

**ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ**

Г 987

18-89-790

**ГЭРБИШ ШОВООДЙН**

УДК 543.53  
539.125.4  
539.01.06

**ИССЛЕДОВАНИЕ И РАЗРАБОТКА  
ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ МЕТОДОВ  
ЭЛЕМЕНТНОГО АНАЛИЗА УГЛЕЙ  
И ПРИРОДНЫХ МИНЕРАЛОВ МНР**

**Специальность 01.04.16 - физика атомного ядра  
и элементарных частиц**

**Автореферат диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук**

**Дубна 1989**

Работа выполнена в лабораторий ядерных реакций Объединенного института ядерных исследований, г.Дубна

Научные руководители: академик АН МНР Содном Н.  
доктор физико-математических наук  
Гангский Ю. П.

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,  
профессор Сторишко В. Е.  
кандидат физико-математических наук  
Кобзев А. П.

Ведущая организация - Киевский государственный университет

Защита состоится "1" Марта 1990 г.  
в 10 часов на заседании специализированного совета  
Д 047.01.05 при лаборатории нейтронной физики и  
лаборатории ядерных реакции Объединенного института  
ядерных исследований ( г.Дубна, Московская область )

Автореферат разослан "24" Января 1990 г.

Ученый секретарь  
специализированного совета

Таран Ю.В.

#### Общая характеристика работы

Актуальность проблемы. XIX съезд МНРП определил, что одной из основных задач индустриализации страны является ускорение всех видов геологических работ, связанных с поиском, разведкой и разработкой месторождений полезных ископаемых при комплексном использовании земных недр.

Одним из путей повышения эффективности извлечения промышленно-ценных элементов является оперативное вмешательство в технологический процесс. Для этого необходимо совершенствовать методы определения содержания этих элементов и повышать их точность и экспрессность, а также снижать пределы обнаружения элементов.

В настоящее время методы и приборы экспериментальной ядерной физики, предназначенные для чисто фундаментальных исследований, все шире и шире применяются во многих областях прикладной науки и интенсивно внедряются в различные области народного хозяйства. Применение ядерных реакторов, электронных ускорителей, циклотронов и нейтронных генераторов намного расширяет возможности решения разнообразных задач науки, техники и народного хозяйства.

Одним из таких бурно развивающихся прикладных направлений атомной и ядерной физики является усовершенствование ядерно-физических методов анализа элементного состава вещества, в частности рентгенофлуоресцентного и ядерно-активационного методов, обеспечивающих чувствительность и производительность, во много раз превосходящие традиционные классические химические и физико-химические методы.

Для народного хозяйства Монгольской Народной Республики большое значение имеет применение и совершенствование методов анализа природных минералов. Для этих целей в большинстве случаев применяется нейтронно-активационный анализ (НАА) с использованием реакторов. Использование реактора в условиях Монголии пока недоступно, а строительство собственного реактора при существующем объеме потребностей в анализах не является рентабельным. В связи с этим необходимы экспериментальные исследования возможностей применения более дешевых и доступных по сравнению с ядерным реактором источников излучения на основе радиоактивных изотопов и малогабаритных ускорителей. На современном этапе развития прикладной ядерной физики весьма актуальными являются методы

ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ  
БИБЛИОТЕКА

экспрессного инструментального анализа состава вещества.

Основная цель работы. Целью настоящей работы является :

Разработка ядерно-физических методов инструментального анализа с применением малогабаритных установок (нейтронный генератор, циклический электронный ускоритель - микротрон) и радиоизотопных источников, способных обеспечить текущие потребности геологических служб Монгольской Народной Республики в анализе горных пород, угля, руд и продуктов их переработки.

Разработка методик количественного рентгенофлуоресцентного анализа ( РФА ) геологических образцов, полиметаллических руд и продуктов их переработки с применением полупроводниковых детекторов.

Для реализации основной цели настоящей работы использованы микротрон и комплекс детектирующей и измерительно-вычислительной техники лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

Для достижения поставленной цели было необходимо:

-измерить выходы радиоизотопов фотоядерных реакций для разработки многоэлементного гамма-активационного анализа;

-исследовать возможности использования и формирования оптимального смешанного ( $\gamma$ -n) -поля для комплексного определения содержания редкоземельных элементов;

-разработать методику многоэлементного инструментального активационного анализа состава горючих твердых ископаемых с помощью тормозного излучения ускоренных электронов микротрона;

-разработать методику инструментального анализа медно-молибденовых руд и продуктов их переработки для определения содержания основных и сопутствующих элементов;

-разработать методику радиоизотопного рентгенофлуоресцентного анализа, основанную на спектрометрах рентгеновского и мягкого (ниже 200 кэВ)  $\gamma$ -излучения с полупроводниковыми Si(Li), Ge(Li) и HP Ge детекторами;

-разработать методику предварительного концентрирования золота, серебра и некоторых элементов платиновой группы для определения их содержания в бедных рудах.

Научная новизна и значимость работы. Новыми результатами, полученными в данной работе, являются следующие:

-впервые активационным методом измерены выходы фотоядерных

реакций в полях тормозного излучения электронов с энергиями 14, 18 и 20 мэВ для элементов Tm, Dy, Yb, Hf, Os, Ir, Pt и Hg;

-найжены оптимальные значения энергии ускоренных электронов, при которых достигается максимальная чувствительность в определении элементного состава углей, руд и продуктов их переработки.

-создана экспериментальная техника и разработаны методики для циклического активационного анализа на основе малогабаритных установок;

-показаны возможности смешанного ( $\gamma$ -n)- поля для комплексного определения содержания редкоземельных элементов;

-впервые исследованы возможности и разработаны методы инструментального многоэлементного гамма-активационного анализа для определения элементного состава твердых горючих ископаемых;

-разработана экспрессная методика инструментального гамма-активационного анализа содержания хлора в углях с пределом обнаружения 10 г/т;

-впервые предложены и разработаны методы инструментального анализа медно-молибденовых руд и продуктов их переработки для определения основных и сопутствующих элементов;

-разработана экспрессная методика рентгенофлуоресцентного анализа содержания серебра в медном концентрате с пределом обнаружения 5-10 г/т.

Практическая ценность работы заключается в создании технической базы на основе доступных и дешевых установок (таких, как микротрон) или радиоизотопных источников для использования ядерно-физических методов анализа элементного состава различных веществ на предприятиях Монгольской Народной Республики.

Результаты исследований, представленные в диссертации, также могут быть применены для решения других народно-хозяйственных (например, экологических ) проблем Монголии.

Они успешно внедряются в практику решения ряда научных и прикладных проблем по гамма-активационному анализу веществ в лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, а начиная с 1985 года используются при проведении совместных исследований с лабораториями Самаркандского филиала Научно-исследовательского института прикладной физики Ташкентского госуниверситета, Пловдивского университета (НРБ), Института ядерной химии и технологии (г. Варшава,

ПНР) и Высшей технической школы ( г. Лейпциг, ГДР ).

Предложенные методы были использованы нами для аттестации при изготовлении стандартных образцов плавикового шпата, фосфорита, медно-молибденовых руд и продуктов их переработки, разработанных Госстандартом МНР. Стандартные образцы отвечают требованиям по метрологическим параметрам, предъявляемым к современным аналитическим методам.

Разработанные нами методики многоэлементного гамма-активационного анализа позволяют определять около 40 элементов в углях, 24 элемента в образцах медно-молибденовой руды и отвальных хвостах, 16 элементов в коммерческом медном концентрате и 7 элементов в молибденовом концентрате. Применение в Монголии методики определения основных и сопутствующих элементов медно-молибденовых руд и продуктов их переработки будут давать ежегодной большой экономический эффект.

Апробация работы. Основные результаты исследований, представленные в диссертации, докладывались на научных и методических семинарах научно-экспериментального отдела структуры ядра Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, ежегодных научных конференциях профессоров и преподавателей Монгольского государственного университета с 1976 по 1981 год, а также международных конференциях "IV Всесоюзное совещание по активационному анализу (г. Тбилиси, 1977), "IV Совещание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народнохозяйственных задач" (г. Дубна, 1981), "Природные условия и ресурсы некоторых районов МНР" (г. Улан-Батор, 1978, 1980, 1984), " IV Совещание по ядерно-аналитическим методам " (г. Дрезден, ГДР, 1987), " 7- я Польская спектро-аналитическая конференция" (г. Торун, ПНР, 1988) и "III Симпозиум по применению ядерно-физических методов в промышленности" (Пловдив, НРБ, 1988).

Публикации. Результаты исследований по теме диссертации опубликованы в 6 работах в "Ученых записках Монгольского госуниверситета", в препринтах ОИЯИ, 11 статьях в журналах "Атомная энергия", "Химия твердого топлива", "Журнал аналитической химии", "Isotopenpraxis" (ГДР) и в 7 аннотациях в сборниках тезисов и докладов на названных выше совещаниях и симпозиумах.

#### На защиту выносятся:

-результаты измерения активационным методом выходов фотоядерных реакций для элементов Tm, Dy, Yb, Hf, Os, Ir, Pt и Hg;

-новая методика многоэлементного инструментального гамма-активационного анализа элементного состава углей с использованием тормозного излучения ускоренных электронов микротрона;

-новые методики циклического активационного анализа меди, молибдена и ванадия с использованием нейтронного генератора и радиоизотопного источника ( $Be + ^{124}Sb$ );

-метод формирования смешанного ( $\gamma$ -n) поля на тормозном излучении ускоренных электронов микротрона для комплексного определения редкоземельных элементов;

-экспрессный способ рентгенофлуоресцентного анализа для определения содержания серебра в медном концентрате;

-методика рентгенофлуоресцентного анализа для определения содержания элементов от ванадия (Z=23) до молибдена (Z=42) в образцах горных пород и углей с использованием нового варианта метода внутреннего стандарта;

-методика инструментального нейтронно-активационного анализа иридия, основанная на регистрации каскадных гамма-квантов методом гамма-гамма-совпадений и антисовпадений для подавления комптоновской части гамма-спектра;

-метод концентрирования благородных металлов из природных минералов большой массы ( до 50 г ) с помощью газовой химии.

Объем работы. Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения и списка литературы. Содержит 166 страниц машинописного текста, 47 рисунков, 55 таблиц и библиографический список из 160 наименований.

#### Содержание диссертации

Во введении сформулирована основная цель работы, подчеркивается актуальность темы, представлены основные результаты исследований, полученные автором, и дано краткое содержание диссертации по главам.

В первой главе приведен обзор опубликованных работ по ядерно-физическим методам анализа элементного состава вещества.

Рассмотрены принципы и свойства нейтронно-активационного, гамма-активационного и рентгено-флуоресцентного методов анализа.

Даны характеристики основных источников нейтронов и  $\gamma$ -квантов, используемых для вышеперечисленных ядерно-физических методов анализа элементного состава вещества.

Из нереакторных источников рассмотрены более доступные для проведения НАА: радиоизотопный источник нейтронов на основе  $^{252}\text{Cf}$  и фотонейтронные источники, использующие гамма-излучение ускорителей электронов.

Большое внимание уделяется вопросам применения гамма-активационного анализа для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач, а также главным методическим задачам, связанным с оптимизацией нейтронно- и гамма-активационного и рентгенофлуоресцентного методов анализа. С учетом запросов практических задач и смежных областей исследований представляется актуальным развитие методов анализа, основанных на применении относительно несложных технических средств.

Во второй главе представлены и обсуждены результаты проведенных нами исследований по разработке ядерно-физических методов анализа элементного состава углей [1-4].

Исследование элементного состава углей стало актуальным для устранения (или снижения) вредного влияния на окружающую среду микроэлементов (As, Hg, U, Pb, Zn, Se, Mo, Co, Sb, Ni, Cr, Be, Cd, Li, V, Tl, Mn, F и др.), образующихся при сжигании (переработке) твердого топлива, и поиска путей использования полезных элементов (Ge, Ga, Re, Au, Ag, V, U, W, Mo, Hg и др.).

Разработка новых прогрессивных методов массового количественного определения основных и сопутствующих макро- и микрокомпонентов стала необходимой задачей из-за ужесточения требований к загрязнению окружающей среды газообразными и твердыми выбросами в виде золы и шлаков и внедрения безотходной технологии в производство.

Нами разработана методика многоэлементного инструментального гамма-активационного анализа (ИГАА) углей с использованием тормозного излучения циклического ускорителя электронов - микротрона, созданного в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ.

С целью разработки многоэлементного гамма-активационного анализа нами проведены эксперименты по определению выхода фотоядерных реакции для ряда элементов.

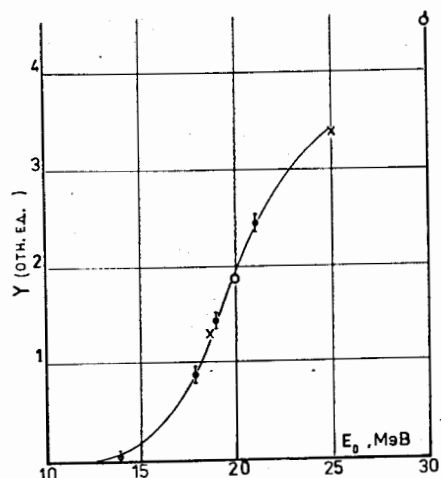


Рис. 1 Активационная кривая выхода фотоядерной реакции  $^{34m}\text{Cl}$ .

○ - данные настоящей работы.  
X и O - литературные данные.

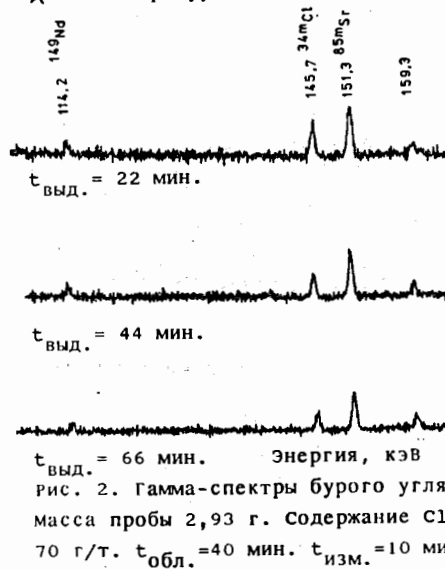


Рис. 2. Гамма-спектры бурого угля. масса пробы 2,93 г. Содержание  $\text{Cl}$ -70 г/т.  $t_{\text{обл.}} = 40$  мин.  $t_{\text{изм.}} = 10$  мин.

проблема обеспечения гамма-активационного анализа ядерными данными в настоящее время является одной из актуальных задач, а потребность в этих данных наиболее остра и специфична. методом наведенной активности измерены выходы 79 фотоядерных реакций на тормозном излучении электронов с энергиями 14, 18 и 20 МэВ. Для получения абсолютных значений выходов  $Y_{\gamma, X}(E_{\gamma m})$  в качестве реакций сравнения использовались реакции  $(\gamma, n)$  на  $^{63}\text{Cu}$  и  $^{65}\text{Cu}$ , сечения которых хорошо известны. Из данных  $Y_{\gamma, X}(E_{\gamma m})$  выходов можно вычислить сечения  $\sigma_{\gamma, X}(E_{\gamma m})$ , используя метод разности фотонов. На рис. 1 показана кривая выхода реакции  $^{35}\text{Cl}(\gamma, n)^{34m}\text{Cl}$ , полученная активационным методом. Результаты измерений находятся в качественном согласии с данными других авторов. Для сравнения приведена экспериментальная кривая выходов, на которой нанесены наши и литературные данные. Эти результаты были использованы при анализе содержания хлора в углях. На рис. 2 приведены гамма-спектры угля, полученные при кратковременном облучении тормозным излучением микротрона.

При разработке методики многоэлементного гамма-активационного анализа энергия тормозного излучения микротрона 18 МэВ выбрана оптимальной. При этой энергии отсутствует фон от позитронного распада  $^{11}\text{C}$ , а влияние интерферирующих, кроме основных ( $\gamma, n$ ) и ( $\gamma, p$ ) фотоядерных реакций значительно снижается.

Разработанная с применением микротрона методика позволяет определять более 40 элементов в углях и продуктах их сжигания. В результате проведенного исследования установлен оптимальный режим проведения анализа.

В табл. 1 даны временные режимы выдержки после облучения и измерения для определяемых элементов.

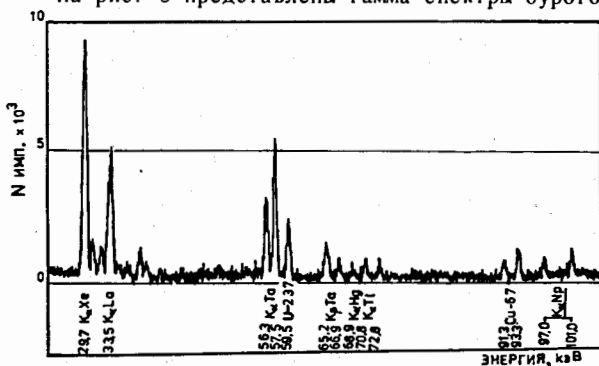
Таблица 1.

Оптимальные времена выдержки и измерения			Определяемые элементы
	Время выдержки	Время измерения, мин.	
I	0,5 ч	5 - 10	K, Cl, Sr, Nd, Zn
II	2-5 ч	30	Er, Sc, Fe, Sr, Ca, Ti, Mg, Ge, Cu, Ta Sm, Ni, Cs, Sb, Mo, Ba, Zr, Hg, Pb, Th
III	5-7 сут.	60	As, Nb, Rb, Au, Tl, Re, U
IV	20 и более сут.	60	Na, Cr, Mn, Co, Zn, Y, Ce, Nd Se, Te, W, Hg

Использование тонких Ge(Li) или HP Ge детекторов мягкого и рентгеновского излучений для измерения наведенной активности образцов угля дало возможность существенно расширить количество определяемых элементов и снизить пределы обнаружения ряда элементов, таких, как Nd, Er, W, Ta, Tl, Pb, Au, Hg, Th и U.

На рис. 3 представлены гамма-спектры бурого угля, измеренные с помощью тонкого Ge(Li) детектора.

Рис. 3. Низко-энергетический гамма-спектр бурого угля. масса пробы 3 г.  
 $t_{\text{обл.}} = 4 \text{ ч.}$   
 $t_{\text{выд.}} = 10 \text{ сут.}$   
 $t_{\text{изм.}} = 1 \text{ ч.}$



Использование короткоживущих активностей позволяет определять концентрации в углях ряда золообразующих элементов Si, Fe, Ba, Sr, Zr и одного из вредных компонентов для окружающей среды - хлора при сжигании углей. В табл. 2 даны результаты анализа углей из 17 месторождений Монголии.

Таблица 2.

Результаты ИГАА углей из 17 месторождений МНР					
Элементы	Единицы измерения	Интервал содержания	Геометрическое среднее	Предел обнаружения	Предел определения
Кремний	%	0,85 - 8,34	2,35	0,05	0,08
Натрий	-	0,05 - 0,3	0,13	0,03	0,1
Магний	-	0,03 - 0,8	0,23	0,02	0,1
Кальций	-	<0,02 - 2,0	0,57	0,02	0,1
Титан	-	0,02 - 0,32	0,12	0,01	0,1
Марганец	-	0,007 - 0,08	0,01	0,004	0,025
Железо	-	0,5 - 2,7	0,90	0,1	0,3
Хлор	г/т	10 - 80	30	5	10
Скандий	-	1 - 31	4	1	10
Хром	-	5 - 51	20	5	20
Кобальт	-	2 - 10	5	1	10
Никель	-	2 - 45	9	1	10
Медь	-	<10	-	10	50
Цинк	-	5 - 90	39	5	10
Германий	-	<10	-	10	30
Мышьяк	-	1 - 28	7	0,5	10
Рубидий	-	2 - 40	12	2	15
Стронций	-	100 - 1900	193	0,5	10
Иттрий	-	3 - 32	10	2	10
Цирконий	-	11 - 141	39	1	5
Ниобий	-	1 - 10	2	1	10
Молибден	-	2 - 16	5	1	5
Олово	-	<10	-	10	20
Сурьма	-	1 - 3	1,6	0,5	5
Цезий	-	1 - 8	2,4	0,5	5
Барий	-	60 - 670	182	5	15
Церий	-	1 - 70	16	5	15

Продолжение табл. 2

Неодим	-	1 - 10	2	3	20
Самарий	-	1 - 20	4	0,5	5
Эрбий	-	1 - 20	2	0,1	2
Тантал	-	1 - 4	1,4	0,1	2
Вольфрам	-	<5	-	5	15
Рений	-	<1	-	1	10
Таллий	-	<1	-	1	10
Свинец	-	2 - 300	9,5	2	10
Торий	-	1 - 15	3,7	0,1	5
Уран	-	1 - 300	6,3	0,1	2

Разработаны одноэлементные экспрессные методики инструментального анализа хлора, урана и тория с применением тормозного излучения микротрона в углях [6-10]. Пределы обнаружения разработанных методов в углях с использованием микротрона достигают для хлора -5 г/т, а урана и тория -0,5 г/т.

Проведены исследования по прогнозированию уровней загрязненности окружающей среды и возможности концентрирования некоторых элементов в процессе сжигания угля на промышленных установках. Активационными методами с помощью микротрона [10] были получены распределения более 36 элементов по различным фракциям продуктов сжигания угля (исходный уголь, зольные уносы, шлаки и др.).

С целью экспрессного определения содержания ванадия в углях нами разработана циклическая методика анализа, позволяющая использовать нейтронный источник ограниченной мощности. При использовании нейтронного источника с выходом  $5 \cdot 10^7$  нейтр.  $\text{с}^{-1}$  достигнут предел обнаружения 5 г/т.

В третьей главе описаны разработанные нами экспрессные методики инструментального многоэлементного анализа основных и сопутствующих элементов медно-молибденовых руд и продуктов их переработки. Разработка этих методик имеет большое значение для экономики МНР, так как указанные руды являются основными полезными ископаемыми, добываемыми в Монголии. В настоящее время перерабатывается 20 миллионов тонн руд в год.

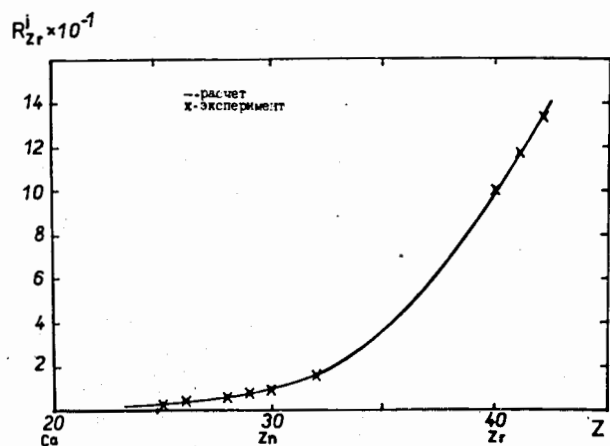
Методики определения основных и сопутствующих элементов медно-молибденовых руд и продуктов их переработки разработаны с использованием наиболее простых установок, таких, как нейтронный

генератор, изотопный источник нейтронов  $^{252}\text{Cf}$  (244 мкг) и радиоизотопный рентгенофлуоресцентный спектрометр.

Одной из основных задач в количественном РФА является корректный учет взаимного влияния элементов в пробах. Возможность ее решения с помощью различных вариантов способа стандарта-фона рассмотрена на конкретном примере количественного определения элементов в геологических образцах, в частности, меди и молибдена, в медно-молибденовых рудах.

Известно, что зависимость интенсивности аналитической линии меди и молибдена от содержания железа, мышьяка, рубидия, стронция и циркония в пробах может быть учтена при использовании отношения интенсивностей некогерентно и когерентно рассеянного рентгеновского излучения источника возбуждения  $^{109}\text{Cd}$  ( $E_\gamma = 22,2$  кэВ  $K_\alpha$  Ag). С этой целью экспериментально найдены значения относительных интенсивностей флуоресценции  $I_{\text{Cu}}$  (или  $I_{\text{Mo}}$ ) для  $\text{Cu}$  ( $\text{Mo}$ )  $K_\alpha$ -линии, интенсивностей когерентного  $I_K$  и некогерентного  $I_{\text{HK}}$  рассеянного излучения и их отношения  $R$  для многокомпонентных образцов. Учет этого отношения при определении меди и молибдена в медно-молибденовых рудах позволил достичь в 1,5-2 раза большей точности по сравнению с методикой, в которой применялась нормировка только по некогерентно-рассеянному излучению. При этом интенсивность аналитических линий элемента корректируется с помощью величины  $R=I_{\text{HK}}/I_K$  и определяется простой градуировочной зависимостью  $Y_A=a+b C_A(I)$ , где  $Y_A=I_A/B_A$  - нормированная интенсивность аналитических линий определяемого элемента,  $C_A$  - его концентрация, а  $a$  и  $b$  - коэффициенты, полученные из эксперимента.

Физически обоснован и предложен новый вариант способа внутреннего стандарта, отличающийся от известных ранее способов повышенной экспрессностью, простотой технической реализации и применением минимального количества стандартных материалов [11,12]. Идея метода заключается в использовании предварительно определенных экспериментальным путем коэффициентов относительного удельного выхода флуоресценции каждого из элементов. Тогда, с учетом найденных коэффициентов, определение их содержания проводится по измеренным интенсивностям флуоресцентных излучений и известной концентрации одного из этих элементов. На рис. 4 показана зависимость коэффициентов относительной удельной интенсив-



ности от атомного номера  $Z$  для элементов от ванадия до молибдена.

Рис. 4. Зависимость относительной удельной интенсивности от атомного номера  $Z$  для источника  $^{109}\text{Cd}$ .

по разработанной нами методике проведен анализ более 5000 образцов медно-молибденовых руд для отладки технологических процессов во время запуска горнообогатительного комбината "ЭРДЭНЭТ" в Монголии.

Основные преимущества данного метода состоят в следующем:

- возможность определения содержания некоторых элементов без использования стандартных образцов для этих элементов;
- высокая экспрессность метода из-за применения только одного элемента сравнения для группы элементов.

Контроль воспроизводимости и правильности разработанных методик анализа проводился путем определения содержания элементов в стандартных образцах горных пород, руд и почв СССР (СП-1, СП-2, СП-3, СТ-1А, СГД-1А, СГ-1А), ГДР (GM, TB, TS) и МАГАТЭ (Soil-5 и Soil-7).

Воспроизводимость анализов медно-молибденовых руд проверена путем сравнения результатов с химическим анализом (рис. 5), а метрологическая характеристика метода оценена методом вариационной статистики [13]. Расхождение результатов РФА и химического анализа находится в пределах ошибок, допускаемых требованием III категории аналитических методов.

Разработана экспрессная методика РФА для определения содержания серебра в медном концентрате [16]. Анализ осуществляется в

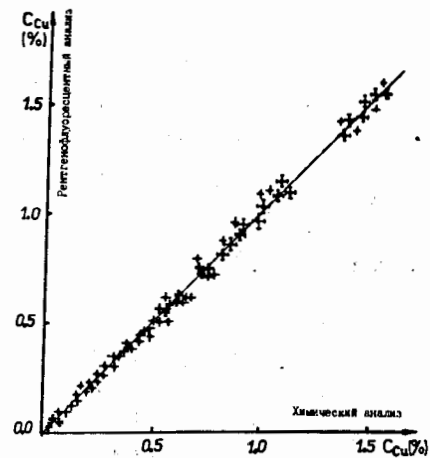


Рис. 5. Сравнение результатов

рентгенофлуоресцентного и химического методов анализа.

промышленного продукта. Только в 1980 году комбинат получил за счет этого прибыль 5 миллион тугриков.

Хотя радиоизотопный РФА является наиболее распространенным и мощным методом анализа, но на практике достигаемый с его помощью предел обнаружения не всегда удовлетворяет потребностям технологического контроля.

С целью снижения пределов обнаружения основных и сопутствующих элементов медно-молибденовых руд и продуктов их переработки разработана методика ИГАА. В табл. 3 и 4 даны результаты анализа образцов медно-молибденовых руд и коммерческого концентрата меди. Воспроизводимость и правильность разработанных методов анализа проверены сравнением с результатами, полученными другими методами.

В результате анализа, например, установлено, что содержание рения в коммерческом концентрате молибдена выше 500 г/т.

Четвертая глава посвящена описанию эксперимента по разработке определения благородных и редкоземельных элементов в природных образцах.

Определение благородных и редкоземельных элементов является продолжением исследований по разработке методик комплексного

насыщенных слоев с применением радиоизотопного источника  $^{241}\text{Am}$ , активностью  $1.11 \cdot 10^9$  Бк и Si(Li)-полупроводникового детектора. Предел определения серебра данным способом составляет 5 г/т, при времени измерения 10 минут. Данная методика была использована для определения содержания серебра в коммерческом медном концентрате горнообогатительного комбината "ЭРДЭНЭТ".

На основании полученных результатов о содержании серебра были пересмотрены цены



анализа углей, медно-молибденовых руд и продуктов их переработки. Благородные и редкоземельные элементы в этих природных образцах в большинстве случаев присутствуют в концентрациях менее 1 г/т. Поэтому методики анализа требуют специфического подхода.

Таблица 3.

Результаты определения содержания элементов СО УСЗ 3-85 "медно-молибденовая руда" (МНР) (n = 4, p = 0,95)

Элементы	Содержание в процентах	
	ИГАА	Найдено другими методами
Cu	0,820 (26)	0,82 (1)*
Mo	0,0190 (20)	0,017 (1)*
Fe	3,030 (20)	(2,786)
As	0,0215 (15)	(0,0186)
Sb	0,0025 (5)	(0,0025)
Na	1,14 (2)	(1,15)
Mg	0,46 (2)	(0,43)
Ca	0,20 (2)	(0,21)
Ti	0,25 (2)	(0,282)
Mn	0,012 (1)	(0,015)
Cr	0,0022 (2)	(0,0020)
Ni	0,0019 (3)	(0,0024)
Zn	0,011 (1)	(0,0129)
Co	0,0016 (3)	-----
Pb	0,0089 (5)	(0,00774)
Zr	0,014 (2)	(0,0100)
Rb	0,0081 (11)	(0,0078)
Ce	0,0052 (9)	(0,0044)
Nb	0,0016 (6)	(0,0013)
W	0,0027 (9)	(0,0030)
Ba	0,101 (14)	(0,0890)
Sr	0,0214 (25)	(0,0177)
Th	0,0004 (1)	(0,00033)
U	0,0003 (1)	(0,000298)

Примечание: -в скобках дана погрешность последней цифры

\*) - аттестованные содержания.

Таблица 4.

Результаты определения содержания основных и сопутствующих элементов СО УСЗ 5-86 "медный концентрат" МНР. (n=4, p=0,95)

Элементы	Содержание в процентах	
	ИГАА	Найдено другими методами
Cu	31,87 (36)	32,0 (2)*
Mo	0,13 (2)	0,14 (1)*
Fe	19,6 (3)	19,8 (6)*
Zn	0,125 (12)	0,15 (1)*
Pb	0,016 (2)	0,014 (1)*
As	0,28 (5)	-----
Sb	0,037 (7)	(0,040)
Se	0,0085 (3)	0,0077 (4)*
Te	0,0010 (8)	0,0008 (3)*
Zr	0,0042 (9)	(0,0040)
Ag	0,0062 (4)	0,0066 (2)*
Au	« 0,0005	(0,00001 - 0,0002)
Ni	0,0061 (4)	-----
Co	0,0081 (6)	-----
Ge	0,0009 (2)	-----
Mg	0,016 (5)	-----

Примечание: -в скобках дана погрешность последней цифры  
\*) - аттестованные содержания.

Нами усовершенствована методика определения содержания золота с помощью микротрона. За счет более точного установления пространственного распределения полей резонансных нейтронов и некоторого усовершенствования способов обработки результатов анализа производительность была повышена в 1,5-2 раза (рис. 6). Предел обнаружения золота с использованием резонансных нейтронов уран-графитового куба микротрона составил  $5 \cdot 10^{-2}$  г/т в рудах и 1 г/т в медном концентрате.

На основе метода гамма-гамма-совпадений для регистрации каскадных гамма-квантов  $^{192}\text{Ir}$  ( $T_{1/2}=74,2$  сут) разработана методика массового анализа иридия. Данная методика успешно использована для определения содержания иридия в хромитах. Достигнут предел обнаружения  $3 \cdot 10^{-2}$  г/т [17].

Для определения содержания благородных элементов Ir, Pt и

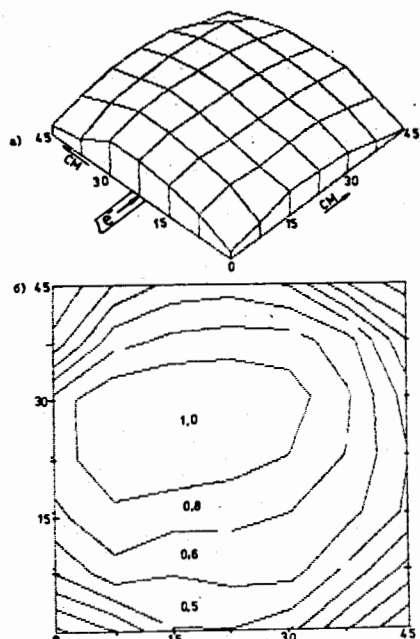


Рис. 6. Пространственное распределение резонансных нейтронов в каналах облучения образцов ( в графитовом кубе ): а) - изометрическое и б) - топографическое изображение.

Результаты определения содержания Ir, Pt и Au в некоторых природных материалах ( $t=1,5$  ч,  $d=40$  мм,  $V=5$  л/ч,  $T=1200^{\circ}\text{C}$ )

Породы	Масса на- вески, г	Содержание ( г/т )		
		Ir	Pt	Au
Хромиты	10	0,24 (6)	$\leq 0,05$	$\leq 0,05$
медный концентрат	10	$\leq 0,03$	$\leq 0,08$	4,0 (5)
Никелевый концентрат	10	$\leq 0,10$	5,4 (12)	0,10 (2)
Бурый уголь	50	$\leq 0,02$	$\leq 0,02$	0,7 (1)

Примечание: в скобках даны погрешности последних цифр.

др. в случае-использования фотонейтронов микротрона, где плотность потока составляет всего  $10^8-10^9$  нейтр.см $^{-2}$ с $^{-1}$ , требуется предварительное концентрирование. Нами разработан метод концентрирования ряда благородных элементов с последующим использованием для определения их содержания инструментальных активационных методов анализа на микротроне. Концентрирование Au, Ir, Pt, Ru, Os и Re из пород различных типов проводилось путем возгонки в потоке воздуха при температуре  $1000-1200^{\circ}\text{C}$ . В табл. 5 даны наши результаты анализа ряда благородных элементов в природных образцах. Пределы обнаружения для некоторых из благородных металлов, достигнутые с помощью описанной методики, следующие: Ir- $2 \cdot 10^{-2}$  г/т, Au- $2 \cdot 10^{-3}$  г/т и Pt- $2 \cdot 10^{-2}$  г/т [18,19].

Таблица 5.

Для определения содержания редкоземельных элементов изучена перспективность использования смешанного гамма-и нейтронного поля излучения. Эксперименты по получению смешанного гамма-и нейтронного поля про-

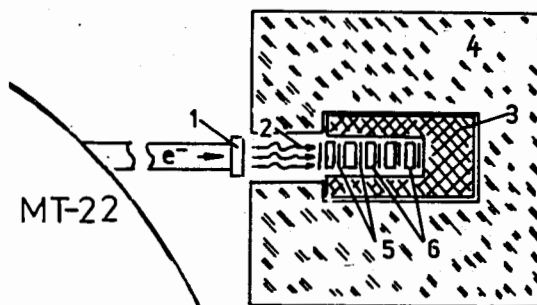


Рис. 7. Схема установки смешанного ( $\gamma$ -n) поля. 1-тормозная мишень; 2-тормозное излучение; 3-свинец; 4-замедлитель из плексигласа; 5-мониторы; 6-образцы и стандартные материалы.

ведены на пучке тормозного излучения микротрона [20] (рис. 7). Использование смешанного поля позволяет получить информацию о содержании всех РЗЭ в одном облучении, что исключает ошибки, связанные с неодинаковыми условиями экспериментов НАА и ГАА.

В пятой главе описаны существующие сейчас нейтронные источники и измерительно-вычислительные системы, используемые для проведения активационного анализа в Монголии [22,23].

Кроме того, описан разработанный нами проект создания в МНР новой лаборатории активационного анализа. Основной физической установкой Лаборатории активационного анализа ( ЛАА ) МНР будет циклический ускоритель электронов - микротрон МТ-22, созданный в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ. с целью получения фотонейтронов на одном из каналов пучка будет размещен уран-бериллиевый конвертор. В качестве замедлителя будет использован графитовый куб размером  $150 \times 150 \times 150$  см.

Измерительно-вычислительный центр новой лаборатории будет создан на базе персональных компьютеров и 4-5 гамма- спектрометрических трактов с полупроводниковыми детекторами.

Согласно предварительной оценке, эта лаборатория будет рентабельной в случае выполнения 30-50 тысяч анализов в год.

Настоящие исследования по разработке методик элементного анализа состава вещества были проведены в связи с планами создания в МНР указанной лаборатории.

В заключении сформулированы основные результаты диссертационной работы :

1. С целью обеспечения ядерными данными многоэлементного гамма-активационного анализа измерены выходы 79 фотоядерных реакций по активационной методике, в том числе впервые получены данные для 8 элементов: Tm, Dy, Yb, Hf, Os, Ir, Pt и Hg.

2. На основе проведенных экспериментальных исследований изучены, предложены и реализованы:

- оптимальные способы одноэлементного гамма-активационного анализа для определения содержания хлора, серебра, урана и тория в углях месторождений МНР;

- способы одновременного определения Si, Fe, Sr, Zr и Ba в углях при кратковременном облучении тормозным излучением;

- способы одновременного определения более 40 элементов в углях при 4-5-часовом облучении тормозным излучением;

- циклический метод анализа ванадия в углях.

3. В результате проведения работ с использованием разработанных методик многоэлементного гамма-активационного анализа углей показаны возможности оценки степени загрязнения окружающей среды при сжигании угля на электростанциях и на других промышленных установках.

4. Разработана и опробована новая методика инструментального анализа монгольских медно-молибденовых руд и продуктов их переработки для экспрессного определения в них основных и сопутствующих элементов. Пределы обнаружения и точность анализов вполне удовлетворяют современным требованиям аналитических методов.

Применение разработанной методики в промышленности МНР может ежегодно давать большой экономический эффект за счет замены применяемого в настоящее время химического метода.

5. Исследовано пространственное распределение потоков тепловых и резонансных нейтронов в графитовом кубе при использовании радионуклидных  $^{124}\text{Sb} + \text{Be}$  и  $^{252}\text{Cf}$  источников и фотонейтронного уран-бериллиевого конвертора микротрона. Это позволило определить оптимальные условия облучения при усовершенствовании методик анализа.

6. Впервые внедрен в аналитическую практику Монголии энергодисперсионный радионуклидный рентгенофлуоресцентный анализ. Раз-

работаны количественные методы многоэлементного анализа медно-молибденовых руд, в частности анализа серебра в медном концентрате с пределом обнаружения 5-10 г/т. На эту методику получено авторское свидетельство.

7. На пучке тормозного излучения микротрона сформировано смешанное гамма-нейтронное поле. Это позволило создать оптимальную комплексную методику для определения содержания редкоземельных элементов.

8. Разработанная физико-химическая методика концентрирования позволяет эффективно выделять благородные металлы и рений из различных природных материалов массой до 50 г и определять их содержание путем последующего гамма- и нейтронно-активационного анализа с использованием микротрона.

9. Показана большая перспективность применения методов гамма- и нейтронно-активационного анализа с использованием микротрона для решения многих актуальных и перспективных проблем народного хозяйства МНР.

Основные результаты опубликованы в следующих работах:

1. Многоэлементный гамма-активационный анализ углей /Содном Н., Гэрбиш Ш., Жучко В.Е., Маслов О.Д., Христов Х., Фидеркевич А. // Химия твердого топлива.- 1988.-№ 6. -С.29-36.
2. Активационный анализ углей на микротроне / Содном Н., Гэрбиш Ш. // Isotopenpraxis. -1989. V.25, No 7.-P.277-281.
3. Определение элементного состава углей методами ИНАА, ИГАА и РФА / Содном Н., Гэрбиш Ш., Маслов О.Д., Гаврилов К.А. и др.; Объед ин-т ядерн. исслед. -Препринт. -Дубна, 1987. - 18-87-694. -10 с.
4. Instrumental Activation Analysis of the Chlorine Content of Coal / Sodnom N., Gerbish Sh., Maslov O.D. et.al. // Isotopenpraxis. -1989. -V.25, No. 7. -P.274-277.
5. Исследование радиоактивности костей динозавра с помощью гамма-спектрометра / Гэрбиш Ш., Гун-Аажав Т., Сэрээтэр Ж. и др. // Атомная Энергия. -1973. -Т. 35, No. 2. -С.130-132.
6. Исследование радиоактивности древних костей ядерно-физическими методами / Ганзориг Ж., Гун-Аажав Т., Гэрбиш Ш. и др.// Ученые записки Монгольского госуниверситета. -1973. No. 43. -С.81-95.

7. Определение содержания серебра в углях / Содном Н., Гэрбиш Ш., Белов А.Г., Маслов О.Д. и др.; Объед. ин-т ядерн. исслед. -Препринт. -Дубна, 1989. -18-89-33. -6 с.
8. Определение содержания ванадия в углях / Гэрбиш Ш., Кучер А.М., Леонард М., Тетерев Ю.Г.; Объед. ин-т ядерн. исслед. -Препринт. -Дубна, 1989. -18-89-137. -7 с.
9. Циклический активационный анализ с перемещением образца / Гэрбиш Ш., Сэрээтэр Ж., Зузаан П. и др.// Ученые записки Монгольского госуниверситета. -1973. -№. 43. -С.77-80.
10. Распределение элементов в процессе сжигания углей / Содном Н., Гэрбиш Ш., Маслов О.Д. и др. // Isotopenpraxis. -1989. -V.25, No.7. -P.286-289.
11. Рентгено-спектральное определение малых содержаний элементов от V до Mo с применением нового варианта эталонирования на спектрометре с полупроводниковым детектором / Гэрбиш Ш., Белов А.Г., Содном Н. и др. // Атомная Энергия. -1980. -Т.49. -С.91-94.
12. Определение содержания ниобия в геологических образцах с помощью рентгенофлуоресцентного спектрометра с полупроводниковым детектором / Гэрбиш Ш., Зузаан П., Далхсурэн Б. и др. // Ученые записки Монгольского госуниверситета. -1983. -Т.84, No. 4. -С.135-141.
13. Определение содержания основных и сопутствующих элементов медно-молибденовой руды методом РФА / Гэрбиш Ш., Содном Н. // Научное сообщение Монгольского госуниверситета. -1978. -Т. 54, No 1 -25 с.
14. Инструментальный нейтронный активационный анализ руд и продуктов их переработки с помощью сурьмяно-бериллиевого источника нейтронов / Гэрбиш Ш., Леонард М., Кежек И., Содном Н. // Физика тяжелых ионов - 1985: Сб. аннотаций / Объед. ин-т ядерн. исслед. -Дубна, 1986. -P7-86-322. -С.79-80.
15. Определение процентного содержания меди в образцах медных руд методом НАА / Гэрбиш Ш., Ганбаатар Н., Сэрээтэр Ж. // Труды Ин-та Физики и техники АН МНР. -1973. -№.12. -С.55.
16. Экспрессная методика определения содержания серебра в медном концентрате / Гэрбиш Ш., Энхбат С., Энхтуяа М. // Ученые записки Монгольского госуниверситета. -1983. -Т. 84, No. 4. -С. 155-156.

17. Массовое определение содержания иридия инструментальным нейтронно-активационным методом / Флеров Г.Н., Гэрбиш Ш., Жучко В.Е. и др.// Isotopenpraxis. -1989. -V.25, No.7. -P.281-286.
18. Газохимическое концентрирование благородных металлов для определения их содержания в природных материалах. Чубурков Ю.Т., Жуйков Б.Л., Гэрбиш Ш., Альперт Л.К. и др.; Объед. ин-т ядерн. исслед. -Препринт. -Дубна, 1988. -18-88-616. -13 с.
19. Поиск путей концентрирования благородных металлов методами газовой химии при анализе образцов большой массы. Чубурков Ю.Т., Гэрбиш Ш., Альперт Л.К. и др. // Физика тяжелых ионов - 1985: Сб. аннотаций работ / Объед. ин-т ядерн. исслед. -Дубна, 1986. -P7-86-322. -С.33-34.
20. Determination of Rare-Earth elements by the simultaneous gamma-neutron activation analyses using a microtron / Vo Dac Bang, Tran Dai Nghiep, Tran Duc Thiep, Gerbish Sh. et. al. // J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters. -1984. -V.86, No.5. -P.291-302.
21. Нейтронно-активационный анализ костей динозавра на уран, торий и редкоземельные элементы / Ганзориг Ж., Гун-Аажав Т., Гэрбиш Ш. и др. // Атомная Энергия. -1973. -Т.35. -С.349-351.
22. Ядерно-физические методы элементного анализа, развиваемые в Монг. гос. ун-те / Гэрбиш Ш., Зузаан П., Содном Н. и др. // Ученые записки Монг. госуниверситета. -1983. -Т. 84, -No. 4. -С.15-19.
23. Исследования по разработке и применению ядерно-физических методов анализа в Лаборатории ядерных исследований Монгольского госуниверситета / Гэрбиш Ш., Далхсурэн Б., Зузаан П. и др. // IV Совещание по использованию новых ядерно-физических методов для решения научно-технических и народно-хозяйственных задач, Дубна, 20-23 октября 1981 г.: Сб. аннотаций. -Дубна, 1982. -P18-82-117. -С.267-268.

Рукопись поступила в издательский отдел  
23 ноября 1989 года.