

УДК 621.039

## **МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ Au В ЗОЛОТОСОДЕРЖАЩИХ ОБРАЗЦАХ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ЗАМЕДЛЕННЫХ НЕЙТРОНОВ**

*П. Зузаан, Б. Отгоолой, З. Дамдинсурен*

Центр ядерных исследований Монгольского государственного университета, Улан-Батор

Разработана методика определения содержания золота в золотосодержащих образцах, которая основана на реакции  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ , с использованием тепловых и эпитепловых нейтронов. Также предложена методика учета эффекта самоэкранирования в исследуемых образцах. Проведено сравнение результатов определения содержания золота с помощью разработанной нами методики с данными, полученными другими методами анализа. Показано, что использование микротрона МТ-22 и графитового замедлителя для получения тепловых и эпитепловых нейтронов обеспечивает массовый анализ на содержание золота в геологических пробах и продуктах обогащения породы с пределом обнаружения не хуже 0,1 ppm.

The method for determination of Au in gold-containing samples is developed. The method is based on the  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$  reactions using thermal and epithermal neutrons. The method for taking an account of the self-shielding effect in the sample volume is proposed. The results are compared with data obtained by other methods. Usage of the combination of the microtron MT-22 and the graphite moderator for obtaining the thermal and epithermal neutrons provides possibility for the mass analysis of gold in geological samples and enriched rocks with a detection limit of 0.1 ppm.

### **ВВЕДЕНИЕ**

В последнее десятилетие золотодобывающая промышленность стала ведущей отраслью горно-добывающей и горно-обогащающей промышленности Монголии. В связи с этим требуется разработка аналитических методов, обеспечивающих оперативность и надежность получения информации об элементном составе исследуемых золотосодержащих образцов. Ядерно-физические методы, и прежде всего метод нейтронно-активационного анализа (НАА), являются наиболее перспективными для определения содержания золота в геологических пробах и технологических продуктах, получаемых в процессе обогащения породы, содержащей золото [1–3, 5]. Актуальность применения активационного анализа для этих целей обусловлена большой стоимостью и трудоемкостью обычного пробирного анализа и ограниченностью его применения для анализа проб с содержанием золота менее 1 ppm.

В данной работе приводится описание разработанной нами методики определения содержания золота в золотосодержащих материалах (руде и продуктах ее переработки) с помощью циклического ускорителя электронов микротрона МТ-22 Центра ядерных исследований Монгольского государственного университета (ЦЯИ МонГУ) [6].

### МЕТОДИКА ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЗОЛОТА С ПОМОЩЬЮ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

Основой настоящей методики является учет коэффициента самоэкранирования образцов для улучшения точности анализа.

Удельная активность образца, помещенного для облучения в нейтронное поле с потоком  $\Phi$ , может быть занижена из-за того, что средний по объему образца поток  $\Phi_i$  будет меньше падающего на образец. Уменьшение нейтронного потока в образце обусловлено действием двух эффектов [7]:

- 1) поток нейтронов вблизи образца  $\Phi_0$  снижается вследствие помещения образца-поглотителя нейтронов в диффузионную среду;
- 2) определенная часть нейтронов поглощается в поверхностном слое образца, и меньший поток нейтронов достигает его центра; таким образом внешняя часть образца экранирует внутреннюю часть.

Первый из этих эффектов контролируется с помощью тонких активационных медных фольг толщиной 12 мг/см<sup>2</sup>.

Второй эффект  $F$  рассчитан в упрощенном виде для длинного цилиндра, образованного из исследуемых образцов:

$$F = 1 - \frac{4}{3} \Sigma_a \rho r, \quad (1)$$

где  $\Sigma_a$  — макроскопическое сечение поглощения (см<sup>-1</sup>);  $\rho$  — плотность образца в данной точке;  $r$  — радиус цилиндра, 2 см. При этом предполагалось, что макроскопическое сечение поглощения (примерно) постоянно для всех золотосодержащих руд при одинаковой плотности. Данное предположение проверялось нами с помощью стандартных образцов и образцов золотосодержащих руд из разных месторождений Монголии. На рис. 1 показаны результаты измерений. Видно, что эффект самоэкранирования прямо пропорционально зависит от плотности образца. С помощью зависимости, указанной на рис. 1, определяется относительный эффект  $F$  следующим образом:

$$F = 1 - \alpha \rho, \quad \text{где } \alpha = \frac{4}{3} \Sigma_a r = 0,383 \text{ см}^3/\text{г}.$$

Известно, что количественно эффект возмущения потока  $Q_i$  определяется соотношением

$$Q_i = \frac{\Phi_i}{\Phi} = F_i \Phi_{0i}.$$

На рис. 2, а, б показаны относительные распределения плотности потоков тепловых и эпитепловых нейтронов в каналах для облучения образцов [7, 8].

Распределение плотности потока нейтронов определялось с помощью медных фольг. Максимальная плотность потока тепловых нейтронов составляла  $2 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ , а эпитепловых —  $1,3 \cdot 10^7 \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ .

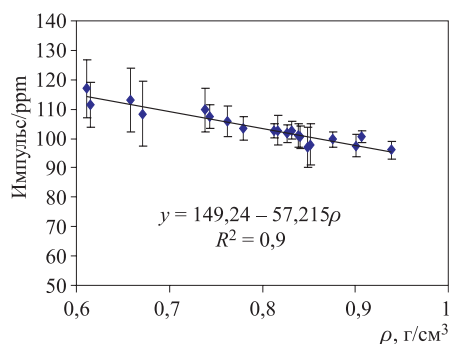


Рис. 1. Зависимость эффекта самоэкранирования от плотности образца

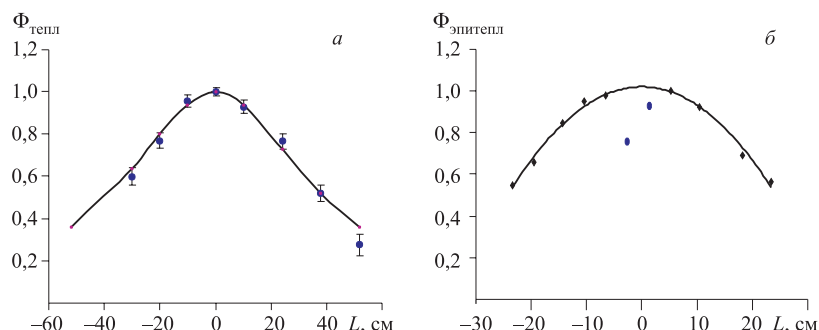


Рис. 2. Относительное распределение плотности потоков тепловых (а) и эпитепловых (б) нейтронов в каналах для облучения образцов

Образцы для определения содержания золота упаковывались в полиэтиленовые коробки диаметром 40 мм и высотой 10 мм. В зависимости от плотности масса образца составляла 6–12 г.

После загрузки графитовой призмы образцами проводилось их облучение замедленными нейтронами в течение 2 ч. Ток ускоренных электронов, бомбардирующих нейтронный конвертор, составлял 15 мкА.

Измерения активности образцов проводились на спектрометре с полупроводниковым детектором (HPGe) чувствительным объемом  $56 \text{ см}^3$  и с разрешением 2 кэВ на линии  $^{60}\text{Co}$ . Каждый образец измерялся 10 мин. Если содержание золота было меньше 1 ppm, время измерения увеличивалось до 20–30 мин. Спектры гамма-излучений обрабатывались стандартной программой SYTEM-100 фирмы MICROSOFT.

Для введения поправок  $\Phi_0$ , связанных с изменением плотности нейтронного потока от образца к образцу, использовались медные мониторы. Каждый монитор измерялся по 5 мин. Все результаты измерений приводились к одному моменту времени. Монитор с максимальной активностью принимался за единицу, и вычислялись активности всех мониторов в относительных единицах.

В данной работе коэффициенты  $\Phi_0$  и  $F$  определяются в относительных единицах. Поэтому содержание золота  $C_i$  в данном  $i$ -м образце определяется с помощью стандартных образцов соотношением

$$C_i = \frac{S_i P_c Q_c}{S_c P_i Q_i} C_c, \quad (2)$$

где  $S_c$  и  $S_i$  — количество регистрируемых импульсов в стандартных и исследуемых образцах с номером  $i$  при одинаковых временных факторах облучения, измерения и выдержки;  $P_c$  и  $P_i$  — вес стандартных и исследуемых образцов;  $C_c$  — содержание золота в стандартном образце.

Разработанная нами методика проверялась на стандартных образцах. Результаты определения содержания золота приведены в таблице.

Из таблицы видно, что в пределах ошибок эти результаты хорошо согласуются. На рис. 3 показано сравнение результатов химического и нейтронно-активационного методов анализа. Предел определения любым из этих методов при 95 %-м уровне достоверности составлял для большинства образцов 0,2 ppm. Точность определения содержания золота в образцах составляла около 10 % для 1 ppm и 5 % для 10 ppm и более.

## Результаты нейтронно-активационного анализа содержания Au в стандартных образцах, ppm

Стандарт	Данные аттестат.	Наши данные
СЗХ-3	$0,9 \pm 0,1$	$0,9 \pm 0,1$
СЗХ-1	$1 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$
СЗХ-2	$2 \pm 0,1$	$2 \pm 0,1$
СЗР-1	$4,5 \pm 0,1$	$4,4 \pm 0,1$
ПИЭН613	$8,9 \pm 0,6$	$8,7 \pm 0,4$
СЗК-1	$36 \pm 1$	$36 \pm 1,5$

Для проверки воспроизводимости результатов ряд образцов анализировался несколько раз. При этом была получена воспроизводимость, как правило, не хуже 10 %.

Исследование различных режимов анализа показало, что длительность облучения 2 ч и последующая выдержка в течение 24 ч являются оптимальными для активационной установки с производительностью 40 проб за 8-часовой рабочий день. В результате 24-часового охлаждения активность таких относительно короткоживущих изотопов, как  $^{56}\text{Mn}$ , практически исчезает. Но при этом следует отметить, что в некоторых анализируемых пробах содержалось много натрия, марганца, сурьмы и мышьяка. Это заметно ухудшало предел обнаружения содержания золота данным методом.

Мышьяк и сурьма имеют гамма-линии с энергией 559 и 564 кэВ соответственно. Край комптоновского распределения от этих линий налагается на аналитическую линию с энергией 411,9 кэВ  $^{198}\text{Au}$ . Кроме того, период полураспада изотопа  $^{122}\text{Sb}$  близок к периоду полураспада  $^{198}\text{Au}$ . Таким образом, сурьма и мышьяк являются основными мешающими элементами, которые определяют величину фона в области линии золота и, следовательно, изменяют предел обнаружения [1, 2].

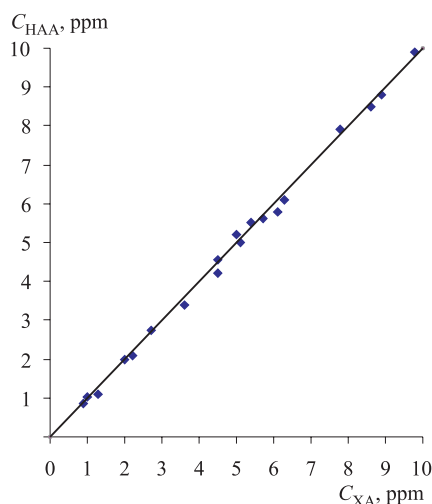


Рис. 3. Корреляционная зависимость результатов химического и нейтронно-активационного анализов после поправки на самоэкранировку

## АНАЛИЗ С ПОМОЩЬЮ ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

Наилучший предел обнаружения методом активационного анализа может быть получен в том случае, если наряду с определяемым элементом активируется минимальное количество элементов матрицы. С этой целью используются эпитепловые нейтроны. Для уменьшения доли тепловых нейтронов облучаемые образцы экранировались кадмиевым поглотителем [1, 4].

При этом устраняется влияние таких элементов, как натрий и марганец, и заметно повышается селективность определения элементов, имеющих достаточно высокий резонансный интеграл активации  $I_a$  (например, для  $^{198}\text{Au}$   $I_a = 1550$  б).

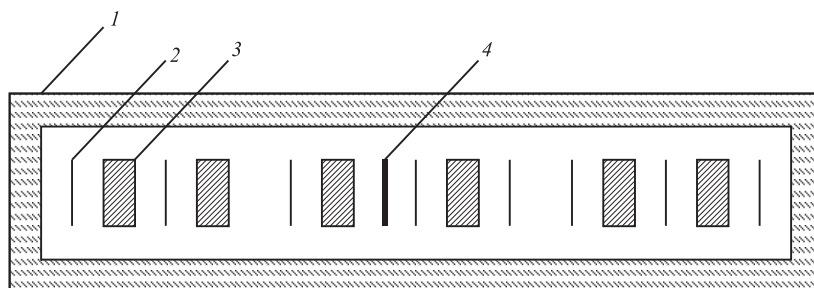


Рис. 4. Геометрия облучения образцов эпитепловыми нейтронами: 1 — цилиндр из кадмия толщиной 0,5 мм; 2 — монитор из меди; 3 — образец в полиэтиленовой коробке толщиной 1 мм; 4 — медный монитор в кадмии

На рис. 4 показана геометрия облучения образцов эпитепловыми нейтронами.

Упакованные образцы, размещенные в кадмиевом цилиндре, закладывались в канал графитовой призмы [7]. В цилиндре, образованном из полиэтиленовых коробок с исследуемыми образцами, заметно идет процесс замедления надкадмиевых нейтронов. Поэтому для удаления образующихся тепловых нейтронов между образцами также размещают кадмиевые фольги.

Разработанные методики определения содержания золота с помощью тепловых и эпитепловых нейтронов дополняют друг друга.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Разработана нейтронно-активационная методика определения содержания золота в геологических пробах и продуктах процесса обогащения породы, которая основана на реакции  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ , с учетом эффекта самоэкранирования при использовании тепловых и эпитепловых нейтронов.

Использование микротрона МТ-22 и графитового замедлителя для получения тепловых и эпитепловых нейтронов позволяет проводить массовый анализ на содержание золота с пределом обнаружения не хуже 0,1 ppm с производительностью 40 проб за 8-часовой рабочий день.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Базаркина Т. В. и др. Препринт ОИЯИ 18-12629. Дубна, 1979. 10 с.
2. Белов А. Г. и др. Препринт ОИЯИ 18-80-841. Дубна, 1980. 9 с.
3. Григоркин Б. С., Файзуллин Р. М. // Тр. 4-го совещ. по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач, Дубна, 20–23 окт. 1981 г. Дубна, 1982. С. 321–325.
4. Белов А. Г., Замятнин Ю. С., Тетерев Ю. Г. Препринт ОИЯИ 18-83-635. Дубна, 1983. 4 с.

5. *Баатархуу Д. и др.* // Рабоч. совещ. по использованию микротронов в ядерной физике, Пловдив, Болгария, 22–24 сент. 1992 г. Дубна, 1993. С. 26–31.
6. *Содном Н. и др.* // Учен. зап. МонГУ. 1998. № 4(134). С. 109–119.
7. *Zuzaan P., Otgooloi B., Baatarhuu D.* // Abstr. of the 2nd Intern. Workshop Siberian Geoanalytical Seminar «Intersibgeochem'01», Irkutsk, Russia, July 24–26, 2001. P. 27.
8. *Отгоолой Б., Зузаан П., Одмаа С.* // Учен. зап. МонГУ. 2003. № 10(179). С. 173–178.

Получено 21 сентября 2004 г.