

# TECHNIKI ZATĘŻENIA I POMIARU AKTYWNOŚCI RADIONUKLIDÓW KRYPTONU I KSENONU

Paweł Janowski

## Wstęp

Radioizotopy kryptonu i ksenonu o krótkich czasach połowicznego zaniku, niewystępujące naturalnie w przyrodzie, są uwalniane do środowiska przede wszystkim podczas normalnej pracy elektrowni jądrowych oraz po wybuchu jądrowym. Ich źródłami są również zakłady przerobu wypalonego paliwa jądrowego oraz zakłady wytwarzające radiofarmaceutyki[5] (np.  $^{133}\text{Xe}$ , czy  $^{81\text{m}}\text{Kr}$  stosowane w badaniach płuc). Gazy te, jako szlachetne i bierne chemicznie bywają emitowane do atmosfery nawet w przypadkach podziemnych eksplozji jądrowych, podczas których pozostałe substancje promieniotwórcze nie muszą być uwalniane ponad powierzchnię gruntu, a już kilkumetrowa warstwa ziemi wystarcza, by promieniowanie to nie wydostało się na powierzchnię.

W związku z tym monitorowanie obecności krótkożyjących radioizotopów ksenonu w powietrzu stanowi dobry system wykrywania nielegalnej działalności jądrowej (tj. przeprowadzanie próbnego eksplozji bomb atomowych) wbrew przyjętemu traktatowi o całkowitym zakazie prób z bronią jądrową (ang. *Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT*).

Dlatego też Organizacja CTBTO powołała nieformalną grupę ekspertów w ramach *International Noble Gas Experiment*, mającą na celu opracować, zbudować i przetestować systemy poboru i detekcji promieniotwórczych izotopów ksenonu (Tabela 1). Wszystkie cztery wysunięte propozycje systemów spełniły wymagania im stawiane i zostały zaakceptowane dla komercyjnej produkcji[8]. W tym opracowaniu budowa i działanie trzech z nich zostały opisane w dostępnych pracach naukowych.

W części systemu IMS (*International Monitoring System*) monitorującej działalność jądrową na świecie przez stacje poboru gazów szlachetnych z racji długiego czasu półzaniku izotopu  $^{85}\text{Kr}$ , **krypton** został pominięty. Dzięki niemu istniejące już antropogenne tło (stężenie aktywności rzędu  $1 \text{ Bq/m}^3$ ) uniemożliwia wykrywanie subtelnych różnic jego koncentracji, zaś pozostałe izotopy są zbyt krótkożyciowe (czas półrozpadu poniżej 5 h), żeby mogły być ilościowo wykorzystane w pomiarze w dużych odległościach od miejsca uwolnienia.

Tabela 1. Własności wybranych radionuklidów Kr i Xe

Nuklid	$^{85}\text{Kr}$	$^{131\text{m}}\text{Xe}$	$^{133}\text{Xe}$	$^{133\text{m}}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
$T_{1/2}$	10,7 y	11,9 d	5,24 d	2,19 d	9,1 h
X	13 keV	⇒ 30,4 keV (54%)	31,6 keV (48,9%) ←	⇒ 30,4 keV (56,3)	31,6 keV (5,2%)
Y	514 keV (0,43%)	164 keV (2%)	⇒ 81 keV (37%)	233 keV (10%)	⇒ 250 keV (90%)
β	687 keV (99,57%)	-	⇒ 346 keV (100%)	-	⇒ 910 keV (100%)
IC	-	⇒ 129 keV (61%)	45 keV (54%) ←	⇒ 199 keV (63%)	214 keV (5,7%)

Oznaczenia w tabeli:  $T_{1/2}$  – okres połowicznego zaniku;

X – energie oraz (wydajności) emitowanych kwantów promieniowania rentgenowskiego;

Y – energie oraz (wydajności) emitowanych kwantów promieniowania gamma;

β – energie oraz (wydajności) emitowanych elektronów z przemiany beta;

IC – energie oraz (wydajności) emitowanych elektronów konwersji wewnętrznej;

Strzałkami oznaczono koincydencje emitowanego promieniowania.

W dalszej części tego opracowania opisane zostaną (dostępne w literaturze) pojedyncze metody wyznaczania koncentracji kryptonu-85 w powietrzu atmosferycznym.

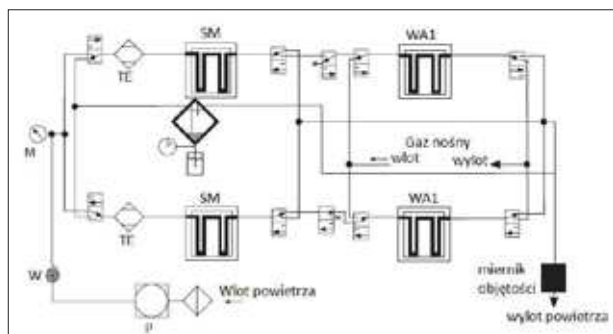
### 1. System SAUNA [1]

System SAUNA (*Swedish Automatic Unit for Noble gas Acquisition*) został opracowany, aby zastąpić poprzednio używany w Szwecji system, niespełniający wymogów stawianych przez Międzynarodowy System Monitoringu IMS dla CTBT.

Zasadniczo można wyróżnić trzy części systemu SAUNA: próbkującą, procesującą i detekcyjną.

#### SAUNA – próbkowanie

Pierwsza z nich, część próbkująca składa się z dwóch bliźniaczych torów (rys. 1), z których w danej chwili przez jeden z nich przepompowywane jest powietrze, a drugi jest regenerowany osuszonym powietrzem z wyjścia pierwszego toru (wyjaśnienie w tekście niżej).



**Rys. 1.** Schemat sekcji próbkowania systemu SAUNA, na podstawie [1]

Pompa (P) kompresuje powietrze do nadciśnienia 2,4 atm, zapewniając stały strumień przepływu 9 dm<sup>3</sup>/min. Wymiennik ciepła (W) oziębia skompresowane powietrze do temperatury otoczenia. Manometr (M) pozwala kontrolować ciśnienie pompowanego powietrza. Dalsze oziębianie do -5°C w celu usunięcia części pary wodnej z próby powietrza odbywa się na złączu termoelektrycznym (TE). Następnie powietrze przechodzi przez dwie szeregowo połączone kolumny z sitem molekularnym 4A (SM) w celu usunięcia resztek pary wodnej oraz dwutlenku węgla. Kolumny z sitem wykonane są z rury ze stali nierdzewnej o średnicy wewnętrznej 38 mm i długości 137 cm, w celu zapewnienia redukcji zajmowanej przestrzeni są zgięte w kształt litery U.

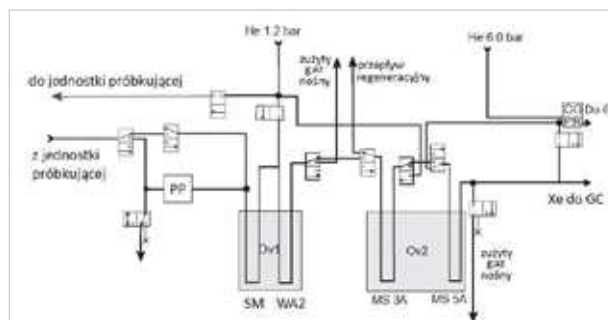
Dalej powietrze przetłaczane jest do kolejnych kolumn (WA1) o tych samych wymiarach co poprzednie, lecz wypełnionych węglem aktywnym w celu absorpcji ksenonu. Węgiel ten, uzyskany ze skorup orzechów kokosowych (USS 8x16) o rozmiarach ziaren w przedziale (1,2-2,4) mm przed umieszczeniem w kolumnach jest płukany we wrzącej dejonizowanej wodzie i suszony w temperaturze 80°C przez 12 h. Jak wykazały testy tego systemu, zatkanie ksenonem kolumn z węglem aktywnym następuje po przepuszczeniu ok. 4 m<sup>3</sup> powietrza.

Wypływające z kolumn z węglem aktywnym osuszone powietrze (praktycznie azot) używany jest do regeneracji drugiej części sekcji próbkującej (strumień wsteczny względem trybu próbkowania). Regenerację wspomaga ogrzewanie kolumn z węglem.

#### SAUNA – przetwarzanie

Druga część systemu, procesująca, służy połączeniu próbek ksenonu z obu torów A i B oraz pomiarowi jego ilości na chromatografie gazowym.

Trwające 6 h próbkowanie jednym torom (A) kończy się skierowaniem strumienia wlotowego powietrza na drugi tor (B) i w torze A rozpoczyna się przetłaczanie próbki ksenonu do części procesującej. Pompa próżniowa (PP) (rys. 2) wymusza podciśnienie ok. 0,2 atm, po czym kolumny z węglem aktywnym zawierające ksenon są ogrzewane do temperatury przeszło 300°C i tłoczony jest w nie gaz nośny – hel. Ksenon adsorbuje się na węglu aktywnym (WA2) w sekcji procesującej (rys. 2), pozostawiając ewentualne resztki pary wodnej i dwutlenku węgla na sicie molekularnym (SM). Obie kolumny znajdują się w piecyku (Ov1) umożliwiającym ich podgrzewanie.



**Rys. 2.** Jednostka procesująca systemu SAUNA, [1]

Po następnych 6 h próbkowania w drugim torze (B) powtarzana jest ta sama procedura dla jego kolumny

z węglem aktywnym i zaadsorbowanym ksenonem, przez co w części procesującej, na węglu (WA2) następuje dodanie próbek ksenonu z obu próbek powietrza o objętości 3,5 m<sup>3</sup> każda.

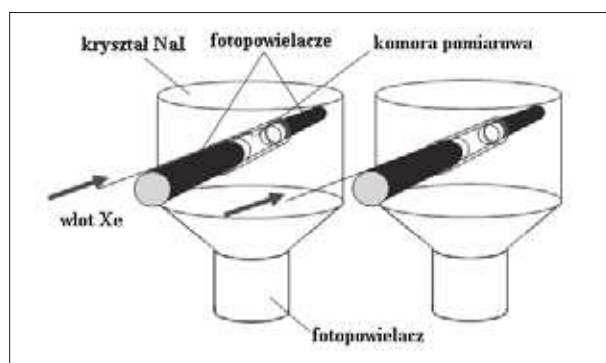
Połączenie próbek następuje podczas wygrzewania węgla w kolumnie (WA2) i kierowania gazu nośnego z ksenonem na kolumny z sitami molekularnymi 3A i 5A (MS 3A) i (MS 5A), tu odbywa się dalsze oczyszczanie próbki, między innymi z radonu.

Ostatnim stopniem części procesującej jest chromatograf gazowy (GC, Chrompack 9001), na którym następuje ostateczna separacja od pozostałych gazów oraz określenie ilości wyekstrahowanego z powietrza ksenonu. Pik ksenonowy (obecny na chromatogramie sygnał wykazujący ilościowo obecność ksenonu), wyprzedza przy tym pik radonowy o ok. 30 min co stwierdzono podczas oddzielnych testów. Pomiar objętości wykonywany jest przy pomocy miernika przewodności cieplnej. Objętość gazu nośnego z ksenonem przepływającego w czasie trwania piksu ksenonowego wynosi ok. 50 cm<sup>3</sup> i wymaga redukcji przed pomiarem (komora pomiarowa ma pojemność 6,4 cm<sup>3</sup>). Osiąga się to poprzez adsorpcję ksenonu na węglowym sicie molekularnym o masie 0,5 g umieszczonym w aluminiowej kolumnie o długości 12 cm i średnicy wewnętrznej 3 mm. Przy przepływie 10 cm<sup>3</sup>/min proces trwa 5 min i jest przeprowadzany w temperaturze otoczenia. Po tym czasie mała pompa próżniowa usuwa resztki gazu nośnego z kolumny i komory detekcyjnej, a następnie kolumna podgrzewana jest do 350 °C i ksenon z helem jako gazem nośnym przetłaczany jest do próżniowej komory detekcyjnej. Objętość tej próbki przy ciśnieniu atmosferycznym wynosi ok. 6 cm<sup>3</sup>.

#### SAUNA – pomiar

Trzecia część systemu pozwala wyznaczyć aktywność zaadsorbowanego ksenonu, a przy znanej objętości powietrza – stężenie aktywności ksenonu w zasasywanym powietrzu.

Pomiar aktywności oparty jest na technice wykorzystania koincydencji *beta-gamma*. Polega ona na detekcji emitowanego promieniowania *beta* i towarzyszącego mu promieniowania *gamma* tylko wspólnie, nie zaś tylko jednego z nich. Wszystkie 4 rozważane izotopy radioksenonu (tab. 1) nadają się do tego celu co wielce wspomaga zdolność rozróżnienia aktywności poszczególnych izotopów ksenonu przez układ detekcyjny.



Rys. 3. System detekcyjny SAUNA, na podstawie [1]

Układ detekcyjny stanowi para scyntylicyjnych NaI(Tl) detektorów promieniowania *gamma* o średnicy 4 cali i wysokości 5 cali połączonych światłowodami z fotopowielaczami. W wydrążonych wzdłuż średnicy przez objętości czynne tych kryształów kanałach znajdują się scyntylicyjne detektory plastikowe do detekcji promieniowania *beta*, wraz z fotopowielaczami. Pomiedzy nimi, w centralnej części wydrążenia znajduje się komora pomiarowa, do której wstrzykiwana jest próbka ksenonu, jej wymiary to 50,8 mm długości i 6,35 mm średnicy wewnętrznej.

Grubość scyntylatorów plastikowych, 1 mm, została dobrana tak, aby zatrzymywane w niej były najszybsze elektrony emitowane z próbki (rozpad <sup>133</sup>Xe) o energii 350 keV. W celu zminimalizowania absorpcji niskoenergetycznego promieniowania X, aluminiowa powłoka pokrywająca od wewnątrz wydrążenie w kryształach jodku sodu ma grubość zaledwie 0,2 mm.

Oslonę stanowi domek wykonany z cegieł ołowianych (niskiej aktywności) o grubości 5 cm, wyścielony wewnątrz blachą miedzianą o grubości 5 mm w celu usunięcia kwantów charakterystycznego promieniowania X o energiach: 72,8 keV, 75,0 keV, 84,9 keV oraz 87,3 keV wytwarzanych w ołowiu przez promieniowanie otoczenia. Działanie detektorów jest regularnie kontrolowane przy użyciu źródła <sup>154</sup>Eu, wsuwanego do komory detekcyjnej na plastikowym pręciku przez silnik elektryczny.

Procesowanie sygnałów odbywa się w standardowej elektronice CAMAC i NIM. Sygnał z jednego z detektorów *beta* definiuje czas dla sygnału trygerującego i w połączeniu z sygnałem z drugiej sondy *beta* tworzy sygnał koincydencyjny *beta*. Jest on opóźniany i użyty do koincydencji z trzecim sygnałem z detektora NaI(Tl); połączony sygnał bramkuje konwerter analogowo-cyfrowy konwertujący wysokości sygnałów na postać cyfrową. Wynikiem jest dwuwymiarowe widmo *beta*-

*gamma*, zestawiające wysokość impulsu z detektora NaI z zsumowaną wysokością sygnałów z detektorów *beta*.

Zdolność rozdzielcza detektora NaI(Tl) wynosi 7 keV przy energii kwantu 30 keV i 45 keV przy energii 511 keV. Kalibracji wydajnościowej dokonuje się wstrzykując próbki radioksenonu odpowiadające aktywnością kilku Bq/m<sup>3</sup> w powietrzu.

Uzyskiwane minimalne wykrywalne stężenia aktywności (MDC) dla ksenonu-133 są rzędu 1 mBq/m<sup>3</sup>, podobnie dla pozostałych radionuklidów ksenonu (dla dwunastogodzinnych okresów próbkowania).

## 2. System SPALAX

System SPALAX jest nieco prostszą realizacją założeń stawianych przez CTBT dla automatycznej stacji monitoringu radioksenonu. Uproszczony jest system osuszania i usuwania dwutlenku węgla, jak i system detekcyjny, oparty na wysokorozdzielczej spektrometrii promieniowania *gamma*. Podobnie jak system SAUNA również system SPALAX składa się z trzech części.

### SPALAX – próbkowanie

Sekcja próbkująca zapewnia wstępne wzbogacenie próbki powietrza w ksenon.

Możliwe jest to dzięki użyciu polimerowych membran, wykonanych z kilkuset pustych włókien rurkowych, których wewnętrzna powierzchnia pokryta jest bardzo cienką warstwą polimeru. Wstępnie osuszone powietrze przepływając przez membrany pod ciśnieniem 8 atm (ok. 15 m<sup>3</sup>/h) zostaje wzbogacone w azot i ksenon (do 13 razy większa koncentracja ksenonu względem powietrza zasysanego). Wynika to ze zwiększonej przenikalności przez membrany dla tlenu, pary wodnej i dwutlenku węgla względem pozostałych gazów.

Wielką zaletą tego rodzaju rozwiązania jest możliwość ciągłej pracy bez potrzeby regeneracji i zupełna eliminacja O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O i CO<sub>2</sub>.

### SPALAX – przetwarzanie

Kolejna sekcja, pułapkowania-prekoncentracji-oczyszczania zapewnia dalszą koncentrację oraz eliminację radonu z próbki.

Zawiera ona pułapkę selektywną dla gazów szlachetnych na węglu aktywnym, pracującą w temperaturze

otoczenia. Po czasie nieprzekraczającym czasu nasycenia pułapki ksenonem (węgiel aktywny ma skończoną powierzchnię zdolną przyłączyć ten gaz) następuje jego desorpcja (usunięcie z pułapki węglowej). Odbywa się to poprzez kolejne wygrzewanie trzech sekcji pułapki przy niewielkim strumieniu gazu nośnego, jakim jest azot uzyskiwany w sekcji próbkowania i czasowo przetrzymywany dla tego celu. Wykorzystywany jest tutaj spadek zdolności adsorpcyjnej węgla aktywnego ze wzrostem temperatury – pochłonięte gazy są uwalniane. Odpowiednio dobrany czas wygrzewania węgla aktywnego z zaadsorbowanymi gazami pozwala na oddzielenie ksenonu od radonu dzięki różnym temperaturom desorpcji tych gazów z adsorbenta węglowego. Ten ostatni usuwany jest później podczas wygrzewania wprost do atmosfery.

Urządzenie składa się z dwóch torów zawierających po trzy kolumny z węglem aktywnym. Oba tory pracują na zmianę w cyklach 3 h.

Sekcja ostatecznej koncentracji zawiera dwie kolumny z węglem aktywnym o małych objętościach przy których desorpcjach używane są coraz mniejsze strumienie nośnego N<sub>2</sub>. Ksenon tak zebrany w ostatniej kolumnie z cyklu dobowego jest desorbowany przez wygrzanie do próżniowej komory detekcyjnej.

### SPALAX – pomiar

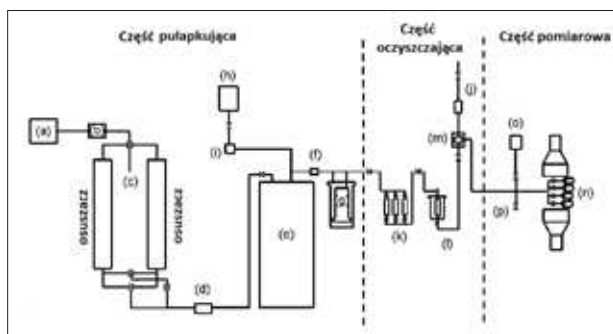
Sekcja pomiarowa pozwala ilościowo wyznaczyć stężenie aktywności ksenonu w zasysanym powietrzu.

Komora detekcyjna znajduje się na detektorze planarnym, HPGe chłodzonym ciekłym azotem. Niskotłowy spektrometr pozwala na osiągnięcie MDC mniejszego niż 0,15 mBq/m<sup>3</sup> dla ksenonu-133.

Całość stanowi komercyjną, zminimalizowaną wersję stacji opracowanej wcześniej przez Francuską Komisję Energii Atomowej. Industrializacji dokonała firma Environnement S.A.

## 3. System ARSA [2]

To system amerykański, który wykorzystuje zwiększoną wydajność adsorpcji gazów szlachetnych na węglu aktywnym w niskich temperaturach bez użycia ciekłego azotu.



**Rys. 4.** Schemat systemu ARSA na podstawie [2], objaśnienia w tekście

### ARSA – pułapkowanie

Pierwsza część systemu odpowiada za wychwyt ksenonu z przepływającego powietrza.

Bezolejowy kompresor tłokowy (a) wymusza przepływ powietrza na poziomie ok. 7 m<sup>3</sup>/h przez filtr aerozolowy, wymiennik ciepła (b) oziębiający skompresowane powietrze do temperatury otoczenia i dalej przez przemysłowy osuszacz (c) wypełniony sitem molekularnym 13X i Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> w stosunku 2:1; są to dwie kolumny, każda o długości ok. 150 cm i średnicy wewnętrznej 10 cm. Powietrze przepływa najpierw przez tlenek glinu, który usuwa z niego parę wodną, a następnie przez sito molekularne wychytujące CO<sub>2</sub>. Stałość strumienia przepływającego powietrza zapewniona jest przez elektroniczny kontroler przepływu, mierzący i regulujący go na bieżąco (d). Każda z kolumn posiada ilość materiału adsorbującego wystarczającą do usunięcia pary wodnej i CO<sub>2</sub> przy przepływie 7 m<sup>3</sup>/h przez ok. 5 h; podczas pracy jednej kolumny druga jest regenerowana przez wygrzewanie w temperaturze 350°C przy wstecznym przepływie osuszonego powietrza kierowanego z głównej pułapki węglowej.

Po osuszeniu powietrze kierowane jest do przemysłowego (PGC-150, PolyCold) urządzenia chłodzącego (e) przepływającą mieszaninę gazów do temperatury -125°C. Wykorzystana jest własność do wydajniejszej adsorpcji gazów szlachetnych w pułapkach węglowych przy niskich temperaturach [6], bez użycia ciekłego azotu, którego stosowanie stwarzałoby konieczność częstej ingerencji osoby obsługującej stację, w celu uzupełniania stale odparowującej cieczy.

W dalszej kolejności strumień powietrza kierowany jest do wstępnej pułapki radonowej (f), tj. niewielkiej objętościowo pułapki węglowej. Krótki czas kontaktu

powietrza z węglem aktywnym zapewnia praktycznie zerową adsorpcję ksenonu, ale duże pochłanianie radonu. Pozwala na to większą zdolność wychwytywania cięższego gazu szlachetnego w niskiej temperaturze. Regeneracja wstępnej pułapki radonowej trwa 2 h i odbywa się w temperaturze 300 °C w próżni.

Za wstępną pułapką radonową znajduje się główna pułapka ksenonowa (g), o długości 20 cm i średnicy 10 cm, zdolna zaadsorbować ksenon z ok. 40 m<sup>3</sup> powietrza (6 h przy przepływie 7 m<sup>3</sup>/h) na węglu aktywnym, utrzymywana w temperaturze -125°C. Z racji długiego czasu, jak i niskiej temperatury pułapkowania adsorpcji ulegają również inne gazy jak azot, tlen i argon; w celu ich usunięcia po adsorpcji pułapka zostaje poddana działaniu podciśnienia (100 Pa) przez ok. 30 min, przy czym w pułapce pozostaje nadal powyżej 90% zaadsorbowanego ksenonu.

### ARSA – oczyszczanie

Druga część systemu odpowiada za oczyszczanie zaadsorbowanego ksenonu od pochłoniętego również podczas adsorpcji radonu.

Ksenon zaadsorbowany w głównej pułapce zostaje z niej wyzwolony podczas wygrzewania w temperaturze ok. 300°C przy przepływie nośnika – azotu (ok. 0,2 dm<sup>3</sup>/min ze zbiornika (h), (i) oraz (j) to kontrolery przepływu azotu) i kierowany jest do trzech kolejnych pułapek.

Pierwsza z nich (k), o długości 25 cm i średnicy 10 cm, zawiera mieszaninę askarytu (71%) i silikażelu (29%) i usuwa resztki CO<sub>2</sub> i H<sub>2</sub>O z przepływającej mieszaniny gazów.

Druga pułapka (l), o długości 2 cm i średnicy 1 cm wypełniona jest sitem molekularnym 5A chłodzonym do temperatury -45°C, usuwa ona pozostałości radonu niezaadsorbowanego w pierwszej pułapce radonowej.

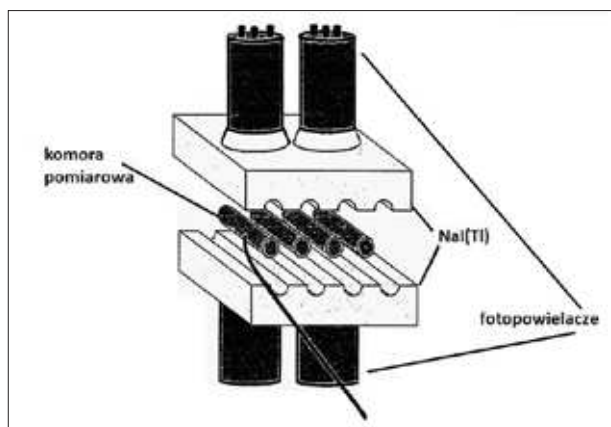
Ostatnią pułapką (m) jest ostateczna pułapka ksenonowa, wypełniona tym samym materiałem co główna, lecz o znacznie mniejszej objętości; jej wymiary to ok. 6 cm długości i 0,6 cm średnicy. Jest to objętość wystarczająca do adsorpcji zgromadzonego w głównej pułapce ksenonu przy przepływie 0,2 dm<sup>3</sup>/min w temperaturze poniżej -100°C.

Następnie ksenon jest przetłaczany do komory pomiarowej o objętości około  $6,4 \text{ cm}^3$  (n). Odpompowanie komory, wygrzanie ostatecznej pułapki ksenonowej do temperatury  $400^\circ\text{C}$  i fakt znacznie większej objętości komory pomiarowej niż pułapki i doprowadzenia skutkuje większym niż 80% transferem ksenonu do komory.

#### ARSA – pomiar

Trzecia część systemu odpowiada za pomiar aktywności ksenonu.

Układ pomiarowy w tym systemie jest analogiczny do tego w systemie SAUNA – opiera się na koincydencji *beta-gamma* z wykorzystaniem scyntylatorów na końcach komory pomiarowej i otaczających ją detektorach NaI(Tl), różniący się jedynie geometrią.

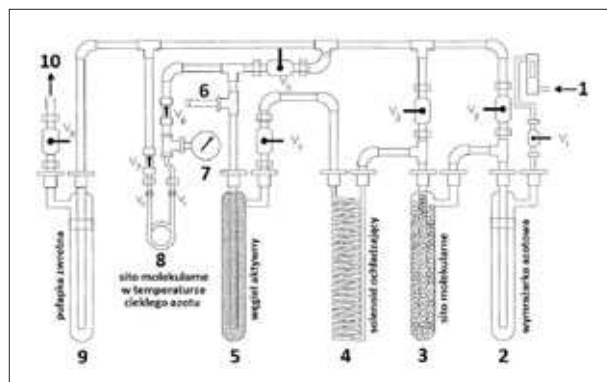


Rys. 5. System detekcyjny ARSA, na podstawie [2]

Innym sposobem pomiaru charakteryzuje się czwarty system opracowany przez INGE, rosyjski ARIX – posługuje się *beta*-bramkową spektrometrią *gamma*. Jest to zatem układ koincydencyjny lecz niemierzący energii cząstki *beta*, a jedynie fakt jej przelotu przez detektor [8].

#### 4. Krypton – metoda opracowana w Gent (Belgia) stosowana w Dublinie [3]

Aparatura wykorzystywana do zatężania próbki kryptonu składa się z szeregu pułapek utrzymywanych w ciekłym azocie (oprócz osuszającego sita molekularnego utrzymywanego w temperaturze pokojowej). Wlot pobieranej próby powietrza (1) na rys. 5 umiejscowiony jest z prawej strony. Pierwsza pułapka (2) odpowiada za kondensacyjne usuwanie pary wodnej (i dwutlenku węgla) z powietrza – jest to zwykła wymrażarka azotowa.



Rys. 6. Schemat systemu zatężania kryptonu, na podstawie [3]

Drugą pułapkę (3) stanowi sito molekularne usuwające resztę pary wodnej i dwutlenku węgla z przepływającego powietrza. Wypełnienie stanowi sito 5A o rozmiarze ziaren 2 mm.

Kolejną kolumną jest solenoid ochładzający (4), a za nim pułapka z węgla aktywnego (5). Na niej adsorbowany jest krypton oraz małe ilości innych gazów, przede wszystkim azotu i tlenu. Podczas poboru próbki zawory  $V_1, V_4, V_5$  i  $V_8$  są otwarte, pozostałe zaś zamknięte, a więc powietrze po przejściu przez pułapkę węglową (5) jest usuwane przez pompę próżniową poza układ (10). Pułapka zwrotna (9) zapobiega ewentualnym zanieczyszczeniom układu olejem z pompy próżniowej wymuszającej przepływ powietrza przez układ.

Desorpcja następuje wskutek ogrzania pułapki węglowej (5) i krypton adsorbowany jest w mniejszej pułapce (8), rurce miedzianej wypełnionej sitem molekularnym 5A mesh 60/80, utrzymywanej w temperaturze ciekłego azotu. Podczas desorpcji otwarte pozostają jedynie zawory  $V_6, V_7, V_8$  i oba zawory przy pułapce (8) –  $V_C$ .

Tak otrzymana próbka wysyłana jest do Gent w Belgii, gdzie następuje dalsza koncentracja kryptonu. Uzyskiwana jest ona poprzez przepuszczanie próbki przez szereg chromatograficznych kolumn z sitami molekularnymi przy udziale helu jako nośnika. Podczas adsorpcji kolumna utrzymywana jest w temperaturze ciekłego azotu. Desorpcja z kolumny do następnej odbywa się w temperaturze pokojowej. Powtarzanie procesów desorpcji/adsorpcji skutkuje wzbogaceniem próbki w krypton sięgającej 99,7%.

Pomiar aktywności opiera się na promieniowaniu *beta* emitowanym przez  $^{85}\text{Kr}$  przy pomocy spektrometrii scyntylicyjnej, osiągane są 5% niepewności wyznacze-

nia koncentracji aktywności kryptonu-85 w powietrzu. Objętość powietrza odpowiadająca wyekstrahowanemu z niej kryptonu obliczana jest ze znanego udziału tego gazu w powietrzu atmosferycznym (1,14 ppm objętościowo); masa kryptonu wyznaczana jest przez zamknięcie go w znanej objętości i pomiar jego ciśnienia i temperatury.

Do ostatecznego oczyszczenia próbki uzyskanej przez zatężanie stosowane są również chromatografy gazowe [4].

Ze względu na wielkość stężenia aktywności prowadzone są również pomiary in-situ w czasie rzeczywistym w detektorach ustawionych na drodze chmury z kryptonem pochodzącej wprost z zakładu przerobu wypalonego paliwa jądrowego (La Hague, [7]).

### Podsumowanie

Opisane w artykule stacje monitoringu radionuklidów gazów szlachetnych, zwłaszcza ksenonu, wykorzystywane są w sieci monitoringu radionuklidów CTBTO. Sieć monitoringu składa się (w skali światowej) z 80 stacji pobierających próby aerozoli z powietrza atmosferycznego, zaś 40 z nich wyposażonych jest w automatyczne systemy pomiaru stężeń radioksenonu.

W świetle planowanego rozwoju energetyki jądrowej w Polsce pożądanym jest stworzenie urządzeń do kontrolowania uwolnień gazów szlachetnych z instalacji jądrowych i ich rozproszenia na terenie kraju. W Instytucie Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie zostały rozpoczęte przygotowania do budowy stacji pomiaru stężeń radionuklidów gazów szlachetnych w powietrzu atmosferycznym.

*mgr inż. Paweł Janowski,  
Akademia Górniczo-Hutnicza im. Stanisława Staszica,  
Instytut Fizyki Jądrowej im. H. Niewodniczańskiego PAN,  
Kraków*

*doktorant Interdyscyplinarnych Studiów Doktoranckich  
AGH-IFJ PAN-IK PAN, praca dotycząca opisywanych  
w artykule metod realizowana w IFJ im. H. Niewodniczańskiego  
PAN w Krakowie, realizowana w ramach projektu  
strategicznego "Technologie wspomagające rozwój  
bezpiecznej energetyki jądrowej" finansowanego przez  
Narodowe Centrum Badań i Rozwoju. Zadanie badawcze  
„Rozwój metod dla zapewnienia bezpieczeństwa jądrowego  
i ochrony radiologicznej dla obecnych i przyszłych  
potrzeb energetyki jądrowej”.  
Projekt nr SP/J/6/143339/11.*

### Literatura

- [1] A. Ringbom et al. *SAUNA – a system for automatic sampling, processing and analysis of radioactive xenon*, Nucl. Instr. And Meth. In Physics Res. A 508 (2003) 542-553
- [2] T. W. Bowyer et al. *Automatic Radioxenon Analyzer for CTBT Monitoring*, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington 99352, November 1996
- [3] D. Howett, M. O'Colmain *Measurement of krypton-85 in air at Clonskeagh, Dublin 1993-1997*, J. Radiol. Prot. vol. 18 (1998) No. 1 15-21.
- [4] L. Wilhelmowa, M. Tomasek, K. Stukheil *The Measurement of Low Concentrations of Kr-85 in Atmospheric Air Sample*, Biological Trace Element Research, Volume 43-45 (1994), Number 1, 725-730.
- [5] T. W. Bowyer, J. C. Hayes, J. I. Melntyre *Environmental Measurements of Radioxenon*, Environmental Radiochemical Analysis III (312):44-50 (2007)
- [6] R. Sakurovs et al. *Temperature dependence of sorption of gases by coals and charcoals*, Intern. Journ. Of Coal Geology 73 (2008) 250-258
- [7] R. Guarrian et al. *In situ metrology of 85Kr plumes released by the COGEMA La Hague nuclear reprocessing plant*, Journ. Of Envir. Radioact. 72 (2004) 137-144
- [8] *Notes on radioxenon measurements for CTBT verification purposes*, Appl. Radiat. And Isotopes 63 (2005) 765-773