

Titolo

Campionamento di gas nobili in aria e nel sottosuolo utilizzando una germanio ad alta purezza a basso fondo

Descrittori

Tipologia del documento: rapporto tecnico

Collocazione contrattuale:

Argomenti trattati: radioxeno, metodologia di campionamento

Sommario

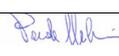
Questo rapporto presenta l'ottimizzazione del sistema di campionamento e di analisi per la rivelazione di xeno radioattivo, sviluppato presso il Laboratorio Tracciabilità (FSN-SICNUC-TNMT) del Brasimone. L'apparato prevede il campionamento dell'aria esterna, l'adsorbimento dello xeno su carboni attivi, la concentrazione ed infine la separazione, quantificazione ed estrazione del gas per mezzo di un gas cromatografo. Dopodiché, il campione viene sottoposto ad analisi di spettroscopia gamma per la determinazione del Radioxeno.

Note

Autori: *Mohamed Mahmoud Mounja¹, Antonietta Rizzo², Stefano Salvi², Chiara Telloli²*

¹ARSN - Mauritanian National Authority of radiation protection, Nuclear security, and safety

²ENEA – FSN-SICNUC-TNMT

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	14/04/2021	NOME	Chiara Telloli	Paride Meloni	Paride Meloni
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

Sommario

Premessa	3
1. Introduzione	4
2. Background degli isotopi dello xeno nel suolo	5
3. Background degli isotopi dello xeno in atmosfera	9
4. Background degli isotopi dello xeno in idrato di metano	11
5. Campionamento di gas nobili	12
5.1. Campionamento in superficie (zona di contatto con il suolo).....	12
5.2. Campionamento in aria	15
5.3. Scelta del sito per il posizionamento di stazioni di monitoraggio .	16
5.4. Tecniche di campionamento del radioxeno dall'aria	18
6. Sistema sviluppato da ENEA	20
6.1. Tecniche analitiche	25
7. Conclusioni e prospettive future	33
Bibliografia	34

Premessa

Il seguente report riassume il lavoro di diversi anni svolto presso il Centro di Ricerche ENEA del Brasimone, con l'obiettivo di ottimizzare un sistema di spettrometria gamma in anticoincidenza per la rivelazione dei gas nobili radioattivi, in particolare gli isotopi dello xeno (Xe-131m, Xe-133, Xe-133m e Xe-135), che sono di particolare interesse per il CTBTO (Comprehensive Nuclear Test-Ban Treaty Organization).

Il Laboratorio Tracciabilità (FSN-SICNUC-TNMT) del Brasimone, in cui si trova l'apparato sperimentale per effettuare le misure di radioxeno, collabora costantemente con la rete di monitoraggio CTBTO ed è in grado di fornire, se necessario, dati ed analisi sui gas nobili.

Il sistema prevede il campionamento dell'aria esterna, la filtrazione, l'essiccazione e il passaggio su colonna a carboni attivi mantenuta a temperatura criogenica per permettere l'adsorbimento dello xeno. La colonna viene poi riscaldata per permettere l'estrazione del gas e la misura del volume di xeno per mezzo di un gas cromatografo dotato di un rivelatore a conducibilità termica.

Al termine di questa prima fase, il contenitore in Al con il radioxeno viene sottoposto ad analisi mediante spettroscopia gamma ad elevata risoluzione utilizzando un detector al germanio iperpuro di tipo p (HPGe GX6020), con efficienza relativa del 60% e FWHM di 1.95 keV in corrispondenza del raggio gamma del Co-60 di energia pari a 1332 keV. Il rivelatore è circondato da uno schermo in rame elettrolitico e piombo antico, spessi rispettivamente 3.5 cm e 15 cm.

I segnali prodotti dall'interazione dei raggi cosmici che riescono ad oltrepassare lo schermaggio sono stati riconosciuti come la causa principale dell'aumento del background del rivelatore. Per questo motivo è stato messo a punto un sistema in anticoincidenza tramite l'uso di due scintillatori plastici, posti sopra lo schermaggio del rivelatore HPGe, i quali inviano gli impulsi che registrano all'interno di un gate posto nell'analizzatore multicanale del germanio: nel momento in cui arriva il segnale dallo scintillatore, il gate blocca l'acquisizione dei dati per evitare di registrare impulsi generati dalla radiazione cosmica.

1. Introduzione

L'analisi e la valutazione delle concentrazioni di gas nobili radioattivi in atmosfera e nella geosfera sta diventando sempre più interessante per lo studio di alcune problematiche riguardanti l'utilizzo dell'energia nucleare, sia per scopi industriali (produzione di energia elettrica, depositi di stoccaggio di scorie radioattive), scopo medico (produzione di radiofarmaci) e militare (test atomici).

È anche di notevole interesse all'interno dell'organizzazione CTBTO (Comprehensive nuclear Test Ban Treaty Organization) e per la creazione di uno strumento di "allerta precoce" per il riconoscimento e la valutazione immediata di qualsiasi rilascio di radionuclidi in atmosfera.

I gas nobili sono noti come eccellenti strumenti geochimici per indagare una varietà di parametri fisici dei sistemi ambientali e geologici a causa della loro inerzia chimica, il loro comportamento nell'ambiente segue infatti processi fisici relativamente semplici e ben noti come diffusione, partizione tra diverse fasi o trasformazioni nucleari (Aeschbach-Hertig et al., 1999).

La causa principale della loro presenza nel sottosuolo è il naturale decadimento di uranio e torio presenti nelle rocce fin dalla loro origine.

L'atmosfera terrestre contiene una quantità stabile di xeno pari a circa lo 0,000009%. La massa atomica degli isotopi dello xeno varia da 124 a 136.

I principali isotopi Xe-131, Xe-132, Xe-134 e Xe-136 sono isotopi stabili che si trovano in natura, ma sono anche prodotti da reazioni di fissione (Tabella 1): fissione spontanea o come residuo della fissione in un reattore nucleare o come esplosione nucleare nel sottosuolo. Pertanto, le produzioni antropiche possono influenzare la composizione isotopica dello xeno stabile dei gas provenienti dal sottosuolo se lo scambio con l'atmosfera è sufficientemente limitato.

I rapporti isotopici possono essere utilizzati per distinguere tra sorgenti di combustibile irradiato e sorgenti di fissioni spontanee pure.

Gli isotopi radioattivi dello xeno rappresentano un indicatore significativo della produzione nucleare a causa del fondo naturale inferiore rispetto a quello degli isotopi stabili. Le sorgenti antropogeniche del fondo di radioxeno includono emissioni da centrali nucleari, impianti per la produzione di radioisotopi per uso medico e industriale e test nucleari. Gli isotopi Xe-133 ($T_{1/2}$ pari a circa 5 giorni) e Xe-135 ($T_{1/2}$ pari a circa 9 ore), per la loro breve emivita, sono indicativi di fissione spontanea attiva in situ, quindi sono ottimi marker per il monitoraggio attivo.

Tabella 1. Abbondanza naturale degli isotopi di xeno e resa relativa di fissione per U-235 e Pu-239.

Isotope	Natural Abundance (atom %)	Half Life (from ground state)	U-235 Fission Yield (%)	Pu-239 Fission Yield (%)
Xe-131	22.2		2.89	3.86
<i>Xe-131m</i>		<i>11.9 d</i>	<i>0.05</i>	<i>0.05</i>
Xe-132	26.9		4.31	5.41
Xe-133		5.243 d	6.70	7.02
<i>Xe-133m</i>		<i>2.2 d</i>	<i>0.19</i>	<i>0.24</i>
Xe-134	10.4		7.87	7.68
Xe-135		9.10 h	6.54	7.6
Xe-136	8.9		6.32	7.1

2. Background degli isotopi dello xeno nel suolo

I principali contributi al fondo naturale dello xeno sono le reazioni di fissione di Th-232, U-235 e U-238 indotte in numerose rocce dai neutroni prodotti dai raggi cosmici (Fig. 1). Hebel (2008) ha identificato questi meccanismi ed ha effettuato una valutazione delle attività risultanti alla profondità di un metro in diversi tipi di rocce, sviluppando calcoli teorici basati su un profilo neutronico, su dati riguardanti la composizione geologica, sulle sezioni di impatto delle reazioni e le rese di fissione desunte dalla letteratura. I risultati ottenuti per l'attività di Xe-133 indicano valori anche superiori a pochi mBq/m³.

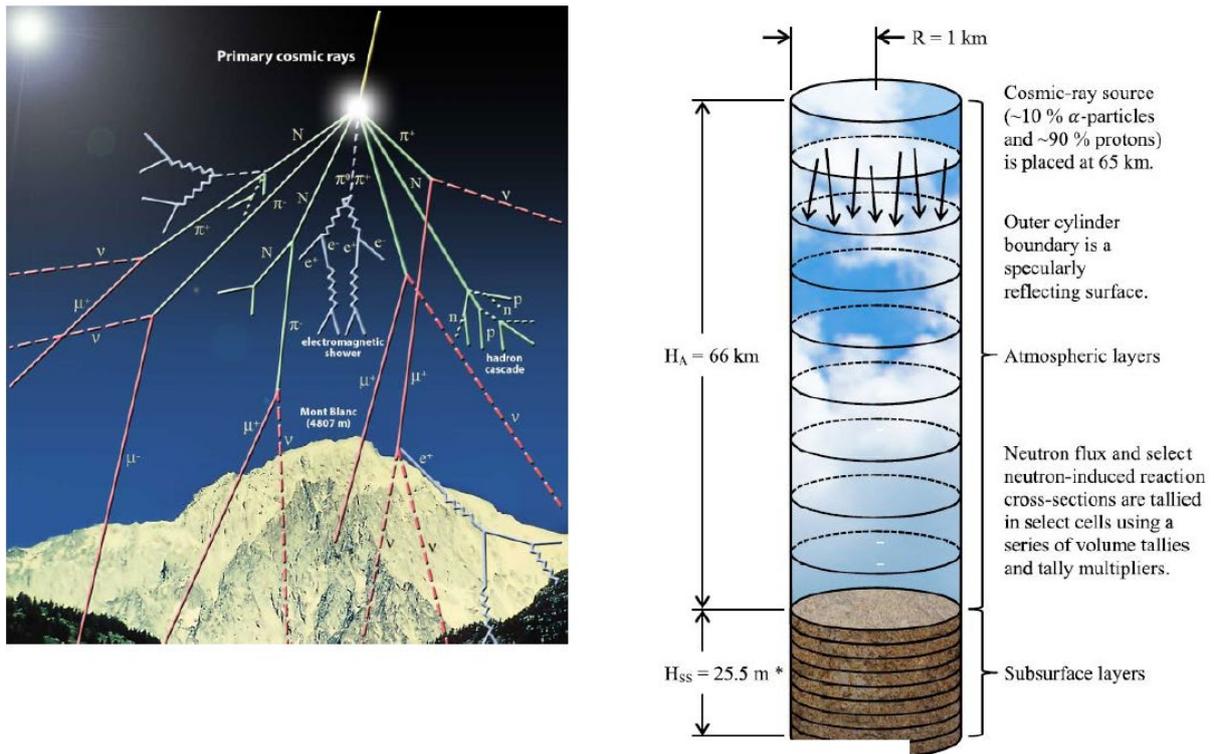


Fig. 1. Interazione dei raggi cosmici con la geosfera.

Oltre al processo di interazione dei raggi cosmici con la geosfera, esiste un'altra fonte di isotopi dello xeno, ovvero la fissione spontanea dell'uranio presente naturalmente nelle rocce primordiali, fissione spontanea del plutonio di derivazione da rifiuti radioattivi, fissione nucleare a seguito di test nucleari illeciti (Fig. 2). Tra i vari isotopi coinvolti l'unico che ha una velocità di fissione spontanea relativamente alta è, per l'appunto, il Pu-240, che fornisce una fonte costante di xeno nei rifiuti radioattivi. Pu-240 è "in eredità" dai precedenti test nucleari effettuati da diversi paesi nel secolo scorso (<https://www.ctbto.org/nuclear-testing>) e dai rifiuti radioattivi del combustibile nucleare esaurito (High Level Waste – HLW).

Il Pacific Northwest National Laboratory ha raccolto campioni per valutare le concentrazioni di radioxenon nel sottosuolo presso il Nevada Nuclear Security Site, dove in passato sono stati effettuati test di dispositivi nucleari, e dalle misure effettuate i livelli di attività sono risultati rilevabili (> 1 mBq/m³) in molti casi (Hayes et al., 2013).

Sorgenti di radioxeno in superficie



Fig. 2. Possibili sorgenti di radioxeno in superficie.

Le concentrazioni di gas nobili nel sottosuolo ed il loro trasporto in superficie sono regolati principalmente da parametri della geologia circostante, tra cui la saturazione dell'acqua interstiziale presente nelle rocce e nei suoli, caratteristiche fisiche come porosità e permeabilità della matrice inorganica e la presenza di fratture sia naturali che artificiali.

Le forze motrici per la migrazione dello xeno attraverso lo strato geologico sono specifiche della sorgente originale: se lo xeno è prodotto da un'esplosione nucleare sotterranea ("underground nuclear explosion" UNE), l'espansione termica iniziale potrebbe far migrare i gas molto velocemente verso la superficie a causa dell'energia cinetica rilasciata, ma se si è verificata solo la fissione spontanea si verificherà un altro meccanismo di trasferimento. I gas che non sono arrivati in superficie, per esempio a causa di una dilatazione termica, possono essere trasportati in superficie attraverso il meccanismo del pompaggio barometrico e della diffusione (Carrigan et al., 1996). Quando i gas raggiungono la superficie, possono rimanere nel suolo o possono disperdersi in atmosfera.

Per poter valutare correttamente la quantità di radioxeno presente nel suolo, è estremamente importante conoscere le concentrazioni di fondo atmosferico circostante e l'eventuale radioxeno presente naturalmente nel suolo. Ciò è necessario per assicurare che il rilevamento del radioxeno provenga esclusivamente da sorgenti sotterranee e non dall'infiltrazione atmosferica.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	8	35

Essendo lo xeno un gas nobile, è bene tener presente che i processi fisici coinvolti nel trasporto e nel campionamento possono avere importanti implicazioni per la rilevabilità del gas stesso nel sottosuolo. Va quindi tenuto presente quanto segue:

1. disporre di "finestre" di rilevamento temporali per isotopi di xeno in base al pompaggio barometrico;
2. cattura di gas prodotti da fratture sovrastanti o oscurate da strati di terreno;
3. utilizzo del radon e di altri radionuclidi per localizzare le vie di produzione del sottosuolo e come campionamento diagnostico;
4. campionamento di grande volume (*1 m³) e potenziale di infiltrazione e contaminazione atmosferica;
5. stima del grado di "impronta" del gas del suolo nella contaminazione da gas nobili atmosferici;
6. utilizzo di un protocollo basato sul campionamento da pompaggio barometrico per aumentare il potenziale di rilevamento del gas portato in superficie.

Il decadimento radioattivo dello xeno crea una "finestra" temporale per il suo rilevamento, a causa della combinazione delle loro emivite e del fatto che possono richiedere del tempo per arrivare in superficie.

In uno scenario di esplosione nucleare sotterranea (UNE), ad esempio, le infiltrazioni o lo sfiato dei gas di detonazione possono consentire a quantità significative di gas di raggiungere la superficie ed essere rilasciate nell'atmosfera immediatamente dopo un UNE (Fig. 3). In altri scenari di rilascio, possono essere necessari giorni o settimane affinché i gas raggiungano la superficie a livelli rilevabili.

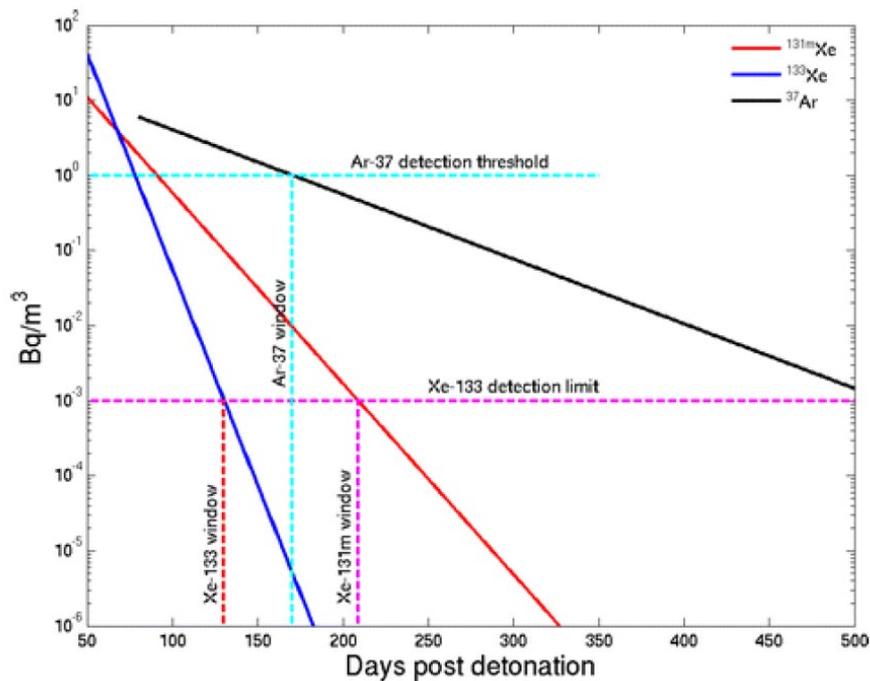


Fig. 3. Finestre temporali di rilevabilità di xeno radioattivo e argon dopo un'esplosione nucleare sotterranea.

3. Background degli isotopi dello xeno in atmosfera

Il contributo maggiore al background degli isotopi dello xeno nell'atmosfera è dovuto alla produzione dei quattro radioisotopi da parte di fonti antropiche, tra cui:

- reattori di ricerca nucleare;
- reattori commerciali in funzione;
- strutture mediche che producono radiofarmaci;
- impianti di ritrattamento del combustibile nucleare;
- ospedali;
- precedenti esplosioni nucleari e incidenti passati (Chernobyl, Fukushima).

Il background antropogenico è dominato dalla presenza di Xe-133, la cui concentrazione in alcune aree altamente industrializzate può raggiungere diversi mBq/m³ a livello del suolo, con possibili picchi di 100 mBq/m³ e occasionalmente anche di 1000 mBq/m³. In Europa, Nord America e Giappone, i valori medi tipici per questo radioisotopo sono compresi tra 3 e 10 mBq/m³, soprattutto in prossimità di impianti nucleari (Tabella 2).

Tabella 2. Concentrazione, espressa in Bequerel, delle emissioni di Xe-133 da diverse sorgenti antropiche.

Type of source	Typical emission of ¹³³ Xe
Hospital	10 ⁶ Bq/day
Nuclear Power Plants	10 ⁹ Bq/day
Radiopharmaceutical Factories	10 ⁹ - 10 ¹³ Bq/day
Underground nuclear test 1 kT	0 - 10 ¹⁵ Bq
Atmospheric nuclear test 1kT	10 ¹⁶ Bq

I contributi di Xe-131m e Xe-135 sono, invece, moderati e meno abbondanti di quelli di Xe-133, ma talvolta in alcune località dell'emisfero settentrionale sono state misurate concentrazioni di diversi mBq/m³ (esempio presso la stazione a monte di Schauinsland in Germania – Fig. 4) (Saey et al., 2010). È stato rilevato anche Xe-133m, ma molto meno frequentemente degli altri tre.

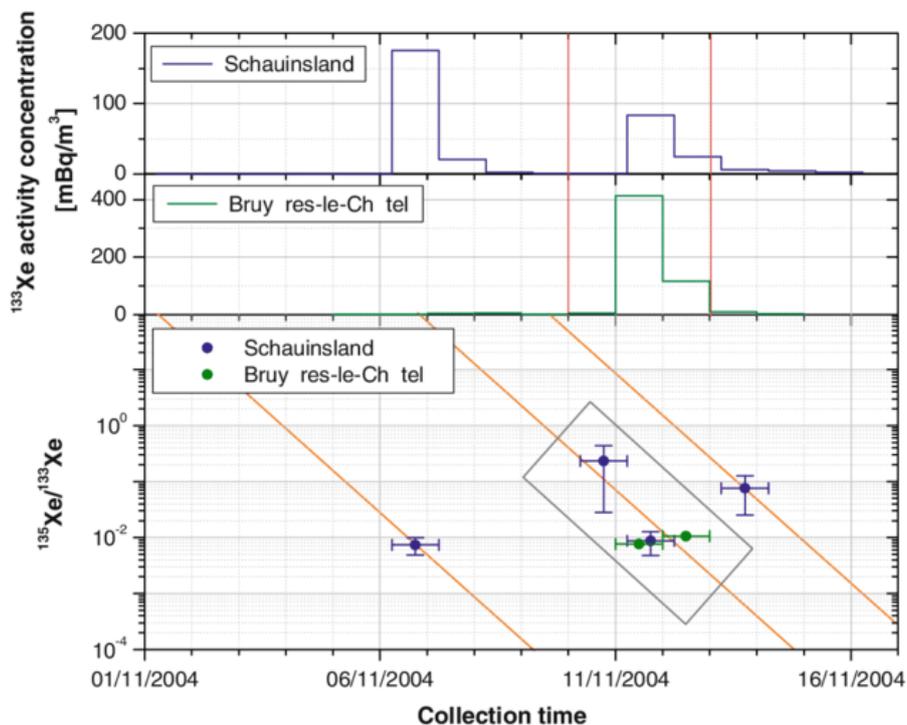


Fig. 4. Concentrazione dell'attività Xe-133 rilevate nelle stazioni di Schauinsland in Germania e di Bruyères-le-Châtel in Francia (Saey et al., 2010).

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	11	35

4. Background degli isotopi dello xeno in idrato di metano

Poiché i gas nobili sono chimicamente inerti, i cambiamenti nei loro rapporti elementari avvengono solo da processi fisici, per questo motivo rappresentano uno strumento utile per rilevare processi geochimici complessi che non sono direttamente osservabili, come è stato dimostrato ad esempio per i sistemi idrotermali e le riserve di idrocarburi naturali (Winckler et al., 2000).

Il campionamento dell'idrato per l'analisi dei gas nobili viene effettuato mediante sedimenti costituenti gli affioramenti (Bohrmann et al., 2000), recuperando grandi quantità di gas idrati. Tipicamente, gli idrati rimossi dal sedimento diventano instabili nella colonna d'acqua e si disintegrano in acqua e gas durante il loro recupero. Tuttavia, il grande volume campionato (0.7 m³) consente un buon isolamento e conservazione, riducendo al minimo la probabilità di perdita di gas prima del campionamento. Le sezioni di idrato puro vengono quindi separate e trasferite immediatamente in un contenitore di campionamento in acciaio inossidabile a tenuta di vuoto, da 1 a 3 cc di gas nello spazio di testa dei contenitori appositamente utilizzati per l'analisi di gas nobili.

I gas nobili più pesanti (Ar, Kr e Xe) hanno dimensioni molecolari lineari > 0.38 nm e sono tra le molecole ospiti più piccole in grado di formare idrati. Di conseguenza, tracce di Ar, Kr e Xe vengono facilmente incorporate nella struttura cristallina durante la genesi dell'idrato. I gas nobili più pesanti rivelano, quindi, uno schema di frazionamento elementare distinto, caratterizzato da un arricchimento che aumenta con la massa atomica (Xe > Kr > Ar), con fattori di frazionamento fino a 23 per lo Xe (Fig. 5) (Winckler et al., 2002). L'incorporazione preferenziale dei gas nobili più pesanti nell'idrato (Xe > Kr > Ar) è conforme a considerazioni teoriche che possono prevedere una dipendenza dalla temperatura del processo di frazionamento. Pertanto, le distribuzioni di gas nobili negli idrati di gas possono avere il potenziale per essere utilizzate come proxy per la temperatura durante la formazione di idrati.

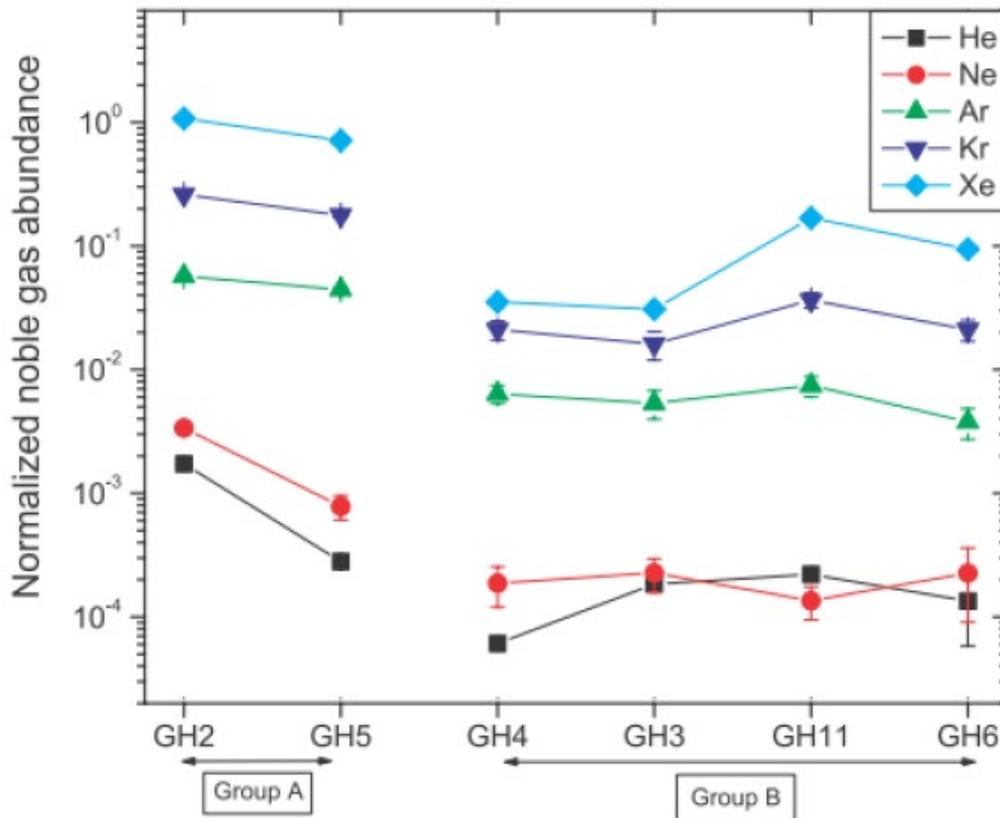


Fig. 5. Concentrazioni di gas nobili normalizzate rispetto alla loro abbondanza atmosferica. I campioni sono ordinati seguendo l'aumentare della pressione totale all'interno del contenitore (Winckler et al., 2002).

5. Campionamento di gas nobili

5.1. Campionamento in superficie (zona di contatto con il suolo)

Una campagna di monitoraggio per il campionamento e l'analisi del radioxeno nel sottosuolo prevede una serie di considerazioni importanti:

- Identificare la regione di interesse e selezionare il sito di campionamento idoneo per effettuare le misure
- Campionare il radioxeno con metodi automatici o manuali
- Trasferirlo in appositi contenitori e trasportarlo presso il laboratorio di analisi
- Analisi di laboratorio.

Sulla base di una serie di considerazioni, la regione di interesse deve essere scelta in modo da garantire il maggior potenziale di resa dei gas nobili di interesse campionati

dal sottosuolo o dalle infiltrazioni in ambiente sulla superficie. Ovviamente, è bene avere una buona conoscenza della geologia e geomorfologia dell'area di interesse per poter meglio identificare le posizioni ottimali per il campionamento sotterraneo.

Per il campionamento di radioxeno nel sottosuolo, l'ideale sarebbe poter utilizzare la superficie disponibile (es. fratture, esplosioni o artefatti di contenimento), in cui le vie di trasporto del gas nel sottosuolo arrivano in superficie.

Una volta identificato il sito di campionamento, è necessario determinare la tecnica per acquisire il campione. Le caratteristiche del sito di campionamento (es. rocciosità, spessore, quantità di umidità nel terreno, ecc.) tendono a determinare il metodo più appropriato per l'acquisizione di gas sotterranei. L'inserimento di tubi di campionamento nel sottosuolo è una metodologia tipica per estrarre i gas dal sottosuolo. Tuttavia, si è potenzialmente soggetti alla possibilità di contaminazione da gas atmosferici durante acquisizioni di grandi volumi. L'ottenimento di campioni di gas atmosferici dal suolo è un mezzo per monitorare la possibilità di contaminazione degli stessi gas che dal suolo migrano verso l'atmosfera (es. isotopi di radioxeno). Eventuali campioni di gas atmosferici ottenuti per monitorare la contaminazione di fondo non richiedono analisi a meno che campioni di gas sotterranei ottenuti contemporaneamente non indichino la presenza di gas nobili di interesse.

È possibile eseguire un campionamento, o automatico o manuale, per estrarre un campione di gas sotterraneo. Il campionamento automatizzato ha il vantaggio di non richiedere la presenza di un operatore durante l'acquisizione del campione.

L'esperienza indica che il momento migliore o ottimale per campionare sia durante l'abbassamento della pressione atmosferica, che corrisponde anche all'insorgenza di condizioni meteorologiche tempestose, a volte pericolose.

Attualmente, un campione di gas (sia sotterraneo che atmosferico) viene estratto e conservato temporaneamente in un serbatoio a bassa pressione fino al suo trasferimento presso il laboratorio di analisi. È stato riscontrato che la compressione del campione in una bottiglia SCUBA o in una bombola da immersione ad aria compressa migliora significativamente la trasportabilità e la conservazione dei campioni (Fig. 6).

Dopo l'arrivo in laboratorio, può essere eseguita l'analisi del campione o, in alternativa, il campione può essere conservato fino al momento del bisogno.

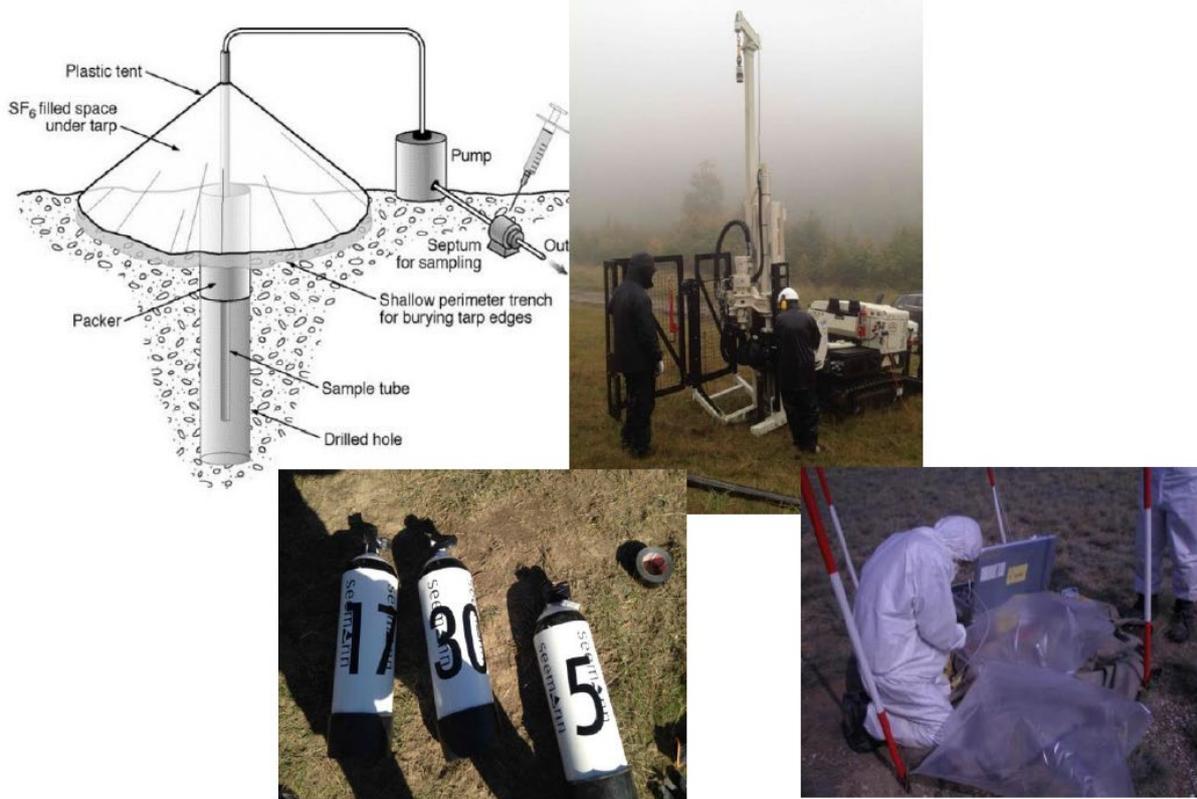


Fig. 6. Esempi di operazioni per il campionamento di gas nobili dal sottosuolo. In basso a destra esempi di bombole contenenti il gas campionato.

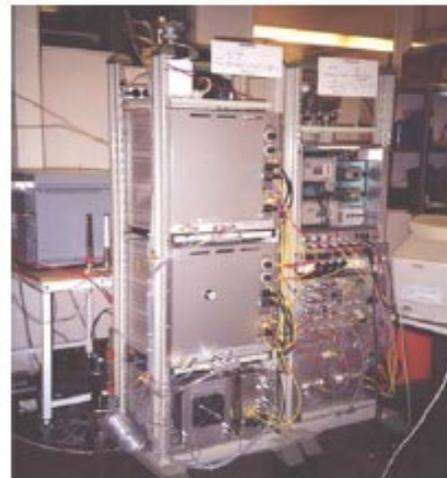
Poiché tali campioni, che tipicamente hanno grandi volumi (~ 2 mc), tendono a essere raccolti molto vicino alla superficie del suolo o anche in superficie, la familiarità con i meccanismi con cui può verificarsi la diluizione atmosferica o la contaminazione di un campione (ovvero infiltrazione di gas nel terreno, perdite nel sigillante del foro di campionamento, effetto memoria del gas del suolo guidato barometricamente, ecc.) sono di massima importanza. E' quindi buona norma selezionare siti ottimali per il campionamento che siano anche suscettibili all'applicazione di tecniche che riducano al minimo gli effetti di diluizione o contaminazione atmosferica. Ad esempio, una frattura rilevata alla base di uno strato di suolo può essere un sito ottimale per il campionamento di un gas relativamente non diluito dall'infiltrazione atmosferica rispetto a una frattura superficiale facilmente visibile che fornisce una facile installazione del punto di campionamento e anche un facile percorso per l'infiltrazione dell'atmosfera al punto di campionamento.

5.2. Campionamento in aria

Il campionamento e l'analisi del radioxeno dall'aria si basa sulla stessa pianificazione temporale vista nel precedente paragrafo.

Il dispiegamento di campionatori d'aria di gas nobili viene effettuato allo scopo di localizzare i siti di interesse retroproiettando il percorso del flusso atmosferico dei gas rilevati. L'appropriato dispiegamento delle capacità di campionamento dell'aria è soggetto alle informazioni disponibili sulla direzione del vento, considerazioni topografiche e qualsiasi altra informazione che possa essere rilevante per il posizionamento a valle dei campionatori d'aria dalla potenziale fonte di rilascio di gas. A causa della natura evanescente del gas nobile rilasciato da sorgenti antropogeniche (es. reazioni di fissione), i campionatori d'aria di gas nobili dovrebbero tipicamente essere impiegati il prima possibile per aumentare la possibilità di rilevare i gas emessi.

Figura 7 mostra diversi campionaotri utilizzati per raccogliere i gas nobili dall'aria.



a)



b)

Fig. 7. Esempi di campionatori di gas nobili dall'aria: a) diversi tipi di campionatori utilizzati nel mondo; b) campionatore utilizzato presso il centro ENEA del Brasimone.

5.3. Scelta del sito per il posizionamento di stazioni di monitoraggio

Le stazioni di monitoraggio dei gas nobili devono essere opportunamente attrezzate per poter effettuare il campionamento dell'aria, la purificazione, la concentrazione di xeno ed infine l'analisi dei campioni per la determinazione dell'attività dei vari radioisotopi del gas, se presenti.

L'apparecchio può essere costruito come un unico sistema automatico oppure essere composto da distinti strumenti atti ad essere azionati manualmente, in luogo diverso da quello di prelievo.

Le variabili che possono influenzare la scelta del sito di campionamento sono:

- struttura del luogo;
- parametri meteorologici;
- background radiologico.

Non ci sono requisiti particolari riguardanti la struttura del sito, ad eccezione del fatto che dovrebbe essere raggiungibile in diverse condizioni meteorologiche e dovrebbe consentire il trasporto e l'installazione delle apparecchiature ed essere accessibile al personale durante il normale funzionamento del sistema o in caso di interventi di manutenzione.

Uno dei principali parametri meteorologici è la possibilità di prelevare campioni rappresentativi di un flusso d'aria su larga scala in prossimità della stazione. Allo stesso modo, si deve tenere conto dell'influenza della direzione del vento, la vicinanza di ostacoli, edifici o alberi, ecc. quindi è consigliabile sistemare l'unità di campionamento dell'aria in luoghi aperti dove soffiano venti imperturbabili.

Per quanto riguarda le caratteristiche radiologiche, invece, il fondo radioattivo del sito, sia naturale che antropico, deve essere attentamente valutato, poiché possono influire negativamente sull'attività minima rilevabile e impedire alla stazione di soddisfare la sensibilità richiesta per la campagna di monitoraggio. Per questo motivo sono generalmente da escludere le aree che hanno nelle vicinanze impianti nucleari e strutture mediche o industriali che producono radioisotopi, a meno che non siano lo scopo efficace del monitoraggio.

Inoltre, i potenziali rischi naturali, come terremoti e cicloni, dovrebbero essere presi in considerazione e, per questo motivo, la stazione di campionamento deve essere attrezzata per far fronte a tali eventi.

La scelta del sito in cui installare una stazione di monitoraggio è in definitiva determinata da vincoli legali e politici, poiché potrebbe essere necessario un permesso specifico per impostare una stazione di campionamento in alcune posizioni.

Il sistema di campionamento dei gas nobili che preleva un campione di aria dall'atmosfera dovrebbe funzionare in continuo per non perdere il plume che passa nella zona; il campionamento non deve durare più di 24 ore per evitare un decadimento significativo di Xe-131m, Xe-133, Xe-133m e Xe-135 e, quando possibile, il campionamento di particolato e dei gas nobili devono essere sincronizzati.

Volendo ottimizzare la probabilità di rilevare radioisotopi con emivite più brevi, l'analisi non deve durare più di 24 ore e deve essere iniziata non appena terminato il processo di campionamento ed estrazione, in modo da rendere disponibile l'analisi finale entro 48 ore dall'inizio del processo di campionamento (<https://www.ctbto.org/verification-regime/monitoring-technologies-how-they-work/radionuclide-monitoring>).

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	18	35

5.4. Tecniche di campionamento del radioxeno dall'aria

Negli ultimi 20 anni sono stati sviluppati quattro sistemi di rilevamento, ARSA (Bowyer et al., 1996), ARIX (Dubasoy, 2002), SAUNA (Ringbom et al., 2003) e SPALAX (Fontaine et al., 2004), che possono campionare, elaborare e rilevare la più piccola quantità di questi radioisotopi dispersi nell'aria.

Sono stati sviluppati nell'ambito dell'International Nobel Gas Experiment (INGE) coordinato dall'organizzazione CTBTO:

- 1) Automatic Radioanalyzer for Isotopic Xenon (ARIX), sviluppato dal Khlopin Radium Institute (KRI) in Russia;
- 2) Automated Radioxenon Sampler-Analyzer (ARSA), progettato dal Pacific National Northwest Laboratories (PNNL) negli USA;
- 3) Swedish Automatic Unit for Noble Gas Acquisition (SAUNA), sviluppato presso Totalforsvarets Forskningsinstitut (FOI) in Svezia (Fig. 8);
- 4) Système de Prélèvements Automatique en Ligne avec l'Analyse du Xénon (SPALAX), realizzato in Francia dal Département Analyse, Surveillance, Environnement du Commissariat à l'énergie atomique (CEA / DASE).

Questi sistemi utilizzano la spettroscopia di coincidenza β - γ (ARSA, ARIX e SAUNA), sfruttando la combinazione di scintillatori plastici per rilevare elettroni da un decadimento beta e dalla conversione interna e cristalli di ioduro di sodio (NaI) per rilevare i raggi gamma, o la spettroscopia γ ad alta risoluzione mediante rivelatori al germanio ad alta purezza (HPGe). Questi sistemi devono avere un limite di rilevamento molto sensibile, dovendo raggiungere valori specifici di attività minima rilevabile (Minimum Detectable Activity - MDA), per esempio $MDA < 1 \text{ mBq/m}^3$ per l'isotopo Xe-133.

Tutti i sistemi sono caratterizzati da una fase di campionamento molto simile fra loro, che prevede il campionamento di aria atmosferica con una portata di almeno $0.4 \text{ m}^3/\text{h}$ ed il passaggio attraverso filtri in cui vengono rimosse le sostanze indesiderate: aerosol, acqua, radon e ossigeno, mentre lo xeno è separato dall'aria mediante adsorbimento su carbone attivo.

Il processo di adsorbimento è ottimizzato alle basse temperature: ARSA e ARIX funzionano a $-100 \text{ }^\circ\text{C}$, SAUNA a $-5 \text{ }^\circ\text{C}$ ma utilizza una maggiore quantità di carbone attivo e SPALAX non utilizza il raffreddamento in quanto il flusso è pre-arricchito con xeno attraverso una membrana semipermeabile fino a 1 ppm, partendo dal valore tipico dello xeno in atmosfera di 0.087 ppm.

Successivamente, lo xeno viene estratto dal carbone attivo riscaldandolo fino a temperature di $250\text{-}300 \text{ }^\circ\text{C}$, utilizzando come vettore un gas inerte (He o N_2).

Per la quantificazione dell'attività dei quattro radioisotopi, SPALAX utilizza la spettrometria gamma ad alta risoluzione per mezzo di un rivelatore di germanio iperpuro (HPGe), che permette di lavorare con una risoluzione maggiore rispetto ai normali rivelatori, essenziale per la distinzione dei picchi, anche a costo di una minore efficienza. Nella regione energetica di interesse, fino a 300 keV (in particolare nella zona dei raggi X compresa tra 15 e 45 keV), le emissioni gamma possono sovrapporsi e la possibile identificazione dei radioisotopi è complicata, soprattutto quella di Xe-131m, a causa della bassa intensità di emissione (1.96%) del raggio γ di energia 163.93 keV.

SAUNA, ARSA e ARIX utilizzano, invece, la spettrometria beta-gamma in coincidenza per la misura dell'attività nei campioni, utilizzando per la rivelazione dei raggi γ un cristallo di ioduro di sodio (NaI), posto attorno ad uno scintillatore accoppiato a due tubi fotomoltiplicatori che contano i raggi β e gli elettroni derivanti dalla conversione interna.

L'elevata efficienza del rivelatore di ioduro di sodio permette di avere 12 ore di tempo di acquisizione dello spettro, mentre SPALAX necessita di 24 ore, ma la risoluzione è inferiore rispetto a quella del germanio iperpuro.

Il sistema in coincidente misura sia i raggi γ che i raggi X, contemporaneamente ai raggi β e agli elettroni di conversione; questi ultimi consentono la distinzione tra raggi X di Xe-131m e Xe-133m mediante un'analisi energetica, essendo caratterizzati da un'intensità di emissione piuttosto elevata, rispettivamente del 56% e del 58% (Reeder and Bowyer, 1998).

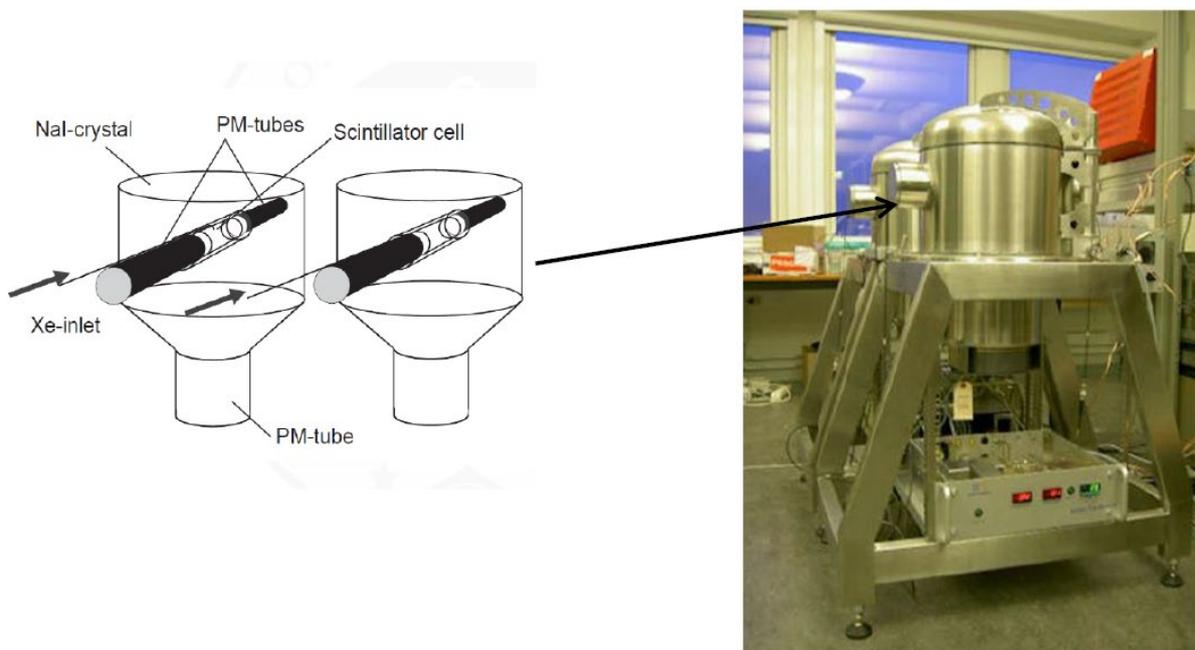


Fig. 8. Sistema di coincidenza γ -x- β nel sistema SAUNA.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	20	35

6. Sistema sviluppato da ENEA

Invece di stazioni automatiche di campionamento e analisi, è possibile utilizzare un sistema manuale per meglio adattare i costi per le apparecchiature e la flessibilità di utilizzo, che comprenda il sistema di campionamento, estrazione e purificazione del gas nobile da analizzare.

Uno di questi sistemi è stato sviluppato dal Laboratorio BFS di Friburgo (Germania) attualmente presente nella stazione di monitoraggio di Schauinsland Mountain (sistema SPALAX) ed è stato testato da altri istituti di ricerca; tra questi il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA.

Il sistema ENEA per gas nobili è stato appositamente progettato per mantenere separate le apparecchiature di campionamento dal trattamento e dalla misura. Questo approccio si rivela necessario per l'efficacia di estese campagne di campionamento, come richiesto nei programmi di monitoraggio. L'apparecchiatura così progettata potrebbe avere alcune possibili applicazioni anche nelle misure di gas nobili atmosferici in campagne di monitoraggio direttamente in situ (come nelle attività di ispezione), in quanto l'unità di campionamento può essere facilmente stabilita nell'ambito delle attività in campo, mentre l'elaborazione e la misurazione possono essere eseguite in laboratorio (Nava et al., 2013).

L'apparato costruito per la misura del radioxeno prevede:

- Campionamento dell'aria esterna;
- Assorbimento dello xeno su carboni attivi;
- Estrazione, purificazione del gas e quantificazione dello xeno;
- Misura dell'attività di radioxeno tramite spettroscopia gamma in anticoincidenza.

Per quanto riguarda il processo di campionamento, è stato scelto un sistema di campionamento attivo per raccogliere una grande quantità di aria ambiente e ottenere così un maggiore arricchimento di xeno nel campione d'aria finale. Il campionamento attivo comporta la raccolta di un volume d'aria noto aspirando attivamente l'aria attraverso un dispositivo di raccolta, in cui viene utilizzato un mezzo appropriato per concentrare la frazione di xeno che deve essere misurata.

Questa tecnica di campionamento non dipende dalla velocità del vento, quindi può essere utilizzata in diverse condizioni ambientali e meteorologiche. Il processo di campionamento si basa sull'adsorbimento criogenico dinamico su particelle di carbone attivo.

L'aria ambiente viene aspirata nell'impianto da una pompa a vuoto avente le seguenti caratteristiche: la portata d'aria è di circa 0.6 m³/h per un totale di 100 m³ dopo un campionamento di una settimana. Il flusso d'aria in ingresso è parzialmente separato dall'aerosol (tramite un filtro GF/F) e dell'acqua (tramite gel di silice); ciò è necessario perché l'acqua si adsorbirebbe sulla colonna di carboni attivi del sistema e ridurrebbe

la sua capacità di adsorbimento per lo xeno. Quindi il campione gassoso fluisce attraverso una cartuccia adsorbente contenente particelle di carbone attivo (0.3-0.5 mm di diametro) raffreddate a temperatura criogenica (-197 °C) da azoto liquido per ottenere una maggiore efficienza di adsorbimento dello xeno (Fig. 9).

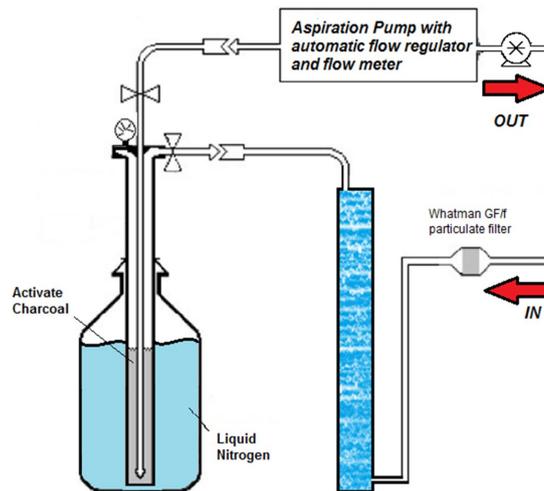


Fig. 9. Schema del sistema di campionamento utilizzato presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA.

La fase di estrazione si basa sul desorbimento a temperatura controllata con elio come vettore (figura 10). Dopo la raccolta della miscela gassosa contenente xeno, l'acqua di condensa formatasi all'interno della colonna è stata raccolta tramite gradiente gravimetrico sul fondo della cartuccia e scaricata da una valvola. Quindi la cartuccia adsorbente viene riscaldata per rimuovere lo xeno adsorbito dalle trappole a carbone attivo.

Alcuni setacci molecolari vengono utilizzati per rimuovere efficacemente eventuali residui di H₂O e CO₂ e di conseguenza anche radon. Il radon deve essere rimosso perché la sua concentrazione di attività nell'aria può essere di diversi ordini di grandezza superiore all'attività dello xeno e quindi con le sue progenie aumenterebbe il fondo per le misurazioni spettrometriche.

Il processo di desorbimento viene eseguito a 300 ° C per 1 ora ad una pressione fino a 4 bar. Il campione di gas viene quindi trasferito in un contenitore metallico a tenuta.

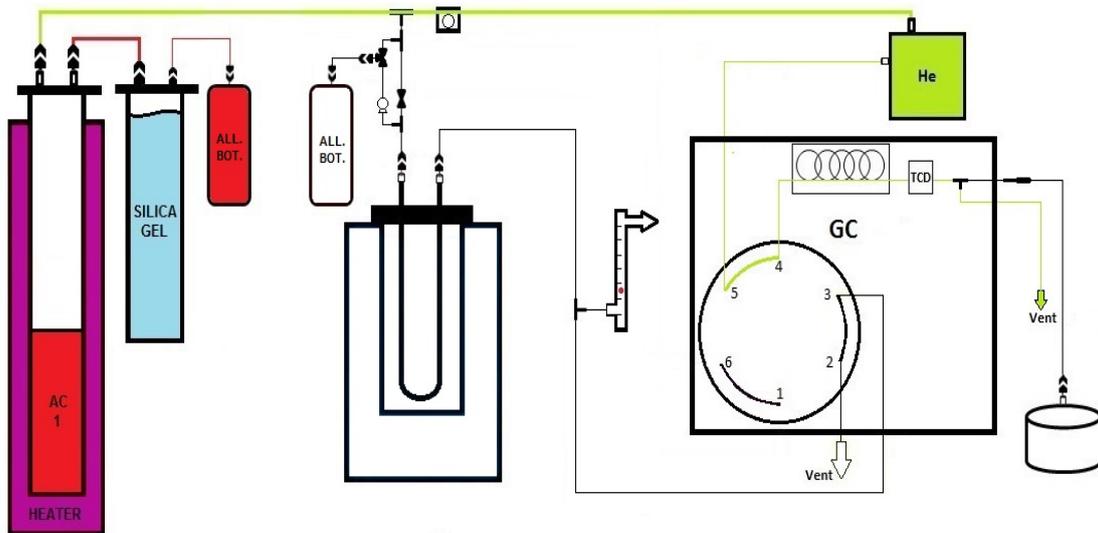


Fig. 10. Schema dell'impianto di estrazione del radioxeno utilizzato presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA; fase 1: estrazione dello xeno dalla prima cella e trasferimento in contenitore metallico

Nel caso di analisi di interconfronto, i campioni gassosi arrivano già all'interno di contenitori metallici a tenuta (modello SAUNA o SPALAX) e servono per testare l'effettivo livello di sensibilità raggiunto dai sistemi di rilevazione delle concentrazioni di Xe-131m, Xe-133, Xe-133m e Xe-135 delle stazioni dell'IMS certificate e non.

In entrambi i casi, prima di procedere all'estrazione dello xeno, devono essere compiuti alcuni cicli di pulizia degli strumenti usati nel processo, tra cui il gas cromatografo che viene liberato da eventuali impurezze presenti all'interno aumentando gradualmente la temperatura e facendovi scorrere un flusso di elio, e lo scatolino in alluminio destinato a contenere lo xeno estratto da gas cromatografo che viene sottoposto ad alcuni cicli di lavaggio in pressione con elio.

Terminati i cicli di pulizia, inizia la fase di adsorbimento sopra una colonna di particelle di carboni attivi, di diametro 0.3-0.5 mm, mantenuta a temperatura criogenica di 77° K, tramite immersione in un dewar contenente 5 l di azoto liquido: tali temperature sono necessarie per ottimizzare l'efficienza di cattura dello xeno.

Il campione viene collegato alla linea di alimentazione dell'elio, messo in pressione fino ad un valore di 800 mbar, e poi connesso con la colonna di adsorbimento all'interno della quale, mediante pompa peristaltica, viene effettuato il flussaggio per intrappolare lo xeno sui carboni attivi. Il flusso, misurato grazie ad un flussimetro, viene mantenuto pari a 50 l/h.

Per avere la certezza di estrarre tutto lo xeno contenuto all'interno del campione vengono eseguiti 15 cicli di flussaggio (Fig. 11).

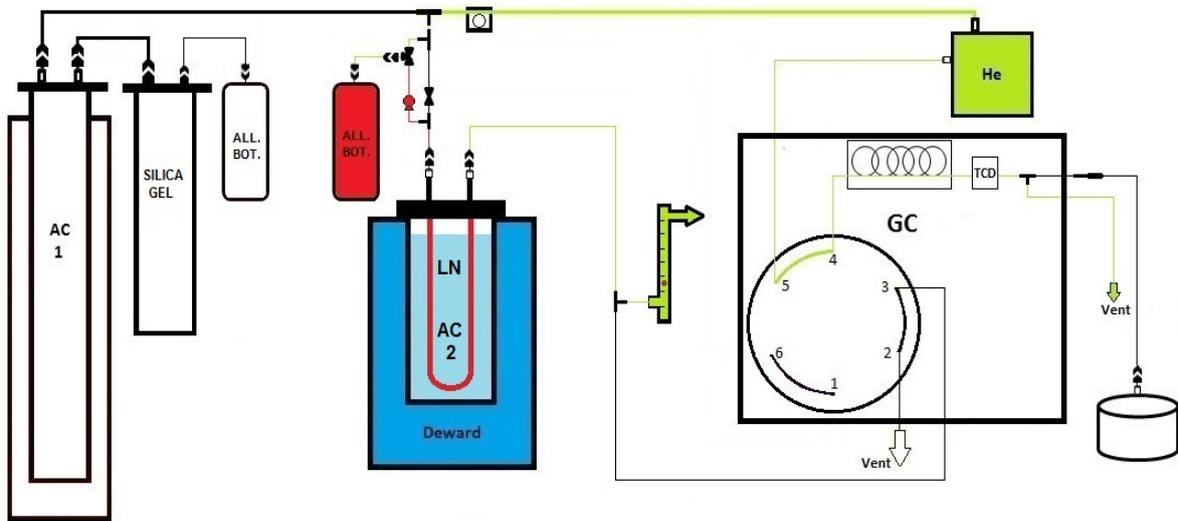


Fig. 11. Fase 2: estrazione dello xeno dal contenitore metallico e trasferimento a seconda cella Carboni Attivi.

Prima di procedere con l'estrazione, la colonna di carboni attivi viene estratta dal dewar di azoto liquido e lasciata riposare per 30 minuti a temperatura ambiente; in seguito verrà inserita all'interno di un riscaldatore, portata ad una temperatura di circa 430 °C e collegata ad un gas cromatografo per la separazione e la quantificazione dello Xeno.

Questo strumento è infatti in grado di separare le sostanze di una miscela gassosa in funzione del loro tempo di ritenzione all'interno della colonna cromatografica (Figs. 12 e 13).

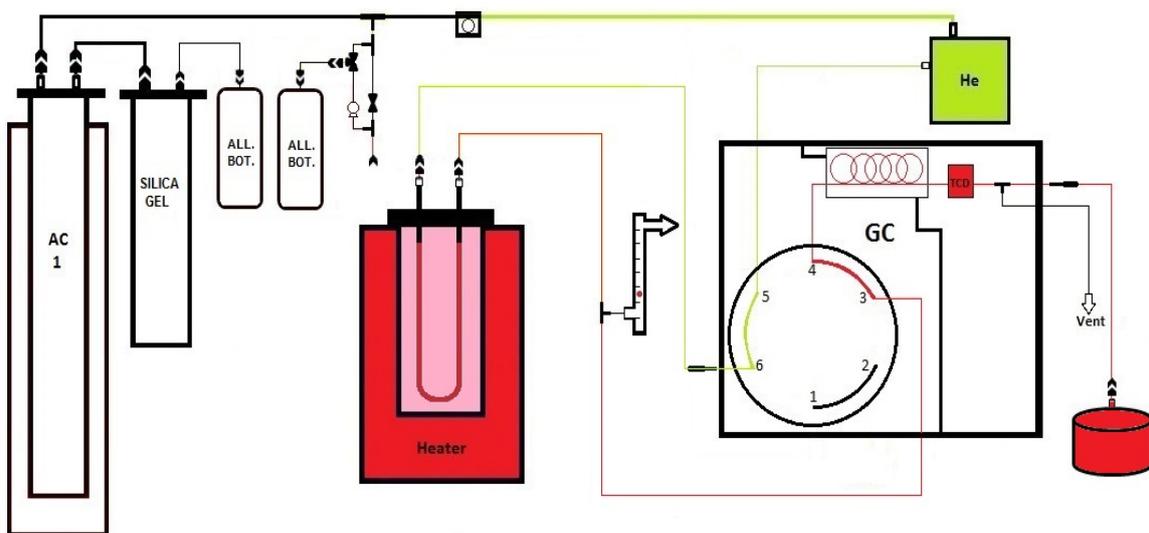


Fig. 12. Fase 3: estrazione, separazione, quantificazione e trasferimento dello xeno dalla cella Carboni Attivi al contenitore di misura.



Fig. 13. Foto dell'impianto di estrazione del radioxeno utilizzato presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA. A destra il gas cromatografo.

Per determinare la quantità di xeno, il flusso all'uscita dalla colonna del gas cromatografo viene inviato ad un rivelatore che modula il segnale in uscita in relazione alla conducibilità termica del gas vettore influenzata dalla presenza al suo interno di differenti specie gassose.

La colonna gas cromatografica è alloggiata in un forno riscaldabile elettricamente che regola la temperatura in base al programma di analisi impostato nel software di gestione.

Nel nostro caso la colonna viene portata ad una temperatura di 100 °C attraverso step intermedi durante i quali il flusso di elio, pari a 15 ml/min, passa prima nei carboni attivi, poi nella colonna gascromatografica ed, infine, viene scaricato in ambiente. Essendo noto, dalle calibrazioni il tempo di rilascio caratteristico dello xeno, compreso tra i 12 e 14 minuti, durante questa finestra temporale il flusso del gas in uscita verrà convogliato all'interno del contenitore di alluminio in cui si raccoglie lo xeno, quantificato grazie al segnale elettrico prodotto dal rivelatore.

Il segnale elettrico viene riportato in funzione del tempo su un grafico dove si possono osservare i picchi caratteristici delle sostanze presenti nel gas di trasporto. A titolo di esempio, in figura 14, viene mostrato lo spettro del gas cromatografo relativo ad un campione di intercomparison, in cui si vedono i picchi corrispondenti ai diversi elementi

che si trovano nel gas carrier: prima fuoriescono elio, vapor acqueo, CO₂ e N, poi dopo 13 minuti lo Xeno.

Il tempo totale di elaborazione (tempo tra la fine del campionamento e l'inizio della misura) è di circa 8 ore e include il desorbimento, trasferimento del campione e la preparazione per la misurazione radiometrica.

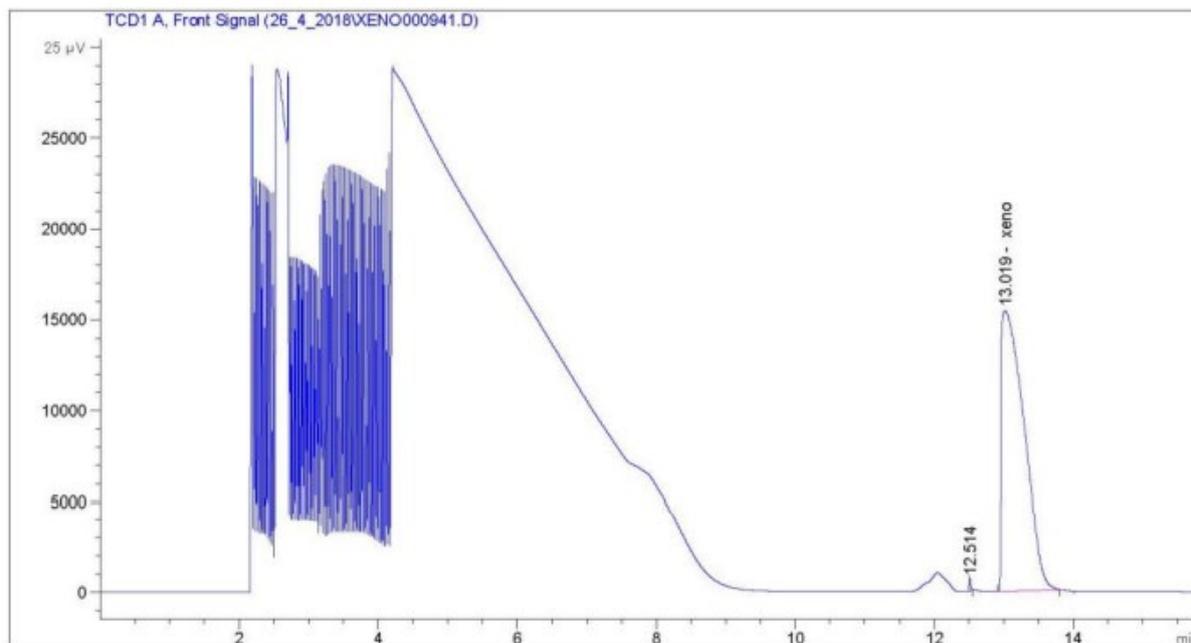


Fig. 14. Spettro del gas cromatografo relativo ad un campione di intercomparison analizzato presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA.

6.1. Tecniche analitiche

Gli isotopi dello xeno più importanti hanno le seguenti modalità di decadimento (Fig. 15), quindi sia i sistemi di rilevamento gamma che beta possono essere utilizzati singolarmente o congiuntamente (tecnica della coincidenza).

La rilevazione e la misura degli isotopi del radioxeno presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA viene eseguita mediante un sistema in anticoincidenza, accoppiato a scintillatrori plastici per la sottrazione attiva del fondo, realizzato per effettuare le misure a basso fondo dei campioni ed è composto da un rivelatore di germanio ad alta purezza impiegato per rilevare i raggi X e gamma dei quattro radioisotopi di interesse. Tutti e quattro i radioisotopi dello xeno di interesse emettono raggi X nella regione di 30 keV con un rapporto di ramificazione totale di circa il 40-50% ad eccezione dello Xe-135e che ha solo una probabilità di emissione

di raggi X del 5%; i principali raggi gamma emessi sono Xe-133 (81 keV) e Xe-135 (249.8 keV).

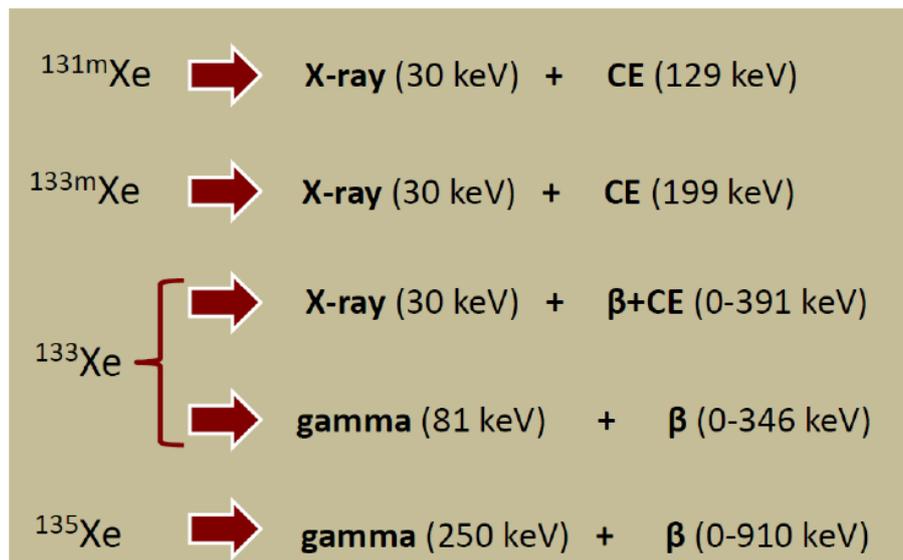


Fig. 15. Modi di decadimento degli isotopi dello xeno più importanti.

Le principali caratteristiche riportate nelle specifiche del detector sono:

- Rivelatore al germanio iperpuro di tipo p “extended range”, con preamplificatore modello 2002C e 4 cavi per: segnale, alta tensione, alimentazione del preamplificatore e inibizione dell’alta tensione;
- Geometria cilindrica coassiale, diametro di 68 mm e lunghezza di 70.5 mm;
- Efficienza 65.5% calcolata in corrispondenza del raggio γ del Co-60 di energia pari a 1332 keV;
- FWHM di 1.95 keV calcolata in corrispondenza del raggio γ del Co-60 di energia pari a 1332 keV;
- *Peak-to-Compton ratio*, ovvero il rapporto tra la massima ampiezza del picco a 1332 keV e l’ampiezza media della distribuzione Compton tra 1040 e 1096 keV, pari a 77.8/1;
- Range di energia: 3 keV – 10 MeV;
- Diametro *endcap*: 89 mm.

Il rivelatore è dotato di una finestra di ingresso in fibra di carbonio, materiale che rappresenta l’alternativa migliore per la rivelazione delle basse energie fino a 10 keV.

La fibra di carbonio viene infatti impiegata al posto dei più comuni alluminio, rame e magnesio poiché presenta caratteristiche di robustezza analoghe ma, avendo numero atomico inferiore, è in grado di trasmettere energie fino a 8-10 keV senza produrre il background caratteristico di molte leghe (riduce quindi anche il valore dell’MDA). Viene

inoltre preferita al berillio in quanto mantiene un'elevata efficienza a basse energie ma non presenta i problemi di fragilità associati invece al berillio. Quest'ultimo, tuttavia, è necessario nelle applicazioni in cui lo scopo principale è quello di trasmettere energie ancora più basse, fino a 3 keV.

Per consentire il corretto funzionamento del rivelatore HPGe, la ditta Canberra ha fornito un criostato ibrido che funziona seguendo un ciclo criogenico all'interno del quale viene utilizzato un compressore per condensare l'azoto evaporato nel ciclo di raffreddamento; in questo modo, il dewar necessita di essere rifornito di azoto, a causa di inevitabili fughe verso l'esterno, soltanto ogni sei mesi contro la necessità di rabboccare i normali dewar ogni 15 giorni. Il contatto tra dewar e rivelatore viene realizzato mediante un "dito freddo" in rame (Fig. 16, nell'immagine a sinistra).

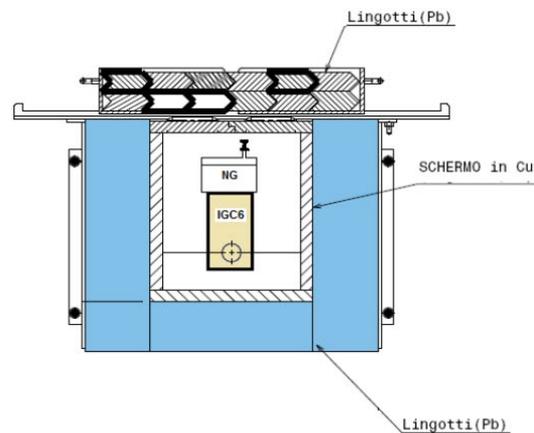


Fig. 16. Spettrometro gamma HPGe ad ultra basso fondo posizionato all'interno di un pozzatto in piombo, presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA.

Il rivelatore HPGe è circondato da uno schermaggio di rame e piombo, necessario per operare una prima riduzione del fondo prodotto dalle interazioni tra i raggi cosmici ed il detector.

Per ridurre il fondo di eventi naturali la soluzione ottimale sarebbe quella di installare l'apparato sperimentale in un laboratorio sotterraneo, come quello del Gran Sasso; quando questa opzione non è realizzabile è necessario costruire intorno al rivelatore uno schermo che blocchi, almeno in parte, il contributo radioattivo esterno.

Un materiale ideale con cui è possibile effettuare la schermatura è il piombo, poiché ha elevata densità, elevato numero atomico, discrete proprietà meccaniche ed un costo accettabile. L'unico problema che può mostrare è la presenza di un isotopo radioattivo naturale, il Pb-210, che può contribuire al fondo naturale a cui è soggetto il rivelatore.

Per ovviare a questo problema si è scelto di utilizzare il piombo antico, in cui la presenza di Pb-210 è ridotta poiché il suo tempo di dimezzamento è di 22 anni, ed è perciò in grandissima parte decaduto. Nel nostro caso, il contenitore che circonda il detector HPGe è stato realizzato mediante materiali a bassissima attività: all'interno è presente uno strato di rame elettrolitico spesso 3.5 cm, seguito esternamente da uno strato di piombo antico di 15 cm (Fig. 17), al fine di rimuovere i raggi X a 70 keV indotti nel piombo dalla radiazione di raggi gamma ambientale (Nava et al., 2013).

Lo schermaggio di piombo e rame posto intorno al rivelatore consente di ottenere una parziale riduzione del fondo naturale ma molte radiazioni riescono comunque ad oltrepassarlo e ad interagire con il detector, così che l'abbattimento del background non risulta abbastanza efficace per diminuire il valore dell'MDA in maniera significativa.

Il sistema in anticoincidenza messo in funzione dal Laboratorio gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA, a tal scopo, prevede il collegamento tra il rivelatore HPGe e due scintillatori plastici (NUVIA Tech Instruments, Parigi, Francia), ognuno accoppiato ad un tubo fotomoltiplicatore, posizionati sopra il pozzetto di piombo.

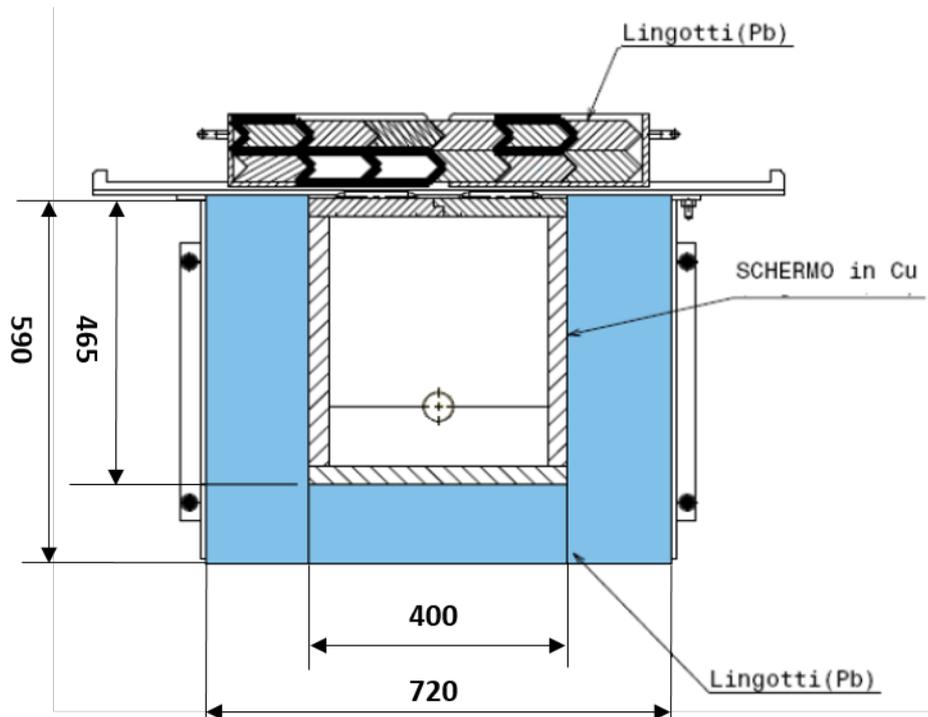


Fig. 17. Vista in sezione del sistema di schermaggio per l'analisi dei gas nobili radioattivi presso il Laboratorio di gas nobili FSN-SICNUC-TNMT del Brasimone dell'ENEA.

Generalmente un rivelatore a scintillazione sfrutta la caratteristica di alcuni materiali, detti scintillatori, di emettere quanti di luce quando attraversati da radiazioni ionizzanti. Questi fotoni vengono poi canalizzati nei fotomoltiplicatori, i quali permettono di convertire l'impulso luminoso in un impulso elettrico, facilmente analizzabile da un circuito di lettura per ottenere informazioni sulla radiazione incidente. Il principio di funzionamento di uno scintillatore si basa sull'eccitazione di un elettrone atomico ad un livello superiore in seguito ad un'interazione con il fotone incidente che passa attraverso il materiale; il successivo ritorno dell'atomo in uno stato stabile è accompagnato dall'emissione di un fotone di energia relativamente bassa, solitamente nel campo del visibile. L'emissione può essere istantanea, ovvero avvenire in un tempo $\leq 10^{-8}$ s, ed è detta fluorescenza, altrimenti, se è presente un certo ritardo tra eccitazione ed emissione, si parla di fosforescenza (ritardi che possono andare da qualche μ s a ore). Tale impulso di luce viene poi rivelato ed amplificato da opportuni sensori, come i tubi fotomoltiplicatori. Le proprietà principali che deve avere uno scintillatore sono:

- Alta efficienza, o light yield, ovvero elevata capacità di convertire l'energia delle particelle cariche in luce visibile. La conversione dovrebbe essere inoltre il più possibile lineare per intervalli energetici quanto più possibile ampi, anche se spesso sono inevitabili saturazioni;
- Il materiale con cui è realizzato lo scintillatore deve essere trasparente alla radiazione emessa;
- Il tempo di diseccitazione, o costante di decadimento, deve essere il più breve possibile (τ deve essere piccola, da qualche ns a μ s);
- L'indice di rifrazione del mezzo deve essere il più simile possibile a quello del vetro, che ha $n \sim 1.5$, per consentirne l'accoppiamento con fotomoltiplicatori o altri strumenti di amplificazione del segnale senza perdite significative di luce originaria.

Gli scintillatori plastici sono i più comuni, sono molto veloci ed hanno buone caratteristiche meccaniche, anche se possono presentare danneggiamenti da radiazioni o da esposizione ad agenti chimici, oltre che cricche nella plastica per invecchiamento.

Il segnale originario in uno scintillatore può essere ridotto per vari motivi, tra cui l'attenuazione della luce al suo interno, la perdita di luce dalle superfici, la perdita di luce nelle guide ottiche (se presenti) o negli accoppiamenti con il rivelatore di fotoni.

Nel momento in cui una radiazione interagisce sia con gli scintillatori che con l'HPGe, i segnali prodotti entro un certo lasso di tempo, relativamente stretto, vengono inviati ad un gate dell'analizzatore multicanale BBBFDW che processa gli impulsi prodotti dall'HPGe. Nel momento in cui il gate vede in ingresso il segnale del fototubo blocca l'acquisizione dei dati impedendo il conteggio degli impulsi generati da radiazioni

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	30	35

esterne, come i muoni che, attraversando lo schermaggio di piombo, vengono rivelati quasi contemporaneamente sia dagli scintillatori sia dall'HPGe.

Di seguito alcune specifiche degli scintillatori utilizzati:

- Volume: 25 l;
- Dimensioni: 1000 mm x 500 mm x 50 mm;
- Densità: 1.03 g/cm³;
- Indice di rifrazione: 1.57
- Resa luminosa (light yield): 65% (relativo all'antracene);
- Costante di decadimento: 2.5 ns;
- Lunghezza d'onda di emissione: max 420-440 nm.

Due fotomoltiplicatori (PhotoMultiplier Tubes, PMT) posti all'uscita degli scintillatori, producono una prima preamplificazione dei segnali elettrici provenienti dagli scintillatori (Rossi et al., 2018).

Quando la luce generata all'interno dello scintillatore incide sul fotocatodo, una finestra di ingresso trasparente realizzata in vetro o quarzo, si verifica l'estrazione di un elettrone per effetto fotoelettrico. L'elettrone, sotto l'azione di un campo elettrico, subisce un'accelerazione verso un dinodo dove, a sua volta, provoca l'estinzione di un certo numero di elettroni secondari; questi ultimi passano attraverso una successione di dinodi a potenziale sempre maggiore, si moltiplicano a cascata e vengono infine raccolti su un anodo producendo un segnale elettrico negativo (Fig. 18).

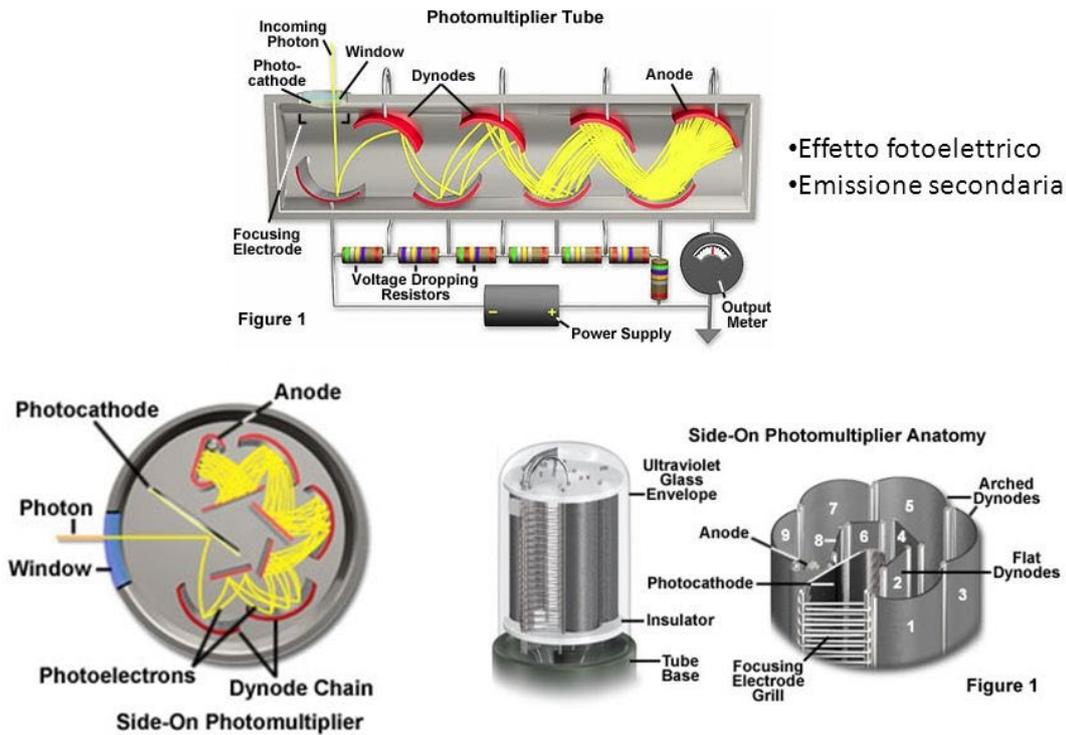


Fig. 18. Schema di funzionamento di un tubo fotomoltiplicatore (PMT).

L'efficienza totale del tubo dipende essenzialmente dall'efficienza quantica del fotocatodo, ovvero dal rapporto tra fotoelettroni prodotti e fotoni incidenti, che è funzione sia della lunghezza d'onda della radiazione incidente sia del materiale di cui è fatto il fotocatodo (si utilizzano spesso metalli alcalini poiché sono dotati di una struttura che facilita l'emissione di elettroni), ma dipende anche dall'efficienza di raccolta del primo fotoelettrone, il "focusing", che dipende dalla tensione applicata.

Il PMT usato è il 9266B (ET Enterprises Ltd., Uxbridge, United Kingdom), con un diametro di 51 mm, finestra di ingresso in borosilicato, indice di rifrazione di 1.49 e range spettrale compreso tra 190 e 630 nm. Solitamente il fattore di moltiplicazione per ogni dinodo, fatto di cesio-antimonio, è circa 3-5. Il guadagno totale G del fototubo dipende dal numero N dinodi: considerando che il fototubo in questione ha $N = 10$, G è pari a 10^6 .

Questo sistema si trova in una sala metrologica appositamente progettata sotto il livello del suolo (seminterrato) del laboratorio allo scopo di avere un fondo molto basso. Il contenuto di radon nella nuova stanza è intrinsecamente basso grazie ai materiali da costruzione e alla bassa permeabilità ai gas del pavimento rivestito con materiale plastico polimerico (PVC, cloruro di polivinile).

Infine, l'apparato di misura è supportato da una catena elettronica, mostrata in figura 19, che permette di amplificare e formare gli impulsi registrati dai detectors, sia l'HPGe

che gli scintillatori plastici, e di inviarli ad un analizzatore multicanale (Multi Channel Analyzer, MCA) dove è presente il circuito di gate che blocca i conteggi del germanio in coincidenza con quelli provenienti dagli scintillatori.

Il campione di xeno da analizzare viene sistemato sopra al rivelatore HPGe e la radiazione γ che interagisce con il volume sensibile del detector produce le coppie elettrone-lacuna. Queste cariche, muovendosi sotto l'azione del campo elettrico, vengono raccolte sugli elettrodi e trasformate in un segnale di tensione proporzionale, dell'ordine dei mV, mediante un preamplificatore posto dopo il rivelatore. Il preamplificatore, che deve trovarsi il più vicino possibile al detector per evitare attenuazioni del segnale e disturbi derivanti da campi magnetici, integra l'impulso di corrente su una capacità interna fissata. Nel nostro caso il preamplificatore, sensibile alla carica, è integrato nel "case" del rivelatore al germanio.

Il segnale dal preamplificatore dell'HPGe viene normalmente inviato ad un amplificatore che ha la funzione di amplificarlo fino ad ottenere impulsi dell'ordine di qualche volt (in genere tra 0 e 10 V) e riformarlo in maniera opportuna, filtrando i segnali in modo da massimizzare il rapporto segnale/rumore di fondo e ottenendo impulsi in uscita con una forma gaussiana.

In spettroscopia è fondamentale la forma dell'impulso che presenta, uscendo dal preamplificatore, una coda di tipo esponenziale con un tempo di discesa τ variabile da qualche μs a 100 μs ed un'altezza proporzionale all'energia; se dunque due segnali vengono generati in un intervallo di tempo minore di τ , l'ampiezza simulata è maggiore di quella reale e i due impulsi si sovrappongono distorcendo il segnale: questo fenomeno, detto *pile up*, può essere evitato o almeno ridotto grazie alla riformazione dell'impulso da parte dell'amplificatore.

Il massimo del segnale gaussiano in uscita dall'amplificatore viene poi convertito in un numero digitale mediante un convertitore analogico digitale e l'informazione sull'altezza dell'impulso viene memorizzata nell'analizzatore multicanale e registrata nel canale proporzionale al valore convertito. Il contenuto dei canali, visualizzato su uno schermo sotto forma di un istogramma, rappresenta lo spettro finale da analizzare.

Nel nostro caso le funzioni di amplificazione, rivelazione del picco di tensione e conversione A/D sono integrate nel sistema multicanale ORTEC DSPEC-50 che provvede alla digitalizzazione del segnale con la possibilità di impostare tutti i parametri mediante il software di analisi GammaVision Gamma Spectroscopy (ORTEC). Parallelamente alla catena elettronica dell'HPGe è stata realizzata quella per amplificare e formare i segnali in uscita dagli scintillatori.

Negli scintillatori plastici una prima amplificazione avviene già nel tubo fotomoltiplicatore e gli impulsi in uscita vengono sommati per ottenere un segnale unico.

L'impulso viene poi formato così da ottenere, all'uscita del *pulse shape*, un segnale slow-NIM di durata compresa tra $1\ \mu\text{s}$ e μs e ampiezza 5 volt che viene infine inviato al gate presente all'interno dell'analizzatore multicanale. Se, nello stesso intervallo di tempo, giunge al gate un impulso proveniente dal germanio, l'MCA blocca l'acquisizione dei dati così da non registrare tutte quelle radiazioni di fondo che hanno interagito sia con l'HPGe che con gli scintillatori e che contribuirebbero ad aumentare il background dello spettro.

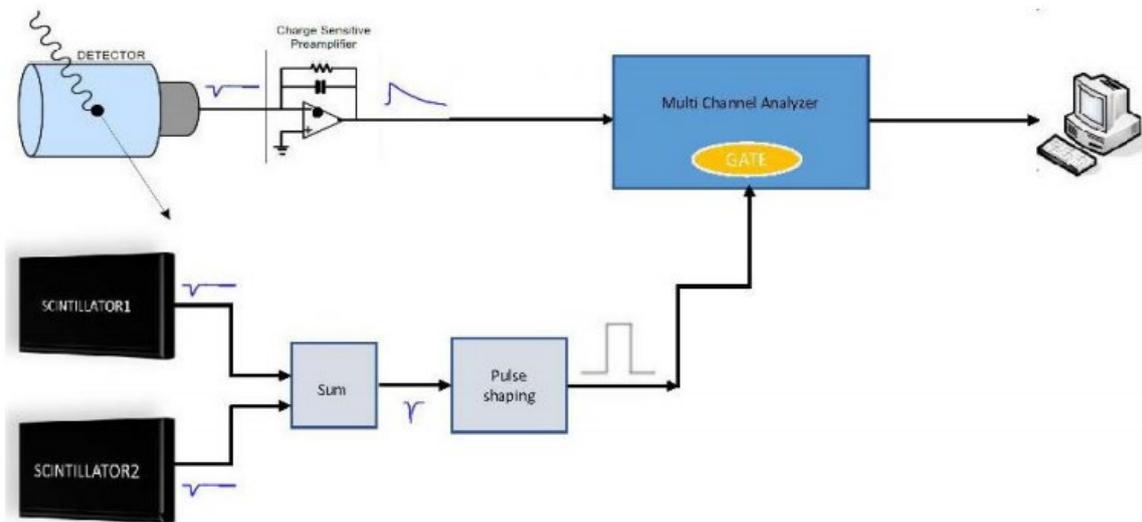


Fig. 19. Setup sperimentale della catena elettronica di acquisizione.

7. Conclusioni e prospettive future

È stato riconosciuto il valore strategico di avere una capacità di misurazione di gas nobili al fine di raccogliere dati sulle attività antropiche e sui fenomeni di trasporto del gas nella geosfera.

Il sistema manuale di campionamento e analisi per la misurazione del gas nobile nell'aria e nel sottosuolo deve essere considerato come una tecnica potente e può essere facilmente progettato e impostato da esperti di laboratorio. La strategia di selezione del sito e la scelta della metodologia di campionamento devono essere riconosciute come di fondamentale importanza per ottenere dati affidabili.

Questo rapporto vuole aumentare il valore strategico di avere una capacità di campionamento e misura dei gas nobili.

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	34	35

Campagne di monitoraggio in diverse regioni geografiche possono essere progettate ed eseguite di conseguenza, al fine di avere una migliore comprensione del fondo dello xenon radioattivo nella geosfera e per tracciare processi sia naturali che antropici.

Bibliografia

Aeschbach-Hertig W., Peeters F., Beyerle U., Kipfer R. (1999). Interpretation of dissolved atmospheric noble gases in natural waters. *Water Resources Research*, 35(9), 2779-2792.

Bohrmann G., et al. (2000). RV SONNE Cruise Report SO143, Geomar Report, 93.

Bowyer, T. et al. Automatic radionon analyzer for CTBT monitoring, Pacific Northwest National Laboratory Report #PNNL, 1996

Carrigan C.R., Heinle R.A., Hudson G.B., Nitao J.J., Zucca J.J. (1996). Trace gas emissions on geological faults as indicators of underground nuclear testing. *Nature*, 382, 528-531.

Dubasov, Y. The results of xenon measuring after ARIX-01 system modification in Freiburg during August–December. *Proceedings of the Informal Workshop on Xenon*, Papeete, Tahiti, 2002.

Fontaine, J.P. et al. Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. *J. Environ. Radioact.* 2004, 72, 129-135.

Hayes J.C., et al. (2013). Underground sources of radioactive noble gas. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 296, 869-876.

Hebel S. (2008). Lithospheric radionon and its influence on the interpretation of on-site inspection measurements verifying the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (Diploma Thesis). Department of Physics, University of Hamburg, Hamburg.

<https://www.ctbto.org/nuclear-testing/>

<https://www.ctbto.org/verification-regime/monitoring-technologies-how-they-work/radionuclide-monitoring>

 Ricerca Sistema Elettrico	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	SICNUC – P000 – 039	0	L	35	35

Nava E. et al. The ENEA noble gas laboratory: status of implementation J Radioanal Nucl Chem (2013) 296:1163-1167.

Reeder P.L., Bowyer T.W. (1998). Xe isotope detection and discrimination using beta spectroscopy with coincident gamma spectroscopy. Nucl. Inst. Meth. A 408, 582-590.

Ringbom, A. et al. C. SAUNA—a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. Nucl. Instrum. Methods. 2003, 508, 542-553.

Rossi F. et al. Optimisation of radioxenon measurement for comprehensive nuclear test-ban treaty RADIATION EFFECTS & DEFECTS IN SOLIDS 2018, VOL. 173, NOS. 9–10, 751–757 <https://doi.org/10.1080/10420150.2018.1528600>

Saey P.R.J., Schlosser C., Achim P., Auer M., Axelsson A., Becker A., Blanchard X., Brachet G., Cella L., De Geer L.E., Kalinowski M.B., Le Petit g., Peterson J., Popov V., Popov Y., Ringbom A., Sartorius H., Taffary T., Zahringer M. (2010). Environmental Radioxenon Levels in Europe: a Comprehensive Overview. Pure Appl. Geophys. 167, 499-515. <https://doi.org/10.1007/s00024-009-0034-z>

Winckler G., et al. (2000). Sub sea floor boiling of Red Sea Brines: New indication from noble gas data, Geochim. Cosmochim. Acta, 64(9), 1567-1575.

Winckler G., et al. (2002). Noble gases and radiocarbon in natural gas hydrates, Geophysical Research Letters, 29(10), 10.1029/2001GL014013