

P14-2015-52

В. Ю. Алексахин^{1,2,*}, В. М. Быстрицкий^{1,2}, Н. И. Замятин^{1,2},
Е. В. Зубарев^{1,2}, А. В. Красноперов^{1,2}, В. Л. Рапацкий^{1,2},
А. В. Рогачев^{1,2}, Ю. Н. Рогов^{1,2}, А. Б. Садовский^{1,2},
Р. А. Салмин^{1,2}, М. Г. Сапожников^{1,2}, В. М. Слепнев^{1,2},
С. В. Хабаров^{1,2}, Е. А. Разинков^{1,2}, О. Г. Тарасов^{1,2},
Е. В. Скляр^{3,4}, Н. Н. Ухова^{3,4}, А. В. Лавренчук⁵

**ОЦЕНКА ВОЗМОЖНОСТИ ОПРЕДЕЛЕНИЯ
ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ГОРНЫХ ПОРОД
С ПОМОЩЬЮ МЕТОДА МЕЧЕННЫХ НЕЙТРОНОВ**

Направлено в журнал «Аналитика и контроль»

¹ Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

² ООО «Нейтронные технологии», Дубна

³ Институт земной коры СО РАН, Иркутск, Россия

⁴ Дальневосточный федеральный университет, Владивосток, Россия

⁵ Институт геологии и минералогии им. В. С. Соболева СО РАН, Новосибирск, Россия

* E-mail: Vadim.Alexakhin@cern.ch

Алексахин В. Ю. и др.

P14-2015-52

Оценка возможности определения элементного состава горных пород с помощью метода меченых нейтронов

В полевых условиях опробовано определение элементного состава горных пород на основе метода меченых нейтронов. Обсуждаются результаты экспериментальных исследований по облучению образцов пород быстрыми мечеными нейтронами с энергией 14,1 МэВ. Источником нейтронов является портативный нейтронный генератор со встроенным кремниевым альфа-детектором. Регистрация характеристического гамма-излучения, возникающего в результате процессов неупругого взаимодействия нейтронов с ядрами химических элементов, входящих в состав геологических пород и минералов, осуществляется с помощью гамма-детектора на основе кристаллов BGO. Приводится сравнение результатов определения элементного состава пород, полученных методом меченых нейтронов, со значениями, полученными методом силикатного анализа.

Работа выполнена в Лаборатории физики высоких энергий им. В. И. Векслера и А. М. Балдина ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2015

Alexakhin V. Yu. et al.

P14-2015-52

Determination of Elemental Composition of Rocks with Tagged Neutron Method

The technology for determination of the elemental composition of rocks on the basis of the tagged neutron method is tested in the field conditions. We discuss the results of experimental studies of rock samples irradiated by tagged fast neutrons with an energy of 14.1 MeV. The source of the fast neutrons is a portable neutron generator with a built-in silicon alpha-detector. Characteristic gamma rays resulting from the inelastic interaction of neutrons with nuclei of chemical elements that make up the geological rocks and minerals are registered by gamma-detectors based on BGO crystals. Comparison of the results on the elemental composition of rocks obtained by the tagged neutron method with reference values is discussed.

The investigation has been performed at the Veksler and Baldin Laboratory of High Energy Physics, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2015

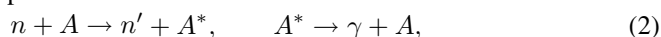
ВВЕДЕНИЕ

Детекторы на основе метода меченых нейтронов (ММН) [1–3] нашли широкое применение для обнаружения взрывчатых веществ, скрытых в различных объектах досмотра [4, 5]. С помощью таких детекторов осуществляется определение относительных концентраций углерода, кислорода и азота. В работе [6] показано, каким образом можно применить ММН для поиска алмазов в кимберлитовой руде без ее разрушения. Целью настоящей работы является применение ММН для определения элементного состава горных пород в полевых условиях.

Суть метода меченых нейтронов состоит в анализе спектров характеристического гамма-излучения, возникающего при облучении объекта исследования потоком быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ, образующихся в бинарной ядерной реакции



Поскольку α -частица (ядро атома ${}^4\text{He}$) и нейтрон разлетаются практически в противоположные стороны, можно определить направление вылета нейтрона путем регистрации (мечения) α -частицы специальным α -детектором, который представляет собой матрицу из отдельных чувствительных элементов (пикселей). Меченые нейтроны, попадая в объект исследования, индуцируют реакции неупругого рассеяния



в результате которых возбуждение ядра снимается испусканием гамма-квантов с энергетическим спектром, характерным для каждого химического элемента. Регистрация характеристического γ -излучения осуществляется γ -детекторами в совпадениях с сигналом от α -детектора. Это дает возможность определить все три координаты области образца, из которой были испущены γ -кванты. Две координаты определяются по номеру пикселя, в который попала α -частица, а третья координата, характеризующая расстояние от тритиевой мишени до точки испускания γ -кванта, вычисляется с помощью время-пролетной методики. Расстояние от тритиевой мишени до точки испускания гамма-кванта определяется как произведение времени между моментами регистрации α -частицы и γ -кванта на скорость нейтрона с энергией 14,1 МэВ, которая постоянна и составляет 5 см/нс.

Измерив γ -спектр образца, состоящего из нескольких химических элементов, можно разложить суммарный γ -спектр на составляющие и определить относительные доли каждого элемента в образце.

Отличие ММН от хорошо известных методов нейтронно-активационного анализа (НАА) состоит в том, что идентификация элемента ведется по измерению спектра прямых γ -квантов, испускаемых в реакциях неупругого рассеяния ($n, n'\gamma$), причем регистрируются только γ -кванты, пришедшие в течение временного интервала в 100 нс с момента прихода сигнала от α -частицы. Это дает возможность отобрать γ -кванты, испускаемые непосредственно из данной области образца, а не от окружающей среды, что существенно улучшает фоновые условия при измерении. Показано, что применение ММН позволяет увеличить отношение сигнал–фон в 200 и более раз [4].

Другое важное отличие ММН состоит в использовании быстрых нейтронов с энергией 14,1 МэВ, которые позволяют хорошо определять концентрации легких элементов, таких как Li, Be, B, C, N, O, F, что является затруднительным как для НАА, так и для рентгено-флюоресцентного анализа (РФА).

Наконец, немаловажным является возможность применения ММН в полевых условиях. В отличие от НАА не нужно облучать образцы в ядерном реакторе, роль источника нейтронов исполняет портативный нейтронный генератор размером 30 см и массой 8 кг.

В настоящей работе обсуждаются результаты первого применения ММН для определения элементного состава горных пород в полевых условиях. Для исследований были использованы выборки из силикатных пород основного состава и карбонатных пород, отобранных на Ольхонском геодинамическом полигоне [7]. Измерения проводились на геологической базе «Черноруд» (ИрГТУ). Основная цель измерений состояла в проверке возможности с помощью ММН осуществлять правильный экспресс-анализ элементного состава пород из относительно однородных групп по индикаторным элементам. Так, для карбонатных пород важным является разделение на кальцитовые мраморы (без магния), доломитовые и доломит-кальцитовые мраморы (с существенной долей магния) и кальцифиры (породы с существенной примесью силикатов и варьирующимися соотношениями кальция и магния). Было интересно проверить, насколько правильно результаты ММН соотносятся с результатами петрографического анализа, выполненного в полевых условиях, и насколько хорошо они коррелируют с результатами химического анализа, проведенного в лаборатории.

1. АППАРАТУРА, МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТА

1.1. Детектор ДВИН-1. Измерения проводились с помощью портативного детектора ДВИН-1 [4]. Он состоит из модуля досмотра, который соединен кабелем с компьютером оператора. Модуль досмотра имеет размеры $740 \times 510 \times 410$ мм и массу 40 кг. Внутри модуля досмотра размещены источник нейтронов, гамма-детектор и электроника сбора данных. Питание

модуля досмотра осуществляется от сети 220 В или от автономного аккумулятора. Потребляемая мощность 300 Вт.

Источником нейтронов является портативный нейтронный генератор ИНГ-27 производства ФГУП ВНИИА им. Н. Л. Духова со встроенным 9-пиксельным α -детектором. Интенсивность потока нейтронов, создаваемого нейтронным генератором (НГ), была $I = 5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Кремниевый α -детектор, встраиваемый в НГ, представляет собой матрицу 3×3 с размером каждого элемента 10×10 мм. α -детектор расположен на расстоянии 62 мм от тритиевой мишени. Предусилители сигналов α -детектора монтируются на фланце, состыкованном с корпусом НГ.

Детектирование γ -квантов осуществлялось одним детектором на основе кристалла ВГО диаметром 76 мм и толщиной 65 мм. Детекторы γ -квантов на основе кристаллов ВГО обладают достаточно хорошим энергетическим разрешением порядка 8–2,5 % в диапазоне энергий характеристического излучения 1–12 МэВ. На γ -линии углерода ($E_\gamma = 4,44$ МэВ) энергетическое разрешение γ -детектора в среднем составляло 4,4 %. Детекторы на основе ВГО отличаются также высокой эффективностью регистрации γ -квантов в указанном интервале энергий и низкой чувствительностью по отношению к регистрации фоновых нейтронов. Временное разрешение системы α – γ -совпадений составляет 3,3 нс.

Регистрирующая электроника системы сбора данных с α - и γ -детекторов выполнена в виде 16-канальной платы, которая имеет размер стандартной PCI-карты с возможностью установки в PCI-E-слот персонального компьютера (ПК). Обмен информацией с ПК осуществляется через PCI-E-шину. В основу системы регистрации сигналов с α - и γ -детекторов положен принцип оцифровки их с последующим восстановлением временных и амплитудных характеристик импульсов. Для обеспечения требуемой скорости передачи данных по PCI-шине интерфейс работает в режиме прямого доступа к памяти ПК.

1.2. Образцы и постановка опытов. Измерения проходили на Ольхонском геодинамическом полигоне с базированием в стационаре «Черноруд» (ИрГТУ). Детектор ДВИН-1 был установлен в помещении геологической базы, в котором осуществлялся экспресс-анализ образцов горных пород из ближайших районов. Правила радиационной безопасности при эксплуатации детектора ДВИН-1 требуют соблюдения оператором радиуса безопасности в 8,5 м, для населения радиус безопасности составляет 10 м.

Размер образцов варьировался от 20 до 50 см, масса от 2 до 6 кг. Никакой подготовки проб не проводилось. Для анализа были представлены образцы нерегулярной формы из трех групп горных пород: карбонатные породы (доломитовые, кальцитовые мраморы и кальцифиры, 17 образцов), гнейсы (23 образца) и амфиболиты (7 образцов).

Типичная постановка опытов показана на рис. 1.

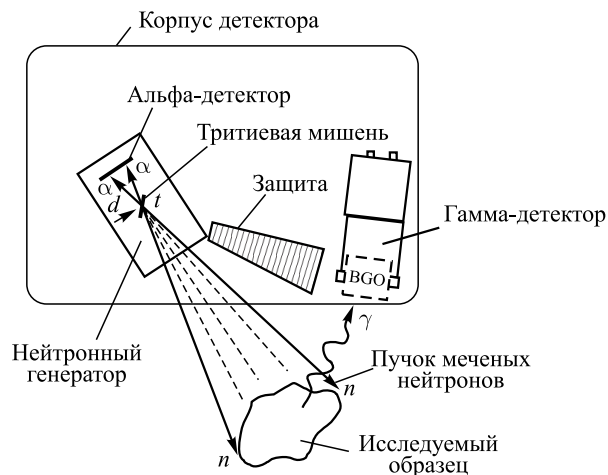


Рис. 1. Общая схема постановки измерений

Она состояла в облучении образца, располагавшегося на расстоянии 17 см от нейтронного генератора. Расстояние от образца до гамма-детектора составляло 30 см. Время измерения для каждого образца 15 мин. Зона обследования на таком расстоянии приблизительно 9×9 см. Она разбивалась на девять областей (по числу меченых пучков). Элементный состав определялся одновременно в каждой из областей.

Химический состав проб определялся методом силикатного анализа в аналитическом центре Института земной коры СО РАН по стандартным методикам [8]. Для разложения образцов применялось сплавление со смесью соды и буры в муфельной печи при $t = 940$ °С и кислотное вскрытие смесью хлорной и плавиковой кислот.

Метод определения кремния, алюминия и общего железа основан на способности этих элементов к образованию окрашенных комплексов. Определение элементов из растворов их окрашенных комплексов проводилось на спектрофотометрическом комплексе GENESYS 10S, Thermo Fisher Scientific, США. Для определения содержания кальция и магния использовался метод атомно-абсорбционной спектроскопии с распылением исследуемого раствора в пламени (ацетилен–воздух) в виде аэрозоля и измерением степени ослабления излучения стандартного источника света (лампы с полым катодом) вследствие поглощения этого излучения атомами анализируемого элемента. Определение проводилось на спектрофотометре SOLAAR M6, Thermo Elemental, INTERTECH Corporation, США. Для устранения мешающего влияния посторонних элементов при определении CaO и MgO в качестве спектрофотометрического буфера в исследуемые растворы вводился хлорид лантана (III). Для определения содержания двуокси углерода (CO_2) применялся

метод объемного титрования с разложением пробы соляной кислотой и выделением углекислоты. Гигроскопическая вода определялась высушиванием навески породы в тигле до постоянной массы при 10 °С. Потери при прокаливании определялись прокаливанием навески при температуре 1000 °С до постоянной массы. Силикатный анализ завершался подсчетом суммы всех определяемых компонентов, которая должна быть близкой к 100 %. В большинстве случаев это является хорошим ориентиром для контроля качества анализа. Точность определения компонент в пробах контролировалась многократным измерением стандартных образцов с известными аттестованными концентрациями элементов в соответствии с [9].

1.3. Обработка спектров. Гамма-спектр каждого образца раскладывался на отдельные составляющие путем подгонки его суммой опорных гамма-спектров от элементов Si, Mg, Fe, Al, Ca, C, O. Эти опорные спектры были измерены предварительно.

Фитирующая функция для всех элементов $j = C, O, Si, Mg, Ca, Fe, Al$ выглядит следующим образом (параметры подгонки выделены жирным шрифтом):

$$F(E) = \varepsilon(E) \sum_j \mathbf{N}_j \left(\sum_{i=1}^{i=n_j} \sigma_{ij}(E) P_{ij}(E) + \mathbf{R}_j^{\text{Cont}} F_j^{\text{Cont}}(E) \right) + BG(E). \quad (3)$$

Здесь n_j — количество гамма-линий для элемента j ; \mathbf{N}_j — параметр, определяющий содержание элемента j в образце. Этот параметр пропорционален числу атомов элемента и является единым для всех гамма-линий элемента. $\sigma_{ij}(E)$ — сечение рождения гамма-квантов с энергией E , соответствующей гамма-линии i , при взаимодействии нейтрона с элементом j . P_{ij} — функция отклика гамма-линии i элемента j . $F_j^{\text{Cont}}(E)$ — амплитуда спектра континуума, который наблюдается при высоких энергиях возбуждения практически для всех ядер, кроме легчайших.

Наличие спектра континуума объясняется тем, что плотность ядерных уровней, которая обычно невысока при небольших энергиях возбуждения E_{ex} (когда расстояние между уровнями ΔE порядка 1 МэВ), резко возрастает при увеличении E_{ex} (когда ΔE уменьшается до десятков килоэлектронвольт). Например, у ядра ^{28}Si число уровней с $E_{\text{ex}} < 8$ МэВ порядка 10, а с $8 < E_{\text{ex}} < 14$ МэВ число уровней порядка 70. С учетом того, что снятие возбуждений обычно происходит через каскады, множественность гамма-квантов при высоких E_{ex} значительна, и в совокупности с близостью различных уровней эти факторы приводят к наблюдению практически непрерывных спектров континуума.

\mathbf{R}^{Cont} — нормировочный коэффициент для спектра континуума. $BG(E) = \mathbf{A} e^{-BE}$ — функция фона. Она используется для описания различ-

ных неучтенных вкладов, например, фона от рассеянных на образце нейтронов, самопоглощения гамма-квантов и др. Свободные параметры подгонки, определяемые по экспериментальным данным, выделены жирным шрифтом.

Функция отклика $P_{ij}(E)$ для одной гамма-линии i элемента j выбиралась в виде суммы трех гауссианов $G(\bar{x}, \sigma)$, соответствующих пику полного поглощения и пикам однократной и двукратной утечек гамма-квантов с энергией 0,511 МэВ из кристалла BGO при регистрации гамма-квантов с энергией E_i , а также функции $C(E_i, E)$, которая отвечает за сигнал от комптоновского рассеяния и многократных взаимодействий гамма-кванта в BGO:

$$P_{ij}(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^r} G(E_i, \sigma_i^r) + \frac{\mathbf{R}_{es} r_i^{es}(E_i)}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^{es}} G(E_i - 0,511, \sigma_i^{es}) + \frac{r_i^{es2}(E_i)}{\sqrt{2\pi}\sigma_i^{es2}} G(E_i - 1,022, \sigma_i^{es2}) + \mathbf{R}_C C(E_i, E). \quad (4)$$

Здесь $\sigma_i^r = \mathbf{A}_e \sqrt{E_i}$ — энергетическое разрешение пика полного поглощения для энергии гамма-кванта E_i , где \mathbf{A}_e — параметр подгонки.

$\varepsilon(E)$ представляет собой эффективность регистрации гамма-квантов с энергией, соответствующей пику полного поглощения. Зависимость этого параметра от энергии гамма-кванта была установлена в результате моделирования методом Монте-Карло отклика гамма-детектора.

Энергетические разрешения пиков утечек σ_i^{es} , σ_i^{es2} связаны с разрешением σ_i^r по закону $\sigma(E_1)/\sigma(E_2) = \sqrt{E_1/E_2}$. $r^{es}(E_i)$ и $r^{es2}(E_i)$ — параметры, определяющие амплитуды пиков утечек, нормированные относительно амплитуды пика полного поглощения. Зависимости коэффициентов $r^{es}(E)$ и $r^{es2}(E_i)$ от энергии установлена по МС, однако для подстройки используется \mathbf{R}_{es} .

\mathbf{R}_C — подстроечный коэффициент для амплитуды функции $C(E_i, E)$. Вклад от комптоновского рассеяния и многократных взаимодействий гамма-квантов с BGO не имеет аналитической формулы, он был аппроксимирован функцией $C(E_i, E)$, параметры которой зависят от энергии и определяются по результатам моделирования.

Таким образом, для определения элементного состава образца подгонялись шесть общих параметров спектра: \mathbf{A} , \mathbf{B} , \mathbf{A}_e , \mathbf{R}_{es} , \mathbf{R}_C , \mathbf{R}^{Cont} , и несколько параметров \mathbf{N}_j , непосредственно связанных с концентрациями отдельных элементов.

1.4. Определение массового содержания элементов и оксидов элементов. Зная относительные доли элементов в образце $v_j = N_j / \sum_j N_i$ и предполагая соблюдение соотношения $\sum_j v_j = 1$, можно вычислить массовые доли

элементов в образце как

$$w_j = \frac{v_j m_j}{\sum_i v_i m_i}, \quad (5)$$

где m_j — атомный вес элемента j .

Для вычисления массовых долей оксидов элементов W_j определим массовую долю r_j элемента j в оксиде, формула которого в общем виде может быть представлена как $J_x O_y$:

$$r_j = \frac{x m_j}{x m_j + y m_0}. \quad (6)$$

Тогда W_j есть

$$W_j = \frac{v_j m_j / r_j}{\sum_j (v_j m_j / r_j)}. \quad (7)$$

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ПРОВЕДЕННЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Для анализа в полевых условиях были представлены образцы из трех групп горных пород: карбонатные породы (доломитовые, кальцитовые мраморы и кальцифиры, 17 образцов), гнейсы (23 образца) и амфиболиты (7 образцов). На рис. 2–6 показаны энергетические спектры типичных образцов выбранных групп горных пород.

2.1. Кальцитовые мраморы. На рис. 2 приведен энергетический спектр от облучения образца кальцитового мрамора (элементный состав CaCO_3).

В нем хорошо видны характеристические линии кислорода, показанные на рис. 2 соответствующей кривой. Три кислородных пика доминируют при энергиях $E > 5000$ кэВ. Другие три пика видны при $E = 2742, 3089$ и 3854 кэВ.

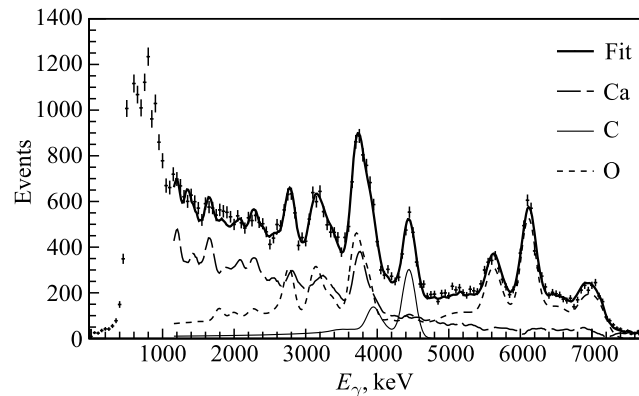


Рис. 2. Спектр гамма-квантов от облучения образца кальцитового мрамора (проба SE2869). Вклады элементов Ca, C, O показаны соответствующими линиями. Сплошная линия — результат подгонки всех параметров

В характеристическом спектре кальция выделяется пик при энергии $E = 3737$ кэВ. Наложение этой линии на пик, соответствующий каскадному переходу при девозбуждении ядра кислорода (энергия перехода $E = 3854$ кэВ), создает некоторую размытую структуру негауссовой формы.

Характеристический спектр углерода наиболее прост — в нем четко выделяется только одна линия при $E = 4439$ кэВ и пик утечки одного гамма-кванта, сдвинутый на 500 кэВ от основной линии.

Эти качественные особенности кальцитов подтверждаются и количественными результатами определения элементного состава с помощью процедуры подгонки параметров, описанной в п. 1.3, 1.4. В табл. 1 приведены значения массовых долей различных элементов для некоторых проб кальцитовых мраморов, полученные в центральном меченом пучке, который на образце покрывал зону размером 3×3 см.

Таблица 1. Массовые доли элементов в пробах кальцитовых мраморов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ

Образец	Si, %	Mg, %	Fe, %	Al, %	Ca, %	C, %	O, %
SE2869	—	—	—	$2,6 \pm 1,0$	$34,9 \pm 1,8$	$13,3 \pm 0,6$	$48,8 \pm 1,4$
SE2801	—	—	—	—	$42,3 \pm 1,3$	$16,1 \pm 0,7$	$41,6 \pm 1,2$
SE2766	$1,0 \pm 0,4$	—	—	—	$43,6 \pm 1,7$	$13,2 \pm 0,6$	$42,1 \pm 1,1$

2.2. Доломитовые мраморы. На рис. 3 показан спектр образца доломитового мрамора (элементный состав $\text{CaCO}_3 \times \text{MgCO}_3$).

В нем помимо характеристических линий Ca, C и O, присутствовавших и на рис. 2, хорошо виден сигнал от линии магния при 1369 кэВ. Это отра-

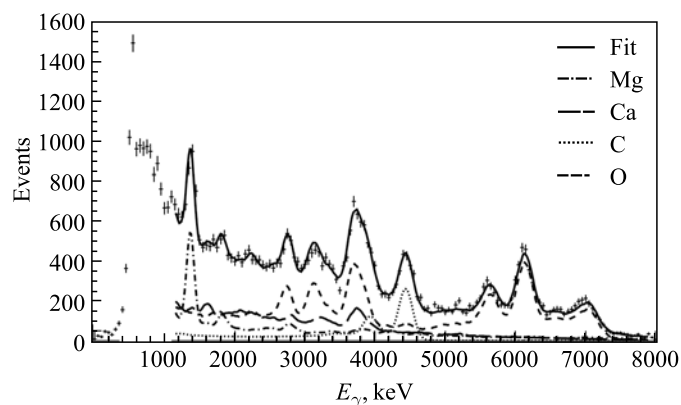


Рис. 3. Спектр гамма-квантов от облучения образца доломита (проба SE2789). Вклады элементов Mg, Ca, C, O показаны соответствующими линиями. Сплошная линия — результат подгонки всех параметров

жается и в результатах определения концентраций элементов, приведенных в табл. 2. Они правильно показывают четыре основных элемента, присутствующих в доломитовых мраморах. Массовая доля магния достигает 7–10 %.

Таблица 2. Массовые доли элементов в пробах доломитовых мраморов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ

Образец	Si, %	Mg, %	Fe, %	Al, %	Ca, %	C, %	O, %
SE2789	$0,2 \pm 0,8$	$9,6 \pm 0,6$	—	$2,5 \pm 1,0$	$27,5 \pm 2,2$	$14,4 \pm 0,7$	$45,3 \pm 1,9$
SE2871	$0,5 \pm 0,8$	$7,7 \pm 0,6$	$2,1 \pm 1,1$	—	$25,3 \pm 2,0$	$15,0 \pm 0,7$	$48,8 \pm 1,7$
SE2842	—	$8,9 \pm 0,6$	—	$2,0 \pm 0,8$	$28,3 \pm 2,1$	$15,9 \pm 0,8$	$44,6 \pm 1,7$

2.3. Кальцифилы. Кальцифилы состоят из кальцита или доломита с примесью силикатных материалов. Действительно, в спектре образца кальцифира, показанного на рис. 4, появляется характерный пик кремния при $E = 1779$ кэВ. Величина этого пика небольшая, поскольку примесь кремния составляет 3–4 % (см. табл. 3).

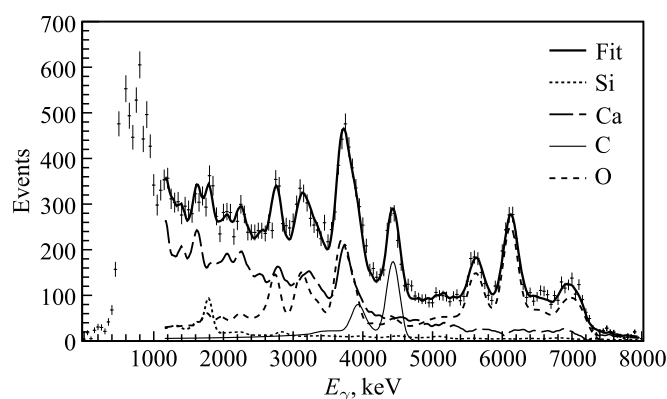


Рис. 4. Спектр гамма-квантов от облучения образца кальцифира (проба SE2699C). Вклады элементов Si, Ca, C, O показаны соответствующими линиями. Сплошная линия — результат подгонки всех параметров

Таблица 3. Массовые доли элементов в пробах кальцифиров, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ

Образец	Si, %	Mg, %	Fe, %	Al, %	Ca, %	C, %	O, %
SE2841	$3,9 \pm 0,9$	—	—	—	$40,2 \pm 2,7$	$14,0 \pm 0,8$	$39,9 \pm 2,0$
SE2803	$2,9 \pm 1,0$	—	—	$2,2 \pm 1,4$	$39,6 \pm 2,5$	$13,9 \pm 0,8$	$41,4 \pm 2,0$
SE2794	$3,0 \pm 0,7$	—	—	—	$43,7 \pm 1,2$	$14,2 \pm 0,6$	$38,5 \pm 0,9$

2.4. Гнейсы. На рис. 5 показан спектр от типичного образца гнейсов. В спектре отсутствует углеродный пик при 4,44 МэВ. Нет также вклада от кальция. Это соответствует элементному составу гнейсов, в который главный вклад вносит кремнезем SiO_2 и глинозем Al_2O_3 . Результаты определения массовых долей этих элементов, приведенных в табл. 4, полностью соответствуют этой закономерности.

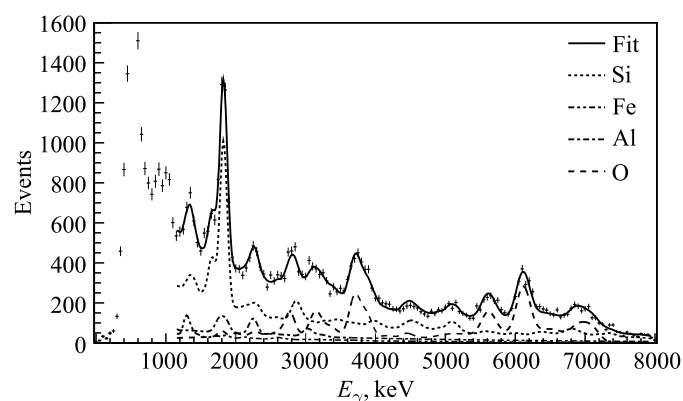


Рис. 5. Спектр гамма-квантов от облучения образца гнейса (проба SE2840). Вклады элементов Si, Fe, Al, O показаны соответствующими линиями. Сплошная линия — результат подгонки всех параметров

Таблица 4. Массовые доли элементов в пробах образцов гнейсов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ

Образец	Si, %	Mg, %	Fe, %	Al, %	Ca, %	C, %	O, %
SE2840	$26,9 \pm 1,5$	$6,7 \pm 0,7$	$0,9 \pm 1,3$	$16,4 \pm 1,7$	$6,8 \pm 2,4$	—	$42,4 \pm 1,9$
SE2870	$33,1 \pm 2,3$	$2,8 \pm 0,8$	—	$13,4 \pm 2,2$	$0,8 \pm 3,3$	$1,2 \pm 0,8$	$47,1 \pm 3,0$
SE2786	$32,1 \pm 1,8$	$1,5 \pm 0,6$	$4,7 \pm 1,4$	$11,5 \pm 1,6$	$6,5 \pm 2,2$	—	$43,3 \pm 1,9$

2.5. Амфиболиты. На рис. 6 показан спектр образца амфиболитов. В нем отсутствует линия углерода, виден яркий сигнал от кремния и пики от алюминия и магния. Это согласуется с элементным составом амфиболитов, состоящих главным образом из силикатов и алюмосиликатов магния, железа и кальция. Данные по элементному составу некоторых образцов амфиболитов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1, приведены в табл. 5.

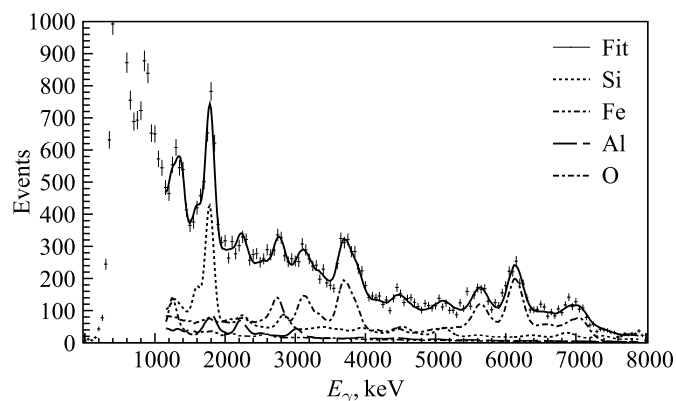


Рис. 6. Спектр гамма-квантов от облучения образца амфиболита (проба SE2843). Вклады элементов Si, Al, Fe, O показаны соответствующими линиями. Сплошная линия — результат подгонки всех параметров

Таблица 5. Массовые доли элементов в пробах образцов амфиболитов, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1. Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ

Образец	Si, %	Mg, %	Fe, %	Al, %	Ca, %	C, %	O, %
SE2843	$22,9 \pm 1,9$	$6,0 \pm 0,9$	$10,3 \pm 2,1$	$7,8 \pm 2,0$	$9,8 \pm 4,7$	—	$42,6 \pm 3,0$
SE2850	$17,6 \pm 1,6$	$4,1 \pm 0,7$	$9,9 \pm 1,6$	$11,5 \pm 1,7$	$15,3 \pm 2,8$	—	$41,6 \pm 2,7$
SE2816	$21,4 \pm 1,6$	$4,7 \pm 0,7$	$11,1 \pm 1,7$	$10,7 \pm 1,7$	$12,3 \pm 2,7$	$0,8 \pm 0,6$	$39,0 \pm 2,3$

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ АНАЛИЗА ГОРНЫХ ПОРОД

Спектры, приведенные на рис. 2–6, наглядно показывают возможности ММН по определению ключевых породообразующих элементов — C, O, Si, Mg, Al, Fe, Ca.

Ранее в работах [4, 5] применение ММН ограничивалось определением концентраций углерода, азота и кислорода. У этих элементов самое большое сечение возбуждения под действием нейтронов 14,1 МэВ имеет линия углерода 4439 кэВ, сечение возбуждения которой составляет 210 мб. Для сравнения, сечение линии кремния 1779 кэВ составляет 400 мб, а линия магния 1369 кэВ имеет сечение 425 мб. Отдельные линии железа, кальция и алюминия также обладают значительными сечениями возбуждения, что делает перспективным определение их концентраций.

Данные, приведенные в табл. 1–5, показывают, что ММН правильно воспроизводит соотношение массовых долей различных элементов в исследуемых образцах.

Зная значения массовых долей элементов, можно по формулам (5)–(7) рассчитать концентрации соответствующих оксидов. В табл. 6 приведены концентрации оксидов Si, Al, Fe, Mg, Ca и C, полученные для различных проб с использованием ДВИН-1, а также результаты силикатного анализа.

Таблица 6. Концентрации оксидов различных проб, полученные в результате измерений детектором ДВИН-1 (обозначаются ММН) и в результате выполнения силикатного анализа (СА). Погрешности результатов измерений приведены на уровне 1σ . FeO_{tot} представляет собой сумму вкладов оксидов железа FeO и $0,9\text{Fe}_2\text{O}_3$

Образец	SiO ₂ , %	Al ₂ O ₃ , %	FeO _{tot} , %	MgO, %	CaO, %	CO ₂ , %
SE2843, СА	47,16 ± 0,1	15,67 ± 0,14	11,69 ± 0,06	6,66 ± 0,08	10,97 ± 0,11	0,44 ± 0,07
SE2843, ММН	47,8 ± 5,0	14,3 ± 3,8	12,9 ± 2,8	9,7 ± 1,5	13,3 ± 6,4	—
SE2850, СА	44,28 ± 0,1	14,96 ± 0,14	13,62 ± 0,06	6,84 ± 0,08	17,18 ± 0,11	—
SE2850, ММН	39,9 ± 3,7	18,7 ± 3,2	13,9 ± 2,1	5,2 ± 1,1	21,8 ± 3,9	0,5 ± 2,5
SE2869, СА	2,29 ± 0,1	—	—	0,68 ± 0,08	53,35 ± 0,11	42,3 ± 0,07
SE2869, ММН	—	4,8 ± 1,8	—	—	47,4 ± 2,8	47,2 ± 2,5
SE2801, СА	1,1 ± 0,1	—	0,12 ± 0,06	0,65 ± 0,08	54,4 ± 0,11	42,98 ± 0,07
SE2801, ММН	—	—	—	—	50,1 ± 1,8	50,0 ± 2,3
SE2841, СА	4,95 ± 0,1	0,5 ± 0,14	0,51 ± 0,06	0,31 ± 0,08	51,8 ± 0,11	40,18 ± 0,07
SE2841, ММН	7,0 ± 1,7	—	—	—	47,3 ± 3,5	43,2 ± 2,9
SE2840, СА	66,2 ± 0,1	16,25 ± 0,14	4,65 ± 0,06	1,87 ± 0,08	3,02 ± 0,11	—
SE2840, ММН	52,2 ± 3,4	28,1 ± 3,0	—	2,8 ± 1,3	8,6 ± 3,0	—
SE2870, СА	73,16 ± 0,1	13,34 ± 0,14	2,79 ± 0,06	0,81 ± 0,08	2,38 ± 0,11	—
SE2870, ММН	65,4 ± 5,8	23,4 ± 4,0	—	4,2 ± 1,3	—	4,0 ± 2,8
SE2786, СА	73,13 ± 0,1	14,06 ± 0,14	2,36 ± 0,06	0,53 ± 0,08	3,58 ± 0,11	0,51 ± 0,07
SE2786, ММН	62,7 ± 4,3	19,8 ± 2,9	5,5 ± 1,7	2,3 ± 0,9	8,3 ± 2,9	—
SE2800, СА	62,31 ± 0,1	17,05 ± 0,14	6,54 ± 0,06	2,34 ± 0,08	3,72 ± 0,11	—
SE2800, ММН	54,5 ± 3,9	21,0 ± 2,8	5,7 ± 1,9	5,4 ± 0,4	12,6 ± 3,2	—

Сравнение данных по измерениям проб с использованием ДВИН-1 с результатами силикатного анализа показало в целом хорошую сопоставимость результатов. Для некоторых проб значения концентраций оксидов, полученных двумя способами, совпадали в пределах 3σ . В ряде проб отличия в концентрациях оксидов, полученных двумя способами, были более значимы. Это неудивительно, поскольку никакой пробоподготовки для измерений с ДВИН-1 не проводилось, в отличие от приготовления проб для силикатного анализа. Тем не менее вопрос о величине систематических ошибок метода требует отдельного изучения. Необходимо выполнить многократные измерения сертифицированных образцов.

Результаты, приведенные в табл. 2–6, дают представление о точности измерений. Хотелось бы отметить, что для настоящего анализа использовались данные только для центрального меченого пучка. Если же брать результаты по всем девяти пучкам, то ошибка определения концентрации уменьшается в среднем в два раза.

Основной результат проведенных испытаний состоит в том, что измерения по методу меченых нейтронов правильно воспроизвели все основные характеристики исследуемых пород. Так, измерения по ММН правильно воспроизвели элементный состав кальцитовых, доломитовых мраморов и кальцифилов (мраморов с примесью силикатных минералов): в кальцитовых мраморах фиксируются незначительные содержания Mg и Si, в доломитовых мраморах значительно снижается количество Ca и появляются значимые концентрации Mg, в кальцифилах наблюдается повышенное содержание Si (см. табл. 1–3). В амфиболитах содержание Si составляет 18–20 %, фиксируются повышенные концентрации Fe, Mg, Ca, что характерно для пород основного состава (табл. 5). В гнейсах содержание кремния выше, чем в амфиболитах (25–30 % Si) при весьма низких концентрациях Ca и Mg (табл. 4). Результаты ММН правильно показали отсутствие углерода в обеих группах силикатных пород.

Таким образом, результаты измерений в полевых условиях показали, что детекторы на основе ММН могут быть успешно использованы для определения Si, Al, Fe, Mg, Ca, C и их окислов в горных породах. Однако следует подчеркнуть, что метод не является альтернативой традиционным методам анализа, а может эффективно использоваться при необходимости оперативного определения состава горных пород. Использование детекторов ММН позволяет в полевых условиях получить результат после 15–20 мин облучения. Востребованность экспресс-анализа состава горных пород наиболее вероятна при определении положения горных выработок (карьеры, шахты, штольни) на действующих и разведываемых месторождениях и рудопроявлениях.

По сравнению с другими методами экспресс-анализа элементного состава горных пород, такими как рентгенофлюоресцентный анализ (РФА) [10], можно отметить следующие преимущества детекторов ММН.

1. Возможность определения концентраций легких элементов. Для РФА сложно определять элементы с $Z < 11$. ММН хорошо определяет концентрации легких элементов, таких как Li, F, N, C, O.

2. Большая зона досмотра. Приборы РФА имеют зону досмотра в несколько миллиметров. Зона досмотра детекторов ММН составляет 30×30 см на расстоянии 60 см. Кроме того, имеется возможность определять распределение концентрации элементов внутри образца.

3. Использование детекторов ММН в полевых условиях не требует никакой пробоподготовки.

4. Для детекторов ММН не применяются дорогостоящие эталонные образцы.

ВЫВОДЫ

В полевых условиях было опробовано определение элементного состава геологических пород с помощью метода меченых нейтронов. Измерения про-

водились переносным детектором ДВИН-1 на Ольхонском геодинамическом полигоне на базе «Черноруд» (ИрГТУ). Был выполнен анализ 47 образцов трех групп горных пород: карбонатных пород (мраморов и кальцифиров), гнейсов и амфиболитов. Для каждого образца определены массовые концентрации кремния, магния, железа, алюминия, кальция и углерода. Время измерения пробы составляло 15 мин. Предварительная пробоподготовка не проводилась, масса пробы варьировалась от 2 до 6 кг.

Полученные результаты по элементному составу различных групп горных пород полностью согласуются с выявленными минерало-петрографическими признаками.

Поскольку определение элементного состава горных пород с помощью ММН в полевых условиях проводится впервые в мировой практике, несомненно, должны быть продолжены дальнейшие исследования по отработке методики на эталонных образцах с известным содержанием компонентов. Целесообразно обратить особое внимание на определение содержаний рудных компонентов (S, Ni, Pb, Cu, Zn, Zr) для использования прибора в геолого-разведочных работах.

Метод меченых нейтронов имеет хорошие перспективы для использования в геологической практике при анализе образцов пород. Преимуществом метода является его экспрессность, отсутствие требований для пробоподготовки, возможность определения элементного состава внутри породы на значительной толщине, возможность определения вариаций компонентов в объеме породы непосредственно на объектах разведки или добычи полезных ископаемых.

Благодарности. Авторы благодарят Ю. А. Давыденко (ИрГТУ) за организацию полевых испытаний на базе «Черноруд». Особую благодарность выражаем коллективу ФГУП ВНИИА им. Н. Л. Духова (Москва) за надежную и стабильную работу нейтронного генератора ИНГ-27 в полевых условиях.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Hawkins P. O., Sutton R. W.* Compact Pulsed Generator of Fast Neutrons // *Rev. Sci. Instr.* 1960. V. 31. P. 241.
2. *Ussery L. E., Hollas C. L.* Design and Development of the Associated-Particle Three-Dimensional Imaging Technique. Rep. LA-12847-MS (UC-706 and UC-700), Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM, 1994.
3. *Rhodes E. et al.* APSTNG: Radiation Interrogation for Verification of Chemical and Nuclear Weapons // *IEEE Trans. Nucl. Science.* 1992. V. 39. P. 1041–1045;
Edgar A. Rhodes Associated-Particle Sealed-Tube Neutron Probe for Characterization of Materials // *Proc. SPIE: Substance Detection Systems, Innsbruck, Austria,* 5–8 Oct. 1993. V. 2092. P. 288.

4. Быстрицкий В.М. и др. // Тр. Междунар. конф. «Портативные генераторы нейтронов и технологии на их основе». М., 2013. С. 568.
5. Bystritsky V. M. et al. Stationary Setup for Identifying Explosives Using the Tagged Neutron Method // Phys. Part. Nucl. Lett. 2013. V. 5. P. 722.
6. Aleksakhin V. Yu. et al. Detection of Diamonds in Kimberlite by the Tagged Neutron Method // Nucl. Instr. Meth. A. 2015. V. 785. P. 9.
7. Федоровский В. С., Склярёв Е. В. Ольхонский геодинамический полигон (Байкал): аэрокосмические данные высокого разрешения и геологические карты нового поколения // Геодинамика и тектонофизика. 2010. Т. 1, № 4. С. 331–418.
8. Ряценок Т. Г., Ухова Н. Н. Химический состав дисперсных грунтов: возможности и прогнозы (юг Восточной Сибири). Иркутск: Институт земной коры СО РАН, 2008. С. 131.
9. ГОСТ 61-2003. Показатели точности, правильности, прецизионности методик количественного химического анализа. Методы оценки. М.: ИПК Изд-во стандартов, 2004. С. 41.
10. Mages M. et al. The Use of a Portable Total Reflection X-Ray Fluorescence Spectrometer for Field Investigation // Spectrochim. Acta. 2003. V. 58B, No. 12. P. 2129–2138.

Получено 10 сентября 2015 г.

Редактор *Е. В. Сабеева*

Подписано в печать 20.10.2015.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 1,12. Уч.-изд. л. 1,33. Тираж 250 экз. Заказ № 58658.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@jinr.ru

www.jinr.ru/publish/