

МОБИЛЬНЫЙ АНАЛИЗАТОР ЭЛЕМЕНТНОГО СОСТАВА ПОЧВЫ НА ОСНОВЕ МЕТОДА МЕЧЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

*В. Ю. Алексахин^{а,б}, А. В. Баринов^в, В. Ю. Димитренко^в,
Р. В. Димитренко^в, А. Н. Есаулко^в, Ю. Н. Копач^б, И. Ф. Ленский^б,
Е. А. Полтавских^в, Е. А. Разинков^{а,б,1}, Ю. Н. Рогов^{а,б},
М. Г. Сапожников^{а,б}, В. Р. Ской^б*

^а ООО «Диамант», Дубна, 141980, Россия

^б Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980, Россия

^в Ставропольский государственный аграрный университет, Ставрополь, 355035, Россия

Разработан мобильный анализатор элементного состава почвы на основе метода меченых нейтронов. Анализатор состоит из нейтронного модуля, буксируемого по полю транспортной платформой. Элементный анализ почвы производится в режиме реального времени без отбора проб. Обсуждаются результаты полевых испытаний анализатора.

A mobile analyzer of the elemental composition of soil, based on the tagged neutron method, has been developed. The analyzer consists of a neutron module towed across the field by a transport platform. Elemental analysis of the soil is performed in real time without sampling. The results of field tests of the analyzer are discussed.

PACS: 92.40.Lg; 93.85.Np; 28.41.-i

ВВЕДЕНИЕ

Знание элементного состава почвы важно как для рационального ведения сельского хозяйства, так и для мониторинга экологической обстановки. Почвы являются одним из наиболее значимых резервуаров углерода и других биогенных элементов. Разработка методов устойчивого землепользования требует понимания и оценки их воздействия на почвенные ресурсы. Знание химического состава почвы очень важно для современных методов точного земледелия, которые используют точные данные и современные технологии для оптимизации процессов на уровне отдельных участков поля, а не целых полей. Это позволяет дифференцированно вносить удобрения, семена, воду и средства защиты растений в зависимости от реальных потребностей конкретного участка поля, что повышает урожайность, снижает затраты и минимизирует ущерб окружающей среде.

¹E-mail: erazinkov@diamant-sk.ru

Обычно концентрацию углерода в почве определяют химическими методами «сухого» или «мокрого» сжигания пробы. 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% [1]. Метод сухого сжигания пробы гораздо более точен, но требует больших затрат времени, поскольку на одно определение необходимо 2,5–3 ч [2]. Кроме того, он требует существенной пробоподготовки.

В последнее время для анализа элементного состава почвы привлекают методы лазерной (LIBS) и инфракрасной (NIRS) спектроскопии [3]. Основной недостаток этих методов состоит в том, что они дают представление об элементном составе только небольших участков поверхностного слоя почвы или отобранной пробы, глубиной от 0,1 до 1 см.

Методы нейтронного анализа с помощью быстрых или тепловых нейтронов (PFTNA, PGNAА) лишены этих недостатков, поскольку проникающая способность быстрых нейтронов позволяет получать информацию об элементном составе почвы до глубины 30 см. Преимущества этих техник еще более усиливаются при применении метода меченых нейтронов (ММН). Он широко используется для дистанционного неразрушающего анализа элементного состава различных объектов [4–8]. В настоящей статье обсуждаются результаты испытаний нейтронного анализатора почвы (НАП), работающего по методу меченых нейтронов, на полях Ставропольского государственного аграрного университета (СтГАУ). Целью испытаний была проверка возможностей нейтронного анализатора по определению массовой концентрации углерода в почве.

1. МЕТОД МЕЧЕННЫХ НЕЙТРОНОВ

Метод меченых нейтронов основан на облучении исследуемого образца быстрыми нейтронами с энергией 14,1 МэВ, образующимися в результате реакции



В этой бинарной реакции ядро ${}^4\text{He}$ (α -частица) и нейтрон разлетаются практически в противоположные стороны. Поэтому, регистрируя направление импульса α -частицы, можно определить направление импульса нейтрона. Такая процедура называется мечением нейтронов (рис. 1).

Быстрые нейтроны с энергией 14,1 МэВ, в основном, за счет реакций неупругого рассеяния типа $(n, X\gamma)$, где $X = n, p, \alpha$ и др., возбуждают ядра исследуемого вещества. Это возбуждение снимается γ -излучением, характерным для каждого химического элемента, что делает возможным его идентификацию.

Регистрация γ -квантов осуществляется только внутри окна совпадений, которое открывается в момент появления сигнала от α -частицы в α -детекторе. Таким образом отбираются только те γ -кванты, которые испущены ядрами исследуемого вещества при взаимодействии с мечеными нейтронами. В результате, по сравнению со стандартными методами нейтронного анализа соотношение сигнал/фон в ММН возрастает почти в 200 раз [6].

В сравнении с рентгеновскими методами, которые дают сведения только об элементном составе поверхностного слоя вещества толщиной в несколько миллиметров,

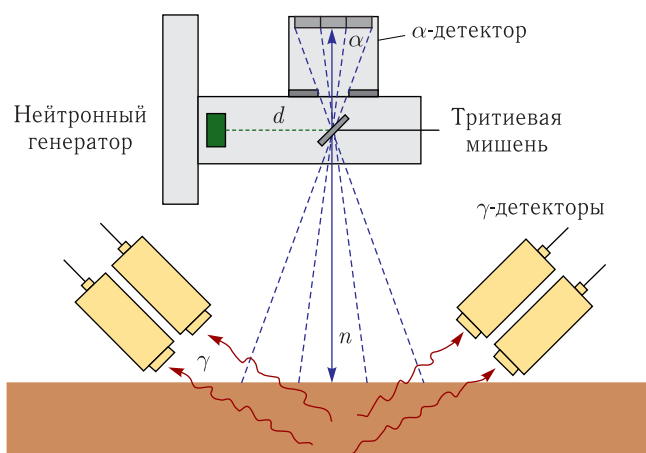


Рис. 1. Схема метода меченых нейтронов

ММН имеет большую проникающую способность и позволяет проводить анализ почвы на глубине до 30 см. Этим ММН выгодно отличается от рентгеновских методов. Причем можно за одно измерение получить дифференцированные результаты по элементному составу на разных глубинах.

В настоящее время ММН [8, 9] позволяет определять концентрации 25 элементов: Na, Mg, N, C, O, F, Al, Si, P, S, Cl, K, Ca, Ti, Cr, Mn, Fe, Ni, Cu, Zn, Zr, Pb, Sn, Bi, Sb.

Для анализа почвы особенно важно, что ММН дает возможность прямых измерений концентраций легких элементов — углерода, кислорода, азота, кремния и др.

2. ОБОРУДОВАНИЕ И МЕТОДИКА РАБОТЫ

На рис. 2 показана общая схема нейтронного анализатора почвы (НАП).

НАП состоит из нейтронного модуля, транспортируемого по полю каким-либо транспортным средством: мини-трактором или радиоуправляемым ровером, и компьютера оператора, на котором отображаются результаты анализа. Облучение почвы осуществляется нейтронным генератором со встроенным α -детектором. Регистрация γ -излучения проводится 6 γ -детекторами на основе сцинтиллятора ВГО. В нейтронном модуле имеется также блок электроники, который обеспечивает первичную обработку данных, блок питания нейтронного генератора и γ -детекторов и блок GPS для привязки данных измерений к конкретному участку поля.

НАП может производить измерения в статическом и динамическом режимах. В статическом режиме, когда измеряется элементный состав почвы в какой-то определенной точке, типичное время измерения составляет 10–15 мин. В динамическом режиме, при движении нейтронного модуля, цикличность обновления данных по элементному составу составляет 1 раз в 60–90 с.

Источником нейтронов является портативный нейтронный генератор ИНГ-27 со встроенным кремниевым α -детектором. Генератор обеспечивает постоянный поток

нейтронов с энергией 14,1 МэВ. Интенсивность нейтронного потока составляет $I = 5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$. Интенсивность потока меченых нейтронов составляет $I = 9,3 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$. Встроенный кремниевый α -детектор представляет собой матрицу 3×3 с размером ячейки $10 \times 10 \text{ мм}$ и расстоянием от детектора до тритиевой мишени 62 мм.

Для регистрации γ -квантов, возникающих при облучении почвы пучком быстрых меченых нейтронов, использовались 6 γ -детекторов на основе кристаллов ВГО диаметром 76 мм и высотой 65 мм. Детекторы γ -квантов на основе ВГО, применяемые в анализаторе, имеют достаточно хорошее энергетическое разрешение, не хуже 10% на линии $E_\gamma = 662 \text{ кэВ}$ от радиоактивного источника ^{137}Cs .

Общая схема нейтронного модуля показана на рис. 3.

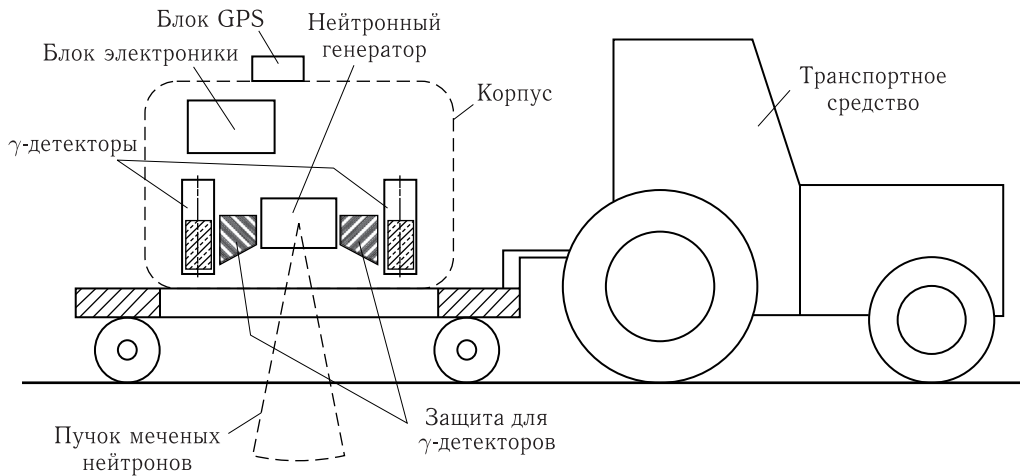


Рис. 2. Мобильный анализатор почвы на основе метода меченых нейтронов



Рис. 3. Общая схема нейтронного модуля

В центре находится нейтронный генератор, по бокам расположены γ -детекторы, на задней стенке — блок электроники. γ -детекторы экранированы от прямых нейтронов железной защитой толщиной 25 см. Габаритные размеры нейтронного модуля — $1117 \times 455 \times 606$ мм, вес — 110 кг. В рабочем положении нейтронный модуль повернут на 90° так, что пучки меченых нейтронов направлены вниз.

3. ПРОВЕДЕНИЕ ПОЛЕВЫХ ИЗМЕРЕНИЙ

Полигон для проведения полевых измерений находился на землях опытного хозяйства Ставропольского государственного аграрного университета. Площадь полигона составляла 24 га. Согласно данным информационной системы «Почвенно-географическая база данных России» почвенный комплекс исследуемого полигона относится к черноземам солонцеватым среднесуглинистым. Для стационарных измерений были выбраны 9 точек, показанных на рис. 4, которые были отобраны по измерениям электропроводности почвы. На рис. 4 приведена карта электропроводности почвы по

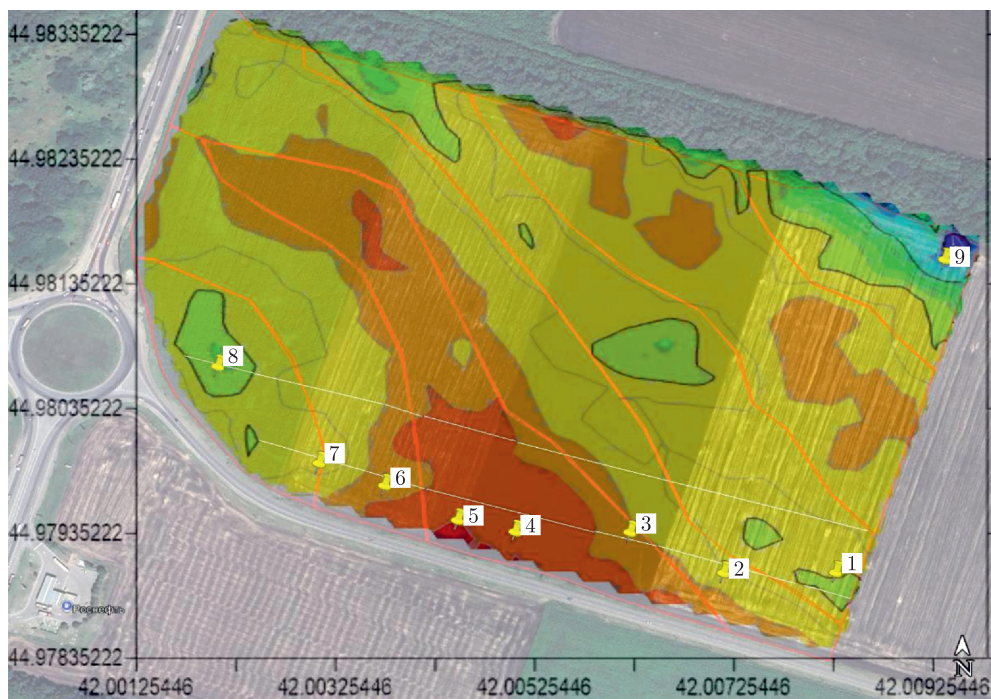


Рис. 4 (цветной в электронной версии). Карта электропроводности почвы для поля опытного хозяйства СтАГУ. Зоны закрашены цветами от красного — очень высокая электропроводность почвы (19,29 сименс/см) до фиолетового — низкая электрическая проводимость почвы (3,01 сименс/см). Красные линии — границы зоны с существенными различиями почвы с учетом многолетней систематической неоднородности растительной биомассы, оптической пестроты поверхности почвы и микрорельефа. Показаны точки 1–9, в которых проводились измерения концентрации углерода



Рис. 5. Мобильный анализатор во время полевых испытаний

лигона, на которой цветами выделены зоны разной электропроводности. Ожидалось, что в этих зонах будет разный элементный состав почвы.

Измерения элементного состава почвы проводились в каждой точке в течение 20 мин. После окончания измерения в каждой точке отбирались три пробы с глубин 0–10, 10–20 и 20–30 см соответственно. Кроме того, было выполнено измерение элементного состава почвы при движении трактора по полю в течение 20 мин. На рис. 5 показан мобильный анализатор во время проведения измерения.

Расстояние от стенки нейтронного модуля до земли составляло 40 см, электропитание анализатора осуществлялось бензогенератором. Данные на компьютер оператора передавались по Wi-Fi.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

4.1. Учет временного распределения сигналов от γ -квантов. На рис. 6 показано типичное временное распределение сигналов от γ -квантов, полученное при измерении в точке 1.

Спектр набран в окне совпадений шириной 120 нс, которое открывается в момент прихода α -частицы. Видно, что временной спектр состоит из плато случайных совпадений, основного пика γ -квантов от почвы, а также небольшого пика γ -квантов от стенки нейтронного модуля. Нулевая точка отсчета выбирается на временном спектре так, чтобы совпадать с максимумом пика сигналов от почвы. Видно также, что пик сигнала от почвы не является чистым гауссианом, а имеет наплыв событий справа

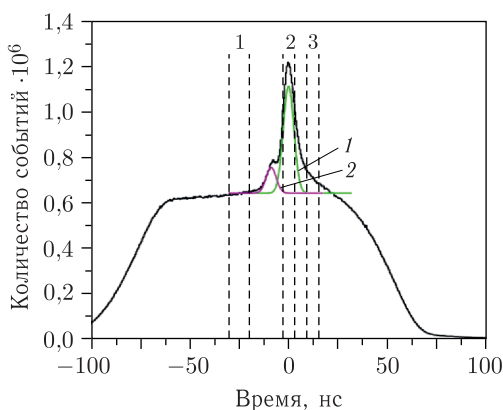


Рис. 6 (цветной в электронной версии). Временной спектр γ -квантов. Зеленым (1) показан вклад γ -квантов от почвы, пурпурным (2) — от передней стенки модуля

от положения максимума. Они возникают из-за взаимодействия нейтронов, отраженных от поверхности почвы, с веществом γ -детекторов. Для дальнейшего анализа отбирались события, которые лежат во временном диапазоне $(-3, 3)$ нс (область 2 на рис. 6).

Затянутый подъем и спад на временном спектре α - γ -совпадений связан с особенностями работы системы сбора данных. Первичный отбор событий производится для сигналов, превысивших порог. Так как никакой коррекции на наклон переднего фронта сигнала не производится, то из-за того, что импульсы с γ -детектора достаточно протяженные, появляется явная зависимость время/энергия. Ее мы и видим как плавный и длинный подъем и спад на временном спектре

Как видно из рис. 6, в область 2 попадают и события от фона случайных совпадений. Большим преимуществом ММН является возможность точного учета фона случайных совпадений за счет измерения временного спектра γ -квантов. Для этого выбирается окно в спектре шириной 10 нс, отстоящее от основного пика сигналов на 25 нс влево (область 1 на рис. 6). События внутри этого окна определяют энергетический фон от случайных совпадений, который вычитается из основного спектра в области 2.

Спектр сигнала из области 2 на рис. 6 не является чистым гауссианом. Из-за того, что временное разрешение при малых энергиях (порядка сотен кэВ) γ -квантов хуже, появляется длинный «хвост», который накладывается на подложку случайных совпадений и придает ей некоторый наклон, видимый на рис. 6.

На рис. 7, а показан энергетический спектр γ -квантов из области сигналов от почвы. Этот спектр раскладывался на отдельные составляющие путем подгонки его суммой опорных γ -спектров от элементов, входящих в состав образца. Вклады от γ -спектров отдельных элементов показаны цветными линиями. Все спектры исходных элементов С, О, Si были измерены предварительно.

Хорошо виден сильный пик кремния при 1779 кэВ, небольшой пик от углерода в 4439 кэВ и ряд пиков от кислорода. Обращает внимание отсутствие в спектре рис. 7, а линий железа при 847 и 1238 кэВ. Дело в том, что сам нейтронный генератор

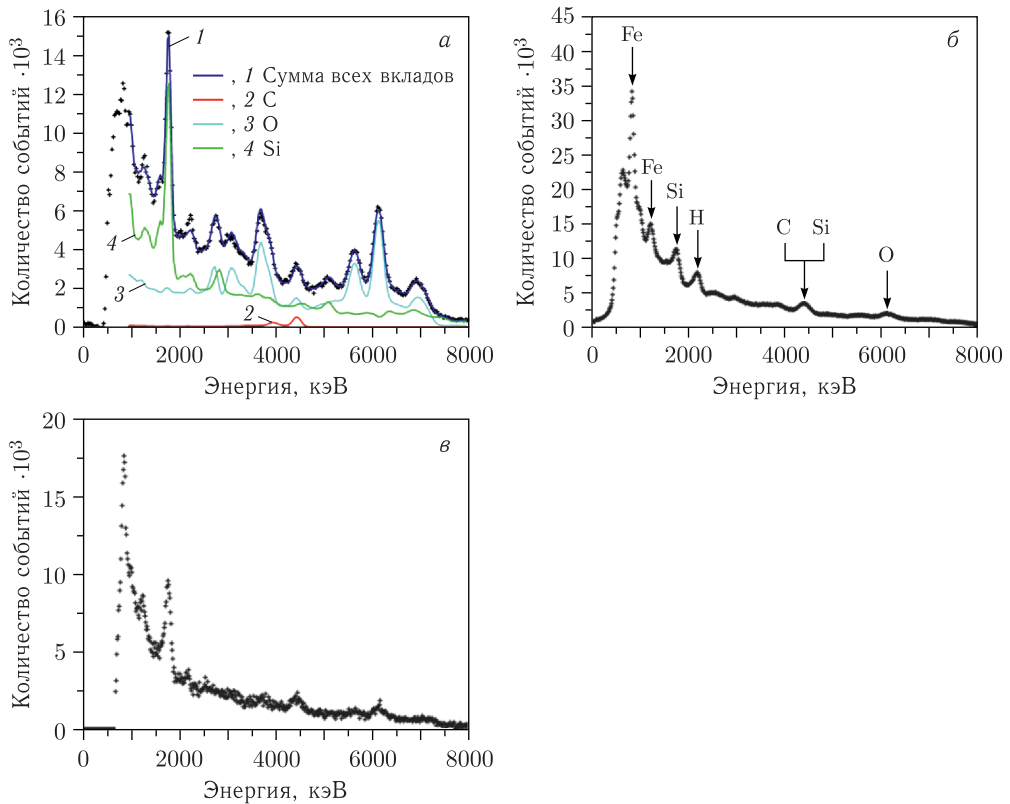


Рис. 7 (цветной в электронной версии). а) Энергетический спектр γ -квантов от почвы (область 2 на рис. 6). Сплошная синяя линия (1) — сумма вкладов всех элементов. Вклады отдельных элементов показаны цветом: красным (2) — углерода, бирюзовым (3) — кислорода, зеленым (4) — кремния. Крестиками показаны экспериментальные данные. б) Энергетический спектр γ -квантов от случайных совпадений (область 1 на рис. 6). в) Энергетический спектр γ -квантов от взаимодействия рассеянных нейтронов с BGO (область 3 на рис. 6)

излучает нейтроны в полный телесный угол. Соответственно, и γ -излучение приходит не только от почвы, но и от всех окружающих объектов, в частности, от элементов нейтронного модуля и транспортирующего ровера, в которых много ядер железа. Это наглядно иллюстрирует энергетический спектр γ -квантов из области 1 рис. 6 случайных совпадений, показанный на рис. 7, б. В нем выделяются мощные пики железа при 847 и 1238 кэВ. На рис. 7, в показан спектр γ -квантов, возникающих при взаимодействии рассеянных почвой нейтронов с материалом BGO-детекторов (область 3 на рис. 6).

Учет фона от самого анализатора — в общем случае сложная задача. Так, в работе [10], чтобы отделить сигнал от анализатора от сигнала от почвы, исследователи подняли всю установку вместе с ровером на высоту 6,7 м с помощью подъемного крана и там в воздухе провели измерения. Такие трудности возникли из-за того, что в [10] в качестве нейтронного источника использовался импульсный нейтронный

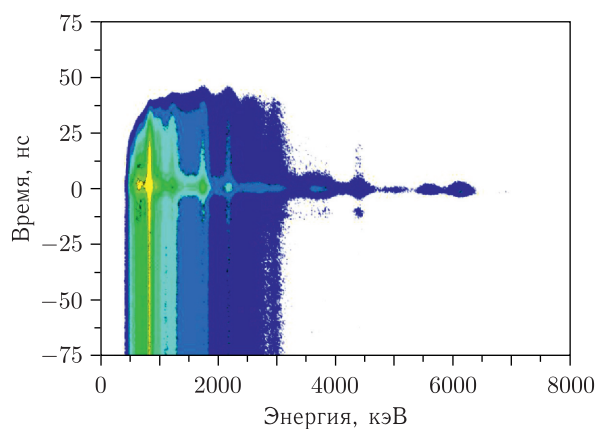


Рис. 8. Энергетический спектр γ -квантов при облучении почвы в зависимости от времени прихода γ -квантов в детектор

генератор, который не дает возможность осуществить временную селекцию γ -квантов. На рис. 8 показано, как эту проблему можно решить с помощью метода меченых нейтронов, который дает информацию о времени прихода γ -квантов в детектор.

На рис. 8 по оси абсцисс показан энергетический спектр γ -квантов при облучении почвы в зависимости от времени прихода γ -квантов в детектор (ось ординат). Истинному сигналу от почвы соответствует линия при $t = 0$. Это видно также на временном спектре на рис. 6. В то же время на рис. 8 хорошо видна полоса от линии железа 847 кэВ, которая тянется параллельно временной оси Y — это случайные совпадения от материала нейтронного модуля и транспортного ровера. Однако энергетический спектр таких случайных совпадений можно измерить и вычистить из сигнала от почвы в районе $t = 0$. Это приводит к тому, что, как видно на рис. 7, *a*, никаких следов от линий железа в спектре почвы не наблюдается.

При определении концентрации углерода в почве возникает проблема учета вкладов от кремния и кислорода. Наглядно суть проблемы показана на рис. 9, где дан типичный энергетический спектр γ -квантов от почвы, а на вставке выделен диапазон этого спектра в районе линии углерода 4439 кэВ.

Видно, что наблюдаемый пик в районе 4439 кэВ формируется из вкладов от трех реакций — от возбуждения ^{12}C с последующим испусканием γ -кванта с энергией 4439 кэВ, от реакции развала кислорода $^{16}\text{O} (n, n')^{12}\text{C}^*$, где возбуждение ^{12}C также снимается испусканием γ -кванта с энергией 4439 кэВ и от реакции возбуждения кремния $^{28}\text{Si} (n, n')^{28}\text{Si}^*$, где возбуждение ^{28}Si снимается испусканием γ -квантов с энергией 4500 кэВ. Поэтому часто применяющаяся процедура определения концентрации углерода по количеству событий под пиком 4439 кэВ принципиально некорректна. В нашем анализе в качестве опорных выступают спектры γ -квантов от возбуждения ^{16}O и ^{28}Si , измеренные во всем диапазоне энергий 1–8 МэВ. Это дает возможность четко зафиксировать вклады кислорода и кремния по ярко выраженным пикам в других областях энергий, что дает возможность корректно разложить вклады всех трех реакций в пике в районе 4,4 МэВ.

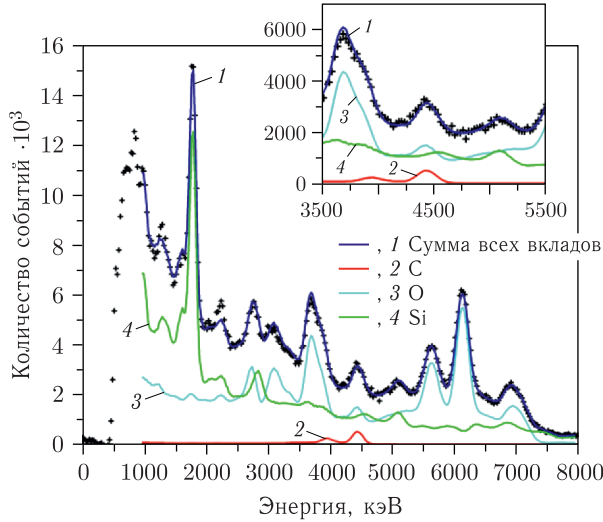


Рис. 9 (цветной в электронной версии). Энергетический спектр γ -квантов от почвы. Сплошная синяя линия (1) — сумма вкладов всех элементов. Вклады отдельных элементов показаны цветом: красным (2) — углерода, бирюзовым (3) — кислорода, зеленым (4) — кремния. Крестиками показаны экспериментальные данные

4.2. Определение массовых концентраций элементов. Энергетический спектр γ -квантов от облучения почвы быстрыми нейтронами с энергией 14,1 МэВ представлялся в виде суммы спектров отдельных γ -линий, спектра континуума и спектра фона:

$$F(E) = \sum_j N_j \left(\sum_{i=1}^{i=n_j} \sigma_{ij}(E) P_{ij}(E) + R_j^{\text{cont}} F_j^{\text{cont}}(E) \right) + \text{BG}(E), \quad (2)$$

где N_j — параметр, определяющий содержание элемента j в почве, этот параметр пропорционален числу атомов данного элемента 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; $\text{BG}(E) = A \exp(-BE)$ — функция фона, A и B — параметры подгонки (фита).

Процедура обработки спектров подробно изложена в [5]. Зная относительные доли элементов в образце $v_j = N_j / \sum_j N_j$ и предполагая соблюдение соотношения $\sum_j v_j = 1$, можно вычислить массовые доли элементов как

$$w_j = \frac{v_j m_j}{\sum_i v_i m_i}, \quad (3)$$

где m_j — атомный вес элемента j .

4.3. Сравнение с результатами химического анализа. Химический анализ проб был проведен двумя способами: по ГОСТ 26213-2021 [1] «Почвы. Методы определения органического вещества» и с помощью детектора VELP методом высокотемпературного сжигания [13]. Измерялось содержание органического вещества в 30 см слое почвы с учетом усреднения полученных в соответствии с ГОСТ 26213-2021 данных испытаний почвенных образцов в трех горизонтах почвы по каждой из 9 точек измерений, а также определялась концентрация углерода в почве с помощью метода высокотемпературного сжигания на аппарате VELP. Результаты обоих методик показали достаточно высокую корреляцию друг с другом.

В табл. 1 и на рис. 10 приведены результаты сравнения данных НАП и лабораторного анализа проб. При этом очень важно отметить, что обе лабораторные методики определяют концентрацию углерода на сухое состояние, для высушенной пробы, тогда как НАП измеряет концентрации элементов в реальной влажной почве.

Поэтому для правильного сравнения необходимо пересчитать результаты лабораторного анализа на рабочее состояние, учитывая, что влажность почвы в поле

Таблица 1. Результаты сравнения данных НАП и лабораторного анализа проб для массовой концентрации углерода. Ошибки НАП — чисто статистические

Номер пробы	НАП, %	VELP, %	ГОСТ, %	VELP (рабочее состояние) %	ГОСТ (рабочее состояние) %
1	1,68 ± 0,14	4,74 ± 0,12	4,75 ± 0,15	3,55 ± 0,09	3,57 ± 0,11
2	2,07 ± 0,14	4,66 ± 0,12	4,84 ± 0,15	3,49 ± 0,09	3,63 ± 0,11
3	2,40 ± 0,14	4,99 ± 0,13	4,90 ± 0,15	3,74 ± 0,10	3,67 ± 0,11
4	2,49 ± 0,14	5,14 ± 0,13	5,01 ± 0,10	3,85 ± 0,10	3,76 ± 0,11
5	2,10 ± 0,14	4,74 ± 0,12	5,11 ± 0,10	3,56 ± 0,09	3,83 ± 0,11
6	1,95 ± 0,14	4,45 ± 0,12	4,40 ± 0,15	3,34 ± 0,09	3,30 ± 0,11
7	2,06 ± 0,13	4,78 ± 0,13	4,99 ± 0,15	3,59 ± 0,09	3,75 ± 0,11
8	2,18 ± 0,14	4,80 ± 0,13	4,54 ± 0,15	3,60 ± 0,09	3,41 ± 0,11
9	1,43 ± 0,13	3,83 ± 0,10	4,25 ± 0,15	2,88 ± 0,08	3,19 ± 0,11

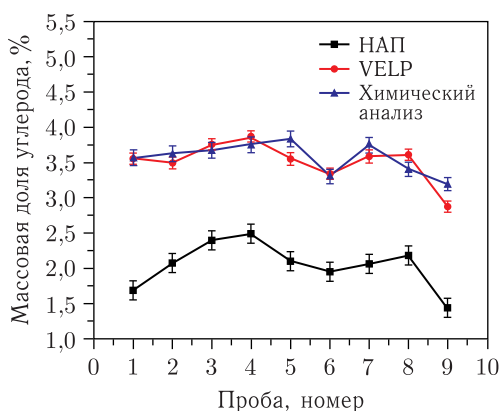


Рис. 10. Сравнение данных НАП и лабораторного анализа проб для массовой концентрации углерода

во время измерений была 25 %. Поэтому две последние колонки табл. 1 соответствуют пересчету данных VELP и ГОСТ на рабочее состояние.

Важно отметить, что детектор НАП был предварительно отградуирован по измерениям проб силикатного песка и сахара массой 30 кг [5]. Градуировочная зависимость выбиралась в виде

$$Y = (1,03 \pm 0,03)C_{\text{raw}} - (0,31 \pm 0,12), \quad (4)$$

где C_{raw} — результаты измерений НАП; Y — расчетные значения массовой концентрации углерода.

Видно, что использование этой градуировки дает результаты, в 1,5 раза отличающиеся от лабораторного анализа. Однако важно подчеркнуть, что имеется хорошая корреляция между результатами лабораторного анализа и данными НАП.

Коэффициент корреляции R с данными VELP составляет $R = 0,88$, с данными химического анализа — $R = 0,69$. Здесь коэффициент корреляции R рассчитывался по формуле

$$R = \frac{\sum_i (X A_i^{\text{corr}} - X A_{\text{cp}})(X_i^{\text{corr}} - X_{\text{cp}}^{\text{corr}})}{\sqrt{\sum_i (X A_i^{\text{corr}} - X A_{\text{cp}})^2 \sum_i (X_i^{\text{corr}} - X_{\text{cp}}^{\text{corr}})^2}}, \quad (5)$$

где $X A_i$ — результат лабораторного анализа для i -й пробы; X_i^{corr} — результат НАП для i -й пробы после градуировки; $X_{\text{cp}}^{\text{corr}}$ и $X A_{\text{cp}}$ — среднее значение результатов НАП после градуировки и лабораторного анализа по всем пробам соответственно. Доверительный интервал на уровне достоверности 0,9 для коэффициента корреляции с данными VELP равен [0,61; 0,97], а для коэффициента корреляции с данными химического анализа [0,17; 0,91].

Поскольку прибор VELP рекомендован именно для измерений концентрации углерода в почве, в дальнейшем мы будем сравнивать все данные измерений НАП с результатами, полученными с использованием анализатора VELP.

Если использовать для градуировки данные VELP, то получающаяся градуировочная зависимость напоминает (4), но с другими коэффициентами:

$$Y = (0,93 \pm 0,06)C_{\text{raw}} + (1,56 \pm 0,12). \quad (6)$$

В такой градуировке (6) сравнение данных VELP и НАП показано на рис. 11.

Видим, что данные хорошо лежат на диагонали равных значений. Важно, что параметр наклона в (6) близок к единице, как и у лабораторной градуировки (4). То есть добавлением одной константы 1,56 % можно добиться удовлетворительного описания измерений проб почвы.

Количественно степень сходимости с лабораторным анализом можно показать через значение среднеквадратического отклонения (СКО):

$$\text{СКО}_{\text{abc}} = \sqrt{\frac{\sum_i (X A_i - X_i^{\text{corr}})^2}{n}}, \quad (7)$$

$$\text{СКО}_{\text{отн}} = 100 \% \cdot \text{СКО}_{\text{abc}} / X_{\text{cp}}, \quad (8)$$

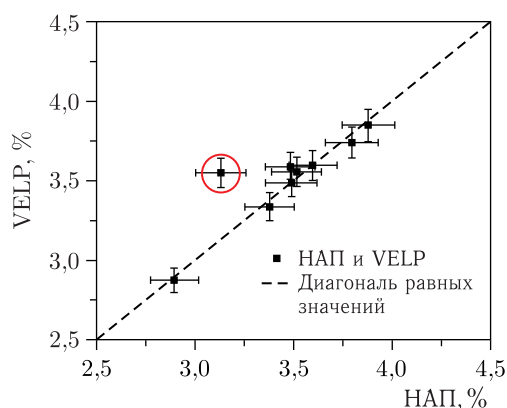


Рис. 11. Сравнение данных VELP и НАП в градуировке (6)

где n — число образцов; $X A_i$ — результат лабораторного анализа (VELP) для i -го образца; $X_i^{\text{сорг}}$ — результат НАП для i -го образца после градуировки; $X_{\text{ср}}$ — среднее значение результатов лабораторного анализа (VELP).

Если не учитывать данные для явно выбивающейся из общего тренда точки, обведенной кругом на рис. 11, то $\text{СКО}_{\text{абс}} = 0,03\%$, а $\text{СКО}_{\text{отн}} = 0,94\%$.

Действительно, надо отметить довольно высокую точность определения массовой концентрации углерода, которую демонстрируют данные НАП, приведенные в табл. 1. Она сравнима с точностью, предоставляемой анализатором VELP.

4.4. Зависимость от глубины отбора пробы. Все результаты, обсуждаемые в п. 4.4, представляют собой данные, усредненные по трем образцам, отобранным с глубин 0–10, 10–20, 20–30 см. Для дифференциации по глубине результаты НАП были разделены на три части, соответствующие интервалам шириной 4 нс с центрами в 0, 2 и 4 нс на временном распределении рис. 6. В табл. 2 приведены данные анализов VELP и НАП для образцов, собранных с разных глубин.

Видно, что явной зависимости концентрации углерода от глубины взятия пробы нет ни по данным VELP, ни по данным НАП. Это объясняется структурой почвы самого полигона — это учебное поле, регулярно подвергающееся вспахиванию. К тому же испытания происходили осенью, после сбора урожая. Независимые измерения концентрации гумуса и общего азота на полигоне, приведенные в табл. 3, подтверждают слабую зависимость массовой концентрации углерода от глубины залегания пробы.

4.5. Измерения при движении нейтронного модуля. Важным преимуществом предлагаемой методики является возможность измерения массовой концентрации углерода при движении нейтронного модуля. В работе [14] обсуждаются результаты измерений углерода для поля в 53 га за 5,5 ч. В программе данных испытаний не было предусмотрено детальное изучение работы НАП при движении, однако некоторые предварительные измерения были сделаны. Для обеспечения радиационной безопасности измерения проводились без водителя транспортного средства, руль ровера был закреплен, и движение НАП продолжалось по прямой в течение 20 мин.

Таблица 2. Массовая концентрация углерода в образцах, отобранных с глубин 0–10, 10–20, 20–30 см

Проба	Глубина, см	VELP, %	НАП, %
1	10	5,20 ± 0,14	4,72 ± 0,15
	20	4,43 ± 0,12	5,09 ± 0,21
	30	4,58 ± 0,12	4,63 ± 0,33
2	10	4,88 ± 0,12	5,07 ± 0,15
	20	4,70 ± 0,12	5,14 ± 0,21
	30	4,38 ± 0,12	5,20 ± 0,34
3	10	5,42 ± 0,15	5,47 ± 0,15
	20	4,61 ± 0,12	5,50 ± 0,21
	30	4,93 ± 0,12	5,34 ± 0,35
4	10	4,91 ± 0,12	5,44 ± 0,15
	20	5,03 ± 0,13	5,39 ± 0,21
	30	5,46 ± 0,14	5,25 ± 0,34
5	10	4,76 ± 0,12	5,33 ± 0,14
	20	4,63 ± 0,12	5,64 ± 0,20
	30	4,85 ± 0,13	5,10 ± 0,35
6	10	4,57 ± 0,12	5,14 ± 0,16
	20	4,18 ± 0,12	5,63 ± 0,24
	30	4,60 ± 0,12	5,23 ± 0,37
7	10	4,48 ± 0,12	4,93 ± 0,14
	20	5,23 ± 0,14	5,09 ± 0,20
	30	4,65 ± 0,12	5,29 ± 0,32
8	10	4,43 ± 0,12	4,98 ± 0,14
	20	5,68 ± 0,12	5,07 ± 0,20
	30	4,28 ± 0,12	4,29 ± 0,34
9	10	3,92 ± 0,11	4,43 ± 0,14
	20	3,92 ± 0,11	4,78 ± 0,21
	30	3,66 ± 0,12	3,28 ± 0,37

Таблица 3. Концентрации гумуса и общего азота на полигоне

Глубина, см	Глубина отбора образцов, см	Гумус, %	Общий азот, %
0–20	0–8	5,0	0,25
20–40	20–28	4,9	0,24
40–70	60–68	3,2	—
70–100	94–102	1,0	—
100–133	125–133	0,7	—

На рис. 12 показано временное распределение γ -квантов при покое НАП (черная линия, 1) и при движении (красная линия, 2).

Хорошо видно, что оба эти распределения практически совпадают друг с другом. Такое же совпадение имеется и в энергетических спектрах, показанных на рис. 13.

Это означает, что движение нейтронного модуля не вносит искажений в измерения энергетических или временных спектров γ -квантов.

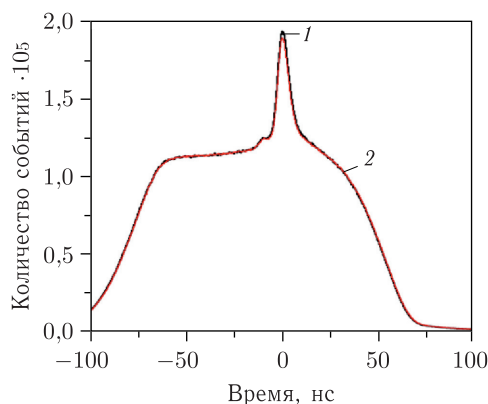


Рис. 12 (цветной в электронной версии). Временное распределение γ -квантов при облучении почвы покоящимся НАП (черная линия, 1) и при движении НАП (красная линия, 2)

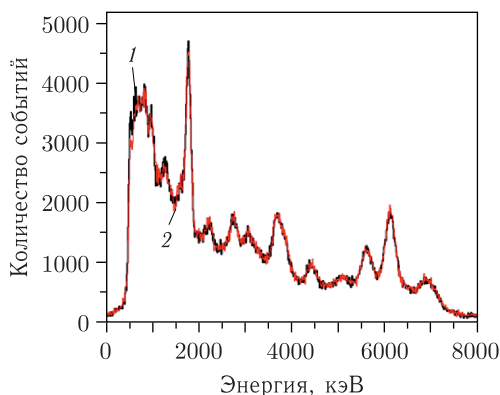


Рис. 13 (цветной в электронной версии). Энергетические спектры γ -квантов, полученных при облучении почвы покоящимся НАП (черная линия, 1) и при его движении (красная линия, 2)

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Первые полевые испытания НАП выявили ряд важных проблем, которые необходимо решить в будущем. В первую очередь, это учет влажности почвы для коррекции измерений элементной концентрации. Сама техника ММН дает две возможности решения этой проблемы: за счет прямого определения концентрации кислорода и за счет измерения сигнала от водорода из области случайных совпадений (см. рис. 7, б). Известны успешные решения задачи определения влажности при облучении быстрыми нейтронами как по сигналу от водорода, так и при измерении линий кислорода [15, 16]. Влажность 2% удалось измерить с относительной ошибкой 0,4% [16]. Однако для этого необходимо провести серию измерений в лабораторных условиях с образцами с известной влажностью, что мы собираемся сделать в ближайшее время.

Одним из основных источников систематических ошибок при определении концентрации углерода в почве является неопределенность в сечении реакции $^{16}\text{O}(n, n'\alpha)^{12}\text{C}^*$, в которой возбуждение ^{12}C снимается испусканием γ -кванта с энергией 4439 кэВ. То есть какая-то часть углеродного сигнала на линии 4439 кэВ возникает от взаимодействия нейтронов с кислородом. В компиляции [17] результаты по сечениям реакции $^{16}\text{O}(n, n'\alpha)^{12}\text{C}^*$ варьируются от $(5,0 \pm 2,5)$ мб до $(18,4 \pm 4,0)$ мб. Это приводит к почти двукратному изменению массовой концентрации углерода.

Другая систематическая ошибка возникает при измерениях градуировочных проб углерод–кремний, в которых процент кремния существенно превышает массовую концентрацию углерода. Это приводит к сдвигу пика γ -квантов в области 4439 кэВ в сторону линии кремния 4500 кэВ, что приводит к ошибкам в энергетической калибровке.

Наконец, не мал вклад событий от рассеянных нейтронов. Для линии кислорода 6129 кэВ он составляет 7,9%.

Поэтому на настоящем этапе измерений почвы градуировка по показаниям химического анализа для отслеживания систематических ошибок неизбежна.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мобильный нейтронный анализатор почвы успешно прошел первые полевые испытания. Испытания проводились на учебном поле Ставропольского государственного аграрного университета. Пробы почвы измерялись в 9 локациях в стационарном режиме. После измерений НАП в каждой локации отбиралось 3 пробы на глубинах 0–10, 10–20 и 20–30 см. Массовые концентрации углерода в пробах были измерены по ГОСТ 26213-2021 [1] «Почвы. Методы определения органического вещества» и с помощью детектора VELP методом высокотемпературного сжигания [13].

Сравнение результатов НАП и лабораторного анализа показало хорошую корреляцию результатов. Коэффициент корреляции R результатов НАП с данными VELP составляет $R = 0,88$, с данными химического анализа $R = 0,69$.

По данным VELP была определена простая градуировочная зависимость:

$$Y = (0,93 \pm 0,06)C_{\text{raw}} + (1,56 \pm 0,12).$$

В такой градуировке получено хорошее согласие результатов лабораторного анализа (VELP) и НАП. Сходимость результатов измерений НАП с данными лабораторного анализа (VELP) характеризовалась СКО = 0,03%.

Не было обнаружено зависимости массовой концентрации углерода от глубины взятия пробы в диапазоне 0–30 см, что согласуется с независимыми измерениями структуры почвы полигона.

Результаты измерений при движении НАП показали, что движение нейтронного модуля не вносит искажений в структуру энергетических или временных спектров γ -квантов.

Благодарности. Авторы выражают благодарность сотрудникам ОИЯИ и специалистам ООО «Диамант» Е. В. Зубареву, П. П. Реунову, О. Г. Тарасову, И. Е. Воробьеву, принимавшим участие в создании и испытании НАП.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. ГОСТ 26213-2021. Почвы. Методы определения органического вещества.
2. *Мамонтов В. Г., Гладков А. А., Кузелев М. М.* Практическое руководство по химии почв: Учеб. пособие. М.: Изд-во РГАУ-МСХА им. К. А. Тимирязева, 2012. 225 с.
3. *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. 30 p.
4. *Valkovic V.* 14 MeV Neutrons: Physics and Applications. Boca Raton: CRC Press, 2015. 516 p.
5. *Alexakhin V. Y. et al.* Determination of Carbon Concentration in Soil Using the Tagged Neutron Method // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2022. V. 19, No. 6. P. 717–723.
6. *Копач Ю. Н., Сапожников М. Г.* Применение метода меченых нейтронов для фундаментальных и прикладных исследований // *ЭЧАЯ.* 2024. Т. 55, вып. 1. С. 103–177.
7. *Bystritsky V. M. et al.* DViN — Stationary Setup for Identification of Explosives // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2008. V. 5. P. 441.
8. *Алексахин В. Ю. и др.* Оценка возможности определения элементного состава горных пород с помощью метода меченых нейтронов. Препринт ОИЯИ Р14-2015-52. Дубна, 2015. 15 с.
9. *Alexakhin V. Y. 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, Russia, May 25–29, 2015.
10. *Yakubova G., Kavetskiy Al., Prior S. A., Torbert H. A.* Benchmarking the Inelastic Neutron Scattering Soil Carbon Method. *Vadose Zone J.* Feb. 19, 2016. 11 p.
11. *Kavetskiy Al., Yakubova G., Prior S. A., Torbert H. A.* Carbon Analysis of Large Soil Samples Using Tagged Neutron Method: Accounting for Radiation Attenuation // *Appl. Radiat. Isotopes.* 2024. V. 209. P. 111332.
12. *Алексахин В. Ю. и др.* Возможности метода меченых нейтронов для элементного анализа материалов на конвейере // *Письма в ЭЧАЯ.* 2025. Т. 22, № 6(263). С. 1180–1195.
13. CN 802. Анализатор углерода и азота. <https://www.velp.com/ru-ww/cn-802-carbonnitrogen-analyzer.aspx>.
14. *Yakubova G., Kavetskiy Al., Sargsyan N., Prior S. A., Torbert H. A.* Neutron-Gamma Analysis of Soil for Digital Agriculture. *Digital Agriculture, Methods and Applications.* doi: 10.5772/intechopen.102128.
15. *Grozdanov D. N., Aliyev F. A., Hramco C., Kopach Yu. N., Bystritsky V. M., Skoy V. R., Gundorin N. A., Ruskov I. N.* Determination of Moisture Content in Cole with ^{239}Pu -Be Neutron Source and BGO Scintillation Gamma Detector // *Phys. Part. Nucl. Lett.* 2018. V. 15. P. 157–163.
16. *Roy T., Shukla S., Kashyap Y., More M. R., Shukla M., Singh P.* Determination of Moisture Content in Coal Using Fast Thermal Neutron Activation Technique // *Radiat. Phys. Chem.* 2024. V. 222. P. 111830.
17. *Simakov S. P. 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-ccc-0413>.