

基于铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式的 产地溯源多元统计方法分析

占 佳, 张海涛*, 李志明, 徐 江, 汪 伟, 张伟超

西北核技术研究院, 陕西 西安 710024

摘要: 铀矿石浓缩物作为可以在国际上公开交易的核材料, 其丰富的痕量杂质反映了铀矿石的形成、矿物组成、铀矿冶流程、产地等重要信息, 是开展核取证分析的理想对象。铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式作为重要特征指纹之一, 可以作为有效的产地溯源的工具。开展了主成分分析(PCA)、因子分析(FA)、聚类分析(CA)和偏最小二乘法(PLS)等方法对铀矿石浓缩物稀土元素分布模式的多元统计分析, 尝试通过稀土元素分布模式进行铀矿石浓缩物的产地溯源研究。研究表明: 各种不同的统计方法具有不同的优缺点, 单靠一种或两种多元统计的方法不能够完全描述铀矿石浓缩物的特征指纹参数。对于类似于中国、澳大利亚或者加拿大等拥有巨大领土面积和复杂地质结构的国家, 铀矿石浓缩物的产地溯源工作存在着很大的技术难度与风险, 需要综合利用多种方法才能准确有效地进行产地溯源工作。

关键词: 铀矿石浓缩物; 多元统计分析; 产地溯源; 核取证

中图分类号: TL99

文献标志码: A

文章编号: 0253-9950(2025)01-0078-08

doi: 10.7538/hhx.2025.47.01.0078

Geolocation Discrimination of Uranium Ore Concentrates by Multivariate Statistics Analysis of Its Rare Earth Elements Pattern

ZHAN Jia, ZHANG Hai-tao*, LI Zhi-ming, XU Jiang, WANG Wei, ZHANG Wei-chao

Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China

Abstract: Uranium ore concentrates(UOCs) are a kind of nuclear materials which can be traded legally in the international market. Uranium ore concentrates have become attractive targets for nuclear forensic because of the richness in characteristic signatures compared to other materials produced later in the fuel cycle. The rich trace impurities of UOCs is an ideal object for nuclear forensic analysis, in which it reflects the important information of uranium ore formation, mineral composition, process of uranium mining and geolocation. As one of the important characteristic fingerprints, the rare earth elements(REEs) distribution pattern of UOCs can be used as an attractive alternative to attribute the origin of uranium ore concentrates. In this paper, several multivariate statistical methods in pattern recognition, including principal component analysis(PCA), factor analysis(FA), cluster analysis(CA) and partial least squares(PLS) were compared and the advantages and disadvantages of various methods were summarized. The results show that it is a tough work to fully describe the characteristic fingerprint parameters of uranium ore concentrates by only one or

two methods. The principal component analysis(PCA) method can reduce the dimension of the data and retain the original characteristics of the data. However, the classification of the data is not taken into account in the process of analysis and the results only show the difference between the samples. The factor analysis(FA) method is essentially a process of extracting potential factors from dominant variables and the form of factors is not unique. Cluster analysis(CA) can classify the origin of uranium ore concentrates. However, there is no quantitative data to illustrate the difference in the same classification of uranium ore concentrates. The partial least squares(PLS) method takes into account the difference between all the data points from the algorithm, and PLS can also perform multiple iterations to identify the subtle difference of uranium ore and uranium ore concentrates with the same origin, so that the precise geolocation of uranium ore concentrate can be realized. It is generally used in regression studies with less sample size, so PLS can show more detailed fingerprint features than PCA. To date, the scientists still face a great of difficulties to attribute the geolocation of uranium ore concentrates, especially to those uranium ore concentrates mined and milled in the countries or regions with vast territory and complex geological features. The combination of several multivariate statistical methods might be an attractive avenue to accurately and effectively trace the origin of uranium ore concentrates, but it still has a long way to go.

Key words: uranium ore concentrate; multivariate statistical analysis; traceable origin; nuclear forensic analysis

铀矿石经过破碎或初选后用酸或碱浸取, 然后通过离子交换或溶剂萃取获得铀矿石浓缩物(uranium ore concentrate, UOC), 其中铀质量分数一般为40%~60%, 以重铀酸盐或铀酸盐的形式存在, 俗称黄饼。作为核燃料循环的前端产品, 铀矿石浓缩物是国际核燃料市场可以公开交易的商品, 与核燃料循环的后端产品(如 U_3O_8 、 UF_6 、 ^{235}U 材料)相比, 铀矿石浓缩物中丰富的痕量杂质是核取证分析的理想对象^[1]。铀矿石浓缩物的痕量杂质反映了它的矿物组成、铀矿冶过程等重要信息, 铀同位素、稀土元素分布模式、Sr同位素丰度、Nd同位素丰度、其他杂质元素含量等可作为有效的地理产地溯源的特征指纹信息, 但是仅仅依靠单一或几个数据很难获得可靠的溯源分析结果^[2]。Keegan等^[3]对来自澳大利亚和加拿大的24份铀矿石浓缩物样品进行了稀土杂质元素和阴离子组成分析研究, 采用主坐标经典分析(canonical analysis of principal coordinates, CAP)进行统计分析, 在5种不同原矿石类型的铀矿石浓缩物样品中区分出了磷灰石型、石英-卵石砾岩型和不整合面型3种类型样品, 基本实现了对加拿大的三个铀矿产地样品的区分, 并确定了决定样品组别的主要杂质元素。Varga等^[4]采用聚类分析铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式进行产地的溯源。Reading David等^[5]利用主成分

分析法(principal components analysis, PCA方法)研究了铀系和钍系衰变链中的 ^{234}Th 、 $^{234}Pa^m$ 、 ^{214}Pb 、 ^{210}Pb 、 ^{235}U 、 ^{228}Ac 和 ^{208}Tl 等核素的伽马能谱数据, 对来自澳大利亚、加拿大和美国的19个铀矿石浓缩物放射性签名数据库进行了多元统计分析, 在对同一样本里的6个铀矿石浓缩物进行比对分析时, 可以将这些样品与他们的地理位置准确地联系起来。Madzunya等^[6]分析了纳米比亚3个铀矿的稀土元素, 结果显示矿井间稀土元素浓度差异明显, 主成分分析法(PCA)的分析结果显示矿石样品可以相互区分。Lin等^[7]对一种未知铀矿石浓缩物中的稀土元素杂质进行分析, 采用主成分分析法(PCA)、偏最小二乘-判别分析法(PLS-DA)和正交校正偏最小二乘-判别分析法(OPLS-LA)等3种多元统计方法开展了产地溯源分析。总的来说, 在利用痕量杂质组成进行铀矿石浓缩物的溯源分析时, 由于杂质的种类繁多, 很难直观比对杂质元素分布和相似程度, 或者定量总结出相同来源(如铀矿石的产地、矿脉的类型、生产工艺)铀矿石浓缩物杂质的共同特征, 或区别于其他来源的指纹特征, 多元统计方法则可以确认或者排除截获的铀矿石浓缩物是否与数据库已知的材料相同, 从而缩小产地溯源范围。Varga等^[8]的研究表明, 由于稀土元素自身特殊的理化性质, 从铀矿石到化学分离后的 U_3O_8 样品, 其分布

模式与同位素组成特征能够保持稳定,这也使得稀土元素与其他指纹信息相比有着独到的优势,可以为不同类型核材料的产地溯源提供可靠的依据。本工作拟采用主成分分析法(PCA)、因子分析法(factor analysis, FA)、聚类分析法(cluster analysis, CA)和偏最小二乘法(partial least square, PLS)等多种多元统计方法开展铀矿石浓缩物的稀土元素分布与产地溯源的关联分析,以探究不同多元统计方法在铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式与产地溯源分析过程中的优缺点。

1 多元统计分析方法的原理和数据预处理

多元统计分析是运用数理统计的方法来研究多变量问题的理论和方法,它可以对多个随机变量间的统计规律进行研究,应用范围较广。多元统计分析具有包括简化数据结构、分类与判别、变量间的相互关系以及多元数据的统计推断等功能,从根本上讲实际上是一种“降维”的思想,但不同多元统计方法分析的结果会有所差异。

1.1 多元统计分析方法的原理

主成分分析也称为主分量分析。主成分分析的数学模型是,设 p 个变量的 p 维随机变量为 $X=(X_1, \dots, X_p)'$,由于多个变量之间往往存在一定程度的相关性,通过线性组合的方式从这些指标中尽可能提取有效的信息,当第一个线性组合不能提取更多的信息时,再考虑用第二个线性组合继续快速提取的过程,直到提取的信息与原指标相差不多时为止。一般来讲,在主成分分析适合的场合,用较少的主成分就可以得到较多的信息量,以各个主成分为分量,就得到一个更低维度的随机向量,因此,通过主成分分析可以降低数据的维度,同时又保留原数据的大部分信息。

因子分析也是一种降维、简化数据的技术。它是通过研究众多变量之间的内容依赖关系,探求数据中的基本结构,并用少数几个“抽象”的变量来表示其基本的数据结构。这几个抽象的变量被称为“因子”,能反映原来众多变量的主要信息。原始的变量是可观察的显性变量,而因子是不可观察的潜在变量。常用的因子分析类型是R型因子分析和Q型因子分析,R型因子分析是对变量作因子分析,Q型因子分析是对样品做因子分析,本工作关心的是对样品进行因子分析,即Q型因子分析。Q型因子分析的数学模型可以

表示为: $X_i = a_{i1}F_1 + a_{i2}F_2 + \dots + a_{im}F_m + \varepsilon_i, i = 1, 2, \dots, n$,其中 X_1, X_2, \dots, X_n 表示的是 n 个样品, m 为公共因子数。

系统聚类的原理是距离相近的样品(变量)先聚成类,距离远的后聚成类,过程一直进行下去,直到每个样品(变量)总能聚到合适的类中。在进行系统聚类前,需要定义类与类的距离,类间距离定义的不同产生了不同的系统聚类法。

偏最小二乘法的原则是在抽取一定数量的因子后,最小化残差相关系,并且评估用模型重现出来的相关系数与观察到的相关关系之间的拟合程度。

1.2 几种多元统计分析的计算步骤

在多元统计分析时,通过运行SPSS软件实现主成分分析法、因子分析、聚类分析和偏最小二乘法等方法的分析,具体步骤如下^[9]。

主成分分析法是用“降维”的思想,利用原始变量的线性组合组成主成分,在信息损失较小的情况下,把多个指标转换成几个互补相关的综合指标,主要分为7步,即建立原始数据标准化矩阵和标准化的相关系数矩阵,求得特征根、特征向量和对应的标准正交化特征向量,根据需求确定主成分个数后得到主成分和主成分值并计算主成分综合评价价值,最后进行评价。

因子分析则是通过对原始变量的相关系数矩阵内部结构的研究,导出能控制所有变量的少数几个不可观测的综合变量,主要分为4步,重点是分析因子载荷矩阵并求出特殊因子方差。

聚类分析按照一定的标准将研究对象进行分类,保证组内数据具有高度相似性,而组间具有较大差异性。

偏最小二乘法则是通过对已知样本集特点的分析,设定合适的判别标准并建立相应的定性分析模型,最终应用于判定未知样本的类别。

1.3 数据的预处理

在铀矿石加工成铀矿石浓缩物的过程中,虽然稀土元素含量发生明显变化,但是其分布模式特征保持稳定^[8],因此在分析过程中未区分铀矿石和铀矿石浓缩物。由于同一来源的铀矿石浓缩物的稀土元素的含量差异很大,或者不同产地的铀矿石或铀矿石浓缩物的稀土元素相差很多,这些都会影响多元统计分析的效率,因此铀矿石或铀矿石浓缩物的稀土元素的测量数据需要进行无量纲化的预处理,处理的方法是以任何一个

稀土元素的含量为基准, 得到其他稀土元素的含量与基准稀土元素含量的比值, 如果数据的量级范围较大, 还需要对比值取对数进行处理, 本工

作是以 Tb 为基准对数据进行预处理。对已报道的世界各地和我国的铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土含量的数据整理列入表 1。

表 1 全球铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量^[10-13]Table 1 Content of rare earth elements in uranium ore and uranium ore concentrate around the world^[10-13]

样品编号 (缩写)	产地	稀土元素含量/(g·g ⁻¹)													
		La	Ce	Pr	Nd	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
Australia1(A1)	Australia	20.9	34	2.89	7.1	0.41	0.1	0.53	0.04	0.1	<0.01	<0.01	<0.002	<0.01	<0.001
Australia2(A2)	Mary Kathleen	13.73	22.08	1.775	4.201	0.266	0.25	0.311	0.0141	0.027	0.0082	0.0039	<0.002	0.006	<0.001
Australia3(A3)	Kombolgie Basin Nabarlek	23	130	21	130	120	34	0	83	540	73	110	59	0	160
Australia4(A4)	Kombolgie Basin Koongarra	53	51	19	150	210	92	0	140	1000	120	230	120	0	27
Canada1(CA1)	Cigar Lake	11	120	25	130	91	25	0	67	450	62	140	15	0	11
Canada2(CA2)	Eagle Point	0.48	35	11	74	83	37	0	59	500	74	160	22	0	15
Canada3(CA3)	Mcarthur River	1.2	2.6	1.6	9.3	23	26	0	47	350	55	89	13	0	2.8
Canada4(CA4)	Millenneum	2.2	19	5.3	35	57	23	0	78	510	55	98	19	0	13
Canada5(CA5)	Moore Cake	600	2700	960	4900	1900	230	0	660	5000	1100	3400	530	0	150
Canada6(CA6)	Sue Deposit	0.36	5.8	1.7	1.3	5.2	7.7	0	32	260	40	65	7.9	0	2
Canada7(CA7)	Mistamisk	190	2400	470	2700	1300	270	0	340	1900	440	960	130	0	5
China1(CH1)	东盛	24.7	35.8	3.82	1.62	3.02	0.97	26	4.2	2.63	0.51	1.5	0.27	1.69	0.24
China2(CH2)	相山	46.3	89.6	13	53.5	24	2.22	38.1	10.1	86.7	32.9	86.6	19.9	1.27	20.8
China3(CH3)	下庄	135	396	46.1	155	29.5	8.2	34	0.6	48.5	11.1	39.7	4.6	33.2	4.1
China4(CH4)	伊宁	23.9	51.7	3.82	17.7	3.1	0.682	3.12	0.56	3.31	0.646	2.27	0.77	1.93	0.352
China5(CH5)	未知	66.2	185.0	19.4	78.1	16.2	3.7	18.3	2.8	13.4	2.4	6.3	0.8	4.7	0.7
Denmark(D1)	Motrfeldcat Center Greenland	1.02	16.1	1.1	13.3	21.6	2.73	86.2	27.7	328	106	431	73.6	650	97.8
Finland1(F11)	Luthi	4.1	2600	1100	6500	3000	320	0	660	460	1100	2100	290	0	32
France1(FR1)	Boris Noris	1600	3200	310	1100	170	21	180	17	90	15	37	4	30	5
France2(FR2)	Ecarpire	360	390	25	79	10	4	17	13.3	7.4	1.1	3.8	0.6	3.2	0.7
Japan1(J1)	Tono	335	1200	185	1210	202	32	181	19.3	126	31.8	90	13.5	82.6	15.2
Japan2(J2)	Unazuki	1.53×10 ⁻³	30	0.022	0.23	0.88	0.95	15	7.7	12.6	46	265	51	52.8	154
Nambia1(N1)	Rossing	270	3900	490	2600	1500	88	0	550	4300	890	2900	450	0	81
Russia1(R1)	Kola Peninsula	92	1500	350	3100	2200	220	0	570	3600	690	1800	200	0	120
Russia2(R2)	Stretsovaka	0.63	0.56	0.1	0.97	7.4	9	0	0.31	1.4	0.33	0.62	0.13	0	0.1
Zambia1(Z1)	Kantaga System	160	350	120	540	250	48	0	62	290	55	100	14	0	3.3

注: 1) 各稀土含量的原始数据, 未进行无量纲化的预处理;

2) China5为铀矿石浓缩物, 其中的稀土元素含量为实测数据, 具体的流程和测量方法另文发表;

3) 大部分数据的相对不确定度在15%以内(k (包含因子)=1), 少部分数据未给出相对不确定度;

4) 对于部分样品未给出元素的准确浓度值, 以该元素给出的浓度上限为准

2 多元统计方法用于铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式与产地溯源的分析

基于铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土分布模式, 使用 SPSS 软件, 分别采用主成分分析、因子分析、聚类分析和偏最小二乘法等多种多元统计

分析方法对核材料进行了产地溯源分析, 期望能够通过该计算获得产地的溯源。

2.1 主成分分析结果

为了研究铀矿石和铀矿石浓缩物中稀土元素与产地的关联性, 采用主成分分析的方法对表 1 列出的 25 种铀矿石和铀矿石浓缩物材料的稀土元素含量数据进行了分析, 结果示于图 1、2。对

主成分提取及提取信息量进行分析可知:主成分分析一共提取出3个主成分,特征根值均大于1,3个主成分的方差解释率分别是45.17%、32.84%和8.83%,累积方差解释率为86.84%;提取出3个主成分对应的加权后方差解释率,即权重依次为 $45.17/86.84=52.01\%$ 、 $32.84/86.84=37.81\%$ 、 $8.83/86.84=10.17\%$,合计99%。

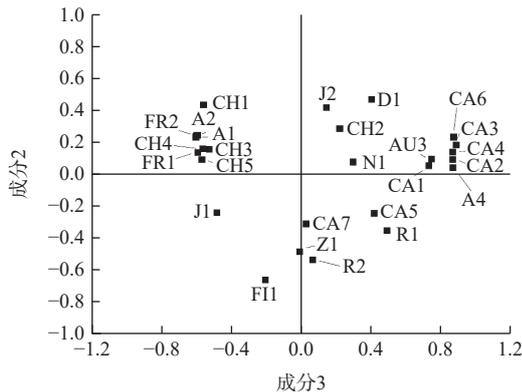


图1 主成分分析法分析(两因子)铀矿石和铀矿石浓缩物中稀土元素与产地的关系

Fig. 1 Relationship between origin and rare earth elements in uranium ore and uranium ore concentrate analyzed by principal component analysis with two factors

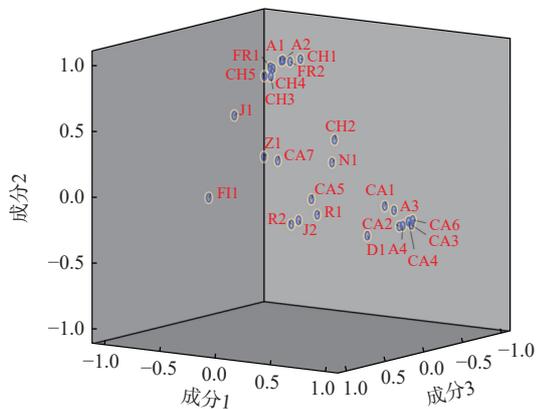


图2 主成分分析法分析(三因子)铀矿石和铀矿石浓缩物中稀土元素与产地的关系

Fig. 2 Relationship between origin and rare earth elements in uranium ore and uranium ore concentrate analyzed by principal component analysis with three factors

由图1和图2可以看出,不同产地的铀矿石和铀矿石浓缩物有显著的分类,这直观验证了铀矿石浓缩物中稀土元素含量与产地之间存在的强烈的溯源关系,可以作为铀矿石浓缩物溯源归因的指纹特征。其中Finland1、Japan1、Zambia1、

Russia、Denmark和Nambia1等产地的特征明显,国产铀矿石China1、China3、China4与铀矿石浓缩物China5则明显有相类似的稀土元素的指纹特征,可以分析出铀矿石浓缩物China5与国产铀矿石China1、China3及China4有强烈的产地关联,而另外一个国产铀矿石China2则与其他三个国产铀矿石浓缩物(China1、China3、China4)的指纹特征明显不同。此外,澳大利亚和加拿大的铀矿石也分别表现出明显的聚类指纹特征。但是也有不同产地的铀矿石和铀矿石浓缩物稀土指纹特征相近,如国产铀矿石(China1、China3、China4)和铀矿石浓缩物China5就与Australia的多个铀矿石很难得以区分。

2.2 因子分析结果

使用因子分析对表1列出的25种铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量进行两因子分析,载荷图示于图3。由图3可知:Finland1、Zambia1、China2、Russia1、Denmark与Nambia1等产地的特征明显,可以显著区分,国产铀矿石China1、China3及China4与铀矿石浓缩物China5则明显有相类似的稀土元素指纹特征,因此铀矿石浓缩物China5与国产铀矿石China1、China3及China4存在强烈的产地关联,而另外一个国产铀矿石China2则与其他三个国产铀矿石(China1、China3、China4)和铀矿石浓缩物(China5)的指纹特征明显不同。此外,Canada2、Canada3、Canada4和Canada6的铀矿石也分别表现出相似的稀土元素指纹特征。

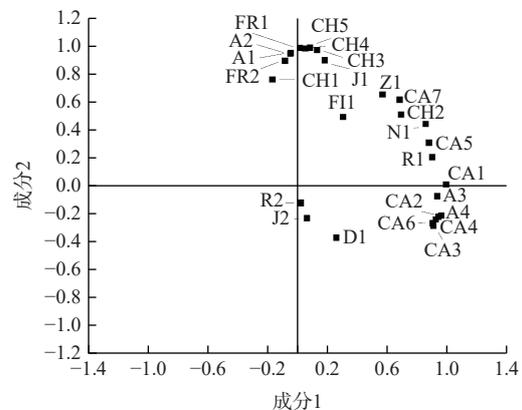


图3 因子分析(两因子)铀矿石和铀矿石浓缩物中稀土元素与产地的关系

Fig. 3 Relationship between origin and rare earth elements in uranium ore and uranium ore concentrate analyzed by factor analysis with two factors

使用因子分析对表 1 的 25 种铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量进行三因子分析, 分析

结果的载荷图示于图 4。由图 4 可知, 三因子分析和二因子分析的结果相同。

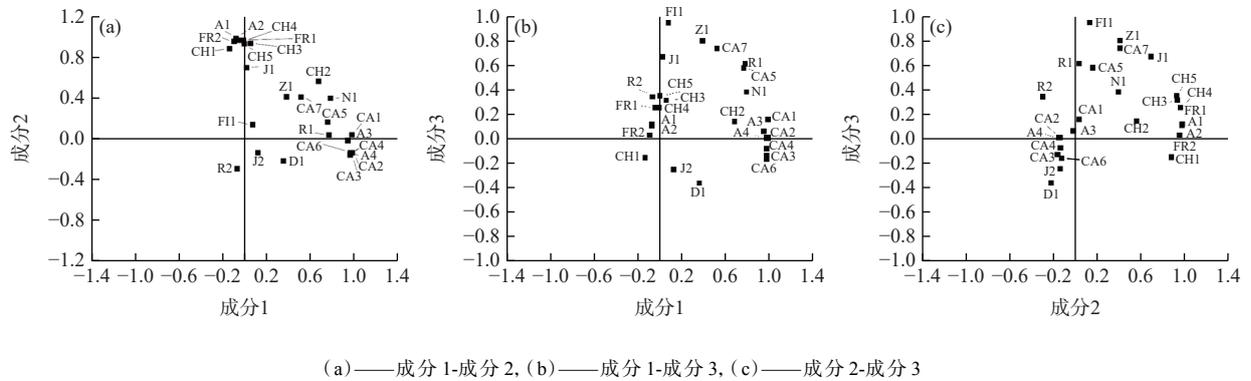


图 4 因子分析(三因子)铀矿石和铀矿石浓缩物中稀土元素与产地的关系

Fig. 4 Relationship between origin and rare earth elements in uranium ore and uranium ore concentrate analyzed by factor analysis with three factors

2.3 聚类分析结果

使用聚类分析对表 1 的 25 种铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量进行分析, 结果示于图 5。由图 5 可知: 聚类树状图可以将 25 种材料分为 8 个大类。聚类分析的结果与主成分分析的结果一致, 国产的三个铀矿石(China1、China3、China4)与国产的铀矿石浓缩物 China5 是一个类别, 加拿大的五个铀矿石(Canada1、Canada2、Canada3、

Canada4、Canada6)则归为一个类别, 而国产铀矿石 China2 则与国产的其他铀矿石和铀矿石浓缩物明显不在一个类别, 而是和 Namibia1 的材料归入同一个类别。

2.4 偏最小二乘法 (PLS) 的分析结果

使用偏最小二乘法 (PLS) 选取表 1 列出的 13 种铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量进行第一次分析。以国产铀矿石 China1 的稀土元素比值(以 Tb 为基准)为因变量, 其他 12 种铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素比值为自变量进行第一次迭代分析, 结果示于图 6。第一次偏最小二乘法 (PLS) 共提取了四个主成分, 可以看出 Canada1、Namibia1、Denmark1、Zambia1 及 Russia1 明显与其他材料有不同的主成分 A 和 B, 因此已有明显的指纹特征可以溯源产地而不再进行偏

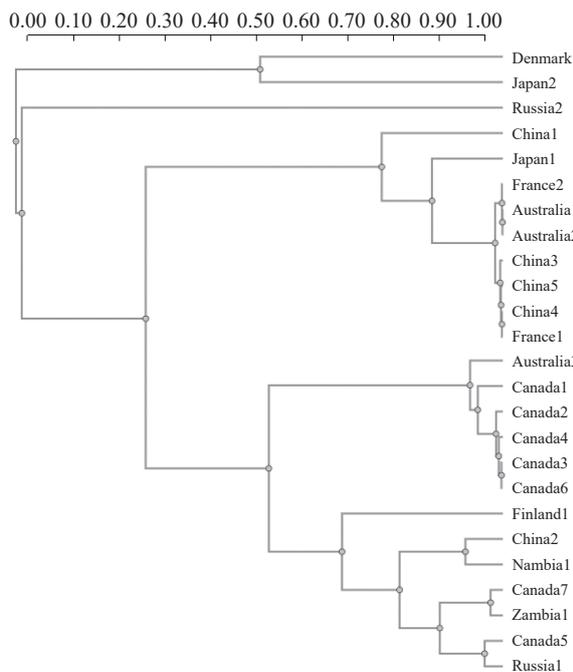


图 5 铀矿石和铀矿石浓缩物的聚类树状图
Fig. 5 Cluster dendrogram of uranium ore and uranium ore concentrate

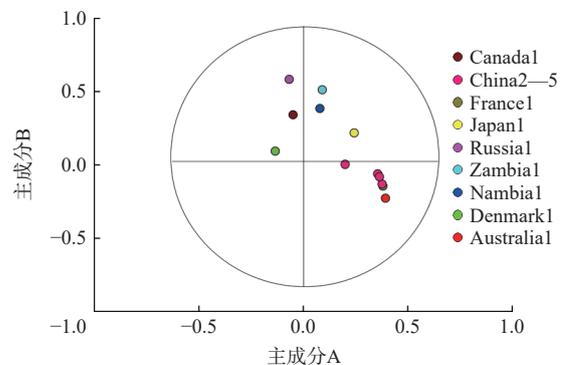


图 6 偏最小二乘法 (PLS) 对铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量第一次迭代分析
Fig. 6 First iteration analysis of rare earth element content in uranium ore and uranium ore concentrate by PLS

最小二乘法(PLS)的计算, 剩余的数据再次进行偏最小二乘法(PLS)的计算, 分析结果示于图7。从第二次迭代分析的结果来看, 三个国产铀矿石(China2、China3、China4)、国产铀矿石浓缩物China5、Australia1、Australia2、Canada1和France1有不同的主成分A和B, 可以明显区分不同的产地。

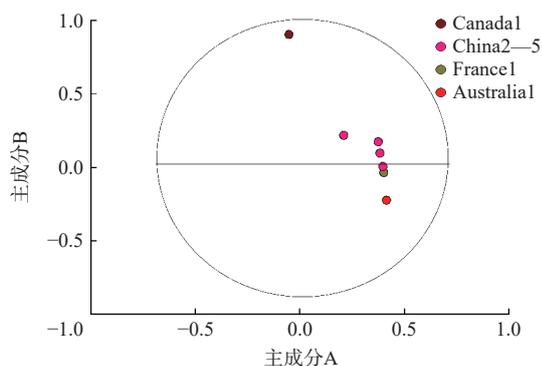


图7 偏最小二乘法(PLS)对铀矿石和铀矿石浓缩物的稀土元素含量第二次迭代分析

Fig. 7 Second iteration analysis of rare earth element content in uranium ore and uranium ore concentrate by PLS

2.5 多元统计分析方法结果比较

在基于铀矿石浓缩物的稀土元素分布模式的产地溯源分析中, 各种多元统计方法显现出不同的特点: 主成分分析方法(PCA方法)可以有效降低数据的维数, 又保留了原数据的结果, 但在分析数据时未考虑数据的分类, 得到的结果只能体现不同样品之间的差异; 因子分析(FA方法)与主成分分析有很多相似之处, 但也存在明显的不同, 因子分析从本质上、空间上看是从显性变量“提炼”潜在因子的过程, 因子的形式不是唯一确定的; 聚类分析可以对铀矿石浓缩物的产地进行类别分类, 直观地反映产地的信息, 但缺少定量的数据说明同一类的差别以及不同类别的差别; 偏最小二乘法(PLS)则从算法上考虑到了所有分析数据点之间的差异, 同时PLS还可以进行多次迭代分析, 可以辨识出不同铀矿石和铀矿石浓缩物产地的细微差别, 由此实现铀矿石浓缩物的精准溯源和归因。PLS是典型相关、主成分分析和多元线性回归等研究方法的结合, 一般用于样本量(小于100)较少, 且可能出现共线性问题的回归研究, 因此PLS与PCA相比更能显示出细节的指纹特征变化。总体上来看, 各种不同的统计方法具有不同的特点, 单靠一种或两种多元统

计的方法不能够完全描述铀矿石浓缩物的特征指纹参数, 需要综合利用进行评判和运用。

3 结论

对于类似于中国、澳大利亚或者加拿大等拥有巨大领土面积和复杂地质结构的国家, 铀矿石浓缩物的产地溯源工作存在着很大的技术难度与风险。由于不同国家的铀矿可能具有相似的成矿环境或地质结构, 或者同一国家不同产地铀矿的成矿环境或地质结构有明显差异, 因此在通过稀土元素分布模式进行多元统计分析时, 可能会将不同国家的铀矿石浓缩物归类为相同的产地或国家, 而来自于同一国家中不同产地的铀矿石浓缩物却被归类为不同的产地或国家。这就使得利用稀土元素分布模式通过多元统计分析方法开展产地的溯源时, 不能单靠一种或两种方法来描述铀矿石浓缩物的特征指纹参数, 而是需要综合多种多元统计方法的结果进行产地的溯源, 充分发挥不同方法的优点。

参考文献:

- [1] Kristo M J, Gaffney A M, Marks N, et al. Nuclear forensic science: analysis of nuclear material out of regulatory control[J]. *Annu Rev Earth Planet Sci*, 2016, 44: 555-579.
- [2] 姜小燕, 李力力. 铀矿石浓缩物的核法证学地理溯源研究现状[J]. *原子能科学技术*, 2021, 55(2): 200-210.
- [3] Keegan E, Wallenius M, Mayer K, et al. Attribution of uranium ore concentrates using elemental and anionic data[J]. *Appl Geochem*, 2012, 27(8): 1600-1609.
- [4] Varga Z, Wallenius M, Mayer K. Origin assessment of uranium ore concentrates based on their rare-earth elemental impurity pattern[J]. *Radiochim Acta*, 2010, 98(12): 771-778.
- [5] Reading David G, Croudace Ian W, Warwick Phillip E, et al. Applying multivariate statistics to discriminate uranium ore concentrate geolocations using (radio) chemical data in support of nuclear forensic investigations[J]. *J Environ Radioact*, 2016, 162: 172-181.
- [6] Madzunya D, Uushona V, Mathuthu M, et al. Rare earth elements in uranium ore deposits from Namibia: a nuclear forensics tool[J]. *J Environ Radioact*, 2021, 237: 106668.
- [7] Lin M, Zhao Y, Zhao L, et al. Tracing origins of uranium ore concentrates(UOCs) by multidimensional statistical analysis of rare-earth impurities[J]. *J Anal At Spectrom*,

- 2015, 30(2): 396-402.
- [8] Varga Z, Krajko J, Peňkin M, et al. Identification of uranium signatures relevant for nuclear safeguards and forensics[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2017, 312(3): 639-654.
- [9] 邓雪,江璐瑶,孙全德.多元统计分析方法的理论研究及应用分析[J].*数学的实践与认识*,2016,46(4):190-197.
- [10] 张国玉,王生忠,王正其,等.相山、下庄铀矿田稀土元素特征及示踪研究[J].*东华理工学院学报*,2007,30(1):9-14.
- [11] Mercadier J, Cuney M, Lach P, et al. Origin of uranium deposits revealed by their rare earth element signature[J]. *Terra N*, 2011, 23(4): 264-269.
- [12] McCreath J A, Finch A A, Simonsen S L, et al. Independent ages of magmatic and hydrothermal activity in alkaline igneous rocks: the Motzfeldt Centre, Gardar Province, South Greenland[J]. *Contrib Mineral Petrol*, 2012, 163(6): 967-982.
- [13] Horie K, Tsutsumi Y, Cho M, et al. Crystallization of REE minerals and redistribution of U, Th, and REE at contact boundary between granite and gabbro during hydrothermal alteration[J]. *Phys Chem Earth Parts A/B/C*, 2010, 35(6-8): 284-291.