следствие, с лучшей точностью определяет элементный состав вещества, чем PGNAА.

Наличие α -детектора, встроенного в нейтронный генератор, предоставляет уникальные возможности для мониторинга числа нейтронов. Это особенно полезно при измерении абсолютных значений физических величин (например, для определения различных сечений взаимодействия).

Большая проникающая способность нейтронов с энергией 14,1 МэВ в сочетании с большими энергиями γ -квантов (1–7 МэВ) позволяет изучать элементный состав значительных объемов вещества. Этим ММН кардинально отличается от различных рентгеновских и лазерных методов анализа, которые предоставляют информацию лишь о нескольких миллиметрах исследуемого объекта.

Высокая чувствительность ММН к концентрациям легких элементов, таким как углерод и кислород, дает дополнительные возможности для определения влажности исследуемой среды.

В будущем активность применения ММН будет только возрастать, поскольку развитие технологии портативных нейтронных генераторов приведет к увеличению срока их службы при общем снижении стоимости эксплуатации. В то же время будут шире применяться высокоточные γ -детекторы с повышенной эффективностью. Это позволит существенно увеличить временное и энергетическое разрешение установок на основе ММН, что, в свою очередь, позволит решать новые интересные классы задач. Примером таких новых возможностей, которые возникают при достижении временного разрешения порядка 0,1 нс, является обнаружение с помощью ММН раковых клеток по превышению в них концентрации железа [84].

Благодарности. Авторы приносят благодарность В. Ю. Алексахину, Д. Н. Грозданову, И. Д. Дашкову, И. Ф. Ленскому, Ю. Н. Рогову, Е. А. Разинкову, И. Н. Рускову, А. Б. Садовскому, В. Р. Ской, Т. Ю. Третьяковой, Н. А. Федорову за помощь в работе и многочисленные обсуждения.

Отдельная благодарность представителям инновационного центра «Сколково» и С. А. Журбе за финансовую поддержку при создании различных детекторов и анализаторов на основе ММН. Поддержка и помощь со стороны коллег по работе Е. И. Андреева, А. И. Ахуновой, Д. Н. Борисова, Д. А. Волкова, А. В. Гончарова, Н. И. Замятина, И. К. Комарова, Е. О. Митрофанова, Т. Н. Сыроватской, В. М. Слепнева, И. Е. Чирикова-Зорина сыграла большую роль в развитии ММН.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 23-12-00239).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sowerby B. D.* Nuclear Techniques for the On-Line Bulk Analysis of Carbon in Coal-Fired Power Stations // *Appl. Radiat. Isot.* 2009. V. 67. P. 1638–1643.
2. *Valkovic V.* 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. Boca Raton: CRC Press, 2015.
3. *Bystritsky V. M. et al.* // Proc. of the 4th Intern. Symp. on Technol. and Mine Problem, Naval Postgraduate School, Monterey, California, USA, March 13–16, 2000.
4. *Bystritsky V. M. et al.* Investigation of the Detector of Explosives and Drugs on the Base of Portable Neutron Generator // Proc. of the Intern. Sci. and

- Techn. Conf. "Portable Neutron Generators and Technologies on Their Basis". М., 2003. P. 263.
5. *Алексахин В. Ю., Разинков Е. А., Рогов Ю. Н., Садовский А. Б., Сапожников М. Г., Дашков И. Д., Грозданов Д. Н., Копач Ю. Н., Ской В. Р., Федоров Н. А.* Определение концентрации углерода в почве с использованием метода меченых нейтронов // Письма в ЭЧАЯ. 2022. Т. 19, № 6(245). С. 546–556.
 6. *Simakov S. et al.* Status of Experimental and Evaluated Discrete Gamma-Ray Production at $E_n = 14.5$ MeV. <http://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-ccp-0413>.
 7. Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF). <https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>.
 8. *Radtko R.J. et al.* A New Capture and Inelastic Spectroscopy Tool Takes Geochemical Logging to the Next Level // 53rd Ann. Logging Symp. (SPWLA), June 16–20, 2012.
 9. *Артемов С. В., Юлдашев Б. С., Каюмов М. А., Караходжаев А. А., Бахранин О. О., Рузиев Э. Т., Татарчук В. А., Тожибоев О. Р., Эргашев Ф. Х.* Комплекс методик для измерения энергетических спектров вторичных нейтронов на нейтронном генераторе НГ-150 ИЯФ АН РУз // Междунар. конф. «Фундаментальные и прикладные вопр. физики», Ташкент, 22–23 сент. 2020 г.
 10. *Bystritsky V. M., Gerasimov V. V., Kadyshchevsky V. G., Kobzev A. P., Nozdryn A. A., Rogov Yu. N., Rapatsky V. L., Sadovsky A. B., Salamatin A. V., Sapozhnikov M. G. et al.* DVIN — Stationary Setup for Identification of Explosives // Phys. Part. Nucl. Lett. 2008. V. 5. P. 441–446.
 11. *Pesente S., Nebbia G., Viesti G., Daniele F., Fabris D., Lunardon M., Morretto S., Nad K., Sudac D., Valkovic V.* Progress in Tagged Neutron Beams for Cargo Inspections // Nucl. Instr. Meth. B. 2007. V. 261. P. 268–271.
 12. *Mihalczko J. T., Bingham P. R., Blackston M. A., Crye J. M., Grogan B. R., Hausladen P. A., McConchie S. M., Mullens J. A.* Fast Neutron Imaging with API DT Neutron Generators // Proc. of the Intern. Sci. and Techn. Conf. "Portable Neutron Generators and Technologies on Their Basis". The All-Russ. Inst. Automatics (VNIIA). М., 2012. P. 198–212.
 13. *Zamyatin N. I., Bystritsky V. M., Kopach Yu. N. et al.* Neutron Beam Profilmeter on the Base of Double-Sided Silicon Strip Detectors // Nucl. Instr. Meth. A. 2018. V. 898. P. 46–52.
 14. *Rogov Yu., Kremenets V., Sapozhnikov M., Sebele M.* Application of Tagged Neutron Method for Detecting Diamonds in Kimberlite // J. Instrum. 2020. V. 4. P. 33.
 15. *Beringer J. et al. (Particle Data Group)* // Phys. Rev. D. 2012. V. 86. P. 010001.
 16. *Sullivan R.* An Advanced ESTCP PELAN System for Surface and Near-Surface UXO Discrimination. Final Report. 2007.
 17. *Eleon C. et al.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2011. V. 629. P. 220–229.
 18. *Globus M., Grinyov B., Jong Kyung Kim.* Inorganic Scintillators for Modern and Traditional Applications. Kharkiv: Inst. Single Crystals, 2005.
 19. *Sardet A. et al.* Gamma Signatures of the C-BORD Tagged Neutron Inspection System // Eur. Phys. J. Web Conf. 2018. V. 170. P. 07011.

20. *Pino F. et al.* Detection Module of the C-BORD Rapidly Relocatable Tagged Neutron Inspection System (RRTNIS) // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2021. V. 986. 164743; doi: 10.1016/j.nima.2020.164743.
21. *Bosteels M., Weill R.* // *Nucl. Instr. Meth. B.* 2003. V. 498. P. 165–189.
22. *Bystritsky V. M. et al.* Gamma-Detectors for Explosive and Drug Detection System // *Proc. of the Intern. Sci. and Techn. Conf. "Portable Neutron Generators and Technologies on Their Basis"*. М., 2013. P. 496.
23. *Cecil F. E. et al.* Experimental Determination of Absolute Efficiency and Energy Resolution for NaI(Tl) and Germanium Gamma-Ray Detectors at Energies from 2.6 to 16.1 MeV // *Nucl. Instr. Meth. A.* 1985. V. 234. P. 479.
24. *Bucher B. et al.* // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2022. V. 1032. P. 166651.
25. *Fedorov N. A., Grozdanov D. N., Kopatch Yu. N., Tretyakova T. Yu., Ruskov I. N., Skoy V. R., Dashkov I. D., Aliyev F. A., Dabylova S., Hramco C., Kumar A., Gandhi A., Wang D. et al.* Inelastic Scattering of 14.1 MeV Neutrons on Iron // *Eur. Phys. J. A.* 2021. V. 57, No. 6. P. 57–194.
26. *Ruskov N., Kopatch Yu. N., Bystritsky V. M., Skoy V. R. et al.* TANGRA-Setup for the Investigation of Nuclear Fission Induced by 14.1 MeV Neutrons // *Phys. Proc.* 2015. V. 64. P. 163–170; <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389215001388>.
27. *Ruskov I., Kopatch Yu., Bystritsky V., Skoy V., Shvetsov V., Hamsch F.-J., Oberstedt S., Capote Noy R., Grozdanov D., Zontikov A. et al.* TANGRA — an Experimental Setup for Basic and Applied Nuclear Research by Means of 14.1 MeV Neutrons // *Eur. Phys. J. Web Conf.* 2017. V. 146. P. 03024–03027.
28. *Быстрицкий В. М., Валкович В., Грозданов Д. Н., Зонтиков А. О., Иванов И. Ж., Копач Ю. Н., Крылов А. Р., Рогов Ю. Н., Русков И. Н., Сапожников М. Г., Ской В. Р., Швецов В. Н.* Многослойная пассивная защита сцинтилляционных детекторов на основе кристаллов BGO, NaI(Tl) и стильбена, работающих в интенсивных нейтронных полях с энергией 14,1 МэВ // *Письма в ЭЧАЯ.* 2015. Т. 12, № 2(193). С. 486–504; http://www1.jinr.ru/Peran_letters/panl_2015_2/18_bystr.pdf.
29. *Быстрицкий В. М., Грозданов Д. Н., Зонтиков А. О., Копач Ю. Н., Рогов Ю. Н., Русков И. Н., Садовский А. Б., Ской В. Р., Бармаков Ю. Н., Боголюбов Е. П., Рыжков В. И., Юрков Д. И.* Угловое распределение γ -квантов с энергией 4,43 МэВ, образующихся при неупругом рассеянии нейтронов с энергией 14,1 МэВ на ядрах ^{12}C // *Письма в ЭЧАЯ.* 2016. Т. 13, № 4(202). С. 793–807.
30. *Zamyatin N. I., Bystritsky V. M., Kopach Yu. N., Aliyev F. A., Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Hramco C., Ruskov I. N., Skoy V. R., Slepnev V. M., Wang D., Zubarev E. V. (TANGRA Collab.)* Neutron Beam Profilometer on the Base of Double-Sided Silicon Strip Detectors // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2018. V. 898. P. 46–52.
31. *Fedorov N. A., Grozdanov D. N., Bystritskiy V. M., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Skoy V. R., Tretyakova T. Yu., Zamyatin N. I., Wang D., Aliev F. A., Hramco C., Gandhi A., Kumar A., Dabyl S. et al.* Measurements of the Gamma-Quanta Angular Distributions Emitted from Neutron Inelastic Scattering on ^{28}Si // *Eur. Phys. J. Web Conf.* 2018. V. 177. P. 02002.
32. *Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Bystritski V. M., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Skoy V. R., Tretyakova T. Yu., Zamyatin N. I., Wang D., Aliev F. A., Hramco C.,*

- Gandhi A., Kumar A. et al.* Measurement of Angular Distributions of Gamma Rays from the Inelastic Scattering of 14.1-MeV Neutrons by Carbon and Oxygen Nuclei // *Phys. At. Nucl.* 2018. V. 81, No. 5. P. 588–594.
33. *Fedorov N. A., Tretyakova T. Yu., Bystritski V. M., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Skoy V. R., Grozdanov D. N., Zamyatin N. I., Dongming W., Aliev F. A., Hramco C., Kumar A. et al.* Investigation of Inelastic Neutron Scattering on ^{27}Al Nuclei // *Phys. At. Nucl.* 2019. V. 82, No. 4. P. 297–304.
34. *Грозданов Д. Н., Федоров Н. А., Копач Ю. Н., Быстрицкий В. М., Третьякова Т. Ю., Русков И. Н., Ской В. Р., Дабылова С., Алиев Ф. А., Храшко К., Гундорин Н. А., Дашков И. Д., Боголюбов Е. П. и др.* Измерение выходов и угловых распределений γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с ядрами хрома // *ЯФ.* 2020. Т. 83, № 3. С. 200–207.
35. *Федоров Н. А., Грозданов Д. Н., Копач Ю. Н., Быстрицкий В. М., Третьякова Т. Ю., Русков И. Н., Ской В. Р., Дабылова С., Алиев Ф. А., Храшко К., Гундорин Н. А., Дашков И. Д. и др.* Измерение выходов и угловых распределений γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с ядрами магния // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2020. Т. 84, № 4. С. 480–486.
36. *Fedorov N. A., Dashkov I. D., Grozdanov D. N., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Skoy V. R., Tretyakova T. Yu., Aliev F. A., Dabylova S., Gundorin N. A., Hramco C. (TANGRA Collab.).* Investigation of 14.1 MeV Neutrons Interaction with C, Mg, Cr // *Ind. J. Pure & Appl. Phys.* 2020. V. 58, No. 5. P. 358–362.
37. *Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Dabylova S. B., Aliyev F. A., Skoy V. R., Hramco C., Tretyakova T. Yu., Kumar A., Gandhi A., Sharma A., Wang D., Sakhiye S. K.* Response Function of a BGO Detector for Gamma-Rays with Energies in the Range from 0.2 MeV to 8 MeV // *Ibid.* P. 427–430.
38. *Grozdanov D. N., Fedorov N. A., Kopach Yu. N., Ruskov I. N., Skoy V. R., Tretyakova T. Yu., Dabylova S. B. (TANGRA Collab.).* Semi-Empirical Gamma-Ray Response Function of BGO, NaI(Tl) and LaBr₃(Ce) Scintillation Detectors // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2021. V. 1014. 165741.
39. *Дабылова С. Б., Копач Ю. Н., Федоров Н. А., Грозданов Д. Н., Русков И. Н., Ской В. Р., Храшко К., Третьякова Т. Ю., Сахиев С. К., Маржохов Р. Б., Боголюбов Е. П., Зверев В. И. и др.* Измерение выходов и угловых распределений γ -квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов с энергией 14,1 МэВ с ядрами натрия и хлора // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2021. Т. 85, № 10. С. 1410–1417.
40. *Дашков И. Д., Федоров Н. А., Грозданов Д. Н., Копач Ю. Н., Третьякова Т. Ю., Русков И. Н., Ской В. Р., Дабылова С., Алиев Ф. А., Храшко К., Гундорин Н. А., Маржохов Р. Б. и др.* Моделирование рассеяния нейтронов с энергией 14 МэВ на ядрах титана, хрома и железа с помощью программы TALYS // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2021. Т. 85, № 10. С. 1436–1445.
41. *Dashkov I. D., Fedorov N. A., Grozdanov D. N., Kopach Yu. N., Tretyakova T. Yu., Ruskov I. N., Skoy V. R., Erbolot A., Berikov D., Barmakov Yu. N., Bogolyubov E. P., Yurk D. I. et al.* Measurement of the Angular Distribution of 14.1 MeV Neutrons Scattered by Carbon Nuclei // *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* 2022. V. 86, No. 8. P. 893–897.

42. <https://www.ortec-online.com/products/radiation-detectors/germanium-hpge-radiation-detectors>
43. *Agostinelli S., Allison J., Amako K. et al.* Geant4 — a Simulation Toolkit // Nucl. Instr. Meth. A. 2003. V. 506, No. 3. P. 250–303.
44. *Koning A.J., Rochman D.* Modern Nuclear Data Evaluation with the TALYS Code System // Nucl. Data Sheets. 2012. V. 113. P. 2841.
45. *Jun Chen, Balraj Singh.* Nuclear Data Sheets for $A = 50$ // Nuclear Data Sheets. 2019. V. 157. P. 1–259; <https://doi.org/10.1016/j.nds.2019.04.001>.
46. *Abbondanno U., Giacomich R., Lagonegro M., Pauli G.* // J. Nucl. Energy. 1973. V. 27. P. 227.
47. *Obložinský P., Hlaváč S., Maino G., Mengoni A.* // Nuovo Cim. A. 1992. V. 105. P. 965.
48. *Brown D.A., Chadwick M.B., Capote R.* ENDF/B-VIII.0: The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-Project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data // Nucl. Data Sheets. 2018. V. 148. P. 1–142.
49. <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-200-ej-204-ej-208-ej-212>
50. *Boerker G., Mannhart W., Siebert B. R. L.* // Proc. of the Intern. Conf. on Nucl. Data Sci. Technol. Julich, 1991. P. 317.
51. *Baba M., Matsuyama S., Fujisawa M. et al.* // Proc. of 1989 Seminar on Nucl. Data. Tokai-mura, 1989. P. 383.
52. *Bonazzola G. C., Bressani T., Chiavassa E. et al.* // Lett. Nuovo Cim. 1972. V. 3. P. 99.
53. *Sebele M.* Application of Tagged Neutron Method for Detecting Diamonds in Kimberlite // X Tastes of Nucl. Phys. Conf., Univ. of the Western Cape, South Africa, Nov. 30 – Dec. 4, 2020.
54. *Alexakhin V. Yu., Bystritsky V. M., Zamyatin N. I., Zubarev E. V., Krasnope-rov A. V., Rapatsky V. L., Rogov Yu. N., Sadovsky A. B., Salamatin A. V., Sal-min R. A. et al.* Detection of Diamonds in Kimberlite by the Tagged Neutron Method // Nucl. Instr. Meth. 2015. V. 785. P. 9–13.
55. *Ковальчук О.Е., Софронеев С.В., Рогов Ю.Н., Сапожников М.Г., Никитин Г.М.* Облучение алмазов быстрыми мечеными нейтронами. Препринт ОИЯИ Р14-2017-54. Дубна, 2017.
56. *Никитин Г.М., Рогов Ю.Н., Сапожников М.Г., Ямов А.В.* Использование метода меченых нейтронов для сухого обогащения кимберлитовой руды // Горный журн. 2018. № 5. С. 58–62.
57. *Bystritsky V. M., Nikitin G. M., Rogov Yu. N., Sadovsky A. B., Sapozhnikov M. G.* Application of the Tagged Neutron Method for Diamonds Detection in Kimberlite // Proc. of Intern. Mining Processing Congress (IMPC 2018), Moscow, 2018. P. 683–689.
58. *Rogov Yu., Kremenets V., Sapozhnikov M., Sebele M.* Application of Tagged Neutron Method for Detecting Diamonds in Kimberlite // Instrum. 2020. V. 4. P. 33.
59. *Винс В.Г.* Оптически активные дефекты в алмазе — закономерности образования и взаимной трансформации: Дис. ... д-ра физ.-мат. наук. Барнаул, 2011. 252 с.

60. *Bolshakov I., Kolesnik M., Sorokin M., Kremenets V., Razinkov E., Rogov Yu., Sapozhnikov M.* Application of Tagged Neutron Method for Element Analysis of Phosphorus Ore // Intern. J. Mineral Processing and Extractive Metallurgy. 2020. V. 5. P. 54–59.
61. *Alexakhin V. Yu. et al.* Determination of the Elemental Composition of Geological Rocks and Minerals by the Method of Tagged Neutrons // 23rd Intern. Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei: Fundamental Interactions & Neutrons, Nuclear Structure, Ultracold Neutrons, Related Topics (ISINN-23), Dubna, May 25–29, 2015.
62. *Вегман Е. Ф.* Краткий справочник доменщика. М.: Металлургия, 1981. С. 240.
63. *Сапожников М. Г.* Детектор взрывчатых веществ ДВИН-1 для нужд транспортной безопасности // Транспорт. безопасность и технологии. 2012. № 2(29). С. 169.
64. *Алексахин В. Ю., Быстрицкий В. М., Замятин Н. И., Зубарев Е. В., Красноперов А. В., Рапацкий В. Л., Рогачев А. В., Рогов Ю. Н., Садовский А. Б., Саламатин А. В., Сапожников М. Г., Слепнев В. М.* Применение метода меченых нейтронов для обнаружения опасных веществ под водой // Письма в ЭЧАЯ. 2013. Т. 10, № 7(184). С. 1384–1395.
65. *Perot B., Carasco C., Bernard S., Mariani A., Szabo J.-L., Mercier E., Sannie G., Viesti G., Nebbia G., Pesente S., Lunardon M., Moretto S., Fabris D., Zenoni A., Bonomi G., Donzella A., Fontana A., Boghen G., Valkovic V., Sudac D., Moszynski M., Batsch T., Gierlik M., Woski D., Klamra W., Isaksson P., Le Tourneur P., Lhuissier M., Colonna A., Tintori C., Peerani P., Sequeira V., Salvato M.* Development of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System // Nucl. Instr. Meth. B. 2007. V. 261, No. 1–2. P. 295–298; <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2007.03.073>.
66. *Carasco C., Perot B., Bernard S., Mariani A., Szabo J.-L., Sannie G., Roll T., Valkovic V., Sudac D., Viesti G., Lunardon M., Bottosso C., Fabris D., Nebbia G., Pesente S., Moretto S., Zenoni A., Donzella A., Moszynski M., Gierlik M., Batsch T., Wolski D., Klamra W., Le Tourneur P., Lhuissier M., Colonna A., Tintori C., Peerani P., Sequeira V., Salvato M.* In-Field Tests of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System // Nucl. Instr. Meth. A. 2008. V. 588, No. 3. P. 397–405; <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2008.01.097>.
67. *Valkovic V., Sudac D., Obhodas J. et al.* The Use of Alpha Particle Tagged Neutrons for the Inspection of Objects on the Seafloor for the Presence of Explosives // Nucl. Instr. Meth. A. 2013. V. 703. P. 133–137.
68. *Obhodas J., Valkovic V., Sudac D., Matika D., Pavic I., Kollar R.* Environmental Security of the Coastal Seafloor in the Ports and Waterways of the Mediterranean Region // Nucl. Instr. Meth. A. 2010. V. 619. P. 419–426.
69. Почвы. Методы определения органического вещества: ГОСТ 26213-91. М., 1991.
70. Практическое руководство по химии почв. <https://studfile.net/preview/2465162/page:40/>.
71. *Milori D., Segnini A., da Silva W. T. L., Posadas A., Mares V., Quiroz R., Martin-Neto L.* Emerging Techniques for Soil Carbon Measurements. CCAFS Working Paper No.2. CGIAR Research Program on Climate Change, Agriculture and Food Security (CCAFS). Copenhagen, 2011.

72. Chatterjee A., Lal R., Wielopolski L., Martin M.Z., Ebinger M.H. Evaluation of Different Soil Carbon Determination Methods // *Crit. Rev. Plant Sci.* 2009. V. 28. P. 164–178.
73. Yakubova G., Wielopolski L., Kavetskiy A., Torbert A., Prior S. Field Testing a Mobile Inelastic Neutron Scattering System to Measure Soil Carbon // *Soil Sci.* 2014. V. 179, No. 12. P. 529.
74. Kavetskiy A., Yakubova G., Torbert A., Prior S. Application of the Associated Particle Neutron Techniques for Soil Carbon Analysis // *AIP Conf. Proc.* 2019. V. 2160. P. 050006; <https://doi.org/10.1063/1.5127698>.
75. Wielopolski L., Hendrey G., Johnsen K., Mitra S., Prior A., Rogers H.H., Torbert H.A. Non-Destructive System for Analyzing Carbon in the Soil // *Soil Sci. Soc. Am. J.* 2008. V. 72. P. 1269–1277.
76. Wielopolski L., Chatterjee A., Mitra S., Lal R. *In Situ* Determination of Soil Carbon Pool by Inelastic Neutron Scattering: Comparison with Dry Combustion // *Geoderma.* 2011. V. 160. P. 394–399.
77. Grotzinger J.P. *et al.* Mars Science Laboratory Mission and Science Investigation // *Space Sci. Rev.* 2012. V. 170. P. 5–56; <http://dx.doi.org/10.1007/s11214-012-9892-2>.
78. Litvak M.L., Barmakov Yu.N., Belichenko S.G., Bestaev R.R., Bogolubov E.P., Gavrychenkov A.V., Kozyrev A.S., Mitrofanov I.G., Nosov A.V., Sanin A.B., Shvetsov V.N., Yurkov D.I., Zverev V.I. Associated Particle Imaging Instrumentation for Future Planetary Surface Missions // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2019. V. 922. P. 19–27.
79. Litvak M.L., Barmakov Yu.N., Belichenko S.G., Bogolubov E.P., Kozyrev A.S., Mitrofanov I.G., Nosov A.V., Perkhov A.S., Samoshin A.V., Sanin A.B., Sholeninov S.E., Shvetsov V.N., Yurkov D.I., Zontikov A.O., Zverev V.I. 3D Imaging of Subsurface Structure in Planetary Missions // *Nucl. Instr. Meth. A.* 2020. V. 963. 163725.
80. Vartsky D., Ellis K.J., Cohn S.H. *In Vivo* Measurement of Body Nitrogen by Analysis of Prompt Gammas from Neutron Capture // *J. Nucl. Med.* 1979. V. 20. P. 1158–1165.
81. Wielopolski L. Feasibility of Measuring Iron *In Vivo* Using Fast 14 MeV Neutrons. BNL Report BNL-73980-2005.
82. Ma R., Yasumura S., Dilmanian F.A. *In Vivo* Neutron Activation Facility in Brookhaven National Laboratory. BNL Report BNL-64852. 1997.
83. Mitra S., Wolff J.E., Garrett R., Peters C.W. Application of the Associated Particle Technique for the Whole-Body Measurement of Protein, Fat and Water by 14 MeV Neutron Activation Analysis — A Feasibility Study // *Phys. Med. Biol.* 1995. V. 40. P. 1045–1055.
84. Koltick D., Nie L. Associated Particle Neutron Imaging for Elemental Analysis in Medical Diagnostics // *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 2013. V. 60. P. 824–829.