Письма в ЭЧАЯ. 2018. Т. 15, № 2(214). С. 137–145

ФИЗИКА ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ЧАСТИЦ И АТОМНОГО ЯДРА. ЭКСПЕРИМЕНТ

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЛАЖНОСТИ КОКСА С ПОМОЩЬЮ ИСТОЧНИКА НЕЙТРОНОВ ^{239}Pu–Be И ГАММА-ДЕТЕКТОРА НА ОСНОВЕ КРИСТАЛЛА BGO

Д. Н. Грозданов [а, б, 1], *Ф. А. Алиев* [а, в], *К. Храмко* [а, г, 2], *Ю. Н. Копач* [а], *В. М. Быстрицкий* [а], *В. Р. Ской* [а], *Н. А. Гундорин* [а], *И. Н. Русков* [а, б]

[а] Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

[б] Институт ядерных исследований и ядерной энергетики Болгарской академии наук, София

[в] Институт геологии и геофизики Национальной академии наук Азербайджана, Баку

[г] Институт химии Академии наук Молдовы, Кишинев

В ЛНФ им. И. М. Франка Объединенного института ядерных исследований проводятся эксперименты по изучению возможности определения влажности кокса с использованием нейтронов. Предлагаемый метод основан на измерении спектра γ-квантов, образующихся при облучении исследуемых образцов быстрыми и/или тепловыми нейтронами. Процентное содержание влаги определяется путем измерения площади пиков характеристических γ-квантов, образовавшихся в результате радиационного захвата тепловых нейтронов протоном ($E_\gamma = 2{,}223$ МэВ) либо в результате неупругого рассеяния быстрых нейтронов на ядрах кислорода ^{16}O ($E_\gamma = 6{,}109$ МэВ).

Для облучения исследуемых образцов применялся источник нейтронов ^{239}Pu–Be ($\langle E_n \rangle \sim 4{,}5$ МэВ) с интенсивностью $\sim 5 \cdot 10^6$ с$^{-1}$.

Для регистрации характеристического γ-излучения из реакции неупругого рассеяния быстрых нейтронов и захвата медленных (тепловых) нейтронов использовался сцинтилляционный детектор на основе кристалла BGO. В работе представлены результаты измерения влажности образцов в диапазоне 2–50 %.

A series of experiments were conducted at the Frank Laboratory of Neutron Physics (FLNP) of the Joint Institute for Nuclear Research (JINR), in order to study the possibility of determining the moisture content of coke using a standard neutron source. One of the proposed methods is based on the measurement of prompt gamma rays, which are emitted when samples are irradiated with fast and/or thermal neutrons. The moisture content is determined from the area of the peaks of the characteristic γ-quanta from the interaction of thermal neutrons with ^{1}H ($E_\gamma = 2.223$ MeV) and fast neutrons with ^{16}O ($E_\gamma = 6.109$ MeV).

A ^{239}Pu–Be neutron source ($\langle E_n \rangle \sim 4.5$ MeV) with an intensity of $\sim 5 \cdot 10^6$ s^{-1} was used to irradiate the samples under study. A scintillation detector based on a BGO crystal was used to register the characteristic gamma radiation from the inelastic fast neutron scattering and slow (thermal) neutron capture. The paper presents the results of measuring humidity in the range of 2–50%.

PACS: 29.25.Dz; 29.30.Kv; 29.40.Mc; 29.85.Fj; 29.85.Ca

[1] E-mail: dgrozdanov@mail.ru

[2] E-mail: costea.edinets@mail.ru

ВВЕДЕНИЕ

Определение влажности пород играет важную роль в решении инженерных и геологических задач, обеспечивает повышение эффективности горнодобывающей промышленности, совершенствует и облегчает разведку и эксплуатацию месторождений полезных ископаемых [1, 2].

Для определения влажности пород и грунтов применяются следующие методы:

— электрические (кондуктометрические, электрогигротермические);

— емкостные (метод ядерного магнитного резонанса (ЯМР) и методы с использованием радиоактивных источников);

— химические (высушивание до достижения постоянного веса).

Электрические методы применяются для определения влажности в небольшом диапазоне и лишь при неизменном химическом составе пород, постоянном размере гранул и объемном весе. Метод ЯМР требует специальной сложной аппаратуры и пока не получил широкого применения.

Термовесовой способ, разработанный еще в конце прошлого столетия, занимает много времени и требует соблюдения определенного количества операций, что снижает оперативность промышленной добычи.

Гамма-методы позволяют провести косвенное определение количественного содержания воды по изменению плотности породы. Нейтронные методы основаны на рассеянии нейтронов водородом, входящим в состав воды. Таким образом, нейтронные методы, напрямую связанные с количеством воды в образце, являются простым и оперативным способом определения влажности пород.

В настоящее время ведется большое количество исследований, посвященных этой методике. Разработаны конструкции влагомеров, использующие различные детекторы нейтронов и позволяющие проводить измерения влажности в разных условиях и для разных целей [3, 4].

1. МЕТОД ИЗМЕРЕНИЯ

Метод измерения предназначен для количественного определения влажности кокса. Он основан на регистрации γ-квантов, образующихся при взаимодействии нейтронов, испущенных источником ^{239}Pu–Be, с ядрами, содержащимися в молекулах воды в исследуемом образце кокса, в результате протекания следующих реакций:

• *неупругое рассеяние быстрых нейтронов* на ядрах кислорода, $^{16}\mathrm{O}(n, n'\gamma)^{16}\mathrm{O}$ — реакция с излучением характеристических γ-квантов с энергией 6,109 МэВ (рис. 1);

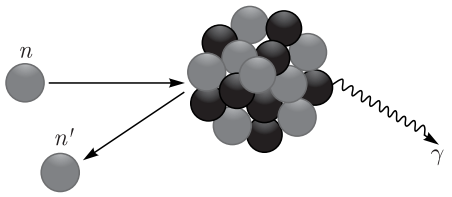

Рис. 1. Реакция неупругого рассеяния быстрых нейтронов на ядре

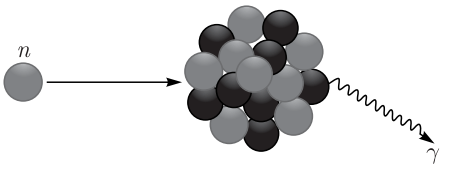

Рис. 2. Реакция радиационного захвата тепловых нейтронов

• *радиационный захват медленных (тепловых) нейтронов* ядрами водорода, ^{1}H$(n,\gamma)^2$H — реакция образования дейтрона с испусканием γ-кванта с энергией 2,223 МэВ (рис. 2).

Источник ^{239}Pu–Be испускает в основном быстрые нейтроны, для которых преобладает процесс неупругого рассеяния. Однако при облучении достаточно большого образца, а также из-за наличия различных окружающих материалов в реальном эксперименте в спектре нейтронов, проходящих через образец, всегда будет присутствовать определенное количество медленных (тепловых) нейтронов, образующихся в результате замедления нейтронов из источника в основном при взаимодействии их с водородосодержащими материалами самого образца и его окружения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

На рис. 3 приведена схема экспериментальной установки, состоящей из:

— источника нейтронов ^{239}Pu–Be с интенсивностью $\sim 5 \cdot 10^6$ с$^{-1}$;

— детектора γ-квантов на основе кристалла BGO (∅ 76 мм, высота 65 мм);

— системы сбора и обработки данных DAQ;

— защиты детектора (железные плиты) от прямого попадания нейтронов и γ-квантов из источника ^{239}Pu–Be в детектор;

— образца (около 3 кг доменного кокса в пластиковой упаковке).

Преимущества источника ^{239}Pu–Be. Изотопные источники нейтронов (ИИН), несмотря на низкую интенсивность потока испускаемых нейтронов, по сравнению с реакторами и ускорителями имеют ряд преимуществ: 1) они переносные; 2) не нуждаются в электропитании или охлаждении; 3) имеют длительный срок эксплуатации; 4) их стоимость сравнительно низкая.

Характеристики BGO. Среди сцинтилляционных детекторов, которые применяются в γ-спектрометрии, лидирующее положение занимают детекторы на основе кристаллов NaI(Tl) [2]. До недавнего времени они считались лучшими среди всех сцинтилляционных детекторов по энергетическому разрешению ($\sim 10\,\%$ на линии 661,7 кэВ в ^{137}Cs). Детекторы NaI(Tl) относительно дешевые, могут иметь большой объем и, соответственно, обладать большой эффективностью. Для спектрометрии также используются детекторы из германата висмута (BGO). Разрешение детекторов на основе BGO немного хуже, чем

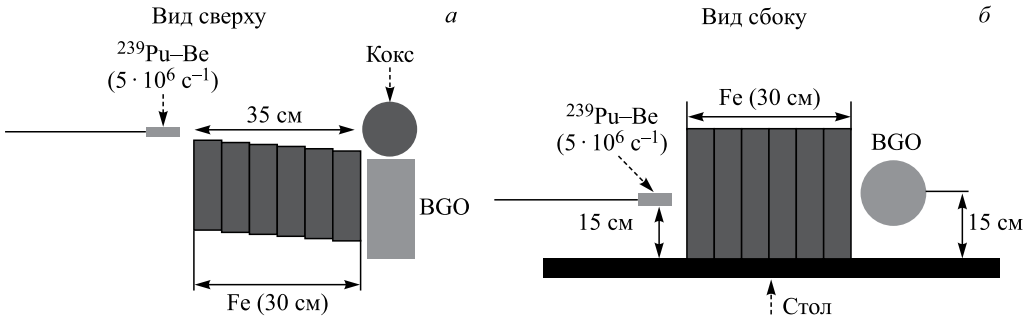

Рис. 3. Схема экспериментальной установки для определения влажности кокса: *а*) вид сверху; *б*) вид сбоку

Таблица 1. **Основные характеристики угля [10]**

Вид угля	Содержание элемента, %				Влажность, %	Удельная теплота сгорания, кДж/кг
	C	H	O	N		
Антрацит	92–95	3–4	2–3	0–2	1–4	31400–33500
Битумный	75–92	4–6	3–20	1–2	5–30	20930–33500
Лигнит	60–75	4–6	17–35	1–2	30–50	12560–18840
Торф	45–60	3–7	20–45	1–3	70–90	<12560

NaI(Tl), но из-за большей величины заряда ядер, входящих в состав кристалла, они имеют существенно лучшее отношение величины пика полного поглощения γ-кванта к комптоновской подложке, особенно для гамма-квантов высоких энергий.

Характеристики DAQ. Регистрирующая электроника представляет собой 16-канальный оцифровщик ADCM-16 [5], конструктивно выполненный в виде платы в стандарте PCIe, с возможностью установки в разъем персонального компьютера и работы под его управлением с использованием шины PCIe для обмена информацией.

Защита детектора BGO от прямого попадания излучения нейтронного источника. Для защиты детектора и, соответственно, снижения его загрузки, использовались плиты из железа и свинца. Плиты были расположены между источником и детектором, как показано на рис. 3. Максимальное снижение загрузки детектора достигалось при общей толщине защиты 30 см и практически не зависело от материала (железо или свинец). С учетом разницы в плотности, при равном объеме плит, практически более выгодно использовать защиту из железа.

Энергетическая калибровка детектора γ-квантов. Для идентификации γ-излучения от захвата тепловых нейтронов протонами (2,223 МэВ) и характеристического излучения кислорода ^{16}O* была выполнена энергетическая калибровка детектора BGO по хорошо известным γ-линиям радиационного фона, а также по известным линиям нейтронного источника ^{239}Pu–Be. Калибровка была проведена по линиям: 846 кэВ ^{56}Fe$(n,n'\gamma)^{57}$Fe [6], 4439 кэВ ^{9}Be$(\alpha,n)^{12}$C* [7], 7631 кэВ ^{56}Fe$(n,\gamma)^{57}$Fe [8] и 10202 кэВ ^{74}Ge$(n,\gamma)^{75}$Ge [9].

Характеристики угля. В табл. 1 приведены некоторые параметры, характеризующие различные виды каменного угля, используемого в промышленности.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В эксперименте использовались образцы каменноугольного кокса весом 3 кг. Образцы помещались в пластиковую герметичную тару, влажность образцов изменялась путем добавления в емкость с коксом известного количества воды и тщательного перемешивания. Образец без добавления воды нами обозначен как реперный образец, и его влажность была принята за 0. Каждый образец облучался нейтронным потоком от источника ^{239}Pu–Be в течение 10 ч с одновременной регистрацией гамма-квантов в детекторе. На рис. 4 приведен энергетический спектр всех событий, зарегистрированных детектором, с указанием положения пиков, соответствующих радиационному захвату тепловых нейтронов протонами (I) и неупругому рассеянию быстрых нейтронов на ядрах кислорода ^{16}O (II).

Идентифицированные пики были аппроксимированы функцией Гаусса с учетом подложки, для которой использовалась линейная аппроксимация (линейная подложка). По-

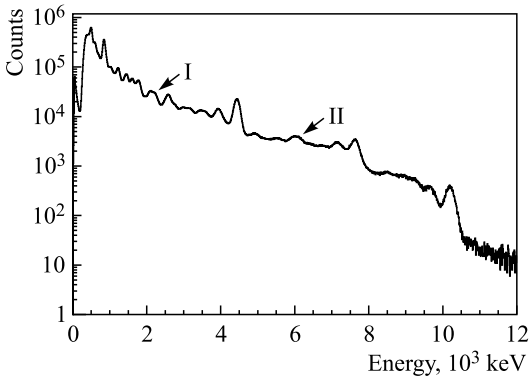

Рис. 4. Энергетическое распределение событий, зарегистрированных детектором BGO в интервале энергии γ-квантов 0,3–12 МэВ при облучении нейтронами образца кокса. Время облучения 10 ч

сле этого определялась площадь под пиками. При обработке водородного пика (I) была использована аппроксимация двумя гауссианами и линейной подложкой. Второй гауссиан обусловлен реакцией $^{56}\mathrm{Fe}(n,n'\gamma)^{56}\mathrm{Fe}$ с энергией γ-квантов, равной 2094,9 кэВ [11]. При обработке кислородного пика (II) также была использована аппроксимация двумя гауссианами и линейной подложкой, где второй гауссиан обусловлен реакцией $^{56}\mathrm{Fe}(n,\gamma)^{56}\mathrm{Fe}$ с энергией γ-квантов, равной 5920,35 кэВ [12]. На рис. 5–8 показаны результаты подгонки параметров формы пиков I и II с указанием их положения и ширины. Площади пиков были вычислены с использованием этих параметров.

Для сравнения построены кривые зависимости площадей под пиками 2,223 и 6,109 МэВ от влажности образца в интервале 0–50 %. Они представлены на рис. 9 и 10. Площади нормированы на длительность измерения, равную 1 мин. Зависимость площади кислородного пика от влажности имеет простую линейную форму, так как она с хорошей точностью прямо пропорциональна числу атомов кислорода в образце,

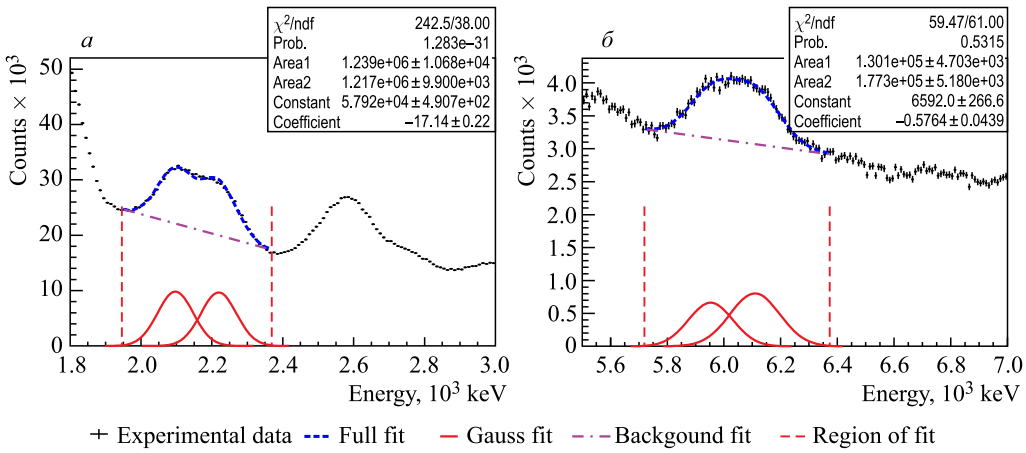

Рис. 5. Определение площадей под пиками I (*а*) и II (*б*) в образце кокса с влажностью 6 %

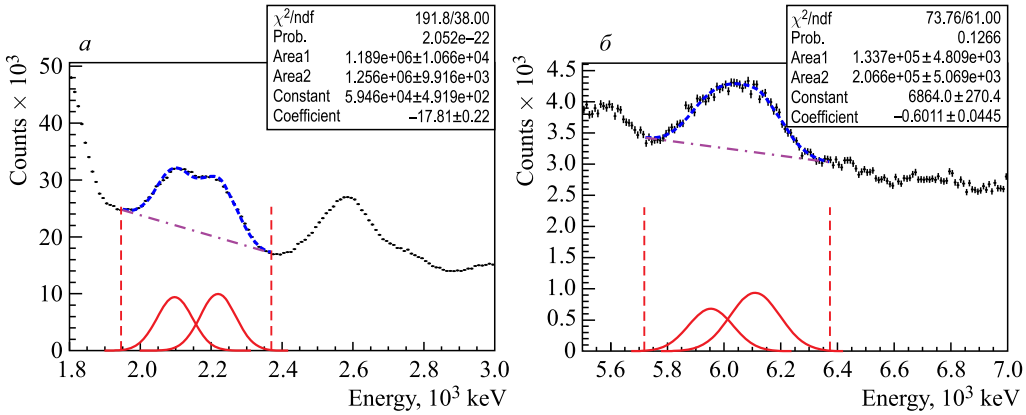

Рис. 6. Определение площадей под пиками I (*а*) и II (*б*) в образце кокса с влажностью 12 %. Обозначения такие же, как на рис. 5

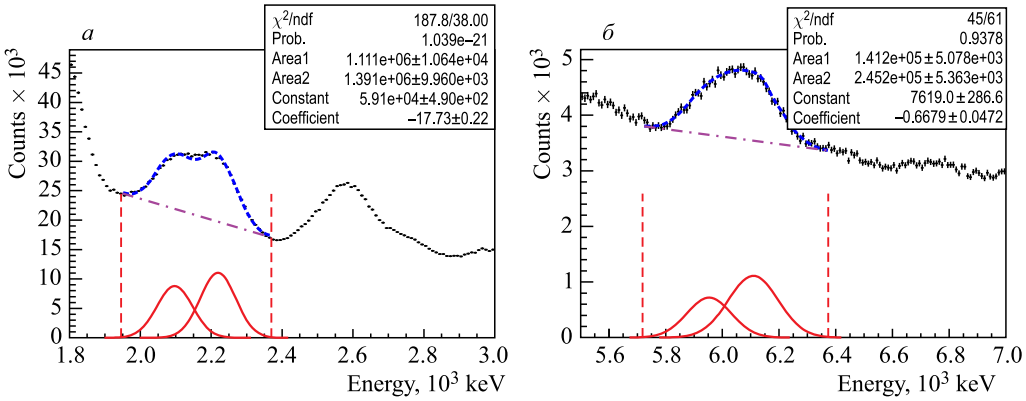

Рис. 7. Определение площадей под пиками I (*а*) и II (*б*) в образце кокса с влажностью 25 %. Обозначения такие же, как на рис. 5

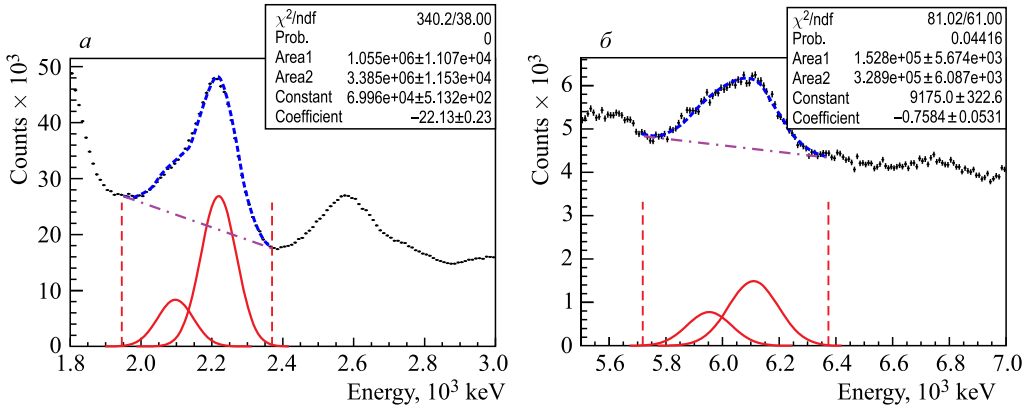

Рис. 8. Определение площадей под пиками I (*а*) и II (*б*) в образце кокса с влажностью 50 %. Обозначения такие же, как на рис. 5

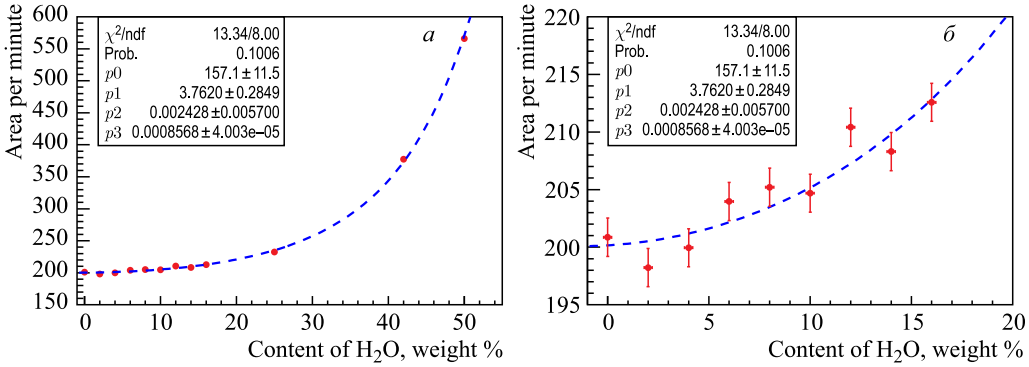

Рис. 9. Зависимость площади водородного пика от количества воды в образце кокса для всего диапазона значений влажности (*а*) и для интервала 0–20 % (*б*). Фитирование пиков производилось функцией $f(x) = p0 + \exp\left(p1 + p2 \cdot x + p3 \cdot x^2\right)$

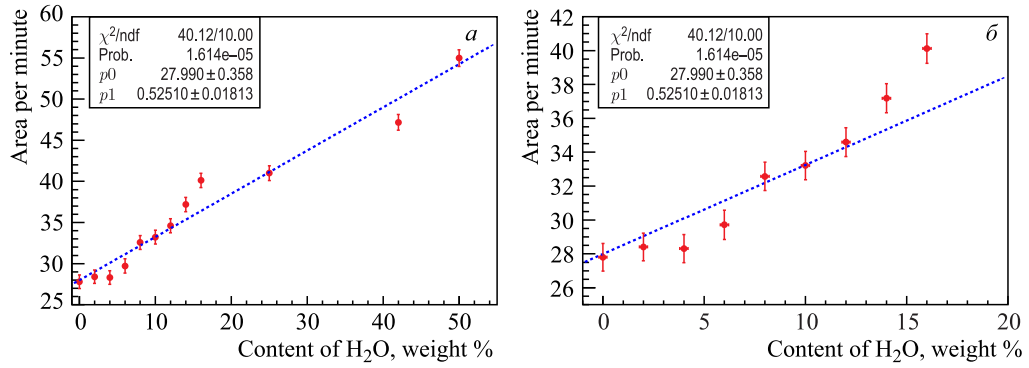

Рис. 10. Зависимость площади кислородного пика от количества воды в образце кокса для всего диапазона значений влажности (*а*) и для интервала 0–20 % (*б*). Фитирование пиков производилось функцией $f(x) = p0 + p1 \cdot x$

линейно зависящему от влажности. Зависимость площади водородного пика от влажности более сложная. Это обусловлено тем, что при существенном увеличении содержания воды (водорода) в образце кроме линейного увеличения числа атомов водорода, на которых происходит реакция захвата нейтронов, возрастает количество тепловых нейтронов за счет их замедления при упругих соударениях с водородом. Это приводит к более быстрому увеличению площади водородного пика при больших концентрациях воды.

В табл. 2 приведены значения параметра $R = (N - N_c)/N_0$, определенного как разность площадей под пиками $E_\gamma = 2{,}223$ МэВ и $E_\gamma = 6{,}109$ МэВ, измеренных при облучении нейтронами реперного (сухого) образца и образцов с добавленной водой, нормированных на площадь пика реперного образца. Параметр $S = R/\Delta(R)$ (см. табл. 2), равный отношению величины R к ошибке ее измерения, характеризует собой не что иное, как «чувствительность» предлагаемого метода по определению содержания влаги в коксе.

Таблица 2. **Отношения площадей под пиками с энергией 2,223 и 6,109 МэВ для сухого и влажных образцов**

H_2O, %	$^1H(n,\gamma)^2H$			$^{16}O(n,n'\gamma)^{16}O$		
	R	$\Delta(R)$	S	R	$\Delta(R)$	S
Реперный образец	0	0,020	0	0	0,072	0
2	–0,013	0,020	0,648	0,022	0,073	0,301
4	–0,005	0,020	0,223	0,018	0,073	0,251
6	0,015	0,020	0,760	0,069	0,076	0,906
8	0,022	0,021	1,053	0,172	0,079	2,161
10	0,019	0,020	0,930	0,195	0,081	2,416
12	0,048	0,021	2,287	0,244	0,083	2,946
14	0,037	0,021	1,787	0,337	0,088	3,856
16	0,058	0,021	2,794	0,443	0,093	4,764
25	0,158	0,022	7,313	0,475	0,095	4,996
42	0,879	0,033	26,849	0,697	0,107	6,484
50	1,817	0,040	44,965	0,978	0,123	7,932

В интервале 6–16 % чувствительность более высокая для реакции $^{16}O(n,n'\gamma)^{16}O$, а в интервале свыше 25 % начинает превалировать реакция $^1H(n,\gamma)^2H$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методика, описанная в работе, на данном этапе позволяет определять с высокой достоверностью минимально измеряемый уровень влажности порядка 8 %.

В дальнейшем планируется: а) усовершенствование данной методики с целью повышения точности измерения влажности кокса; б) детальное изучение возможности применения этой методики для определения элементного состава образцов горной породы с использованием как сцинтилляционных детекторов на основе кристаллов BGO и $LaBr_3$, так и полупроводниковых детекторов из высокочистого германия (HPGe).

Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант № 16-52-45056).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Варварив Г. Б., Жаворонков В. Я., Филиппов Е. М.* Способ определения объемного веса и влажности горных пород в их естественном залегании. А. с. № 2164086 от 30 июля 1964 г. // Бюлл. изобретений и товарных знаков. 1964. № 2. С. 14.
2. *Филиппов Е. М.* Ядерная геофизика. Т. II. Нейтронометрия и комплексирование методов ядерной геофизики. Новосибирск: Наука. Сиб. отд-ние, 1973.
3. *Grozdanov D. N., Aliyev F. A., Hramco C., Kopach Yu. N., Bystritsky V. M., Skoy V. R., Gundorin N. A., Ruskov I. N.* On the Possibility of Determining the Moisture Content in Furnace Coke with a BGO Scintillation Gamma-Detector and a ^{239}Pu–Be Neutron Source // Proc. of ISINN-24. http://isinn.jinr.ru/proceedings/isinn-24/pdf/grozdanov.pdf; 5th Annual Conf. of Young Scientists and Specialists “Alushta-2016”. https://indico.jinr.ru/contributionDisplay.py?contribId=25&sessionId=10&confId=89.

4. *Aliyev F. A., Grozdanov D. N., Hramco C., Kopach Yu. N., Bystritsky V. M., Skoy V. R., Gundorin N. A., Ruskov I. N.* Determining the Humidity in Furnace Coke with ^{239}Pu–Be Source and NaI(Tl) Scintillation Probe // Proc. of Basic & Applied Research by Neutrons with Energy of 14.1 MeV. BARN-14.1. Dubna, Dec. 8–9, 2016; http://flnph.jinr.ru/images/content/TANGRA_Program.pdf.
5. A Digital Pulse Processing System for Nuclear Physics Experiments ADCM16-LTC. http://afi.jinr.ru/ADCM.
6. Детекторы для гамма-спектрометрии. http://nuclphys.sinp.msu.ru/experiment/detectors/gammadet/.
7. Cross Section Standards for Neutron-Induced Gamma-Ray Production in the MeV Energy Range. http://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-UR-04-6799.
8. Neutron Source Strength Estimates from (α, n) Reaction. http://www.nrc.gov/docs/ML1122/ML11229A704.pdf.
9. Thermal Neutron Capture Gammas — Target Nucleus ^{56}Fe. http://www.nndc.bnl.gov/capgam/byn/page059.html.
10. *Weitkamp C., Michaelis W., Schmidt H. et al.* Energy Levels in ^{74}Ge from the Reaction ^{73}Ge$(n, \gamma)^{74}$Ge // Z. Physik. 1966. V. 192. P. 423. https://doi.org/10.1007/BF0135678.
11. Coal Composition. http://www.chemistryexplained.com/Fe-Ge/Fossil-Fuels.html.
12. Adopted Levels, Gammas for ^{56}Fe, the Reaction ^{56}Fe$(n, n'\gamma)^{56}$Fe. http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/getdataset.jsp?nucleus=56FE&unc=nds.

Получено 31 марта 2017 г.