

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(21) **202490020** (13) **A1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ**

(43) Дата публикации заявки
2024.09.25

(51) Int. Cl. *G01T 1/16* (2006.01)
G01N 23/00 (2006.01)
G01V 5/00 (2024.01)

(22) Дата подачи заявки
2023.12.14

(54) **ИНСТРУМЕНТАЛЬНЫЙ СПОСОБ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ
УДЕЛЬНОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ ЗОЛОШЛАКОВЫХ ОТХОДОВ**

(96) **KZ2023/0100 (KZ) 2023.12.14**

(71) Заявитель:
ПАК ЮРИЙ (KZ)

(72) Изобретатель:

**Пак Юрий, Нургужин Марат
Рахмалиевич, Пак Дмитрий
Юрьевич, Тебаева Анар Юлаевна,
Николаенко Никита Андреевич (KZ)**

(57) Изобретение относится к ядерно-физическим способам анализа сложных веществ. Инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов, основанный на измерении естественного гамма-излучения урана, тория и калия, отличающийся тем, что на стандартных образцах золошлаковых отходов с известной удельной активностью выбирают оптимальные аналитические гамма-линии этих радионуклидов, находят оптимальную ширину энергетического окна ΔE с точки зрения обеспечения минимальной относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида. Технический результат изобретения состоит в повышении чувствительности анализа и расширении сферы применения способа за счет выбора оптимальных гамма-линий U, Th и K и оптимальной ширины энергетического окна для каждого радионуклида с точки зрения минимума относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности и определении удельной активности U, Th и K по измеренным интенсивностям в найденных энергетических окнах.

A1

202490020

202490020

A1

ИНСТРУМЕНТАЛЬНЫЙ СПОСОБ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ УДЕЛЬНОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ ЗОЛОШЛАКОВЫХ ОТХОДОВ

Изобретение относится к ядерно-физическим способам анализа сложных веществ. Оно может быть использовано в процессе переработки в топливно-энергетической и горно-геологических отраслях промышленности.

Угольная теплоэнергетика в основном ориентируется на энергетические угли с низким содержанием радиоактивных элементов. Однако в процессе сжигания слаборадиоактивных углей в золошлаковых отходах (ЗШО) происходит концентрирование радионуклидов. Удельная радиоактивность урана, тория и калия в ЗШО значительно (иногда на порядок) превышает их активность в исходных сжигаемых углях. При этом ЗШО превращаются в квазигеогенные месторождения радиоактивных элементов, являющихся источником радиоактивного загрязнения окружающей среды. Золошлаковые отходы и летучая зола, обогащенные радионуклидами, представляют потенциальную опасность для окружающей среды.

Нужен системный мониторинг уровня радиоактивности, нужны высокочувствительные и представительные способы оценки удельной радиоактивности (содержания естественных радионуклидов) в энергетических углях и продуктах их сжигания.

Известны радиометрические способы, основанные на измерении ядерного (альфа-, бета- и гамма-) излучения, испускаемого природными радионуклидами уран-238, торий-232 и калий-40, находящимися в составе энергетических углей (Филиппов Е.М. Ядерная разведка полезных ископаемых. Справочник. Киев. Наукова Думка. 1978, с. 588).

Более представительными являются способы, основанные на измерении естественного гамма-излучения в силу их высокой проникающей способности. Интегрированные данные о содержании радионуклидов (интегральная интенсивность гамма-излучения) дают лишь качественную информацию о наличии и концентрации естественных радионуклидов и характеризуется высокой погрешностью оценки удельной радиоактивности.

Наиболее близким по технической сущности и достигаемому результату является способ, заключающийся в спектрометрии природного гамма-излучения, испускаемого радионуклидами (U^{238} , Th^{232} и K^{40}), находящимися в энергетических углях и золошлаковых отходах (Новиков Г.Ф. Радиометрическая разведка. Л. Недра, 1989. С. 407).

Радиоактивные элементы уран-238 и торий-232 являются родоначальниками соответственно уранового и ториевого радиоактивных рядов. В процессе радиоактивного распада этих нуклидов образуется более 10

дочерних изотопов, испускающих альфа, бета и гамма-излучения различных энергий.

Основные гамма-линии уранового ряда: 0,295 МэВ; 0,352 МэВ; 0,609 МэВ; 1,76 МэВ; 2,204 МэВ.

Основные гамма-линии ториевого ряда: 0,238 МэВ; 0,538 МэВ; 0,909 МэВ; 0,960 МэВ; 2,62 МэВ.

Естественная радиоактивность калия обусловлена радионуклидом K^{40} , которого в природной смеси содержится 0,012%. В отличие от тяжелых радиоактивных элементов K^{40} испускает моноэнергетическое гамма-излучение с энергией 1,46 МэВ.

Недостатком известного способа является относительно низкая чувствительность анализа, обусловленная выбором не оптимальных энергий естественного гамма-излучения и не оптимальных энергетических окон регистрации излучения.

Задачей изобретения является повышение чувствительности определения удельной радиоактивности (концентрации радионуклидов) ЗШО переменного состава.

Технический результат изобретения состоит в повышении чувствительности радиометрического анализа и расширении сферы применения способа.

Поставленная задача решается следующим образом. В процессе измерения естественного гамма-излучения урана, тория и калия, дополнительно на стандартных образцах золошлаковых отходов (ЗШО) с известной удельной радиоактивностью урана-238, тория-232 и калия-40 измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ; 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ; 0,909 МэВ) и калия (1,46 МэВ) с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого радионуклида (U, Th, K) последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i , находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида

($V_i/S_i = \min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и калия $N(K)$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U, Th, K в соответствующих энергетических окнах.

Спектрально-энергетическое распределение естественного гамма-излучения радионуклидов (U, Th, K) представляет собой сложный полиэнергетический спектр, включающий множество гамма-линий урана и тория, начиная с 0,238 МэВ до 2,62 МэВ. Ввиду сложности аппаратурной функции гамма-спектрометров с конечным энергетическим разрешением характерные гамма-линии урана и тория выделяются на фоне непрерывного комптоновского распределения более высокоэнергетического гамма-излучения тория (2,62 МэВ) и урана (1,764 МэВ). Это актуализирует научно-обоснованный подход к выбору аналитических гамма-линий урана и тория (энергий гамма-излучения этих нуклидов) и ширины энергетического окна ΔE в области выбранных гамма-линий. В таблице 1 даны основные характеристики гамма-линий уранового и ториевого радиоактивных рядов.

Таблица 1

| Радиоактивный ряд | Гамма-линии, МэВ | Выход гамма-квантов, % | Относительная интенсивность, % |
|-------------------|------------------|------------------------|--------------------------------|
| Урановый | 0,295 | 21,5 | 3,37 |
| | 0,352 | 43,0 | 6,09 |
| | 0,609 | 53,5 | 7,36 |
| | 1,764 | 19,0 | 17,86 |
| | 2,204 | 6,0 | 7,46 |
| Ториевый | 0,238 | 46,5 | 4,83 |
| | 0,583 | 30,0 | 7,64 |
| | 0,909 | 25,0 | 9,89 |
| | 0,960 | 20,0 | 8,38 |
| | 2,62 | 35,5 | 40,09 |

На стандартных образцах ЗШО с известной удельной активностью (содержанием радионуклидов) измеряют энергетические спектры естественного гамма-излучения. Аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ и 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ и 0,909 МэВ) выбирают исходя из требования обеспечения максимальной относительной интенсивности (произведение выхода гамма-квантов на энергию) и максимальной дифференциации энергий. Для устранения влияния вещественного состава (эффективного атомного номера ЗШО) необходимо измерять интенсивность гамма-излучения с энергией выше примерно 0,5 МэВ. Выбранные с учетом указанных требований аналитические гамма-линии урана и тория позволяют получить интегрированную и представительную количественную информацию об этих радионуклидах.

Путем обработки измеренных спектров в области выбранных энергий гамма-излучения урана (1,76 МэВ и 0,609 МэВ) последовательно меняют ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_{ik} к урану, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_1

(U), $\Delta E_2(U)$ находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной радиоактивности урана ($V_i / S_i = \min$).

Аналогичным образом (по минимуму величины V_i/S_i) находят ширину энергетического окна $\Delta E_1(\text{Th})$, $\Delta E_2(\text{Th})$ в области выбранных энергий гамма-излучения тория (2,62 МэВ и 0,909 МэВ) и ширину энергетического окна $\Delta E(\text{K})$ в области энергии гамма-излучения калия-40 (1,46 МэВ).

Такой методический подход к выбору оптимальных энергетических окон позволяет повысить чувствительность определения удельной активности урана, тория и калия.

Существенным отличием изобретения от прототипа является то, что дополнительно на стандартных образцах ЗШО с известными удельными радиоактивностями U^{238} , Th^{232} и K^{40} измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ; 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ; 0,909 МэВ) и калия (1,46 МэВ) с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого радионуклида (U, Th, K) последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i , находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида ($V_i / S_i = \min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(\text{Th})$, $\Delta E_2(\text{Th})$ и $\Delta E(\text{K})$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(\text{Th})$, $N_2(\text{Th})$ и калия $N(\text{K})$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(\text{Th})$, $N_2(\text{Th})$ и $N(\text{K})$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U, Th, K в соответствующих энергетических окнах.

Предлагаемый способ радиометрического определения удельной радиоактивности ЗШО апробирован на золошлаковых отходах Карагандинской ТЭЦ. Анализируемый сыпучий материал размещался в цилиндрической кювете диаметром и высотой 70 см. Геометрия измерений и выбранные размеры анализируемых ЗШО обеспечивали максимальную эффективность регистрации естественного гамма-излучения гамма-спектрометром на основе сцинтилляционного детектора 80x80мм и многоканального анализатора АИ-1024.

Оптимальные значения ширины энергетического окна ΔE в области выбранных аналитических гамма-линий U, Th и K, найденные с точки зрения минимума величины отношения ($V_i / S_i = \min$), составили: $\Delta E_1(U)=1,65-1,96$ МэВ; $\Delta E_2(U)=0,52-0,70$ МэВ; $\Delta E_1(\text{Th})=2,39-2,85$ МэВ; $\Delta E_2(\text{Th})=0,80-1,03$ МэВ; $\Delta E(\text{K})=1,18-1,52$ МэВ.

В процессе апробации способа радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов было проанализировано 13 проб. Удельную радиоактивность урана, тория и калия определяли по измеренным в найденных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных активностей в соответствующих энергетических окнах. Поправочные коэффициенты находились по данным измерений стандартных образцов с известными концентрациями радионуклидов.

В таблице 2 даны сопоставительные данные о чувствительности предлагаемого способа и известного (прототипа).

Таблица 2

| Способ | Относительная чувствительность, проц. /10 Бк |
|--------------|--|
| Прототип | 6,7 |
| Предлагаемый | 9,7 |

Предлагаемый инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов в сравнении с известным способом обладает повышенной чувствительностью анализа, что существенно расширяет сферу применения способа.

Данное исследование финансируется Комитетом науки Министерства науки и высшего образования Республики Казахстан (грант № AP23485184).

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

ИНСТРУМЕНТАЛЬНЫЙ СПОСОБ РАДИОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ УДЕЛЬНОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ ЗОЛОШЛАКОВЫХ ОТХОДОВ

Инструментальный способ радиометрического определения удельной радиоактивности золошлаковых отходов, основанный на измерении естественного гамма-излучения, испускаемого природными радиоактивными элементами, отличающийся тем, что дополнительно на стандартных образцах золошлаковых отходов (ЗШО) с известной удельной радиоактивностью урана-238, тория-232 и калия-40 измеряют энергетическое распределение естественного гамма-излучения, выбирают оптимальные аналитические гамма-линии урана (1,76 МэВ; 0,609 МэВ), тория (2,62 МэВ; 0,909 МэВ) и калия (1,46 МэВ) с точки зрения максимальной относительной интенсивности и максимальной дифференциации их энергий для каждого радионуклида; в области выбранных энергий гамма-излучения каждого радионуклида (U, Th, K) последовательно меняя ширину энергетического окна ΔE_i , рассчитывают относительную статистическую погрешность измерений V_i и относительную чувствительность S_i к соответствующему радионуклиду, а оптимальную ширину энергетического окна ΔE_i , находят такую, при которой обеспечивается минимальная величина относительной статистической погрешности, выраженной в долях удельной активности радионуклида

($V_i / S_i = \min$); в найденных оптимальных энергетических окнах $\Delta E_1(U)$, $\Delta E_2(U)$, $\Delta E_1(Th)$, $\Delta E_2(Th)$ и $\Delta E(K)$ измеряют соответственно интенсивности естественного гамма-излучения урана $N_1(U)$, $N_2(U)$, тория $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и калия $N(K)$, а удельную радиоактивность урана, тория и калия определяют по измеренным в найденных энергетических окнах интенсивностям $N_1(U)$, $N_2(U)$, $N_1(Th)$, $N_2(Th)$ и $N(K)$ с учетом поправочных коэффициентов, характеризующих интенсивность гамма-излучения от единичных удельных радиоактивностей U, Th, K в соответствующих энергетических окнах.

ОТЧЕТ О ПАТЕНТНОМ ПОИСКЕ

(статья 15(3) ЕАПК и правило 42 Патентной инструкции к ЕАПК)

Номер евразийской заявки:

202490020**А. КЛАССИФИКАЦИЯ ПРЕДМЕТА ИЗОБРЕТЕНИЯ:**

МПК:

G01T 1/16 (2006.01)
G01N 23/00 (2006.01)
G01V 5/00 (2024.01)

СПК:

G01T 1/16
G01N 23/00
G01V 5/00

Б. ОБЛАСТЬ ПОИСКА:

G01N 23, G01V 5/00 - 5/14, G01T 1

Электронная база данных, использовавшаяся при поиске (название базы и, если возможно, используемые поисковые термины)
Espacenet, EAPATIS, PatSearch, Google Patents, PATENTSCOPE**В. ДОКУМЕНТЫ, СЧИТАЮЩИЕСЯ РЕЛЕВАНТНЫМИ**

| Категория* | Ссылки на документы с указанием, где это возможно, релевантных частей | Относится к пункту № |
|------------|---|----------------------|
| A | EA 202293131 A1 (КОПОБАЕВА АЙМАН НЫГМЕТОВНА (KZ) И ДР.) 2023-08-28 | 1 |
| A | EA 202390979 A1 (ПАК ЮРИЙ (KZ)) 2023-10-18 | 1 |
| A | RU 97104738 A (КАЗАНСКАЯ ГЕОФИЗИЧЕСКАЯ ЭКСПЕДИЦИЯ И ДР.) 1999-03-10 | 1 |
| A | US 4118623 C (CONOCO, INC.) 1978-10-03 | 1 |
| A | SU 1803899 A1 (ВСЕСОЮЗНЫЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ ГОРНОЙ ГЕОМЕХАНИКИ И МАРКШЕЙДЕРСКОГО ДЕЛА И ДР.) 1993-03-23 | 1 |

 последующие документы указаны в продолжении графы

* Особые категории ссылочных документов:

«А» - документ, определяющий общий уровень техники

«D» - документ, приведенный в евразийской заявке

«E» - более ранний документ, но опубликованный на дату подачи евразийской заявки или после нее

«O» - документ, относящийся к устному раскрытию, экспонированию и т.д.

"P" - документ, опубликованный до даты подачи евразийской заявки, но после даты испрашиваемого приоритета"

«Т» - более поздний документ, опубликованный после даты приоритета и приведенный для понимания изобретения

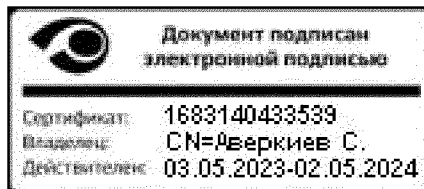
«X» - документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска, порочащий новизну или изобретательский уровень, взятый в отдельности

«Y» - документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска, порочащий изобретательский уровень в сочетании с другими документами той же категории

«&» - документ, являющийся патентом-аналогом

«L» - документ, приведенный в других целях

Дата проведения патентного поиска: 29 марта 2024 (29.03.2024)

Уполномоченное лицо:
Начальник Управления экспертизы

С.Е. Аверкиев