

Моделирование установки для исследования углерода в почве

А.В. Андреев^{1*} Н.А. Федоров^{2†}

¹Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, физический факультет, кафедра общей ядерной физики. Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

²Объединенный институт ядерных исследований, лаборатория нейтронной физики имени И.М. Франка. Россия, 141980, Московская обл., г. Дубна, ул. Жолио-Кюри д. 6
(Поступила в редакцию 20.04.2023; подписана в печать 25.04.2023)

В работе представлены результаты моделирования установки для нейтрон-гамма анализа почв, имеющих различную концентрацию углерода. Моделирование проведено с помощью пакета программ GEANT4. Определена минимальная достоверно обнаруживаемая концентрация углерода. Обсуждается возможность практического применения рассмотренной конфигурации установки для исследования почв.

PACS: 29.30.Hs

УДК: 539.171.017

Ключевые слова: нейтрон-гамма анализ, неупругое рассеяние нейтронов, почва, GEANT4.

ВВЕДЕНИЕ

Точное определение концентрации углерода в почве на сегодняшний день остается важной задачей для различных областей науки. Особая роль почвы в производстве продуктов питания, а также ее участие в регулировании химического состава атмосферы заставляет всесторонне исследовать это особое тело природы [1].

Содержание органического углерода в почве является одним из факторов, определяющих ее плодородие. Отслеживание изменения концентрации почвенного углерода важно для проектов, призванных затормозить изменение климата.

Наиболее распространенными способами определения концентрации углерода в почве являются химические методы, но они весьма трудоемки и требуют особой подготовки образцов для выполнения исследования. На данный момент перспективными являются ядерно-физические методы измерения концентрации углерода в почве. Разрабатываются мобильные установки, выполняющие нейтронный гамма-анализ на мгновенных γ -квантах в полевых условиях [2]. В рамках международной коллаборации TANGRA (ЛНФ ОИЯИ, Дубна), специализирующейся на изучении рассеяния быстрых нейтронов, ведется разработка методики определения углерода в почве. Данная работа посвящена компьютерному моделированию одной из возможных конфигураций установки для разработки методики обработки данных, получаемых в процессе измерения.

1. ОБЪЕКТ ИССЛЕДОВАНИЯ

Почва — это обладающая плодородием сложная полифункциональная и многокомпонентная открытая многофазная структурная система в поверхностном слое коры выветривания горных пород, являющаяся комплексной функцией горной породы, организмов, климата, рельефа и времени [1]. Если представить себе в общем виде почву как систему атомов химических элементов, то эта система окажется состоящей практически полностью из атомов кислорода и кремния, среди массы которых, концентрируясь в тех или иных точках и давая определенные минеральные и органические соединения, изредка встречаются атомы других элементов. Среднее содержание химических элементов в составе почв представлены в табл. 1.

Несмотря на то, что углерод в среднем составляет около 2% от почвенной массы, его роль в почвообразовании и функционировании почв велика, поскольку этот химический элемент входит во все органические соединения и может образовывать различные химические связи. Неорганический углерод в почве представлен в виде карбонатов, а органический — в виде гуминовых (углеводы, смолы, воски и т.д.) и гуминовых (гуминовые и фульвовые кислоты и их соединения) веществ [3].

Основное органическое вещество почв принято называть гумусом. Гумус в основном состоит из остатков тканей растений и животных, а также различных органических соединений. Химический состав гумуса несет важную информацию о плодородии почв.

Современная наука обладает большим арсеналом методов изучения таких сложных систем как почва. В частности, наиболее распространенными способами определения концентрации углерода в почве являются химические методы: сухое и мокрое сжигание. Метод сухого сжигания состоит в том, что образцы почв сжигают в токе кислорода при температуре 950°C или выше. Углеродосодержащие вещества окисляются с вы-

* andreev.av20@physics.msu.ru

† na.fedorov@physics.msu.ru

Таблица 1. Среднее содержание химических элементов в почвах в % по массе (А.П. Виноградов 1950 г.) [2]

| Химический элемент | O | Si | Al | Fe | Mg | C | Ca | K |
|--------------------|-------|-------|------|------|------|------|------|------|
| % состав | 49.00 | 33.00 | 7.13 | 3.80 | 2.10 | 2.00 | 1.37 | 1.36 |

делением углекислого газа, который затем собирается и анализируется. Метод сухого сжигания является наиболее точным способом определения концентрации углерода. Метод мокрого сжигания основан на окислении органических веществ хромовой кислотой и дальнейшем анализе продуктов реакции [4].

Химические методы требуют сбора, транспортировки и подготовки образцов к химическому анализу. Ядерно-физические методы позволяют исследовать большой объем материала и учитывают неоднородность образца с глубиной, что является важным преимуществом перед традиционными методами.

2. НЕЙТРОН-ГАММА АНАЛИЗ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

На сегодняшний день представляется перспективным определение концентрации углерода в почве с помощью нейтрон-гамма анализа на быстрых нейтронах. Данный метод основан на нейтронном облучении материала и анализе спектров γ -квантов, испускаемых в результате нейтрон-ядерных реакций. По площади γ -пиков можно судить о количестве того или иного вещества в образце. Система, используемая для такого анализа, состоит из источника нейтронов, γ -детектора (детекторов) и системы сбора данных. Один из возможных вариантов такой установки представлен в [5]. Для создания такой установки можно выбрать одну из двух конфигураций: мобильную систему, перемещаемую по полю и сканирующую содержание углерода [6], или же стационарную установку, на которой выполняется анализ отдельных образцов. Оба варианта имеют свои достоинства и недостатки. Так, мобильная установка позволит исследовать большие площади сельхозугодий достаточно быстро и без пробоподготовки, но, в свою очередь, сложна в разработке, должна содержать компактный источник питания и систему термостабилизации. Стационарная установка существенно проще, ее аналоги уже испытывались для анализа фосфоритных руд, и существует испытанная методика анализа получаемых данных [7]. Важной задачей при разработке прототипа готового устройства является оценка чувствительности установки — минимального количества углерода, которое может быть достоверно определено в процессе измерения определенной продолжительности. Для ее решения уместно использовать моделирование методом Монте-Карло, что и было проделано в данной работе. Общая концепция модели-

руемой установки в целом аналогична стационарному прибору для анализа фосфоритных руд из [7]. Конструкция моделируемой установки показана на рис. 1.

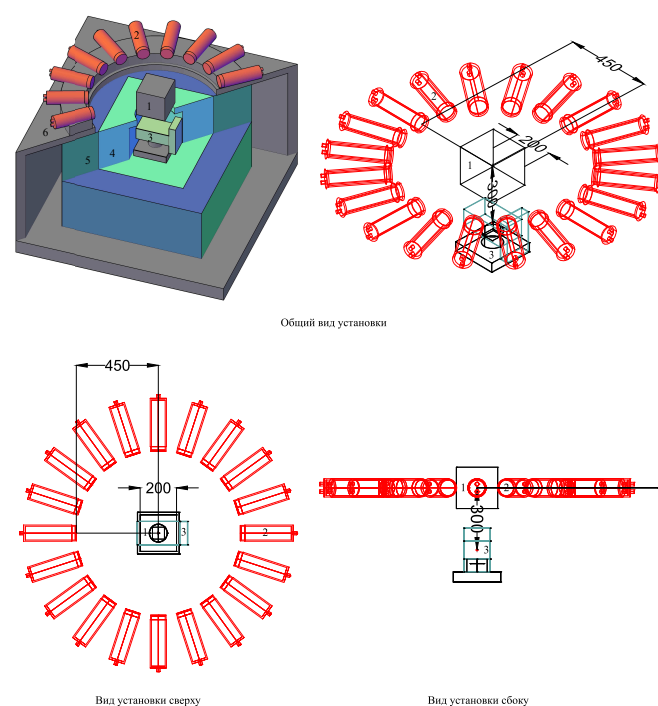


Рис. 1. Схема моделируемой установки: 1 — образец, 2 — γ -детектор BGO, 3 — нейтронный генератор ИНГ-27, 4,5 — комбинированная защита, 6 — корпус прибора. Размеры указаны в мм

В качестве источника нейтронов предполагается использовать генератор ИНГ-27, расположенный на расстоянии 30 см от центра образца, испускающий нейтроны с энергией 14.1 МэВ. Мишенью является кубический образец почвы размером $20 \times 20 \times 20$ см, а тестовый вариант детектирующей системы состоит из 20 сцинтилляционных детекторов γ -квантов на основе германата висмута (детекторы BGO), расположенных по кругу с радиусом 45 см.

С помощью ИНГ-27 можно реализовать метод меченых нейтронов, основанный на регистрации α -частицы, сопутствующей испусканию нейтрона, позиционно-чувствительным детектором. Детектор α -частиц имеет конечные размеры, и поэтому далеко не все нейтроны могут быть «помечены» с его помощью. Обычно, доля помеченных нейтронов не превышает 20% от полной интенсивности генератора.

Существует несколько видов процессов взаимодействия нейтронов и ядер, которые приводят к характерным γ -пикам. В частности, это неупругое рассеяние быстрых нейтронов и захват тепловых нейтронов. Для определения количества углерода в данной работе использовалось характеристическое излучение ядер углерода, испускаемое при распаде первого возбужденного состояния ^{12}C с энергией 4439 кэВ, возбуждаемого в процессе неупругого рассеяния нейтронов.

Помимо излучения, испускаемого углеродом, детекторы регистрируют также γ -кванты, рождающиеся при нейтрон-ядерных реакциях, происходящих как в образце, так и в конструктивных элементах установки. Количество и энергетический спектр этих γ -квантов достаточно сильно зависит от особенностей конструкции конкретной установки, поэтому в данной работе при моделировании использовалась упрощенная модель, состоящая только из образца, источника нейтронов и детекторной системы.

3. МОДЕЛИРОВАНИЕ УСТАНОВКИ НЕЙТРОН-ГАММА АНАЛИЗА НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ

Расчеты, представленные в данной работе, были произведены с помощью пакета программ GEANT4 [8]. GEANT4 — инструментальный для моделирования прохождения элементарных частиц через вещество с использованием метода Монте-Карло, разработанный в CERN на объектно-ориентированном языке программирования C++. Важным аспектом построения правильной симуляции в GEANT4 является выбор т.н. physicslist, описывающего набор физических процессов, учитываемых в моделировании. В проделанной работе был использован physicslist QGSP_BIC_HP, рекомендованный разработчиками Geant4 для моделирования систем, где используются нейтроны с энергией менее 20 МэВ. В качестве модельного образца почвы был выбран куб, состоящий из кислорода, кремния, алюминия, железа, углерода и водорода, имеющий плотность 1.2 г/см^3 . На рис. 2 представлен модельный γ -спектр почвенного материала, на котором видны пики, соответствующие преимущественно реакциям на кислороде, кремнии и алюминии. Для определения концентрации углерода можно использовать пик с энергией 4439 кэВ. В моделировании было запущено 10^9 меченых нейтронов, что соответствует примерно 1.5 минутам работы генератора ИНГ-27 с полной интенсивностью $5 \times 10^7 \text{ н/сек}$ и потоком меченых нейтронов около 10^7 н/сек .

4. ОЦЕНКА ПОРОГА СРАБАТЫВАНИЯ УСТАНОВКИ

В качестве способа определения порога срабатывания установки мы рассмотрели два метода. Первый

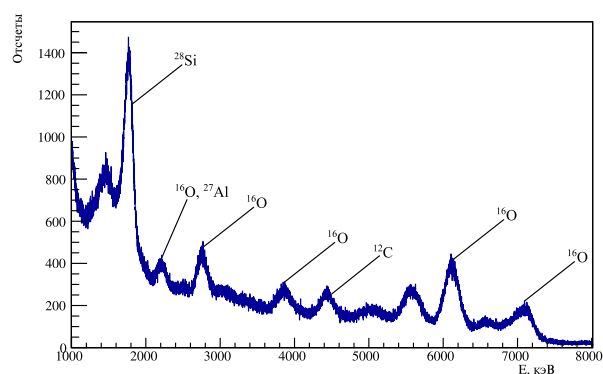


Рис. 2. Модельный γ -спектр почвы

метод заключается в прямом извлечении количества событий в диапазоне 4300–4500 кэВ при конкретной концентрации углерода. Его использование осложняется тем, что на спектре всегда присутствует подложка, сформированная откликом детектора на более высокоэнергетические γ -кванты. В данном подходе вклад от них принимается постоянным. Второй метод подразумевает под собой предварительную аппроксимацию пика с энергией 4439 кэВ для извлечения его площади как подбираемого параметра гладкой функции — гауссиана с прямолинейной подложкой. Аппроксимированные γ -спектры при концентрациях углерода 0%, 2%, 4%, 6% представлены на рис. 3.

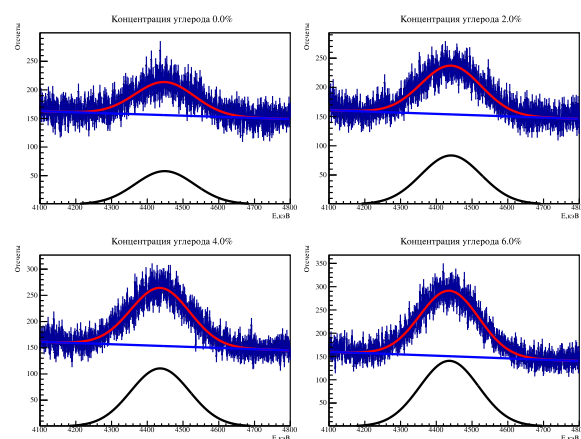


Рис. 3. Аппроксимированные γ спектры при концентрации углерода 0%, 2%, 4%, 6%. Красными линиями показаны суммарные аппроксимирующие функции, синими и черными — вклады подложки и пика, соответственно

При нулевой концентрации углерода в спектре присутствует небольшой пик с энергией, близкой к 4439 кэВ (рис. 3). Такое поведение спектра можно объяснить присутствием в углеродном пике γ -квантов от реакции распада высоколежащих возбужденных состояний ^{16}O на α -частицу и ^{12}C в возбужденном состоянии, а также от γ -переходов в ядре ^{28}Si .

Концентрация углерода в почве сравнительно невелика, и поэтому можно предположить, что ее изменение в диапазоне 0-10% существенно не изменяет рассеивающие и поглощающие свойства образца. Следовательно, количество зарегистрированных γ -квантов энергии 4439 кэВ должно быть прямо пропорционально концентрации углерода. Тем не менее, из-за наличия под углеродным пиком подложки от γ -квантов из кислорода и кремния к зависимости добавляется константа, и калибровочная функция, связывающая площадь пика и концентрацию углерода описывается формулой (1):

$$S_{peak} = a \cdot C_{init} + b, \quad (1)$$

где S_{peak} — площадь пика концентраций, C_{init} — концентрация углерода, заданная при моделировании, a и b — подгоночные параметры.

Функция одинакова для обоих рассматриваемых методов. Калибровка для обоих подходов представлена на рис. 4.

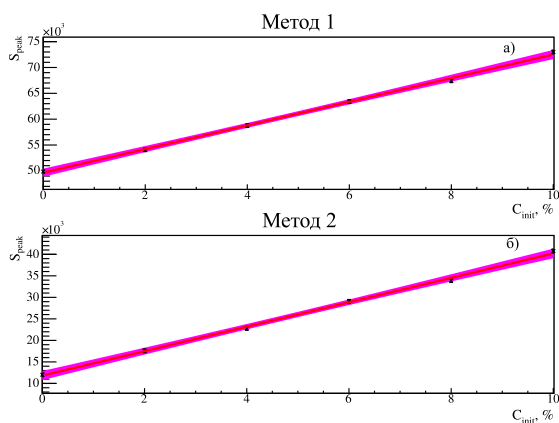


Рис. 4. Зависимость площади пика от значений концентрации углерода, полученная а) методом 1, б) методом 2

При построении методик быстрого элементного анализа обычно используется следующий подход: на основе измерений образцов с известным химическим составом выполняется калибровка, необходимая для пересчета показаний детектирующей системы в концентрации отдельных элементов. Затем выполняются «слепые» измерения образцов с неизвестным составом, результаты которых сравниваются с данными, полученными при анализе тех же образцов другими методами. Такое решение позволяет обнаружить неучтенные при калибровке систематические ошибки. При выполнении данной работы в реализации этого метода явная необходимость отсутствует, но его применение позволит проверить написанные нами программы для обработки данных до проведения реального эксперимента. Поэтому из результатов моделирования были сформированы два набора данных: калибровка выполнялась

на выборке с четными величинами концентраций. Набор с нечетными концентрациями использовался для контроля корректности определения содержания углерода.

Определив a и b с помощью метода наименьших квадратов из четной выборки, можно пересчитать значения концентраций $C_{obtained}$ в контрольной (нечетной) выборке по формуле (2).

$$C_{obtained} = \frac{S - b}{a}, \quad (2)$$

где S — площадь пика, определенная методом 1 или 2 для нечетных концентраций, a и b — подгоночные параметры из формулы (1), полученные для четных концентраций.

Построив зависимость рассчитанных концентраций $C_{obtained}$ от заданных при моделировании C_{init} (рис. 5), можно определить порог срабатывания установки.

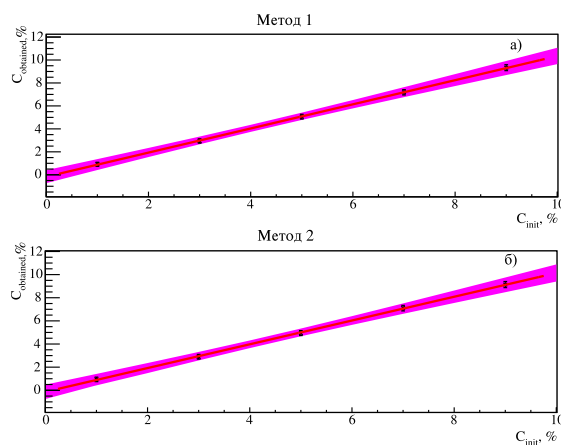


Рис. 5. $C_{obtained}$ от C_{init} с коридором ошибок 3σ : а) метод 1, б) метод 2

Зависимость $C_{obtained}$ от C_{init} должна описываться формулой (3)

$$C_{obtained} = c \cdot C_{init} + d, \quad (3)$$

Полученные значения параметров a , b , c , d приведены в табл. 2.

Для определения порога срабатывания каждого из методов были построены коридоры шириной 3σ для прямой, связывающей начальные и полученные концентрации углерода с помощью встроенных в ROOT методов. Минимальная достоверно определяемая концентрация углерода соответствует величине, которая на 3σ отличается от нулевой. Она может быть получена из ошибки параметра d , так как именно эта величина характеризует неопределенность при нулевой концентрации. Для обоих методов она составляет 0.6% при 10^9 запущенных меченых нейтронов, то есть, различие несущественно на рассматриваемых выборках.

Таблица 2. Значения параметров a , b , c , d

| Номер метода | a | b | c | d |
|--------------|---------|-----------|-----------|----------|
| 1 | 2290±40 | 49700±200 | 1.05±0.03 | -0.2±0.2 |
| 2 | 2840±60 | 11800±300 | 1.03±0.03 | -0.1±0.2 |

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренные в данной работе методы оценки порога срабатывания смоделированной установки показывают, что предел чувствительности установки (3σ) для обоих методов составляет 0.6%. В моделировании было запущено 10^9 меченых нейтронов, что соответствует примерно 1.5 минутам работы генератора ИНГ-27 с полной интенсивностью 5×10^7 н/сек и потоком меченых нейтронов около 10^7 н/сек. Следует отметить, что содержание углерода в поверхностном слое почв

сельхозугодий колеблется от 1 до 10%. Точность химических методов в настоящее время значительно выше точности рассматриваемого в данной работе подхода. Вместе с тем, точность результатов моделирования может быть увеличена путем увеличения количества начальных частиц, а также разработкой алгоритмов анализа данных, учитывающих вклады гамма-переходов в кислороде и кремнии в пик от углерода.

Авторы выражают благодарность коллаборации TANGRA (ЛНФ ОИЯИ, Дубна), а также старшему научному сотруднику НИИЯФ МГУ Третьяковой Т.Ю. за ценные замечания и советы при проведении исследования.

-
- [1] Белицина Г.Д. Почвоведение. М.: Высш. шк., 1988.
[2] Kavetskiy A., Yakubova G., Prior S.A. et al. // *Applied Radiation and Isotopes*. **150**, 127. (2019).
[3] Орлов Д.С. Химия почв. М.: Изд-во Моск. ун-та., 1985.
[4] Аринушкина Е.В. Руководство по химическому анализу почв. М.: Изд-во Моск. ун-та, 1970.
[5] Yakubova G., Kavetskiy A., Prior A. et al. // *Compost Science & Utilization*. **27**. 146. (2019).
[6] Yakubova G., Wielopolski L., Kavetskiy A. et al. // *Soil Science*. **179**. 529. (2014).
[7] Разинков Е.А., Алексахин В.Ю., Рогов Ю.Н. и др. // Горный журнал. № 2. 51. (2022).
[8] Geant4 v. 10.01, p. 2. https://geant4.web.cern.ch/support/download_archive?page=3

Modeling of the setup for carbon analysis of soil samples

A.V. Andreev^{1,a}, N. A. Fedorov^{2,b}

¹Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia

²Joint Institute for Nuclear Research. Dubna 141980, Russia

E-mail: ^aandreev.av20@physics.msu.ru, ^bna.fedorov@physics.msu.ru

The paper presents the results of modeling the installation for neutron activation analysis of soils with different carbon concentrations. The simulation was carried out using the GEANT4 package. The values of the trigger threshold are obtained and the possibility of applying the considered configuration of the installation for practical use is discussed.

PACS: 29.30.Hs

Keywords: neutron activation analysis, inelastic neutron scattering soil, GEANT4.

Received 20 April 2023.

Сведения об авторах

1. Андреев Александр Владимирович — студент 3 курса; e-mail: andreev.av20@physics.msu.ru.
2. Федоров Никита Александрович — канд. физ.-мат. наук, науч. сотрудник; тел.: (496) 216-36-83, e-mail: na.fedorov@physics.msu.ru.