

Применения метода меченых  
нейтронов для  
фундаментальных и  
прикладных исследований

Ю.Н.Копач, М.Г.Сапожников

ОИЯИ

Дубна



ДИАМАНТ

# Содержание

- ❖ **Обнаружение алмазов в кимберлите**
- ❖ Анализ элементного состава фосфатных руд
- ❖ **Анализ минерального сырья на конвейере**
- ❖ Детекторы взрывчатых веществ
- ❖ Подводные детекторы
- ❖ **Определение массовой концентрации углерода в почве**
- ❖ ММН в планетологии
- ❖ **Элементный анализ животных и человека *in vivo***

# Problem:

“Since the time of the caveman mining hasn’t changed much. You pulverize the rock and take out what you want”

C.Elphick, CEO “Gem Diamonds”

- The ore is processed in crushers or grinding rolls with subsequent grinding in wet mills down to a size of 0.2 mm.
- **Crushing kimberlite ore can break the most valuable large diamonds of few carats.**
- For ALROSA mines from 35 to 65% of diamonds have some defects resulting in an average weight loss of 12%.



## Example

Diamond of 69 ct. Initially its mass was  $\approx 100$  ct (line of cleavage is clearly seen).

Lost of value  $\approx 1.3$  m\$



4 Dec 2020

Simon Connell : Tastes of Nuclear Physics

11

All 4 stones come within one minute from each other.



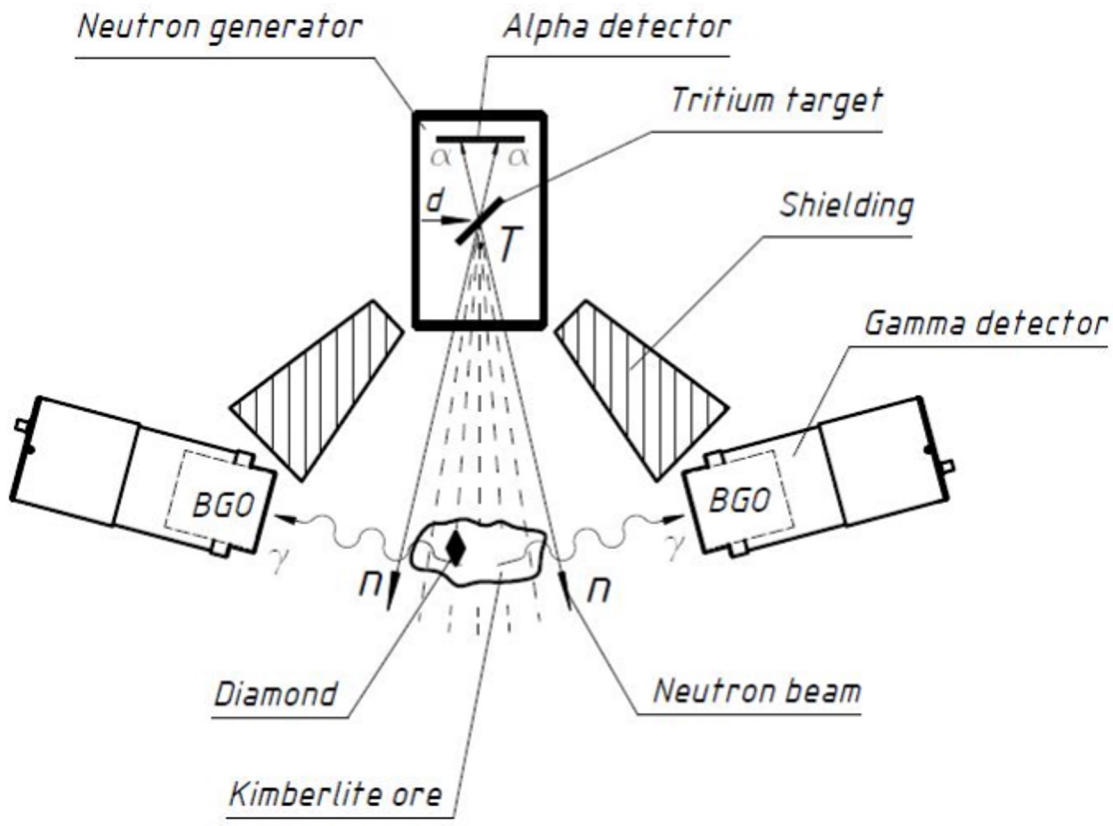
## Diamond Breakage – Loss of Revenue



Total value as two stones: US\$ 7 135 000  
Total value as one unbroken stone: US\$ 17 700 000

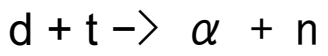
US\$ values are approximate  
Estimate loss of \$10m

# Tagged neutron method

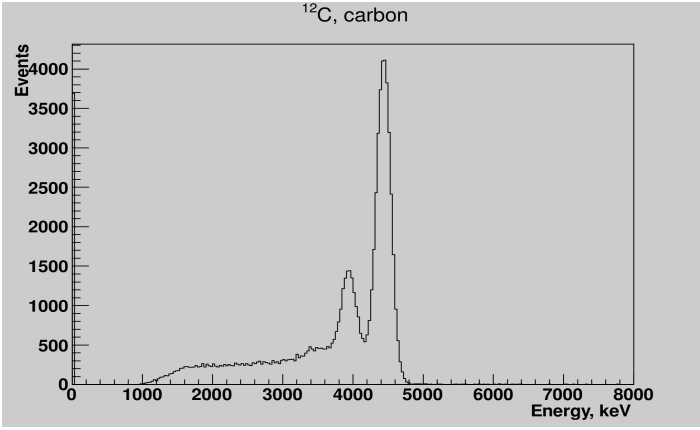


Tagged neutron method allows to find a diamond inside the kimberlite rock without its crushing.

The ore is irradiated by fast 14 MeV neutrons from reaction



The 4.44 MeV gamma-line of carbon is used to determine carbon distribution in the ore



- Signature of diamond is increasing of local concentration of carbon
- The place of diamond in the kimberlite rock is determined.
- No false alarms on the rocks with carbon.

# Detection procedure

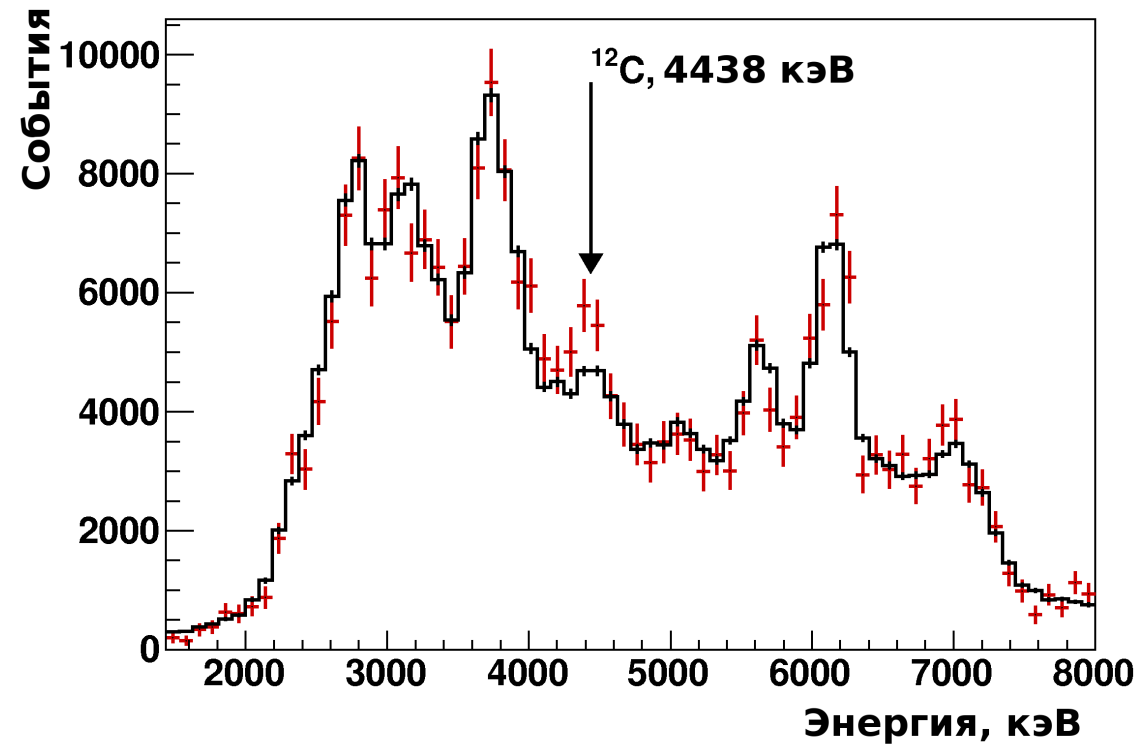
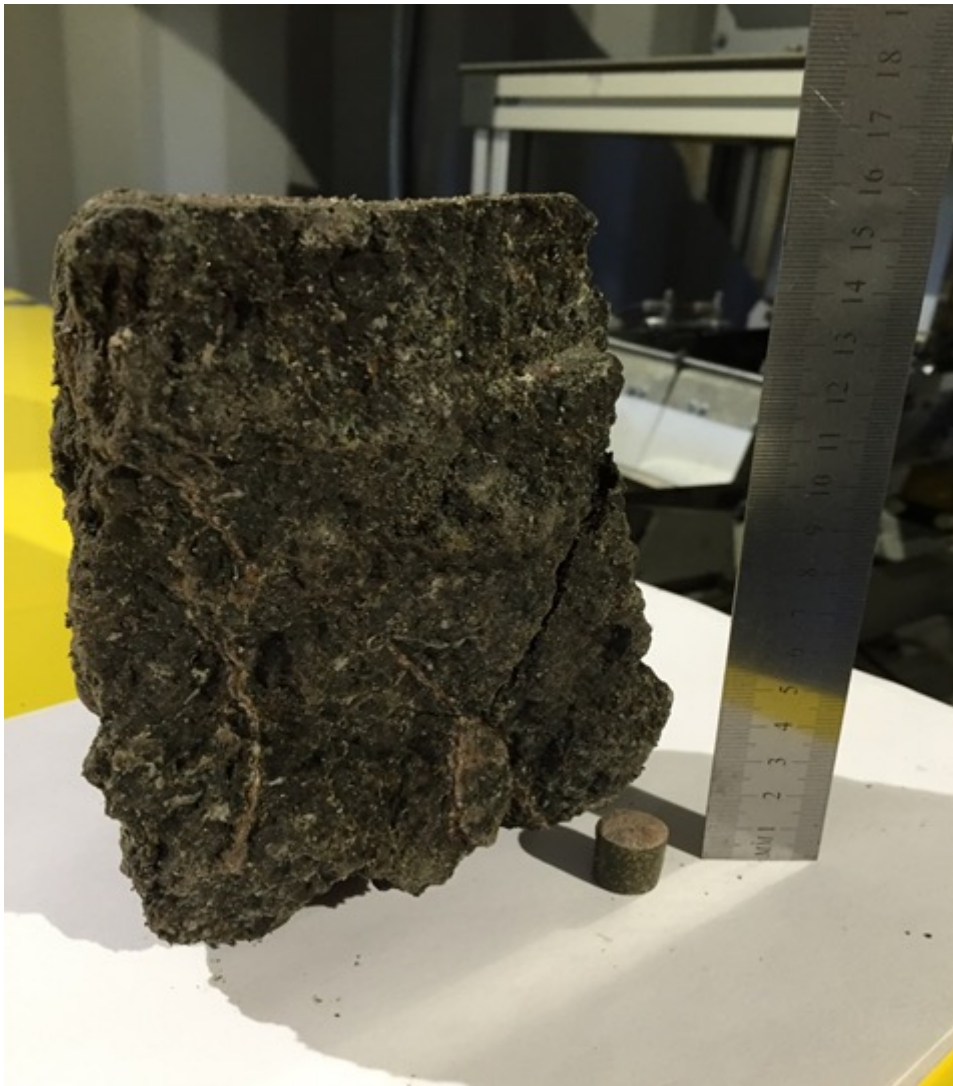
- ❑ Ore tray is divided by 192 regions.
- ❑ Cell size 8x8 mm.
- ❑ In each cell a local carbon level is evaluated and compared to carbon level averaged over sample.
- ❑ Diamond signal is local carbon level excess.
- ❑ Ore sorting is carried out automatically, no human intervention required.

The screenshot shows the DiamaNT GUI interface. On the left is a grid of 8x8 cells representing measurement data. The grid has a header with 'Измерение', 'Протокол', and 'Управление ПЛК'. The data values are as follows:

Измерение	Протокол	Управление ПЛК					
-0.91	-0.89	0.28	0.76	-2.42	-0.46	-1.44	-1.86
-1.02	0.82	-0.83	-1.99	-0.74	0.01	-0.85	-0.50
-0.40	-0.01	-1.34	0.41	-0.29	0.58	1.08	1.03
0.19	0.09	-1.81	1.26	1.34	1.04	-0.51	0.01
0.99	0.59	-0.07	-1.08	-0.19	0.14	1.69	0.22
-0.68	0.54	0.33	0.41	-0.80	-1.66	2.36	-0.88
0.11	3.86	1.33	0.46	-0.76	0.37	0.34	-0.23
-0.60	3.26	-1.14	-0.05	0.18	-1.35	0.25	0.92

On the right side of the GUI, there is a spectrum plot titled 'hist57' with 'Integral: 21309e+04'. Below the plot are control options for 'Режим работы' (5, 20, 10, 10 минут) and 'Состояние установки' (Нейтронный генератор, Альфа-детектор, Гамма-детекторы, Связь, Данные). A 'Сведения об измерении' section shows: 'Начало: 13:43:18, 13 августа 2015 года', 'Длительность (чч:мм:сс): 00:10:00', 'Интенсивность: 4.2x10^7 н/с', 'Максимальное превышение: 3.86', and 'Описание измерения: ядн 6062/26 пр15 крошка крупная'. At the bottom, there are navigation buttons (left, star, right) and a 'Начать измерение' button with a progress indicator 'ИЗМЕРЕНИЕ 100%'.

# Possibility to work with large size ore



- Stone -160x90x90 mm
- Ratio of the diamond to ore size is 1:10



# How to find a diamond inside the kimberlite stone?



The method was tested on kimberlite ore provided by ALROSA company



# Sample №17



- Strong signal of carbon was found in one of 33 samples.
- Analysis of this sample reveals two regions with 7 mm diamonds.



V.Alexakhin et al., Detection of Diamonds in Kimberlite by the Tagged Neutron Method, Nuclear Instruments and Methods A785 (2015) 9 .



# Tests at processing factory of Lomonosov's mine

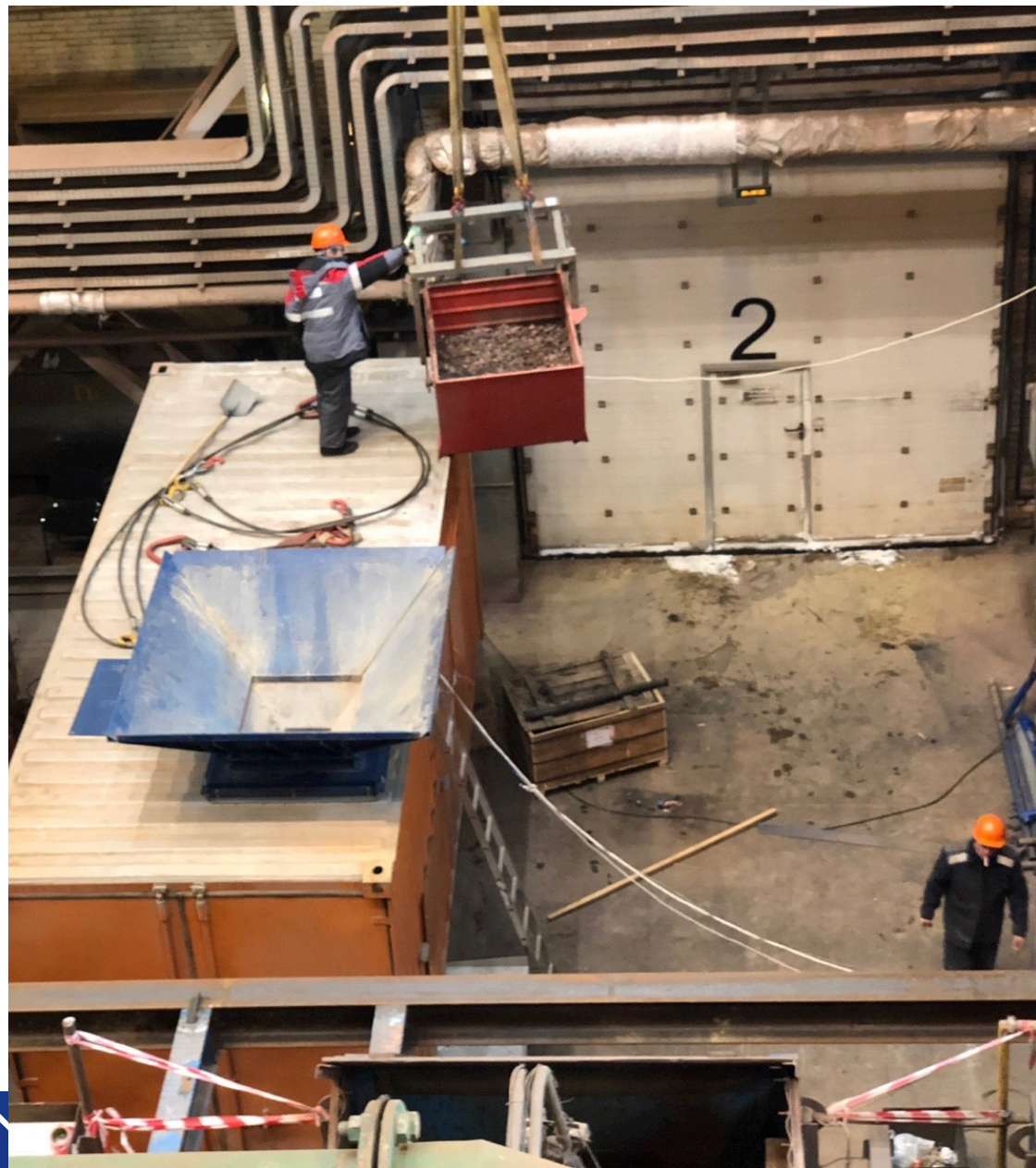


Transport container – 20 ft

- Dosator
- Trays conveyer
- Neutron module
- Ore separation system



# Feed hopper – 2 t

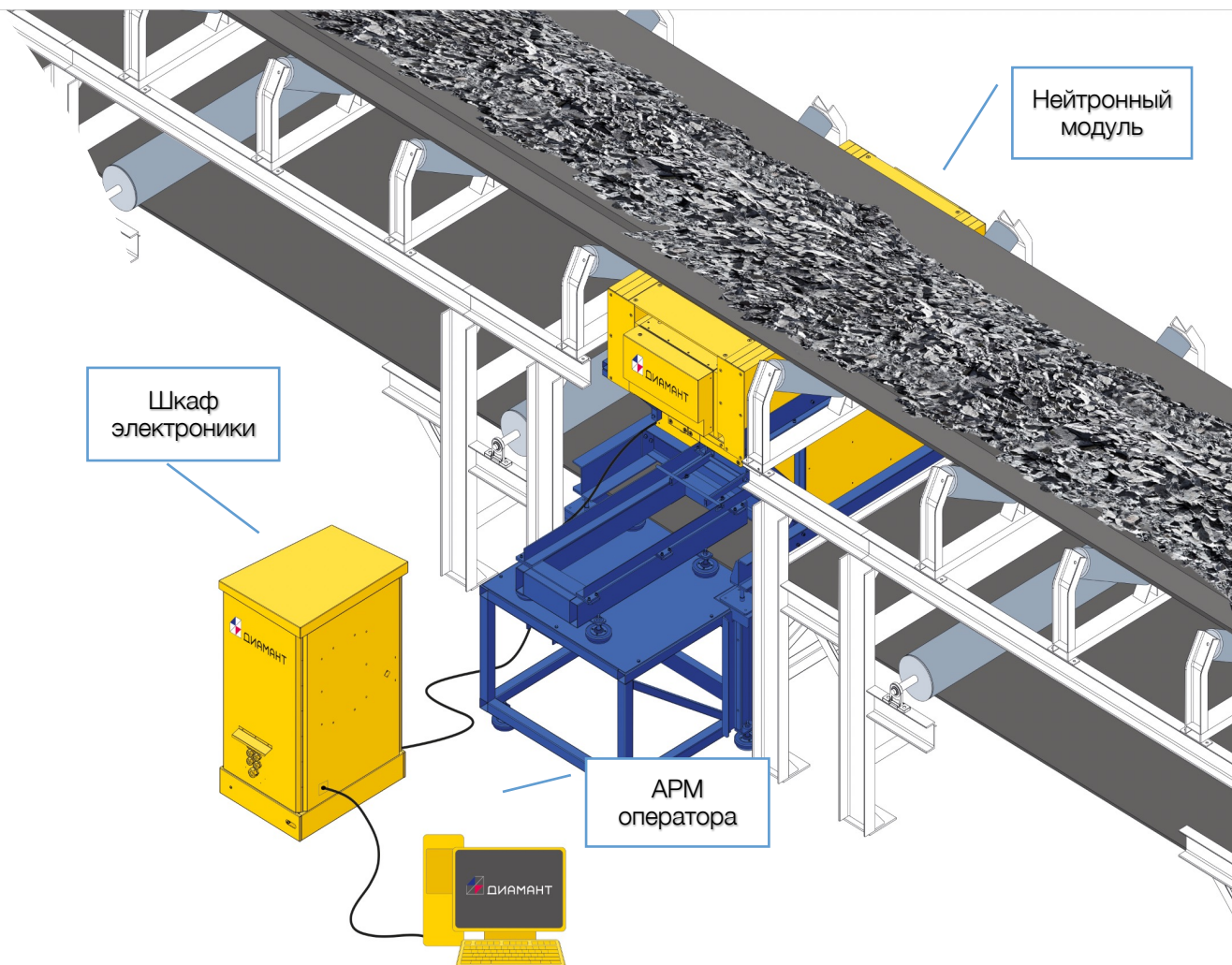


# Summary

- ❑ Main characteristics of the Pilot prototype:
  - ❑ Throughput– 1060 kg/h
  - ❑ Inspection time – 10 s
  - ❑ Minimal detected diamond:
    - ❑ In the ore -75+40 mm - 12 mm,
    - ❑ In the ore -90+50 mm – 16 mm,
    - ❑ In the ore -150+100 mm - 20 mm.
  - ❑ Concentrate yield – 3 %
  - ❑ Electric power – 0.6 kWt/ton

# Конвейерный анализатор АГП-К

- Данные о концентрациях элементов сырья обновляются каждые 40-60 с.
- Нет отбора проб. Полная автоматизация контроля за качеством сырья
- Определяются концентрации всех основных элементов сырья.
- Анализ материала на всю глубину слоя до 300 мм
- Нет радиоактивного источника.



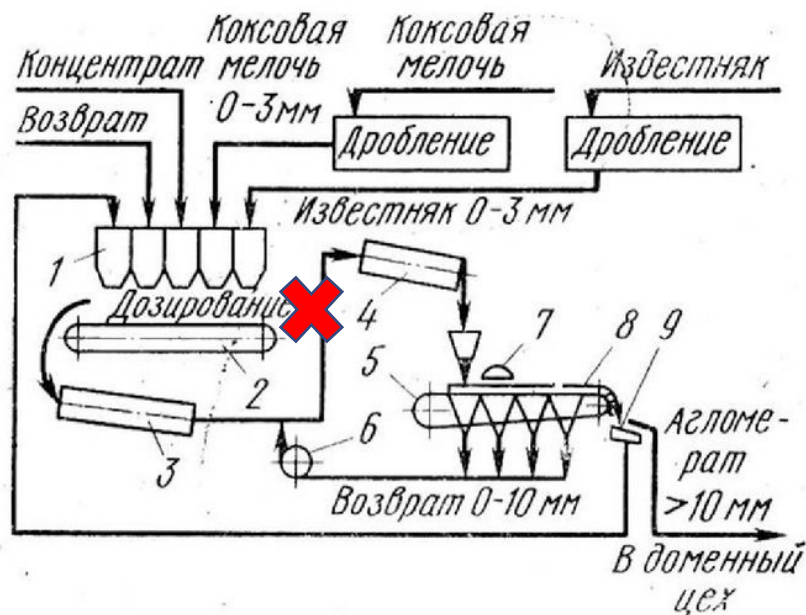


## ОПЫТ ВНЕДРЕНИЯ



- ❖ ПАО «Северсталь» – поставлено 2 анализатора для агломерационной шихты
- ❖ АО «СЗФК» - поставлен анализатор для апатитовой руды подземного рудника «Олений ручей».
- ❖ АО «Евраз-ЗСМК» – поставлено 2 анализатора для агломерационной шихты

## СХЕМА ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО ПРОЦЕССА АГЛОМЕРАЦИОННОЙ ФАБРИКИ

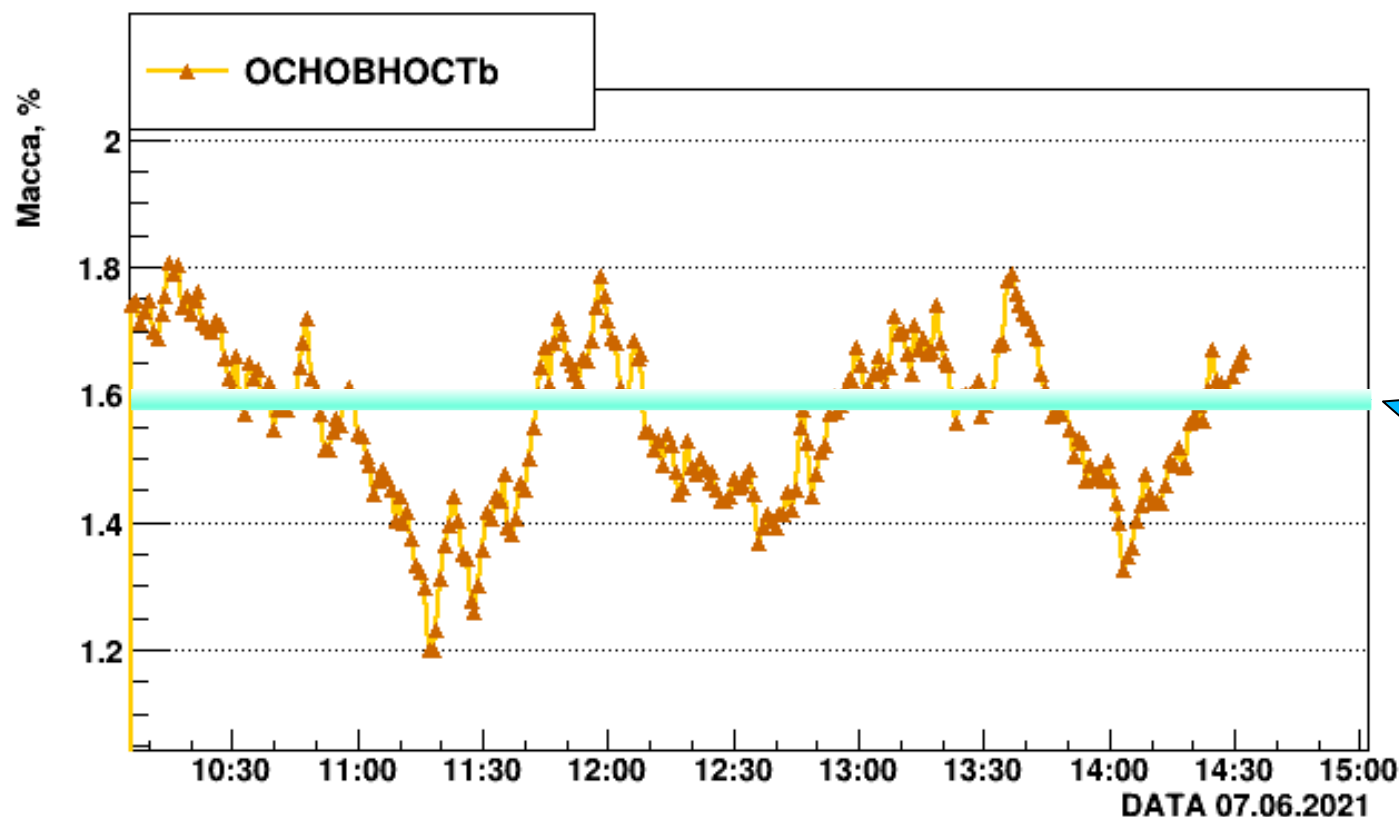


Основное требование – держать основность =  $\text{CaO}/\text{SiO}_2$  в заданных пределах ( $1,6 \pm 0.1$ ) в течение всего времени

Корректирующее воздействие – добавление (уменьшение) известняка

- ✓ Сейчас информация об элементном составе шихты приходит раз в 2-3 часа.
- ✓ Корректировка состава шихты всегда запаздывает.

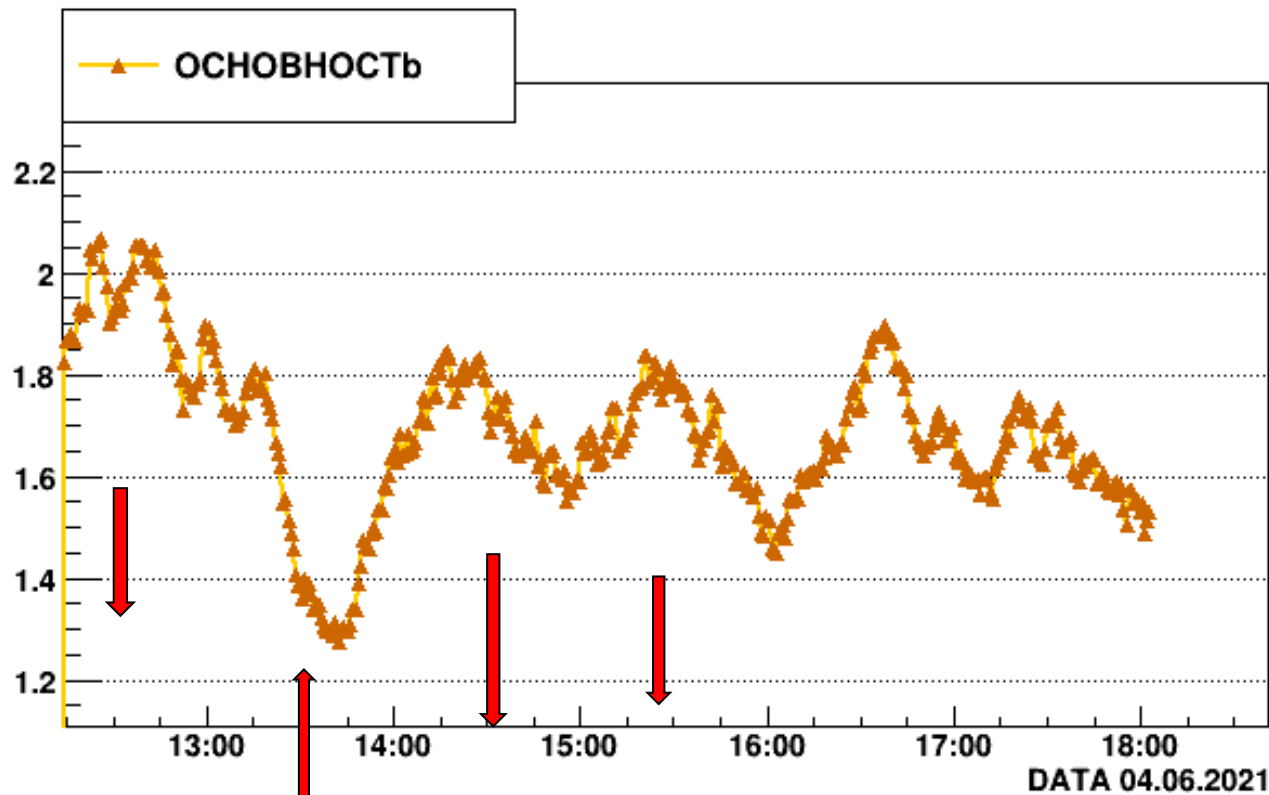
# Изменения основности шихты со временем по данным АГП-К



Дозировщик должен удерживать основность внутри этого интервала

- Временной интервал между точками – 40-60 сек
- За 30 минут основность может упасть с 1.8 до 1.2 и вновь увеличиться

# Измерения основности АГП-К



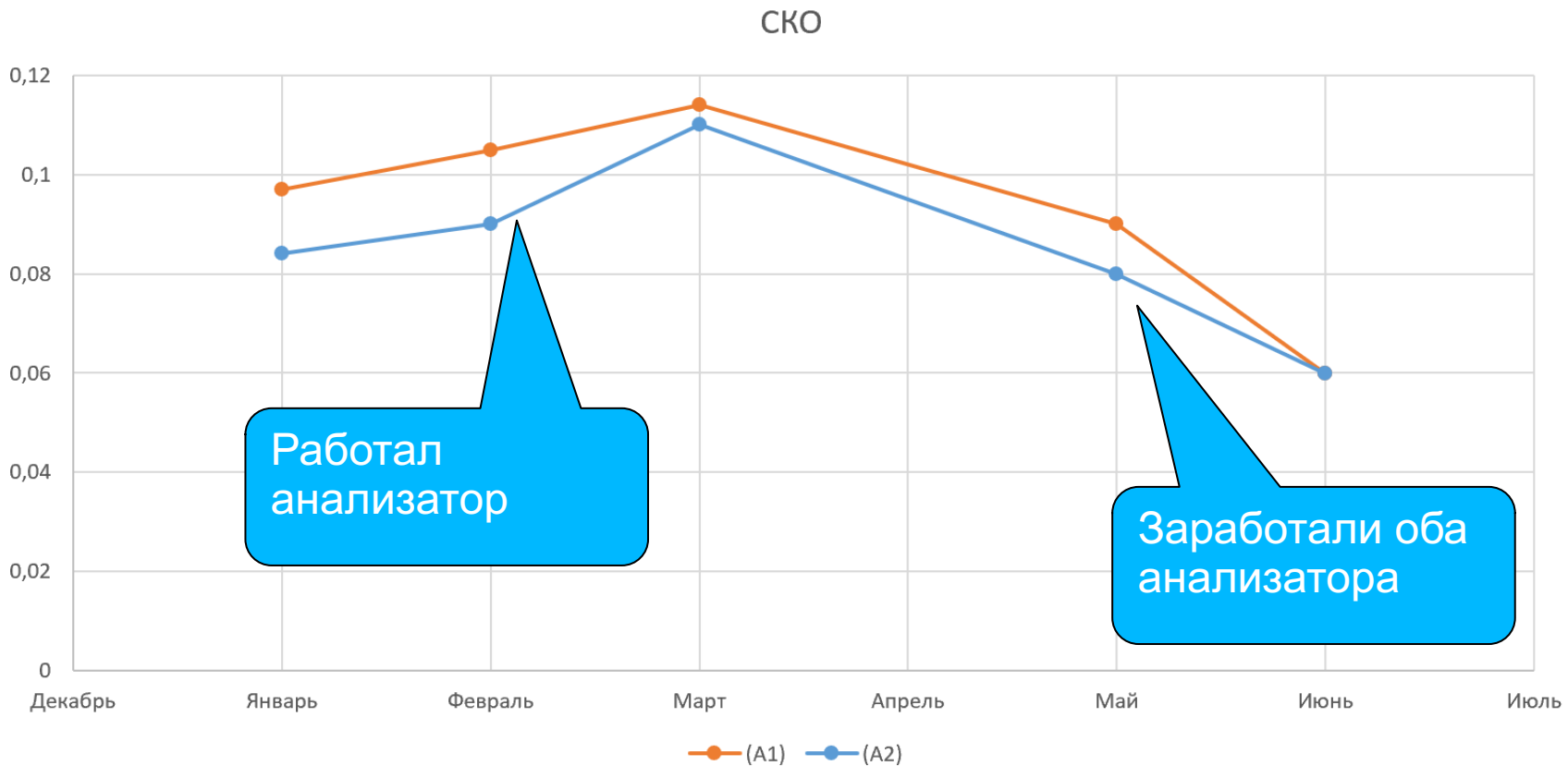
Расход шихты – 814 т/ч  
Расход известняка – 32 т/ч

Управляющие  
воздействия, т/ч

12.30: -5  
13.38: + 3  
14.28: -2  
15.30: -1

- Стрелки – время изменения расхода известняка
- Управляющее воздействие приходит через 15-30 минут
- Отклик соразмерен величине управляющего воздействия

# Изменения СКО основности агломерата



- На конвейере A2 – установлен анализатор, на соседнем конвейере A1– не было анализатора
- В мае заработали оба анализатора



# Экономический эффект от внедрения

- ❖ Экономический эффект от внедрения конвейерного анализатора АГП-К для агломерационной шихты составляет 16 млн. руб. в год.
- ❖ Экологический эффект - снижение выбросов загрязняющих веществ в атмосферу на 435 тонн в год.

Снижение СКО основности агломерата на 0.01 приводит к экономии кокса на 0,13-0.19% и приросту производительности в 0,22-0.33%





## Условия работы

- ❖ Большая запыленность
- ❖ Более года успешной работы



# Точности измерения.

## Сравнение с другими нейтронными анализаторами

СКО <sub>abs</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , %	CO <sub>2</sub> , %	CaO, %	Fe %	MgO, %	Na <sub>2</sub> O, %	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , %	SiO <sub>2</sub> , %	Зо́льно- сть, %
АГП-К, %	0,13	0,07	0,32	0,29	0,12	0,20	0,25	0,10	0,32
СВ OMNI, % Thermo Fisher*	0,60		0,42		0,58	0,45		0,94	
NITA II**	0,5						0,5		
GEOSCAN***, %	0,45		0,95	0,80	0,60		0,38	0,66	
XENA <sup>4</sup> ,%	0,38		0,49	0,23				0,52	
РАТЭК	0,3		0,4	0,4	0,3	0,08		0,5	
COALSCAN <sup>5</sup>									0,35

Series, (2015).

<sup>4</sup>C.S.Lim et al, An on-belt elemental analyser for the cement industry, Appl. Radiation and Isotopes 54 (2001) 11.

<sup>5</sup>COALSCAN 9500X, Scantech



# Преимущества предлагаемого решения по сравнению с аналогами

Имеются on-line нейтронные анализаторы на основе технологии:

- PGNAA (Prompt Gamma Neutron Activation Analysis) - радиоактивный источник  $^{252}\text{Cf}$  (пример – анализатор OMNI, компания Thermo Fisher)
- PFTNAA (Pulse Fast Thermal Neutron Activation Analysis) – импульсный нейтронный генератор (пример - анализатор CNA Generation III , компания SODERN)

Преимущества ММН по сравнению PGNAA и PFTNAA:

- Лучшее определение концентрации легких элементов ( C,N,O, Na, P,K).
- Лучшее подавление фона (в 200 раз), которое приводит к лучшей точности определения элементных концентраций.
- Постоянный поток нейтронов, не меняющийся со временем.
- Отсутствие зависимости от влажности сырья.
- Нейтронный генератор можно выключить, в отличие от радиоактивного источника  $^{252}\text{Cf}$ .
- Нейтронный генератор производства ФГУП ВНИИА (Москва). Генератор ВНИИА 6 лет проработал на Марсе в составе марсохода Curiosity.

# Конкурентные технологии

## TNM vs LIBS, XRF, PGNAА

### LIBS

Измерение поверхности каждые несколько метров



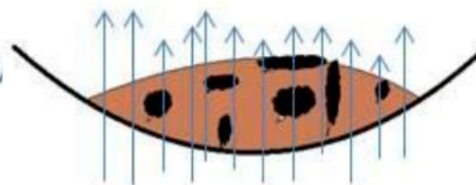
### XRF

Периодическое измерение малых образцов



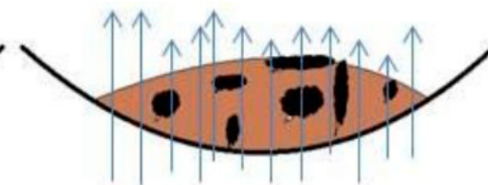
### PGNAА

Непрерывное измерение объема



### TNM

Непрерывное измерение объема



#### Преимущества:

- \* Быстрый минимально разрушающий анализ;
- \* Дешевая, но сложная эксплуатация;
- \* Не нужно получать лицензию.

#### Недостатки:

- \* Проникающая способность: ~1 мм.
- \* Анализ состава поверхности -> расслоение ведет к большим ошибкам;
- \* Матричные эффекты;
- \* Сложности с градуировкой;
- \* Пыльность и влажность - проблема;
- \* Репрезентативный анализ только если материал 100% гомогенный, что маловероятно на практике.

#### Преимущества:

- \* Высокая точность анализа;
- \* Простое получение лицензии;

#### Недостатки:

- \* Требуется пробоподготовка;
- \* Большая ошибка пробоотбора;
- \* Образцы очень маленькие;
- \* Измерения в офлайн режиме;
- \* Репрезентативный анализ только если материал 100% гомогенный, что маловероятно на практике.

#### Преимущества:

- \* Анализ объема образца;
- \* Непрерывное измерение онлайн;
- \* Не требует частого обслуживания.
- \* Не влияют: слоистость, крупность, скорость ленты и пыль.

#### Недостатки:

- \* Низкая точность и чувствительность;
- \* Влияние массы анализируемого образца: лента не пустая и слой материала 10-15 см;
- \* Захват тепловых п на Fe, Cl;
- \* Строгие нормативные требования и лицензирование;
- \* Громоздкость;
- \* Активация пыли и металлических деталей конвейера.
- \* По мере расхода Cf-252 требуется подкалибровка.

#### Аналогично PGNAА, особенности:

#### Преимущества:

- \* Отличное соотношение сигнал/фон - лучше, чем у PGNAА за счет НГ и времяпролетной методики;
- \* Возможность отключения ИИ;
- \* Нет хим.элементов, присутствие которых значительно искажает анализ.
- \* Стабильная градуировка.

#### Недостатки:

- \* Высокая стоимость измерения.
- \* Требуется частого обслуживания (замены трубки НГ).



# Углерод в почве

Стандартный подход к определению элементного состава почвы требует большого и трудоемкого отбора проб, их подготовки и последующего химического анализа

Методы лазерной (LIBS) и инфракрасной (NIRS) спектроскопии: небольшие участки поверхностного слоя почвы, глубиной от 0,1 до 1 см

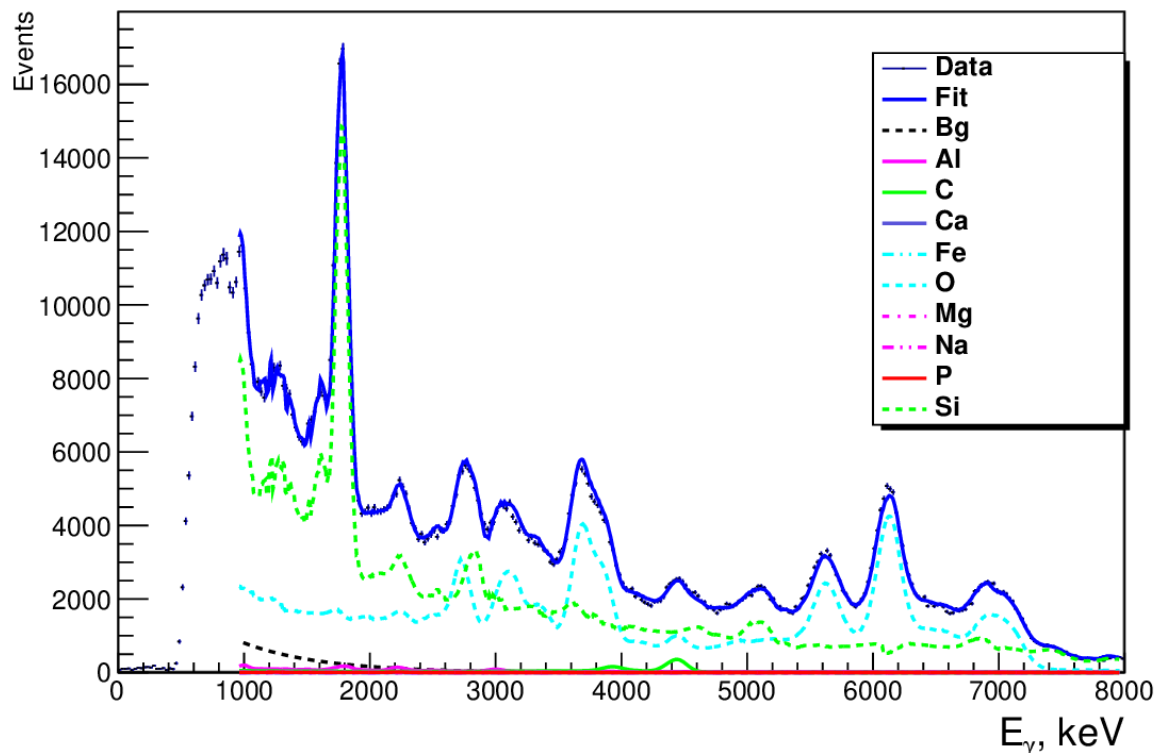
Нейтронные анализаторы разрабатываются в США для проведения элементного анализа:

- компоста (G. Yakubova et al, Compost Science & Utilization, DOI:10.1080/1065657X.2019.1630339
- почвы (G. Yakubova et al, Applied Radiation and Isotopes 150 (2019) 127-
- связывания атмосферного углерода в почве (L. Wielopolski et al, Soil Soc. Am. J. 2008, 72, 1269-1277

# Преимущества ММН

- ✓ Большая проникающая способность. Нейтроны -14 МэВ,  $\gamma$ -кванты 1-7МэВ.  
Глубинность – 30 см почвы.
- ✓ Определяется элементный состав объема почвы 40x40x30 см
- ✓ Хорошая чувствительность к легким элементам – С, N, O, P, Na, K
- ✓ Отсутствие пробоподготовки.
- ✓ Время анализа – 15-20 мин.
- ✓ Возможность опробования больших площадей.

# Измерения проб почвы



Энергетический спектр гамма-квантов образца почвы.

Точки с ошибками - экспериментальные данные. Разными цветами показаны вклады от энергетических спектров отдельных элементов. Голубой линией показан вклад от кислорода, зеленой штриховой – от кремния, зеленой сплошной – от углерода. Синей линией показан суммарный вклад от всех элементов.

# Полевые испытания



Нейтронный модуль во время испытаний

Полевые испытания прототипа АГП-С показали:

- Сходимость с результатами химического анализа для углерода:

$$\text{СКО}_{\text{абс}} = 0,15\% \text{ и } \text{СКО}_{\text{отн}} = 5,9 \%$$

- Оценка погрешности измерения концентрации углерода (повторяемость) составила

$$\text{СКО}_{\text{абс}} = 0,08\% \text{ и } \text{СКО}_{\text{отн}} = 4,8 \%$$



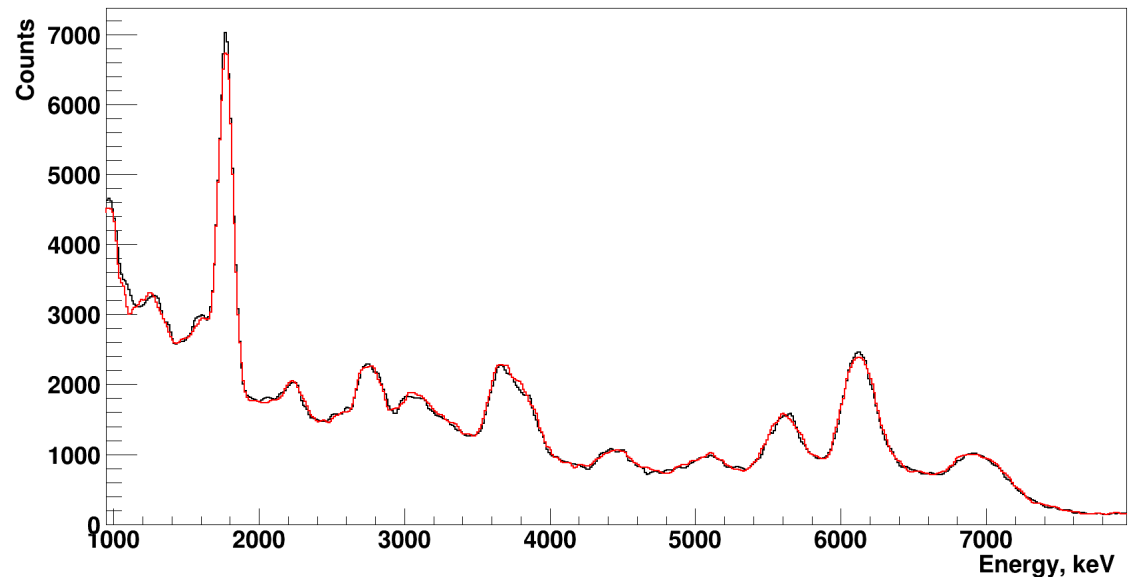
# Полевые испытания

Полевые испытания прототипа АГП-С показали возможность измерения элементных концентраций в почве как в статическом, так и в динамическом режиме.



Нейтронный модуль во время испытаний

DYN vs STAT



Спектр почвы в двух режимах: черный – статический, красный - динамический

# Выводы

- Оценены возможности установки для определения элементного состава почвы методом меченых нейтронов.
- Разработана процедура градуировки установки.
- Для экспериментального макета получены значения абсолютного ( $\sigma_r^{\text{абс}} = 0,14\%$ ) стандартного отклонения повторяемости измерений для уровней концентрации углерода порядка 1,7-3,3%.
- Сходимость с расчетными значениями составила  $\sigma_r^{\text{абс}} = 0,14\%$

*V.Yu. Alexakhin et al, Determination of carbon concentration in soil using the tagged neutron method. Phys.Part.Nucl.Lett., 2022, v.19, p.717-723.*

# ММН для медицины

- INVA (in vivo neutron activation) в BNL (США)
- Облучение человека и животных быстрыми нейтронами.
- Определения концентраций основных элементов, входящих в состав тела: N, Ca, P, K, Na, Cl.

# Определение N in-vivo

In Vivo Measurement of Body Nitrogen by Analysis of Prompt Gammas from Neutron Capture

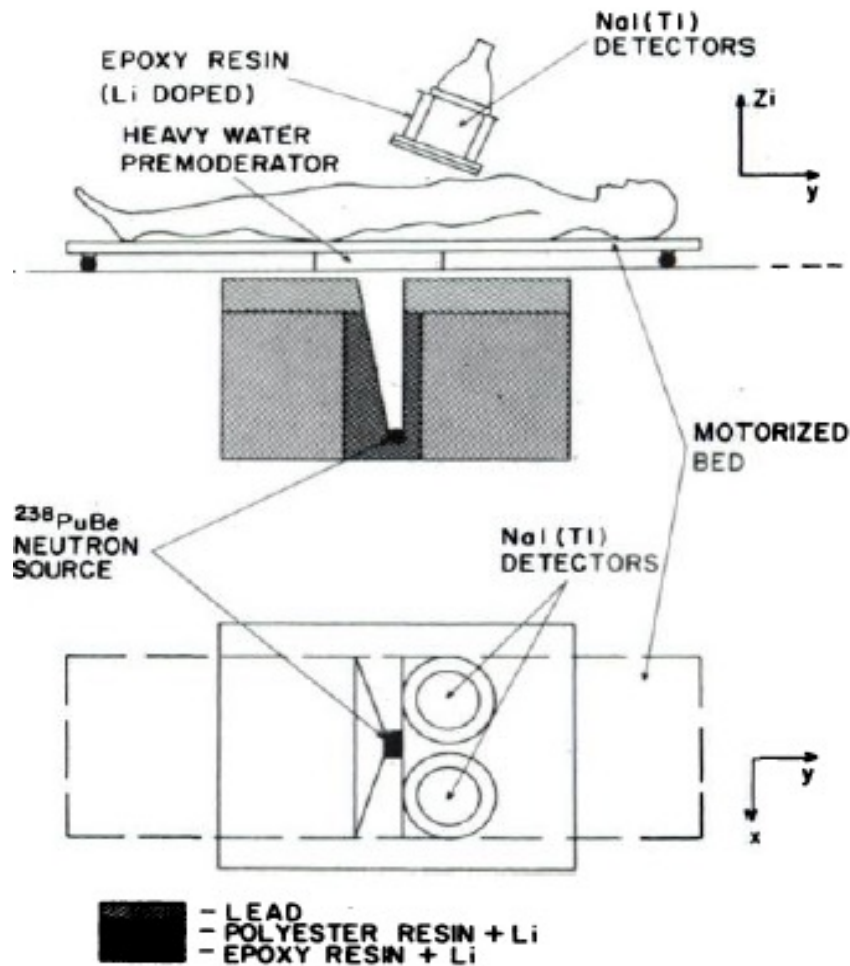
David Vartsky, Kenneth J. Ellis, and Stanton H. Cohn  
Brookhaven National Laboratory, Upton, New York

A method for the in vivo determination of body nitrogen by prompt gamma photons from neutron capture is described. An  $^{85}\text{Ci}$   $^{238}\text{Pu}$ -Be source provides the neutrons. The gamma detection system consists of two 15.24 X 15.24 cm NaI(Tl) detectors placed above the patient. Absolute value of body nitrogen is determined using body hydrogen as an internal standard. The reproducibility of the method is  $\pm 3\%$  for a body dose of 26 mrem.

J Nucl. Med. v20: 1158-1165,1979



# Определение N in-vivo



1. Irradiation-detection facility.

- Нейтронный пучок –  $E_{av} = 4.5$  МэВ
- Интенсивность –  $I = 2.3 \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$
- Расстояние до источника – 50 см
- Измерения в 8 точках от плечей до колен
- 14 здоровых мужчин
- Полное время облучения – 20 мин
- Полная доза – 26 mrem
- Массовая концентрация азота от мышечной массы тела  
 $N = (3,38 \pm 0,15)\%$

# ММН для медицины

- Определение массовой концентрации железа в печени и сердце *in vivo*. (L. Wielopolski, Feasibility of Measuring Iron *in vivo* Using Fast 14 MeV Neutrons, BNL report, BNL-73980-2005 )
- Определению жира, протеина и воды в пробах мяса овец по измерению массовой концентрации углерода, кислорода и азота. (S.Mitra, J E Wolff, R.Garrett,C.W. Peters, 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. 40 (1995) 1045-1055.)
- Нейтронный генератор с альфа-детектором облучал пробы потоком нейтронов 14 МэВ с интенсивностью  $I = 1 \times 10^6 \text{ с}^{-1}$ .
- Гамма-кванты регистрировались 4 NaI(Tl) детекторами размером 15 x15 см.
- Показано, что облучая пробу массой 40 кг, можно получить удовлетворительную точность в определении массовых концентраций азота, углерода и кислорода за 15 мин, при этом проба получает дозу в 30 мкЗв.

# ММН для медицины

D.Koltick, L.Nie, Associated Particle Neutron Imaging for Elemental Analysis in Medical Diagnostics, IEEE Trans.Nucl. Sci. 60 (2013) 824-829.

Element	Tissue	Cancerous ppm	Normal ppm
K	Breast	952	224/168
P	Breast	578±79	223±33
Fe	Kidney	440±64	122±35
	Liver	1309	768
	Lung	75.1±9.7	199±101
	Prostate	1370	490
Ca	Lung	355±42	886±248
	Prostate	2240	1870
Cd	Kidney	15.6±0.9	181±44

The concentration of iron having large differences between normal and diseased tissues, ranging as large as 40% to more than 360%, which makes it a practical element of signature in medical diagnostics using APNEI

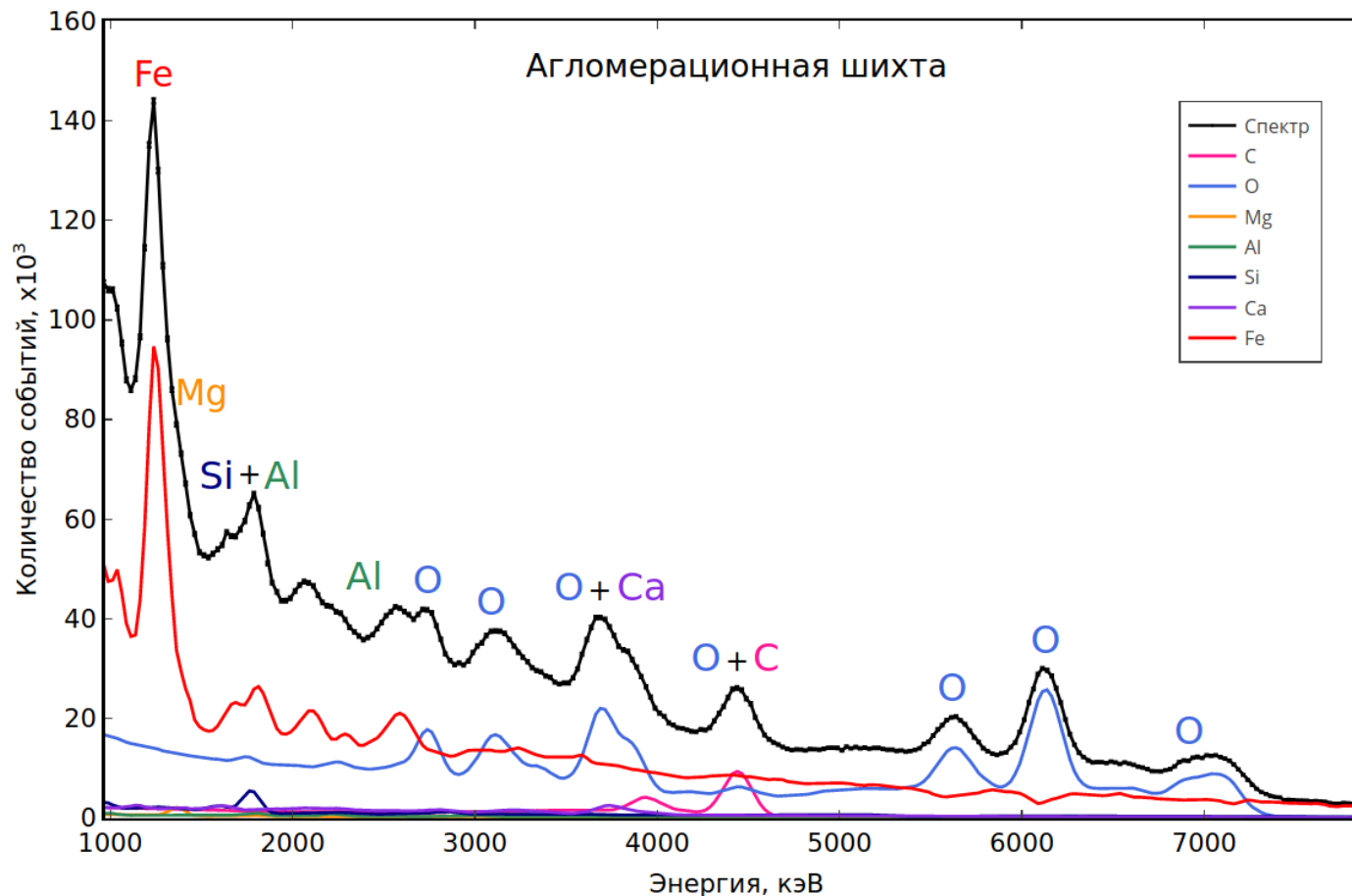
ММН для  
диагностики рака  
должен  
идентифицировать  
повышенную  
концентрацию  
железа в ячейке  
1x1x7 мм

# Выводы:

- ❖ Метод меченых нейтронов – дистанционный неразрушающий метод элементного анализа вещества.
- ❖ Дальнейшее развитие зависит от:
  - ❖ увеличения времени жизни нейтронного генератора
  - ❖ прогресса с гамма-детекторами
  - ❖ развития электроники
- ❖ Все только начинается...



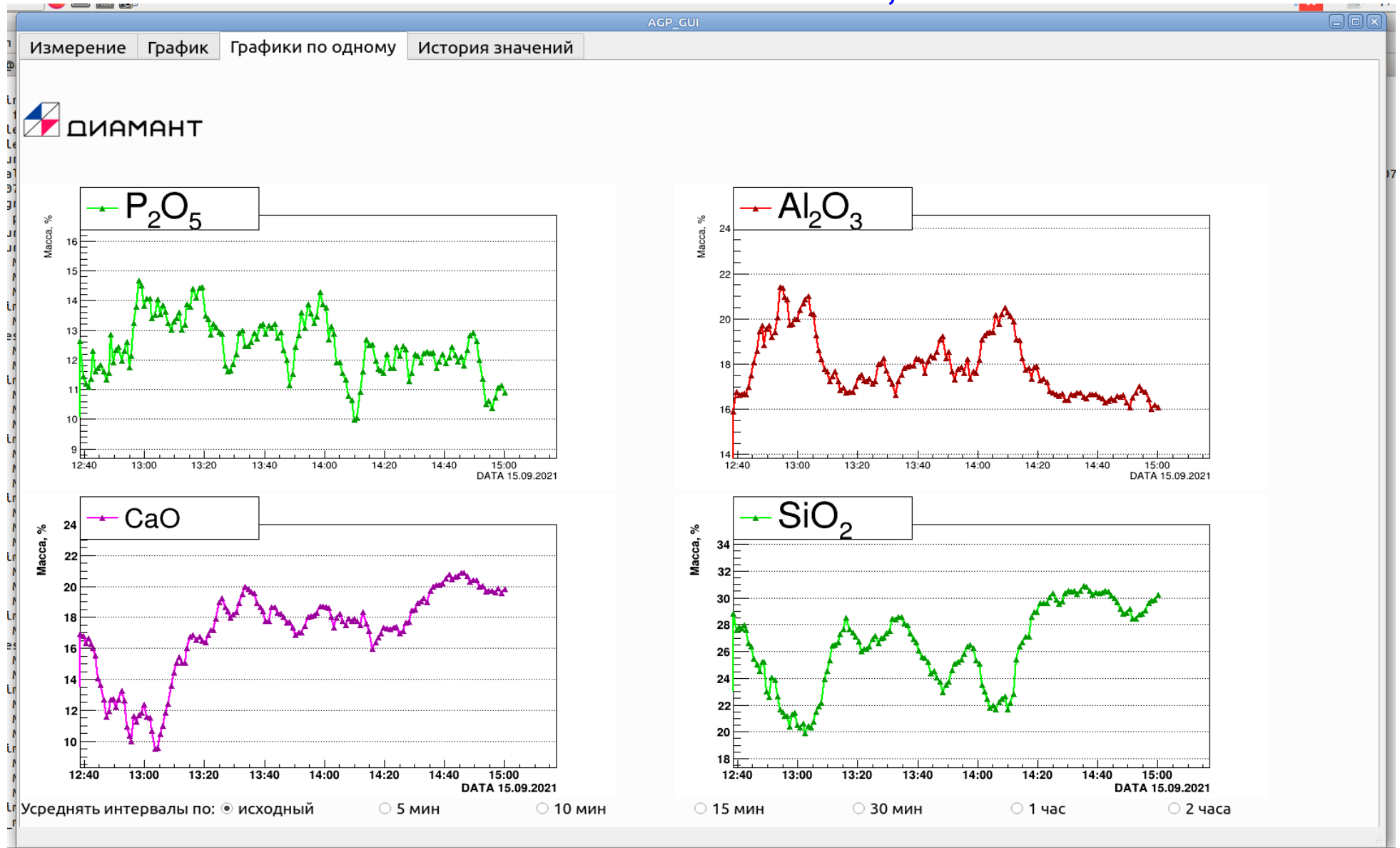
# Энергетический спектр гамма-квантов от пробы агломерационной шихты



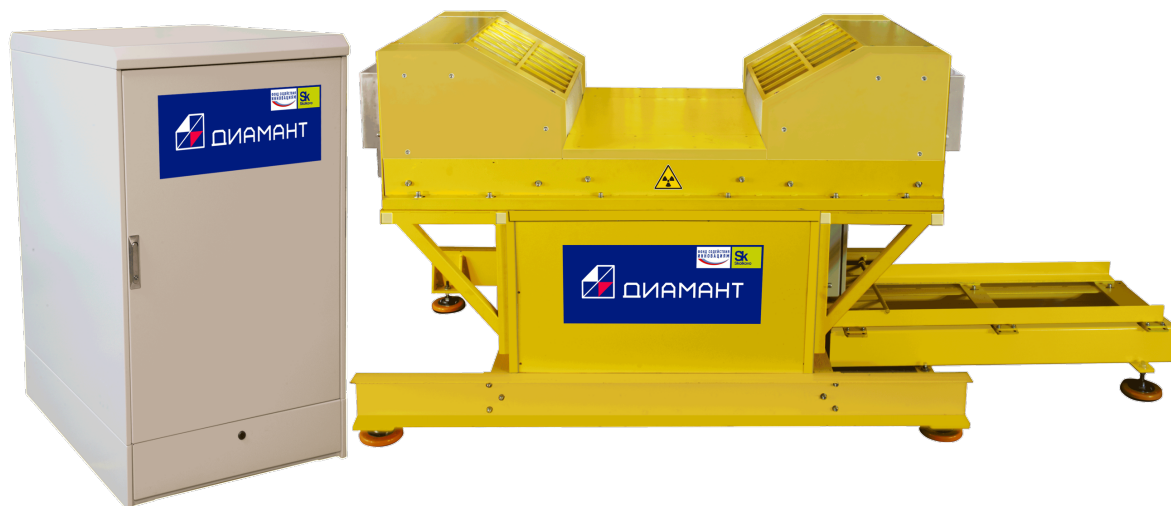
37

Измеряются концентрации Al, Ca, C, Fe, Mg, Na, O, P, Si, Ti и пересчитываются на соответствующие оксиды

# Окно интерфейса оператора для показа изменения концентраций $\text{CaO}$ , $\text{Al}_2\text{O}_3$ , $\text{P}_2\text{O}_5$ и $\text{SiO}_2$



# Конвейерный анализатор АГП-К



Нейтронный модуль:

- Габаритные размеры (ДхШхВ): 1255x2046x1295 мм
- Вес – 2,9 т.

Шкаф электроники:

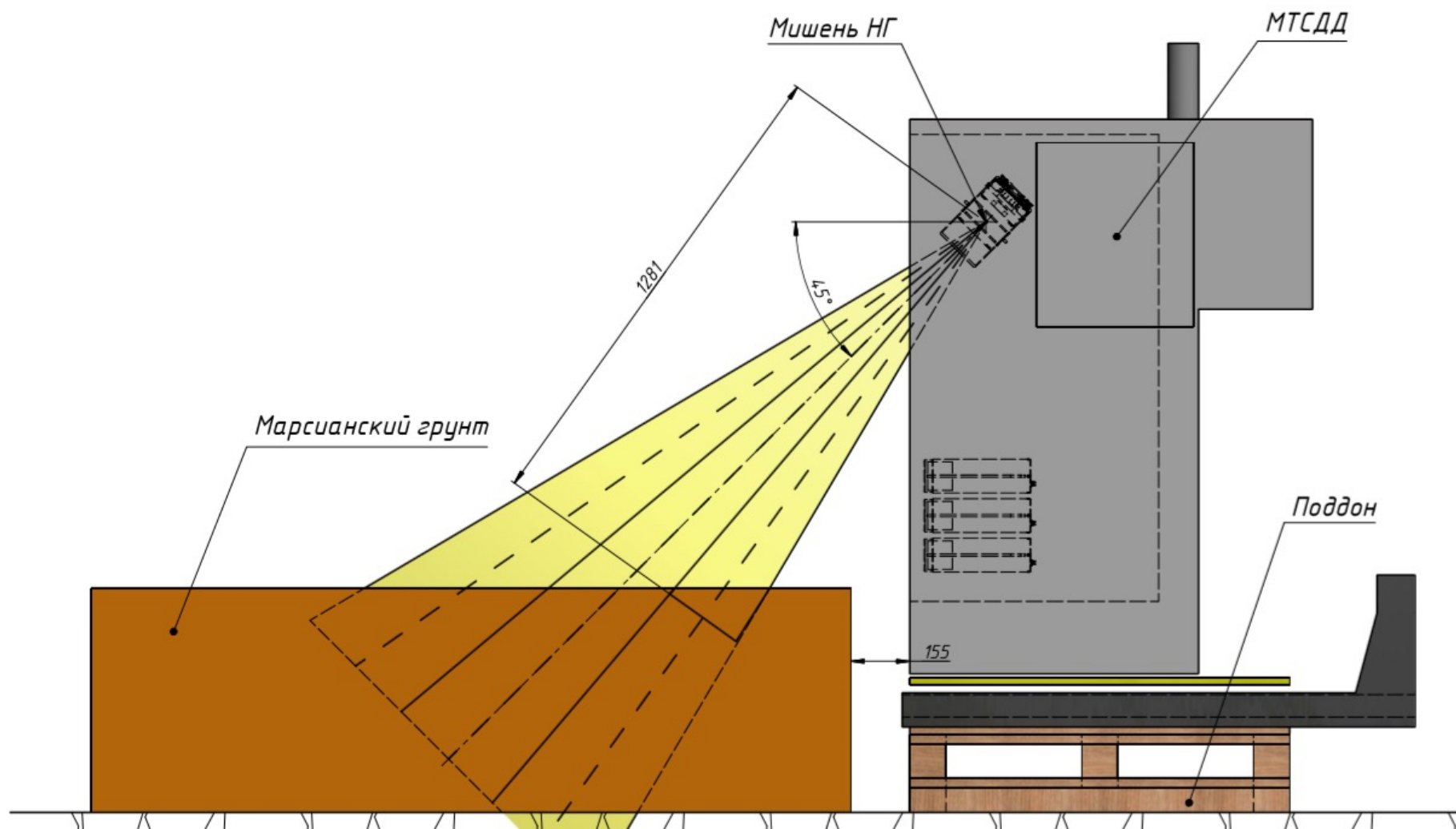
- Габаритные размеры (ДхШхВ): 1120x790x1430 мм



# Измерения ММГ



# Схема измерений



# Поверхность, альфа-4

