

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2024-3-44-48>

УДК: 543.621

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПНЕВМОТРАНСПОРТНОЙ СИСТЕМЫ НА РЕАКТОРЕ ВВР-К ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ЗОЛОТА В ГЕОЛОГИЧЕСКИХ ОБРАЗЦАХ

С. Г. Ленник, К. А. Бедельбекова*, Е. К. Соколенко

РГП «Институт ядерной физики» МЭ РК, Алматы, Казахстан

* E-mail для контактов: kamshat1980@mail.ru

Изучена возможность определения золота в 200 мг порошковых образцах методом ИНАА с применением пневмотранспортной системы КИР ВВР-К. Проведены исследования проб золотосодержащей руды и хвостов ее переработки. Отработаны режимы облучения для проведения унифицированных исследований. Для нескольких режимов исследований определены пределы обнаружения золота. Проведен анализ полученных результатов. Данный метод может быть успешно применен для разбраковки и анализа проб при проведении исследований больших партий геологических образцов.

Ключевые слова: золото, нейтронно-активационный анализ, пневмотранспортная система, содержания, пределы обнаружения.

ВВЕДЕНИЕ

Существующие методы для определения элементного состава исследуемых образцов имеют ряд достоинств и недостатков [1, 2]. Например, масс-спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой обладает хорошей чувствительностью и большим диапазоном определяемых элементов, но при этом требует предварительной процедуры химического разложения образца [3]. Метод рентгено-флуоресцентного анализа не пригоден для определения содержания золота менее 10 мкг/г. Высокочувствительным методом для определения малых примесей золота в твердых образцах со слабоактивируемой матрицей является инструментальный нейтронно-активационный анализ (ИНАА). Золото имеет высокое сечение активации тепловыми и резонансными нейтронами и обладает хорошо доступной для гамма-спектрометрических измерений аналитической линией наведенной активности радионуклида ^{198}Au . Метод ИНАА не требует сложной химической пробоподготовки (образцы сушатся, измельчаются до размера частиц 200 меш) и большого расхода образцов (используются навески массой менее 1 г). Надежность количественного определения связана с выбором стандартных образцов (СО), важной характеристикой которых является масса представительной навески, поскольку известно, что золото может быть неравномерно распределено в образце даже при истирании образца до размера 200 меш (74 мкм). Предел обнаружения (ПО) золота при 2-х часовом облучении 100 мг навесок руды в вертикальном канале реактора ВВР-К нейтронами с плотностью потока порядка $10^{13} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$ составляет 0,001 мкг/г. Зачастую такого низкого предела обнаружения золота и не требуется (например, при проведении массового анализа большой партии геологических проб с целью оценки золотых запасов и/или рентабельности извлечения) и тогда привлечение метода ИНАА кажется необоснованным. К недостаткам метода ИНАА следует отне-

сти требования к наличию достаточно мощного источника нейтронов, образование высокоактивных облученных образцов (по сути источников ионизирующего излучения), привлечения специально обученного персонала к проведению работ, а также необходимость учета и хранения источников согласно санитарным правилам «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности РК».

В настоящей работе приводятся результаты изучения возможности определения золота методом ИНАА с облучением образцов с помощью пневмотранспортной системы (ПТС) [4] с плотностью потока нейтронов в облучательной камере $10^{12} \text{ н} \cdot \text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$. Облучение на ПТС позволит увеличить производительность, существенно снизить флюенс (произведение потока на время облучения), что приведет к снижению активности облученных образцов, уменьшению дозовой нагрузки на персонал группы А.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

ПТС предназначена для проведения ИНАА по короткоживущим радионуклидам. Навеска с исследуемым образцом помещается в транспортную капсулу из полиэтилена низкого давления, которая под действием сжатого воздуха по трубопроводу перемещается в облучательную камеру, установленную в сухом горизонтальном канале реактора ВВР-К. Поскольку канал неохлаждаемый, а полиэтилен обладает значительным коэффициентом теплового расширения (что может привести к застреванию капсул в трубопроводе ПТС), то длительность облучения образцов ограничена максимально допустимой температурой нагрева транспортной капсулы [5]. Это вызывает ряд ограничений по массе и времени облучения образцов.

Увеличение массы образца положительно скажется на представительности навески, но при массе более 200 мг возникает ряд сложностей: поскольку размеры пакетика с такой навеской превышают диаметр

транспортной капсулы, необходимо насыпать образец в дорогостоящие полиэтиленовые вials. Кроме того, в ходе ранее проведенных исследований золотосодержащих микрокерна (с массой 5–11 грамм) [6], экспериментально установлено, что чрезмерно массивный образец, двигаясь внутри ПТС с большой скоростью, может вызвать механические повреждения облучательной и измерительной камер при ударе. В связи с этим, исследования тяжелых (более 1 г) образцов были прекращены.

Возвращаемый из облучательной камеры образец испускает ионизирующее излучение, поэтому, с помощью управляющего программного обеспечения ПТС, образцы после облучения автоматически направляются в свинцовый колодец, что в значительной степени обеспечивает экранирование находящегося в помещении персонала от гамма-излучения.

В качестве стандартных образцов состава для определения концентрации золота применялись флотконцентраты СЗР-3 (ГСО 8815-2006), СЗР-4 (ГСО 8816-2006) (производства Института геохимии им. А.П. Виноградова, г. Иркутск) и образцы золотосодержащих руд OREAS 506, OREAS 600b, OREAS 607b, OREAS 907 и OREAS 908 производства OREAS, Melbourne, Australia. Для флотконцентрата в паспорте указана масса представительной навески при определении золота – 100 мг. В паспортах на стандартные образцы OREAS указано, что содержание золота определено методом нейтронно-активационного анализа по 20 параллельным 85 мг навескам.

В качестве исследуемых образцов были использованы образцы золотосодержащей руды (коды образцов от 1 до 9) и хвостов ее переработки (коды образцов 11–12). Образцы для исследования были получены в пригодном для анализа виде, поэтому пробоподготовка в виде высушивания, механического измельчения проб, просеивания и т.п. не требовалась.

С помощью аналитических весов METTLER TOLEDO с точностью 0,1 мг были отобраны навески массой 200 мг. Навески запаивались в двойные полиэтиленовые пакеты квадратной формы, размером 1×1 см². Это позволяет избежать просыпания образца внутри капсулы в случае повреждения одного из пакетов. Затем образец помещался посередине транспортной капсулы с помощью двух пластиковых трубок-фиксаторов одинаковой длины [7].

Все образцы исследованы в одинаковом режиме: массы навесок 200 мг, время облучения 2 минуты на ПТС. Время «остывания» (прошедшее после активации капсулы) составляло 5 суток.

Регистрация спектров стандартных образцов и исследуемых образцов с номерами от 01 до 06 выполнялась на полупроводниковом гамма-спектрометре ORTEC GEM40P4 без излучения из транспортных капсул с использованием специальной насадки. Время регистрации спектров наведенной активности составляло 20 мин. В таком же режиме была исследо-

вана пустая транспортная капсула с фиксаторами внутри. Поскольку в капсуле и трубках также содержится ряд элементов, подверженных нейтронной активации, анализ спектра требовался для того, чтобы убедиться в отсутствии каких-либо следов золота.

Исследуемые образцы с номерами от 07 до 11 через 5 суток после облучения извлекались из транспортных капсул и размещались в специальных пластиковых контейнерах. Регистрация спектров выполнялась на том же гамма-спектрометре с помощью оригинального устройства смены образцов (УСО), позволяющего измерять образцы в контейнерах на заданной высоте с установленным временем в автоматическом режиме без участия оператора. Время набора спектров составило 2 часа.

При регистрации спектров все образцы размещались на расстоянии 2,5 см от окна детектора. Загрузка (мертвое время) гамма-спектрометра не превышала 3%. Одинаковый режим облучения и «остывания» был выбран специально для отработки разбраковки образцов в реальных условиях. Разное время регистрации спектра позволило оценить предел обнаружения золота для двух используемых способов гамма-измерений наведенной активности: ручной режим без переупаковки и автоматический режим с переупаковкой.

Обработка спектров выполнена с использованием пакета программного обеспечения Genie-2000. Расчет концентраций и пределов обнаружения выполнен относительным методом с использованием программного обеспечения «Концентрация» [8].

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

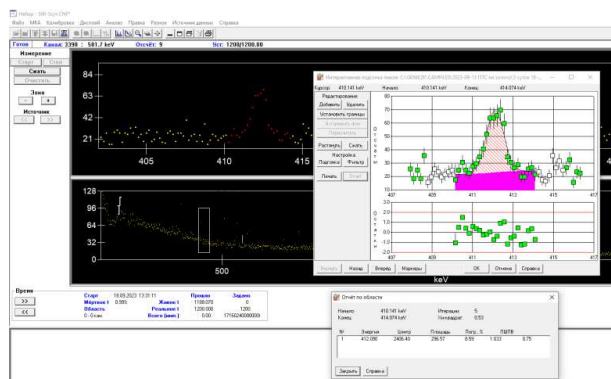
При анализе спектра облученной пустой транспортной капсулы с фиксаторами внутри пика золота не было обнаружено. На рисунке 1, а приведен фрагмент спектра образца OREAS 506, регистрация спектра в течение 20 минут. Аттестованное содержание золота 0,364 мкг/г, погрешность статистического описания пика ¹⁹⁸Au составляет 8.5%. На рисунке 1, б приведен фрагмент спектра исследуемого образца 09, регистрация спектра в течение 2 часов. Длительный набор спектра обеспечивает погрешность статистического описания пика ¹⁹⁸Au в 30%.

В таблицах 1 и 2 приведены результаты определения содержаний золота и пределов его обнаружения в стандартных и исследуемых образцах. Расчет содержаний выполнен по стандартным образцам флотконцентратов СЗР-3 и СЗР-4. Для стандартных образцов приведены аттестованные паспортные значения массовых долей золота.

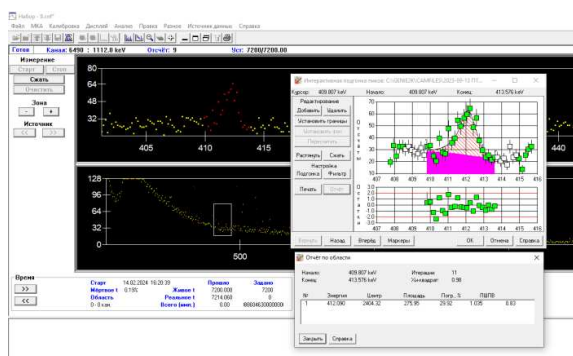
Для исследуемых образцов приведено сравнение результатов и пределов обнаружения, полученных с использованием ПТС и при облучении в вертикальном канале реактора ВВР-К. Режим исследования в вертикальном канале: поток нейтронов $7 \cdot 10^{13}$ н·см⁻²·с⁻¹, время облучения 2 ч, время «остывания» 7 суток, регистрации спектров наведенной ак-

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ПНЕВМОТРАНСПОРТНОЙ СИСТЕМЫ НА РЕАКТОРЕ ВВР-К ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ЗОЛОТА В ГЕОЛОГИЧЕСКИХ ОБРАЗЦАХ

тивности проведена на том же гамма-спектрометре в автоматическом режиме с УСО в течение 30 минут.



а)



б)

Рисунок 1. Аналитические гамма-линии ^{198}Au в спектрах образцов. Облучение на ПТС 2 минуты, «остывание» 5 суток, масса навески 200 мг

Таблица 1. Содержание и предел обнаружения Au в стандартных образцах, мкг/г

Образец	Расчетные значения	Аттестованные значения	ПО, регистрация 20 мин	ПО, регистрация 2 ч
СЗР-3	$4,67 \pm 0,18$	$4,25 \pm 0,11$	0,27	0,11
СЗР-4	$1,96 \pm 0,19$	$2,13 \pm 0,05$	0,23	0,074
OREAS 506	$0,379 \pm 0,095$	$0,364 \pm 0,010$	0,11	
OREAS 600b	$0,191 \pm 0,059$	$0,204 \pm 0,007$	0,12	
OREAS 607b	$0,662 \pm 0,044$	$0,734 \pm 0,015$	0,16	
OREAS 908	$0,185 \pm 0,056$	$0,186 \pm 0,008$	0,092	

Предел обнаружения золота при облучении на ПТС для массы навески 200 мг, времени облучения 2 минуты, времени «остывания» 5 суток, времени регистрации спектра наведенной активности в течение 20 минут составляет от 0,08 до 0,2 мкг/г. Для такого же режима и времени регистрации 2 ч – составляет от 0,02 до 0,05 мкг/г.

Таблица 2. Содержание и предел обнаружения Au в исследуемых образцах, мкг/г

Образец	Расчетные значения		ПО, облучение 2 мин на ПТС	ПО, облучение 120 мин в верт. канале	
	Облучение на ПТС	Облучение в вертикальном канале	Регистрация 20 мин	Регистрация 2 ч	Регистрация 40 мин
01	$0,53 \pm 0,10$	$0,568 \pm 0,024$	0,096		0,011
02	$0,56 \pm 0,18$	$0,653 \pm 0,026$	0,11		0,010
03	$1,47 \pm 0,25$	$1,697 \pm 0,056$	0,095		0,009
04	$3,81 \pm 0,20$	$4,00 \pm 0,12$	0,13		0,010
05	$0,49 \pm 0,11$	$0,550 \pm 0,035$	0,20		0,006
06	$0,099 \pm 0,033$	$0,093 \pm 0,007$	0,083		0,005
07	$0,496 \pm 0,050$	$0,512 \pm 0,015$		0,047	0,003
08	$1,310 \pm 0,063$	$1,350 \pm 0,043$		0,049	0,004
09	$0,055 \pm 0,018$	$0,062 \pm 0,002$		0,021	0,001
10	$5,88 \pm 0,18$	$5,97 \pm 0,21$		0,040	0,005
11	$< 0,02$	$0,0021 \pm 0,0005$		0,014	0,0007
12	$< 0,02$	$0,0013 \pm 0,0002$		0,015	0,0007

Анализ полученных результатов показывает:

- Время облучения 2 минуты на ПТС и масса навески 200 мг могут использоваться для универсального прогона образцов с концентрациями золота в диапазоне от 0,1 до 6 мкг/г.

- Содержания, определенные по гамма-спектрам, зарегистрированным спустя 5 суток после облучения, позволяют определить содержания золота в образце более 0,1 мкг/г при времени регистрации спектра 20 мин. Предел обнаружения золота можно уменьшить за счет 1) увеличения времени «остывания» до 7–9 суток, 2) времени регистрации спектра.

Относительно короткий период полураспада большинства радионуклидов в составе образца, в том числе золота, позволяет избежать накопления больших объемов радиоактивных материалов. Так, измерение спектров облученных проб спустя месяц после облучения показало практически полное отсутствие наведенной активности. Тем не менее, из-за того, что образцы подверглись облучению в канале реактора, утилизировать их как обычные отходы невозможно, требуется передать их на пункт захоронения радиоактивных отходов. При необходимости, стандартные образцы пригодны к повторному использованию для метода НАА. Кроме того, все облучаемые на ПТС навески можно при необходимости исследовать в вертикальном канале реактора для получения уточненных значений содержаний. В зависимости от полученных на ПТС данных, образцы будут группироваться в партии и исследоваться в подходящем режиме облучения/«остывания» и регистрации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение ПТС позволяет определять содержания золота в малых навесках руды с пределом обнаружения 0,05 мкг/г и ниже.

Облучение меньшим флюенсом нейтронов (нежели в вертикальном канале ВВР-К) позволяет избежать больших наведенных активностей, но при этом получать результаты, пригодные для разбраковки проб. Данный метод может быть успешно применен для разбраковки и анализа проб при проведении исследований больших партий геологических образцов.

Для достижения лучшего предела обнаружения необходимо проводить облучение в вертикальном канале реактора.

Данная работа выполнена в рамках бюджетного финансирования Министерства Энергетики Республики Казахстан «Развитие ядерно-физических методов и технологий для инновационной модернизации экономики Казахстана» ИРН: BR23891691.

ЛИТЕРАТУРА

1. И. В. Кубракова, С. Н. Набиуллина, О. А. Тютюнник. Определение ЭПГ и золота в геохимических объектах: опыт использования спектрометрических методов // Геохимия. – 2020. – Т. 65. – № 4. – С. 328–342. <https://doi.org/10.31857/S0016752520040056>
2. Г. А. Олейникова, Ю. Н. Борин, В. Л. Кудряшов, В. А. Шишлов, С. С. Шевченко, О. В. Петров. Восстановительное разложение – основа универсальной методики анализа горных пород на содержание благородных металлов // Металлогения. – 2021. – № 85. – С. 93–102.
3. Я.В. Бычкова, М.Ю. Синицын, Д.Б. Петренко, И.Ю. Николаева, И.А. Бугаев, А.Ю. Бычков. Методические особенности многоэлементного анализа горных пород методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой. // Вестник Московского университета. – Сер. 4. – Геология. – 2016. – № 6. – С. 56–63. <https://doi.org/10.33623/0579-9406-2016-6-56-63>
4. S.S. Ismail. A New Automated Sample Transfer System for Instrumental Neutron Activation Analysis // Journal of Automated Methods and Management in Chemistry. – 2010. – Vol. 2010. – P. 8 <https://doi.org/10.1155/2010/389374>
5. Ленник С.Г., Соколенко Е.К., Бедельбекова К.А. Изучение возможности использования полиэтилена отдельных марок (видов) для изготовления транспортных капсул, необходимых при проведении нейтроноактивационного анализа по короткоживущим изотопам // Вестник НЯЦ РК. – 2021. – Вып. № 2. – С. 11–18. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-2-11-18>
6. I.Yu. Silachyov, V.A. Glagolev. Comparator neutron activation analysis of the solid volumetric rock samples for gold content // International Journal of Biology and Chemistry. – 2022. – Vol. 15, No. 1, P. 90–101. <https://doi.org/10.26577/ijbch.2022.v15.i1.010>
7. С.Г. Ленник, К.А. Бедельбекова, Е.К. Соколенко, Т.В. Суздальцева. Использование полиэтиленовых расходных материалов при проведении нейтроно-активационного анализа по короткоживущим радионуклидам // Chemical Bulletin of Kazakh National University / Analytical chemistry. – 2023. – Vol. 108. – No. 1. – P. 4–11. <https://doi.org/https://doi.org/10.15328/cb1318>
8. Дмитриев А.Ю. Павлов С.С. Автоматизация количественного определения содержания элементов в образцах методом нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ // Письма в ЭЧАЯ. – 2013. – Т. 10. – № 1 (178). – С. 58–64.

REFERENCES

1. I. V. Kubrakova, S. N. Nabiullina, O. A. Tyutyunnik. Opredelenie EPG i zolota v geokhimicheskikh ob"ektakh: opyt ispol'zovaniya spektrometricheskikh metodov // Geokhimiya. – 2020. – Vol. 65. – No. 4. – P. 328–342. <https://doi.org/10.31857/S0016752520040056>
2. G. A. Oleynikova, Yu. N. Borin, V. L. Kudryashov, V. A. Shishlov, S. S. Shevchenko, O. V. Petrov. Vosstanovitel'noe razlozhenie – osnova universal'noy metodiki analiza gornykh porod na sodержanie blagorodnykh metallov // Metallogeniya. – 2021. – No. 85. – P. 93–102.
3. Ya.V. Bychkova, M.Yu. Sinitsyn, D.B. Petrenko, I.Yu. Nikolaeva, I.A. Bugaev, A.Yu. Bychkov. Metodicheskie osobennosti mnogoelementnogo analiza gornykh porod metodom mass-spektrometrii s induktivno svyazannoy plazmoy. // Vestnik Moskovskogo. universiteta. – Ser. 4. – Geologiya. – 2016. – No. 6. – P. 56–63. <https://doi.org/10.33623/0579-9406-2016-6-56-63>
4. S.S. Ismail. A New Automated Sample Transfer System for Instrumental Neutron Activation Analysis // Journal of Automated Methods and Management in Chemistry. – 2010. – Vol. 2010. – P. 8 <https://doi.org/10.1155/2010/389374>
5. Lennik S.G., Sokolenko E.K., Bedel'bekova K.A. Izuchenie vozmozhnosti ispol'zovaniya polietilena ot del'nykh marok (vidov) dlya izgotovleniya transportnykh kapsul, neobkhodimykh pri provedenii neytronoaktivatsionnogo analiza po korotkozhiyushchim izotopam // Vestnik NYaTs RK. – 2021. – Issue No. 2. – P. 11–18. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2021-2-11-18>
6. I.Yu. Silachyov, V.A. Glagolev. Comparator neutron activation analysis of the solid volumetric rock samples for gold content // International Journal of Biology and Chemistry. – 2022. – Vol. 15, No. 1, P. 90–101. <https://doi.org/10.26577/ijbch.2022.v15.i1.010>
7. S.G. Lennik, K.A. Bedel'bekova, E.K. Sokolenko, T.V. Suzdal'tseva. Ispol'zovanie polietilenovykh rashodnykh materialov pri provedenii neytrono-aktivatsionnogo analiza po korotkozhiyushchim radionuklidam // Chemical Bulletin of Kazakh National University / Analytical chemistry. – 2023. – Vol. 108. – No. 1. – P. 4–11. <https://doi.org/https://doi.org/10.15328/cb1318>
8. Dmitriev A.Yu. Pavlov S.S. Avtomatizatsiya kolichestvennogo opredeleniya sodержaniya elementov v obraztsakh metodom neytronnogo aktivatsionnogo analiza na reaktore IBR-2 v LNF OIYaI // Pis'ma v EChAYa. – 2013. – Vol. 10. – No. 1 (178). – P. 58–64.

**ГЕОЛОГИЯЛЫҚ ҮЛГІЛЕРДІҢ ҚҰРАМЫНДА АЛТЫНДЫ АНЫҚТАУ ҮШІН
ССР-Қ РЕАКТОРЫНДА ПНЕВМАТИКАЛЫҚ ТАСЫМАЛДАУ ЖҮЙЕНІ
ПАЙДАЛАНУ МҮМКІНДІГІН ЗЕРТТЕУ**

С. Г. Ленник, К. А. Бедельбекова*, Е. К. Соколенко

ҚР ЭМ «Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

** Байланыс үшін E-mail: kamshat1980@mail.ru*

200 мг ұнтақ үлгілеріндегі алтынды ЗРК ССР-Қ реакторында пневматикалық тасымалдау жүйесін қолдану арқылы ИНБТ әдісімен анықтау мүмкіндігі зерттелді. Алтын кені мен оны өңдеуден алынған қалдықтардың үлгілеріне зерттеулер жүргізілді. Стандартталған зерттеулер жүргізу үшін сәулелену режимдері әзірленді. Бірнеше зерттеу режимдері үшін алтынды анықтау шектері анықталды. Алынған нәтижелерге талдау жасалды. Бұл әдісті геологиялық үлгілердің үлкен партияларын зерттеу кезінде үлгілерді сұрыптау және талдау үшін сәтті қолдануға болады.

Түйін сөздер: алтын, нейтронды белсендіру талдау, пневматикалық тасымалдау жүйесі, мөлшері, анықтау шегі.

**USE OF PNEUMATIC TRANSPORT SYSTEM ON REACTOR WWR-K
FOR DETERMINATION OF GOLD CONTENT IN GEOLOGICAL SAMPLES**

S. G. Lennik, K. A. Bedelbekova*, E. K. Sokolenko

RSE "Institute of Nuclear Physics" ME RK, Almaty, Kazakhstan

** E-mail for contacts: kamshat1980@mail.ru*

The possibility of determination of gold in 200 mg powder samples by INAA method with the use of pneumatic transport system RRC WWR-K has been studied. Gold-containing ore samples and tailings of its processing were studied. Irradiation modes for unified studies were worked out. Gold detection limits were determined for several research modes. The obtained results were analyzed. The given method can be successfully applied for disassembling and analysis of samples when carrying out researches of large batches of geological samples.

Keywords: gold, neutron activation analysis, pneumatic transport system, content, detection limits.