

P18-2005-188

А. П. Кобзев, Ш. Гэрбиш, Д. Мончка<sup>2,3</sup>, Ц. Амартайван<sup>1</sup>

## ЭЛЕМЕНТНЫЙ АНАЛИЗ АЭРОЗОЛЕЙ

---

<sup>1</sup>Центр ядерных исследований, Монгольский государственный университет, Улан-Батор

<sup>2</sup>Институт физики Университета им. М. Кюри-Склодовской, Люблин, Польша

<sup>3</sup>Институт атомной энергии, Отвоцк-Сверк, Польша

Кобзев А. П. и др.

P18-2005-188

Элементный анализ аэрозолей

Аэрозоли, нанесенные на фиброгласовые фильтры из воздуха, были проанализированы в вакуумной камере ускорителя ЭГ-5 ОИЯИ с помощью пучка протонов с энергией 2,005 МэВ. Определенный объем воздуха был прокачан через каждый фильтр. Интенсивность пучка протонов была подобрана таким образом, чтобы не повредить бумажные фильтры и получить достаточную интенсивность характеристического рентгеновского излучения. Многоэлементный анализ образцов был выполнен без использования каких-либо эталонов. Одновременно с набором спектров характеристического рентгеновского излучения регистрировались спектры обратно рассеянных протонов, что позволило определить концентрации легких элементов в составе аэрозолей, а кроме того, однозначно идентифицировать тяжелые примеси и вычислить их концентрацию. В составе исследованных образцов обнаружен целый ряд микропримесей: F, Na, Mg, Al, S, Cl, K, Ca, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Sr, Zr, Ba. Чувствительность методики позволяет обнаружить и идентифицировать микропримеси в образце на уровне вплоть до тысячных долей процента.

Работа выполнена в Лаборатории нейтронной физики им. И. М. Франка ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2005

Kobzev A. P. et al.

P18-2005-188

Elemental Analysis of Aerosols

Layers of aerosols, deposited on a high volume fiberglass filter from air, were analyzed in a vacuum chamber of the EG-5 accelerator (FLNP, JINR) using 2.005 MeV proton beam. A known volume of air was pumped through each filter. The intensity of the proton beam was rather high in order to produce enough intensity of fluorescence, but without damaging the targets. Multielemental analysis of the aerosols was carried out without any reference samples. Both the RBS spectrum and PIXE one were stored simultaneously, which allows one to calculate the light element content as well as to identify heavier elements and calculate their concentrations in aerosols. The following trace elements have been observed in aerosol samples: F, Na, Mg, Al, S, Cl, K, Ca, Mn, Fe, Cu, Zn, As, Sr, Zr, Ba. The detection limit for some trace elements was less than 0.001 atomic percent.

The investigation has been performed at the Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2005

## ВВЕДЕНИЕ

Ядерно-физические аналитические методики широко используются для решения различных задач прикладного характера [1–3]. Исследования элементного состава примесей в воздухе, осажденных на бумажных фильтрах, с помощью пучков заряженных частиц имеют целый ряд особенностей, которые необходимо учитывать для достижения положительного результата. Прежде всего необходимо отметить, что сочетание в одном эксперименте двух методик — PIXE и RBS — существенно упрощает обработку экспериментальных спектров, расширяет диапазон идентифицируемых элементов и дает более надежные оценки их концентрации. С помощью методики RBS достаточно надежно определяется основной состав осажденных аэрозолей, состоящих из легких элементов, которые не могут определяться с помощью методики PIXE. Причем методика RBS позволяет идентифицировать совершенно однозначно легкие элементы и показывает довольно высокую чувствительность к тяжелым элементам, которые, однако, иногда довольно трудно идентифицировать однозначно. Этот недостаток методики RBS компенсируется достоинствами методики PIXE, которая позволяет однозначно идентифицировать любой элемент тяжелее алюминия и, кроме того, имеет достаточно высокую чувствительность и к тяжелым элементам.

Поскольку основными элементами в составе осажденных аэрозолей являются С, N и O с минимальными удельными тормозными способностями, пробег низкоэнергетических протонов в них достигает максимального значения. Это обстоятельство вместе с пониженным поглощением характеристического излучения в легкой матрице приводит к повышению чувствительности методики PIXE к более тяжелым элементам. В результате совместное использование двух методик позволяет исследовать почти полный элементный состав аэрозолей и обнаружить малейшие примеси любых тяжелых элементов.

Другой особенностью такого рода исследований является то обстоятельство, что информация об элементном составе аэрозолей получается из малой (по объему) части фиброгласового фильтра, поскольку размер пучка протонов не превышает нескольких квадратных миллиметров, а пробег протонов почти во всех веществах не превышает 100 мкм. Поэтому возможные неоднородности искажают окончательные результаты, но этот недостаток устраняется проведением серии измерений для каждого образца.

Вопросы регистрации спектров характеристического рентгеновского излучения и последующего вычисления концентраций микроэлементов не являются тривиальными и будут обсуждаться ниже. Здесь необходимо подчеркнуть, что одновременная регистрация спектра обратно рассеянных протонов (RBS) дает прямой путь определения концентрации основных элементов и позволяет рассчитать концентрации микроэлементов, используя интенсивность линий характеристического рентгеновского излучения.

Были исследованы 11 образцов фильтров, через которые прокачивались несколько тысяч кубометров воздуха. Целью данной работы не является оценка экологической ситуации в каком-либо городе. Предполагается рассмотреть возможности совместного использования двух ядерно-физических методик (RBS и PIXE) для исследования загрязнения воздуха.

### ЭКСПЕРИМЕНТ

Экспериментальная установка находится на одном из каналов электростатического генератора ЭГ-5 ОИЯИ. Схема ее показана на рис. 1.

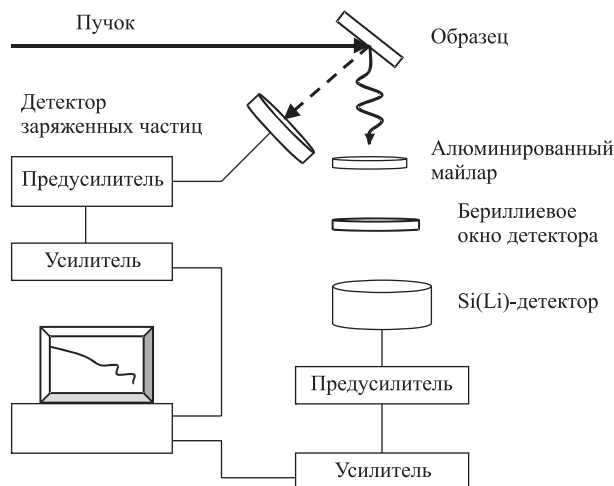


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

Пучок протонов с энергией 2,005 МэВ перед попаданием на образец формировался с помощью диафрагмы диаметром 2 мм. Образцы располагались в вакуумной алюминиевой камере с майларовым окном, через которое рентгеновское излучение выводилось на входное бериллиевое окно Si(Li)-детектора. Держатель образцов позволял поочередно исследовать до 8 образцов без нарушения вакуума. Образцы располагались под углом  $45^\circ$  к пучку налетающих протонов. Характеристическое излучение регистрировалось под углом  $90^\circ$ , а

спектр рассеянных протонов — под углом  $135^\circ$  к пучку налетающих протонов с помощью поверхностно-барьерного детектора.

Стандартные спектрометрические тракты обеспечивают регистрацию спектров и запись их в файлы. Энергетическое разрешение Si(Li)-детектора составляет 160 эВ на линии 5,9 кэВ. Поскольку характеристическое рентгеновское излучение проходит через два окошка и воздушный столб, область чувствительности Si(Li)-детектора начинается с энергии 1,7 кэВ, т. е. с характеристической линии Si. Тем не менее в некоторых образцах приходилось подавлять интенсивные линии Si и Ca с помощью дополнительных фильтров, чтобы обеспечить допустимую скорость счета.

Спектры RBS показывают большой выход рассеянных протонов на самых легких элементах C, N, O по двум причинам: прежде всего, потому что концентрация этих элементов высокая, а кроме того, сечение упругого рассеяния даже для угла  $135^\circ$  носит нерезерфордовский характер. Это обстоятельство вносило дополнительные погрешности в определение концентраций элементов, поскольку экспериментально измеренные сечения рассеяния протонов для этого угла отсутствуют и приходилось экстраполировать их значения из измеренных под большими углами.

Вместе с тем спектры RBS (рис. 2) содержат информацию о рассеянии на более тяжелых элементах, для которых оно уже носит резерфордовский

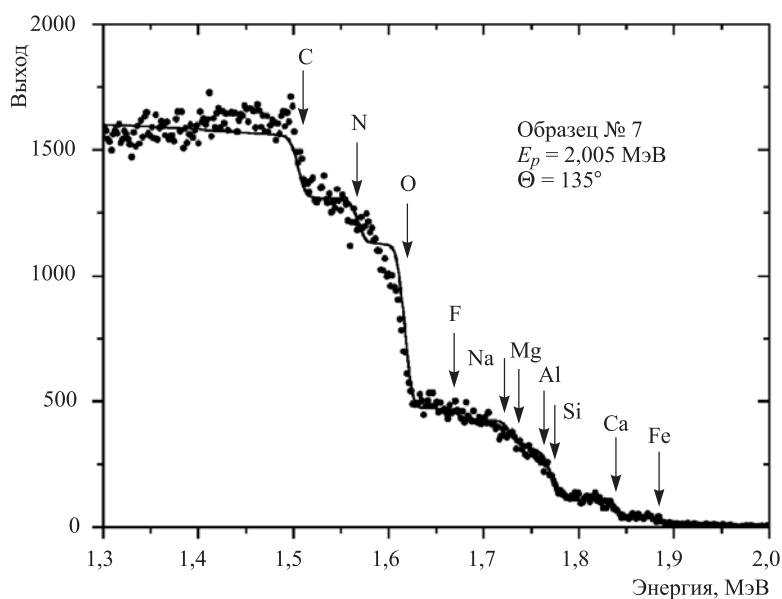


Рис. 2. Спектр протонов с энергией 2,005 МэВ, рассеянных под углом  $135^\circ$ , измеренный на образце фильтра с осажденными аэрозолями

характер и рассчитывается довольно точно. Даже небольшой выход рассеянных протонов на достаточно тяжелых элементах (Fe на рис. 2), которые были зарегистрированы также и в спектрах PIXE (рис. 3), дает возможность рассчитать нормировочные коэффициенты для вычисления концентраций всех элементов, наблюдавшихся с помощью данной методики.

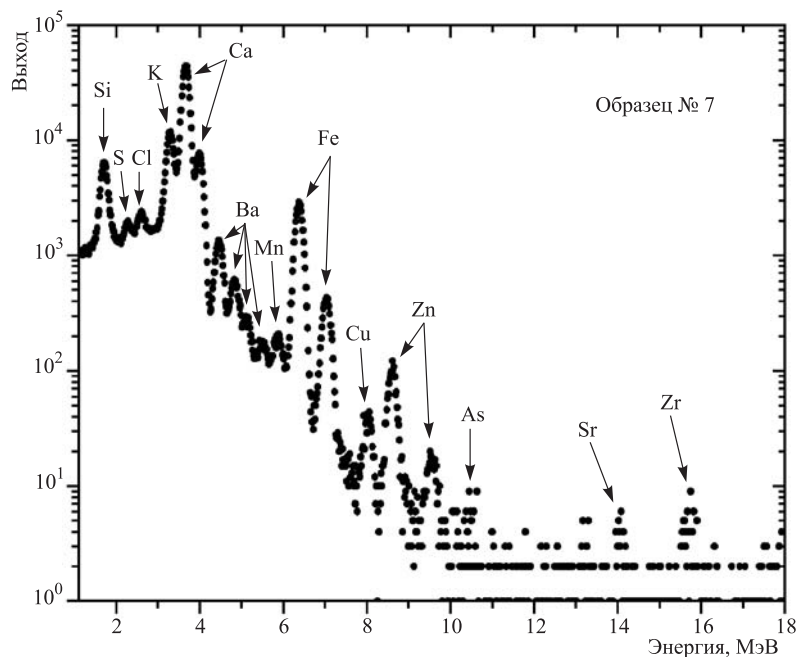


Рис. 3. Спектр характеристического рентгеновского излучения, возбуждаемого протонами в аэрозолях

На рис. 3 хорошо видно, что характеристические линии всех элементов как K-серии, так и L-серии однозначно идентифицируются, а их площади могут быть вычислены с хорошей точностью. Вместе с тем интенсивности характеристических линий для различных элементов отличаются на пять порядков. Это накладывает определенные ограничения на скорость набора спектров. Чтобы уменьшить вероятность наложений импульсов, необходимо поддерживать среднюю скорость набора спектров на довольно низком уровне, а для наблюдения примесных элементов с низкой концентрацией необходимы достаточно длительные экспозиции.

Таким образом, в составе образцов аэрозолей, осажденных на фильтрах, через которые прокачивалось определенное количество воздуха, было обнаружено около 20 основных элементов и микроэлементов. Полностью результаты исследования приведены в таблице.

**Атомная концентрация элементов в образцах аэрозолей**

Элемент	№ 1	№ 2	№ 3	№ 4	№ 5	№ 6	№ 7	№ 8	№ 9	№ 10	№ 11
C	41	25	24	23	26	32,6	44	24,2	26	24	28,6
N	20,5	18	19	19	20,4	19,6	15,7	16,2	15	15	15
O	28	43	43,6	44	40	37,3	31	45	45,8	46,6	44
F	2,6	3,5	2,4	2,2	3,6	2,0	2,0	3,0	3,3	2,0	2,2
Na	2,5	2,5	3,5	4,3	2,6	3,0	2,0	2,7	2,6	3,9	2,9
Mg	1,3	2,2	2,0	1,1	2,2	1,0	1,5	2,6	1,9	2,6	1,0
Al	1,3	2,0	1,8	2,2	2,0	1,0	1,2	3,0	2,0	3,0	2,2
Si	1,8	2,7	2,5	3,1	1,7	2,5	1,5	2,0	2,0	1,9	2,8
S	0,2	0,04	0,05	0,01	0,1	0,01	0,01	0,01	0,07	0,01	0,01
Cl	0,01	0,01	0,01	0,01	0,002	0,005	0,01	0,01	0,02	0,004	0,01
K	0,1	0,1	0,15	0,1	0,15	0,2	0,15	0,2	0,15	0,15	0,15
Ca	0,53	0,8	0,7	0,8	0,9	0,7	0,7	0,8	0,9	0,7	0,7
Mn	0,007	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,005	0,006	0,01	0,004	0,01
Fe	0,14	0,2	0,2	0,1	0,2	0,3	0,14	0,2	0,3	0,1	0,3
Cu	0,002	0,002	0,002	0,003	0,002	0,003	0,001	0,001	0,005	0,003	0,003
Zn	0,01	0,007	0,01	0,004	0,008	0,008	0,003	0,01	0,014	0,01	0,01
As	0,001	0,003	0,002	0,001	0,001	*	0,001	*	0,001	*	0,001
Sr	0,0006	0,002	0,001	0,001	0,002	*	*	*	0,001	*	0,001
Zr	0,005	0,01	0,003	0,002	0,004	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,002
Ba	0,01	0,015	0,017	0,03	0,015	0,02	0,02	0,02	0,02	0,014	0,02

*Примечание.* Значком \* обозначена концентрация менее 0,0002 ат. %.

## РЕЗУЛЬТАТЫ

Расчет концентрации элементов, зарегистрированных методом RBS, проводился традиционным путем, который положен в основу различных компьютерных программ, в том числе и программы DWBS [4], которую мы использовали. Для обработки же спектров PIXE мы использовали зависимость сечения возбуждения характеристического рентгеновского излучения с учетом эффективности Si(Li)-детектора от энергии излучения, показанную на рис. 4.

Эта зависимость показывает относительную эффективность регистрации характеристического излучения для различных элементов. Абсолютную же нормировку можно выполнить в той области, где некоторые элементы регистрируются как одним, так и другим методом. В данном случае такими элементами были Si и Ca, а иногда Fe и Ba. Как видно, сечения как для K-серии, так и для L-серии довольно резко уменьшаются с увеличением энергии, что приводит к большой разнице в скорости набора линий, соответствующих разным элементам. Естественно, на эту зависимость накладывалась концентрация примесей в воздухе, в результате, как видно на рис. 3, разброс в скоростях набора спектров достигал 5 порядков.

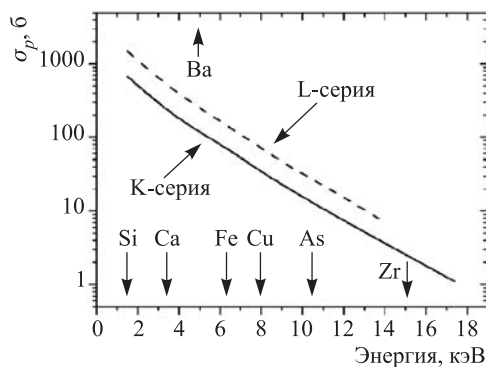


Рис. 4. Сечение возбуждения характеристического излучения для K- и L-серий, индуцированное пучком протонов с энергией 2 МэВ

Таким образом, детальное исследование образцов фильтров с осажденными на них аэрозолями с помощью методик RBS и PIXE показало, что данные аэрозоли содержат около 20 элементов, концентрация которых изменяется от десятков атомных процентов до одной тысячной доли процента. Основную массу аэрозолей составляют легкие элементы, так что суммарный атомный вес аэрозолей 15–16 атомных единиц. Это повышает чувствительность обеих методик к более тяжелым элементам, что позволяет обнаружить присутствие таких элементов, как Mn, Cu, Zn, As, Sr, Zr, с концентрациями в тысячные доли атомных процентов. Разумеется, концентрации других элементов могут быть определены с помощью данных методик с той же чувствительностью, если их микропримеси появятся в близких по составу матрицах.

Точность определения концентрации элементов составляет около 30 % и ее можно еще повысить, если в этом есть необходимость, путем измерения нескольких образцов, приготовленных из одного и того же фильтра.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. *Rodriguez-Fernandez L. et al.* // Nucl. Instrum. Meth. B. 1999. V. 150. P. 663–666.
2. *Подгурски В. и др.* Сообщение ОИЯИ Р19-96-309. Дубна, 1996.
3. *Кобзев А. П., Широков Д. М.* Сообщение ОИЯИ Р14-91-516. Дубна, 1991.
4. *Shirokov D. M., Bogac V.* // Nucl. Instrum. Meth. B. 1994. V. 84. P. 497–506.

Получено 1 декабря 2005 г.



Корректор *Е. В. Сабаева*

Подписано в печать 30.01.2006.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,5. Уч.-изд. л. 0,61. Тираж 260 экз. Заказ № 55200.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований  
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: [publish@pds.jinr.ru](mailto:publish@pds.jinr.ru)

[www.jinr.ru/publish/](http://www.jinr.ru/publish/)