
核电厂排放的⁸⁵Kr的分析方法及剂量评估

黄彦君

(苏州热工研究院有限公司 环境保护与辐射安全中心 江苏 苏州)

摘要: 本文分析了⁸⁵Kr的性质及其在环境中的迁移行为,对气态流出物和环境介质中⁸⁵Kr的测量方法进行了总结。研究表明,对核电厂气态流出物和空气、水样品,需要经分离纯化进行样品制备,并在液闪谱仪上测量。对⁸⁵Kr的剂量评估方法进行了研究分析,采用目前我国主流机型CPR1000、AP1000和华龙一号的排放源项进行估算,表明核电厂释放的⁸⁵Kr对公众造成的辐射剂量水平极小。

关键字: ⁸⁵Kr、核电厂、分析方法、剂量评估

The Analytical Method and Dose Assessment of Krypton-85 Released from NPP

HUANG Yan-Jun

(Suzhou Nuclear Power Research Institute Co. Ltd. Environmental Protection and
Radiation Safety Center, Suzhou Jiangsu)

Abstract: In this paper, the characteristics and the environmental behavior of the ⁸⁵Kr released from NPP were presented, and the analysis methods for ⁸⁵Kr in effluent of NPP and the environmental air and water were investigated and summarized. It was indicated that the most effective analysis method for ⁸⁵Kr in the effluent and the low-level air and water should be that based on Liquid Scintillation Spectrometer (LSC) with a series of separating and purifying procedures. Meanwhile, by using the dose assessment for typical release source term for CPR1000, AP1000, and Hualong One, the typical atmospheric dispersion factor for ⁸⁵Kr was presented, which indicated that the exposure dose rate for the public individual is extremely small compared by the dose constraint values for NPP and that around fuel reprocessing plants.

Keywords: Krypton-85; Nuclear Power Plant; Analytical method; Dose assessment

1. 引言

⁸⁵Kr 是一种 β 放射性核素,半衰期 10.752 ± 0.023 年, β 射线最

大能量为 687keV，衰变时同时放出能量为 514keV 的 γ 射线，分支比仅 0.435%^[1]。⁸⁵Kr 可由宇宙射线与大气中 ⁸⁴Kr 的核反应产生，在自然中亦可由地壳、海洋中 ²³⁵U 等核素的自发裂变产生^[2, 3]，其在 1945 年大气中的活度浓度为 0.1 μ Bq/m³^[4]。⁸⁵Kr 也是核燃料循环中 ²³³U、²³⁵U、²³⁹Pu 的裂变产物，从核燃料循环向环境释放的 ⁸⁵Kr 远大于自然界产生的量。在核燃料循环中，由反应堆中燃料元件的破损和缺陷而释放的量占比不到 1%，绝大部分在乏燃料处理时向环境释放。至 2009 年底，由于人类活动累计向环境大气中释放的 ⁸⁵Kr 活度达到 5500PBq^[5]。随着人类核燃料循环活动，全球环境大气中 ⁸⁵Kr 的活度浓度逐年升高。20 世纪八十年代，欧洲地区大气中 ⁸⁵Kr 的活度浓度即接近 1Bq/m³ 的水平^[6]，至 21 世纪初，北半球大气中 ⁸⁵Kr 的活度浓度本底水平约为 1.5Bq/m³^[7]。

在核电厂气态放射性流出物排放源项中，放射性惰性气体排放量最大。以 CPR1000 机组排放源项为例，⁸⁵Kr 排放量（现实源项）约为 257GBq/a，占总惰性气体排放量（12TBq/a）的 2%。尽管由核电厂释放的 ⁸⁵Kr 占整个核燃料循环释放量的份额很小，但目前我国的乏燃料处理尚未规模开展，核燃料循环排放的 ⁸⁵Kr 主要来自核电厂；尽管 ⁸⁵Kr 在核电厂排放源项中所占比例相对较小，但其半衰期要比其他放射性核素半衰期长得多，因此，在核电厂流出物监测和环境影响评价中均需对 ⁸⁵Kr 加以关注。目前我国核电厂对气态流出物中 ⁸⁵Kr 的分析采用 γ 谱测量法，探测限达 10⁵Bq/m³ 量级，无法准确给出实际排放量并评估其公众辐射剂量，分析方法亟需改进。

本文将对核电厂释放的⁸⁵Kr 在环境中的迁移扩散行为和⁸⁵Kr 分析方法进行调研分析, 提出开展核电厂气态流出物和环境空气中⁸⁵Kr 监测的建议; 研究⁸⁵Kr 对公众剂量评估方法, 采用典型大气弥散因子估算核电厂排放⁸⁵Kr 对公众造成的辐射剂量。

2. 反应堆中⁸⁵Kr 的产生、排放及环境行为

在反应堆中,⁸⁵Kr 主要通过²³³U、²³⁵U、²³⁹Pu 的裂变反应产生, 其中,²³⁵U 和²³⁹Pu 的热中子裂变产额分别为 0.00286 和 0.00136^[1]。反应堆中裂变产生的⁸⁵Kr 只有不到 1% 释放, 绝大部分仍在包容在包壳内, 在燃料处理时将释放主要份额^[5]。

Kr 为惰性气体, 不易溶于水。1 个大气压力和 30°C 条件下每 ml 水对 Kr 的溶解度约为 0.05ml^[8]。Kr 的溶解度随着压力增大而增大, 随着温度升高而减小。通过燃料包壳释放的⁸⁵Kr 进入一回路冷却水后, 最终主要通过气态途径向环境释放。对压水堆, 其一回路系统为密封回路,⁸⁵Kr 主要通过一回路冷却水的下泄和净化产生的废气进入废气处理系统, 经贮存衰变后以气态流出物的形式通过烟囱向环境释放。研究表明, 压水堆核电厂⁸⁵Kr 归一化排放量为 6.29 GBq/(MW(e)·a) (1974 年统计)^[9], 较乏燃料处理排放的⁸⁵Kr 要小得多 (1970~1997 年间归一化释放量为 6.9~13.92PBq/(MW(e)·a)^[10])。

⁸⁵Kr 释入环境空气中后, 将在大气中迁移扩散。作为一种全球性的大气污染源,⁸⁵Kr 已广泛分布于大气层中。Machta 等人的研究表明, 在中纬度地区以单一释放源释放的⁸⁵Kr 达到纬流混合的平均时间约为 30 天, 达到全球混合平衡的时间为 2 年^[11]。由于 Kr 为惰性气体,

在大气中不会形成化合物。⁸⁵Kr 在大气的主要衰减因素是其放射性衰变，亦可通过降水的冲刷作用进入地表而衰减，但全球大气中只有不足 0.1% 进入全球水圈^[12]。根据某乏燃料处理厂排放检测结果表明，4mm/h 的降雨量对 ⁸⁵Kr 的冲刷系数仅为 $4 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1}$ ^[13]。在核电厂辐射环境影响评价的大气扩散计算中，一般不考虑降雨对 ⁸⁵Kr 的冲刷。

⁸⁵Kr 在环境空气中，可通过呼吸等途径进入体内。Kr 在每 ml 人类血液和脂肪中溶解度约为 0.06ml 和 0.54ml^[14]。⁸⁵Kr 进入人体后将对人体造成内照射影响。

3. ⁸⁵Kr 的分析方法

3.1 γ 谱测量法

由于 ⁸⁵Kr 衰变时放出的 γ 射线分支比较小，仅 0.435%^[1]，且通常用于 γ 能谱测量的高纯锗谱仪 (HPGe) 对 γ 射线的绝对探测效率较低，使 ⁸⁵Kr 的 γ 谱测量仅适用于较高活度浓度的样品。调研分析几种采用 γ 射线测量的文献见表 1。

表 1 基于 γ 射线测量的 ⁸⁵Kr 分析方法

Table 1 The analytical method of ⁸⁵Kr with gamma ray detection

序号	探测器及其性能	样品容器	刻度方法	国家	文献来源
1	HPGe 探测器，相对效率 10%，25% 和 40%	流气式 PVC 马林杯，体积 11L	提供三种刻度方法，包括混合气体源刻度、混合点源刻度以及蒙特卡罗模拟刻度，40% 相对效	日本	[15]

			率 HPGE 对 ^{85}Kr 的效率约为 0.658%		
2	HPGE 探测器, 相对效率 40%	密封型马林杯, 体积 10L	蒙特卡罗模拟刻度, 对 ^{85}Kr 的效率为 0.635%	捷克、立陶宛	[16]
3	NaI(Tl) 探测器, 对 ^{85}Kr 的效率为 2.45%	密封马林杯, 体积 10L, 压力最大为 5 个大气压	理论估算探测效率, 测量时间为 1200s 时, 探测下限为 $34000\text{Bq}/\text{m}^3$ 。	中国	[17]

可以看到, 采用 γ 射线测量的方法主要适用于乏燃料处理厂气态流出物的监测。假定典型条件下用相对效率为 40% 的 HPGE 谱仪进行测量, 其本底计数为 0.02cps, 对 ^{85}Kr 的效率约为 0.6%, 以常压下 10L 样品、测量时间为 5000s 进行估算, 则对 ^{85}Kr 的探测下限约为 $30000\text{Bq}/\text{m}^3$ 。对核电厂烟囱气态流出物排放 ^{85}Kr , 以 CPR1000 核电机组排放源项估算 ($257\text{GBq}/\text{a}$), 则气态流出物中 ^{85}Kr 活度浓度约在数百 Bq/m^3 (单台机组烟囱排放体积在 $10^9\text{m}^3/\text{a}$ 量级), 低于 γ 射线测量的探测下限。因而典型情况下 γ 谱测量法不适于核电厂气态流出物以及环境空气中 ^{85}Kr 的测量。需要注意文献 [17] 报道采用 NaI(Tl) 探测器的方法, 尽管探测效率较高 (2.45%), 但能量分辨率较差 (7%), 存在其他核素或射线的干扰, 例如 $^{135\text{m}}\text{Xe}$ 的 526keV 的 γ 射线和 511keV 的正电子湮灭辐射, 对于实际测量可能是不适用的。

目前我国核电厂对流出物中⁸⁵Kr的监测采用了 γ 谱测量方法,即采用3L气态流出物样品直接在HPGe谱仪上测量。根据经验,典型条件下(测量时间5000s)的探测限约为 10^5Bq/m^3 量级,难以给出⁸⁵Kr的实际定量结果。国家标准《核动力厂环境辐射防护规定》(GB 6249-2011)规定,对于低于探测限的测量结果按探测限的二分之一取值,因而将夸大⁸⁵Kr的排放量,对我国核电厂流出物的排放管理造成不利影响。因而,现有分析方法亟需改进。

3.2 β 射线液闪测量法

由于⁸⁵Kr衰变时放出的 β 射线分支比高,且液闪谱仪对 β 射线的探测效率高,因而可采用液闪测量法降低⁸⁵Kr分析的探测限,这要求对样品中的Kr进行分离和纯化。经分离纯化后也可采用正比计数器对 β 射线进行测量。

气体成分的复杂性和⁸⁵Kr的低含量水平,使得样品的纯化成为⁸⁵Kr分析的难点。为了获得可供测量的Kr气样品,需要对样品进行分离和纯化,包括脱水、去除 CO_2 、去除 O_2 和 N_2 等,随后通过闪烁液吸收,在液闪谱仪上进行测量。一般包括三步流程:

(1) 初步分离。

一般通过低温捕集方法吸附气体样品中的 H_2O 和 CO_2 ,然后通过低温活性炭吸附去除 O_2 和 N_2 等杂质气体,随后通过加热活性炭实现Kr的初步分离。

初步去除 H_2O 和 CO_2 方法包括干冰捕集、液氮捕集,增加分子筛可以对其进一步去除^[18],也有直接用分子筛吸附的^[19-21],还可以增加

冷凝线圈进一步去除 CO₂^[4]。初步去除 O₂ 和 N₂ 一般都采用低温活性炭吸附法。Kitani 和 Takada 研究了不同吸附剂对 Kr 在不同温度下的吸收率,表明活性炭对 Kr 的吸附率要较 5A 和 13X 型分子筛好一个数量级,在常压时-78°C 时对 Kr 的吸附效率均大于 100cm³/g,而在常温下(25°C)时仅为 10cm³/g。也有用采用低温蒸馏方法进行初步分离的^[19]。

(2) 纯化。

一般通过分子筛或色谱柱实现 Kr 的纯化,去除其中 O₂、N₂、CH₄ 等的干扰,并确定 Kr 的回收率。Kr 的测量一般通过 TCD 检测器进行测量。目前大部分测量对 Kr 的回收率约在 60~90%^[20, 21]。色谱柱分离需要综合考虑温度、载气流速、柱长等因素^[18]。

(3) 闪烁液吸收。

在进行分离和纯化后,最终需要由闪烁液吸收。考虑的因素包括闪烁液的选择、闪烁瓶材质及其泄漏、闪烁液的吸收效率及测量的刻度等^[21]。Janssens 等人采用了的 ⁸⁵Kr 测量方法中,设计了一套通过压力、温度计校正收集量的方法^[4],该方法流程较复杂,不易控制,且闪烁瓶存在泄漏。Momoshima 等人简化了设计^[21],通过色谱柱分离后的 Kr 将直接注入闪烁瓶,从而简化了流程。该闪烁瓶为采用黄铜螺盖的石英闪烁瓶(人工合成石英),有效地防止 Kr 的泄漏;另一改进就是在计数瓶中放置一层硅胶,有效地加强对 Kr 的吸附。为提高 Kr 在闪烁瓶的吸收率,Mitev 等人采用了聚碳酸酯浸于闪烁液中,具有猝灭影响小,计数响应好等优点^[22]。

^{85}Kr 已广泛应用于地下水的年代测定(1~40年)^[23-25]。对水中 ^{85}Kr 的分析,其原理与空气中 ^{85}Kr 的分析方法是一致的,只需要在样品采集前端对水样品增加除气单元。一般情况采用 N_2 进行鼓泡除气,并通过加热和冷凝去除其中的水汽。样品需要体积在200L以上^[23-25]。

整体上看,目前对环境空气和水中 ^{85}Kr 的分析,主要采用低温活性碳吸附、色谱柱分离和液闪测量的方法。其中分离和纯化过程需要时间约3~5小时,空气样品量约为1000L。以探测效率60%、回收率80%、测量时间1000min、本底计数率10cpm进行估算,对 ^{85}Kr 的探测下限可达到 $0.02\text{Bq}/\text{m}^3$ 。需要注意,以上文献报道的有关液闪测量法测量 ^{85}Kr 主要适用于环境空气和水,而核电厂气态流出物的成份比较复杂,其中包括了其他的放射性惰性气体,例如 ^{133}Xe ,如何考虑对这些造成干扰的气体进行分离和纯化并减少对测量的影响,需要基于实验开展进一步的研究工作。对气态流出物样品,由于现场采样条件的限制,可考虑核电厂目前采用的3L气体样品。根据估算,在确保液闪测量探测效率60%、分离纯化全程回收率为80%的条件下,采用低本底液闪谱仪测量,可以使得流出物样品中 ^{85}Kr 的探测限达到 $10\text{Bq}/\text{m}^3$ 的水平。

(3) 其他测量方法

经过分离和纯化的 ^{85}Kr 亦可采用GM管、正比计数器、 $\text{CaF}_2(\text{Eu})$ 等测量设备进行测量^[26-29],并可实现长期连续监测大气中 ^{85}Kr 的活度浓度。

近年来,一种基于激光囚禁的痕量分析技术(ATTA)的出现,使

得分析空气中 ^{85}Kr 的量仅需要数升空气（或数微升 Kr 气体）^[30]。中国科技大学、美国 Argonne 国家实验室、德国 Heidelberg 大学和 Hamburg 大学等都建立了该技术方法^[30-33]。然而该方法非常规方法且仍需要对空气样品中的 Kr 进行分离和纯化。

（4）气态流出物和环境空气中 ^{85}Kr 分析方法的建议

目前国内外对气态流出物和空气中的 ^{85}Kr 均无相关标准。我国核电厂对气态流出物中 ^{85}Kr 的分析采用 3L 气体样品在 HPGe 谱仪上进行测量，探测限过高，无法对 ^{85}Kr 进行定量监测。建议适时开展监测方法研究，有效降低探测限。采用液闪测量法具有探测效率高，测量的射线分支比高，分析的样品量可以增大的优点，已用于环境空气和水中 ^{85}Kr 的分析，因而亦适于核电厂排放气态流出物的监测。但是需要关注其他放射性惰性气体的干扰。应加强对放射性惰性气体的分离纯化方法研究，针对其他放射性惰性气体（例如放射性 Xe）的分析，亦可对其分离和纯化并进行分析，以进一步降低探测限。根据理论估算，典型条件下对 3L 气态流出物样品，对 ^{85}Kr 的探测限可降至 $10\text{Bq}/\text{m}^3$ 量级。为评估核电厂周围环境空气中 ^{85}Kr 的活度浓度水平，监控核电厂的异常排放，可适时开展相应监测，有利于核电厂周围环境辐射监督管理。

4. ^{85}Kr 的剂量评估

4.1 剂量系数

^{85}Kr 被认为是低毒放射性核素，这是由于：其衰变放出的 β 放射性能量低、 γ 放射性分支比小；Kr 为惰性气体，不会沉降和参与生

物过程；进行公众剂量评价时，一般不考虑⁸⁵Kr的沉降、生物转移，而仅考虑空气浸没外照射^[34]。

1972年，Diethorn与Stockho给出了空气中⁸⁵Kr的剂量估算方法^[2]，包括皮肤外照射和呼吸系统、血液和脂肪的内照射和外照射，并假定以血液所受⁸⁵Kr的剂量作为全身剂量，其剂量系数经单位换算后约为 $1.2 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ，其中，主要贡献为 γ 射线的外照射，占98.7%。

1973年，Snyder等人根据MIRD 5体模估算了⁸⁵Kr的空气浸没剂量系数^[35]，考虑了空气 γ 射线及韧致辐射外照射、皮肤内的韧致辐射、溶入体内组织的⁸⁵Kr γ 射线及韧致辐射内照射、 β 内照射，估算了皮肤、软组织、肺、红骨髓、骨骼和性腺的组织剂量系数。根据单位换算，空气中⁸⁵Kr对人体的全身有效剂量系数约为 $1.12 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ，其主要剂量贡献来自 γ 射线的外照射，占80%。

可以看到，尽管⁸⁵Kr被认为较易溶于人体血液、脂肪等组织，但空气⁸⁵Kr浸没时内照射的剂量贡献很小。美国环保署（USEPA）在其11号联邦导则（FGR11）和12号联邦导则（FGR12）给出的⁸⁵Kr空气浸没照射剂量系数均为外照射剂量系数^[36, 37]。

FGR11和FGR12根据国际辐射防护委员会第26号报告（ICRP 26）给出的组织权重因子，估算了放射性核素空气浸没照射剂量系数，其中⁸⁵Kr对成人的全身有效剂量系数（皮肤外照射除外）分别为 $1.13 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ 和 $1.03 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ，皮肤外照

射有效剂量系数分别为 $1.12 \times 10^{-9} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ 和 $1.14 \times 10^{-9} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ，两个导则给出的系数相差很小。考虑到 ICRP 60 号报告将皮肤的组织权重因子定为 0.01^[38]，则 FGR11 和 FGR12 给出的 ^{85}Kr 的剂量系数在加上皮肤外照射剂量后分别为 $2.25 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ 和 $2.17 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ，与 ICRP 72 号报告给出的空气浸没剂量系数 $2.2 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ 相当^[39]。可以看到，皮肤所受到的外照射剂量占比大于 50%。

由于 2007 年 ICRP 103 号报告的发布^[40]，USEPA 拟发布第 15 号联邦导则(FGR15)，对空气浸没剂量系数进行重新估算并取代 FGR12^[41]。根据文献报道的最新参数估算， ^{85}Kr 对成人的空气浸没外照射剂量系数约为 $2.07 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ^[41]，与 FGR11 和 FGR12 号报告给出的剂量系数相差很小。

ICRP 72 号报告给出的 ^{85}Kr 的浸没外照射有效剂量转换因子均为 $2.2 \times 10^{-11} (\text{Sv/d}) / (\text{Bq/m}^3)$ ^[39]。该报告将放射性惰性气体划作第 SR-0 类，即认为是非溶性和非反应性的，其给出的剂量系数考虑了外照射及在呼吸道的内照射（忽略呼吸道的沉积），并且认为主要来自外照射的贡献。

整体上，对 ^{85}Kr 的空气浸没照射剂量系数，一些权威文献中给出的参数相差很小，且主要考虑 γ 射线的外照射。

4.2 核电厂周围空气中 ^{85}Kr 浓度估算

我国目前核电厂的主流机型为 CPR1000、AP10000、华龙一号，每台机组其正常运行时气态流出中 ^{85}Kr 排放源项（现实源项）分别为

0.257TBq/a、3.1TBq/a 和 1.78TBq/a。我国核电厂周围 20km 范围内典型的长期大气弥散因子约在 $10^{-7}\sim 10^{-9}\text{s}/\text{m}^3$ ，对一些静风频率高的内陆核电厂所在区域，其静风频率可能还要高一个数量级。假定 ^{85}Kr 通过核电厂长期连续均衡排放，按 4 台机组运行估算，则典型条件下对 CPR1000、AP1000 和华龙一号机组核电厂周围空气中的 ^{85}Kr 的活度浓度分别为 $0.03\sim 3\text{mBq}/\text{m}^3$ 、 $0.4\sim 40\text{mBq}/\text{m}^3$ 和 $0.2\sim 20\text{mBq}/\text{m}^3$ ，比目前环境本底水平低 2~4 个数量级。以 $1\times 10^{-6}\text{s}/\text{m}^3$ 的长期大气弥散因子进行估算则可分别达到 $0.03\sim 0.4\text{Bq}/\text{m}^3$ 的水平。

4.3 核电厂周围公众对 ^{85}Kr 受照剂量水平

采用 ICRP 72 号报告推荐的剂量系数估算公众受到 ^{85}Kr 的空气浸没照射剂量，对 CPR1000、AP1000 和华龙一号三种类型的机组，根据典型的大气弥散因子，其排放的 ^{85}Kr 对公众造成的辐射剂量低于 $1\text{mSv}/\text{a}$ 的水平。整体上看，由核电厂释放的 ^{85}Kr 对公众造成的辐射剂量极低，几乎可以忽略，比国家标准《核动力厂环境辐射防护规定》（GB 6249-2011）规定的剂量约束值 $0.25\text{mSv}/\text{a}$ 要低 5~6 个数量级。

核电厂释放的 ^{85}Kr 虽然总量较大，但经稀释扩散后在空气中的浓度很低，与乏燃料处理厂排放量及其周围环境中的浓度水平相比是非常小的。乏燃料处理厂周围空气中的 ^{85}Kr 活度浓度在数千 Bq/m^3 以上，比核电厂周围环境空气中 ^{85}Kr 活度浓度高出 4 个数量级以上^[42]，需要对其环境空气中 ^{85}Kr 的监测加以关注。

5. 结论

^{85}Kr 是核燃料循环向环境中释放的重要放射性核素，致使目前环

境空气中的 ^{85}Kr 活度浓度达到 $1.5\text{Bq}/\text{m}^3$ 的水平。核电厂释放的 ^{85}Kr 近年来引起监管部门的重视, 基于核电厂气态流出物排放量统计和监控的要求, 需要建立有关流出物和环境空气中 ^{85}Kr 的监测方法。本文对 ^{85}Kr 的来源、排放及其在环境中的行为、 ^{85}Kr 的监测方法进行了调研分析, 研究表明, 采用分离纯化技术获得 Kr 样品后, 可在液闪谱仪上测量, 该方法同时适于环境低本底测量和核电厂气态流出物的测量。有必要建立相应监测方法和标准, 开展我国核电厂气态流出物和环境中的 ^{85}Kr 的监测。

采用我国主要机型 CPR1000、AP1000 和华龙一号机组排放源项和典型长期大气弥散因子进行了公众剂量估算, 结果表明, 由核电厂正常运行释放的 ^{85}Kr 对公众造成的辐射影响极小。

参考文献

- [1] A. L. Nichols, D. L. Aldama, M. Verpelli, Handbook of nuclear data for safeguards: Database extensions, August 2008[R], International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2008.
- [2] W. Diethorn, W. Stockho, The dose to man from atmospheric ^{85}Kr [J], Health Phys., 23 (1972) 653-662.
- [3] I. Nevinskii, T. Tsvetkova, V. Pron'ko, ^{85}Kr in Natural Waters of Krasnodarskii Krai[J], Water Resources, 31 (2004) 215-220.
- [4] A. Janssens, J. Buysse, E. Cottens, The measurement of low-level atmospheric krypton-85[J], Nucl. Instrum. Meth. A, 234 (1985) 335-343.
- [5] J. Ahlswede, S. Hebel, J.O. Ross, et al, Update and improvement of the global krypton-85 emission inventory[J], J. Environ. Radioactiv., 115 (2013) 34-42.
- [6] A. Bollhöfer, C. Schlosser, J.O. Ross, et al, Variability of atmospheric

-
- krypton-85 activity concentrations observed close to the ITCZ in the southern hemisphere[J], *J. Environ. Radioactiv.*, 127(2014) 111-118.
- [7] Š. Cimbák, P. Povinec, ⁸⁵Kr atmospheric concentration in Bratislava from 1980 to 1983[J], *Environ. Int.*, 11 (1985) 65-69.
- [8] R. E. Stanley, A. A. Moghissi, *Noble Gases*[M], US Environmental Protection Agency, 1975.
- [9] UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation-- Report to the General Assembly. Annex D: Radioactive contamination due to nuclear power production[R], United Nations Scientific Committee, New York, 1977.
- [10] UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation-- Report to the General Assembly. Annex C: Exposures to public from man-made sources of radiation[R], United Nations Scientific Committee, New York, 2000.
- [11] L. Machta, G. Ferber, J. Heffter, Regional and global scale dispersion of ⁸⁵Kr for population-dose calculations, in: *Physical behaviour of radioactive contaminants in the atmosphere*[C], 1974.
- [12] K. Róžański, Krypton-85 in the atmosphere 1950~1977: a data review[J], *Environ. Int.*, 2 (1979) 139-143.
- [13] J. Tadmor, Deposition of ⁸⁵Kr and tritium released from a nuclear fuel reprocessing plant[J], *Health Phys.*, 24 (1973) 37-42.
- [14] USEPA, *Krypton-85: A Review of the Literature and an Analysis of Radiation Hazards*[R], US Environmental Protection Agency, 1972.
- [15] T. Oishi, M. Yoshida, J. Saegusa, et al, Determination of detection efficiency curve for a gas monitor with a built-in germanium detector[J], *J Nucl. Sci. Technol.*, 38 (2001) 203-208.
- [16] P. Kovar, P. Dryak, J. Suran, A. Gudelis, Calibration of stack monitors for measurement of noble gases in nuclear facilities[J], *Appl. Radiat. Isotopes*, 70 (2012) 2127-2129.
- [17] 吕学升, 金惠民, 刘国荣, 等, ⁸⁵Kr 在线监测原型装置研制[J], *原子能科学技术*, 40

(2006) 334–337.

- [18] A. Janssens, J. Buysse, F. Raes, et al, An improved method for the sampling of atmospheric ^{85}Kr [J], Nucl. Instrum. Meth. B, 17 (1986) 564–567.
- [19] R. Yokochi, L. J. Heraty, N. C. Sturchio, Method for purification of krypton from environmental samples for analysis of radiokrypton isotopes[J], Anal. Chem., 80 (2008) 8688–8693.
- [20] T. Okai, Y. Takashima, N. Shiraishi, et al, Measurement of krypton-85 in the atmosphere with a portable apparatus[J], J. Radioanal. Nucl. Ch., 81 (1984) 161–165.
- [21] N. Momoshima, F. Inoue, S. Sugihara, et al, An improved method for ^{85}Kr analysis by liquid scintillation counting and its application to atmospheric ^{85}Kr determination[J], J. Environ. Radioactiv, 101 (2010) 615–621.
- [22] K. Mitev, V. Zhivkova, D. Pressyanov, et al, Liquid scintillation counting of polycarbonates: A sensitive technique for measurement of activity concentration of some radioactive noble gases[J], Appl. Radiat. Isotopes, 93 (2014) 87–95.
- [23] I. Nevinskii, T. Tsvetkova, ^{85}Kr Extraction from Water Samples[J], Atomic Energy, 95 (2003) 801–806.
- [24] B. Ekwurzel, P. Schlosser, W. M. Smethie, et al, Dating of shallow groundwater: Comparison of the transient tracers $^3\text{H}/^3\text{He}$, chlorofluorocarbons, and ^{85}Kr [J], Water Resour. Res., 30 (1994) 1693–1708.
- [25] J. Held, S. Schuhbeck, W. Rauert, A simplified method of ^{85}Kr measurement for dating young groundwaters[J], Int. J. Radiat Appl. Instrument A, 43 (1992) 939–942.
- [26] E. Csongor, L. Wilhelmová, Z. Dvořák, et al, Inter-laboratory comparison of atmospheric ^{85}Kr concentration measurements[J], Int. J. Radiat Appl. Instrument A, 39 (1988) 401–405.
- [27] T. Yamamoto, N. Ootsuka, Concentration measurement of ^{85}Kr dissolved in the solution with GM counter[J], Radioisotopes, 29 (1980) 422–426.
- [28] Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Nemoto, et al, ^{85}Kr measurement system for continuous monitoring at the Meteorological Research Institute, Japan[J], J. Environ.

-
- Monit., 3 (2001) 688-696.
- [29] L. Currie, G. Klouda, Detection and quantification capabilities for ^{85}Kr with the NIST low-level gas counting system: Impacts of instrumental and environmental backgrounds[J], *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 248 (2001) 239-246.
- [30] G.-M. Yang, C.-F. Cheng, W. Jiang, et al, Analysis of ^{85}Kr : a comparison at the 10^{-14} level using micro-liter samples[J], *Sci. Rep.*, 3 (2013) 1-5.
- [31] Z.-T. Lu, P. Schlosser, W. Smethie Jr, et al, Tracer applications of noble gas radionuclides in the geosciences[J], *Earth-Sci. Rev.*, 138 (2013) 196-214.
- [32] W. Jiang, K. Bailey, Z.-T. Lu, et al, An atom counter for measuring ^{81}Kr and ^{85}Kr in environmental samples[J], *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 91 (2012) 1-6.
- [33] L.-Y. Tu, G.-M. Yang, C.-F. Cheng, et al, Analysis of Krypton-85 and Krypton-81 in a Few Liters of Air[J], *Analyt. Chem.*, 86 (2014) 4002-4007.
- [34] Q. Zhang, R. Guo, C. Zhang, et al, Radioactive airborne effluents and the environmental impact assessment of CAP1400 nuclear power plant under normal operation[J], *Nucl. Eng. Design*, 280 (2014) 579-585.
- [35] W. Snyder, L. Dillman, M. Ford, J. Poston, Calculations of the absorbed dose to a man immersed in an infinite cloud of krypton-85[R], US Atomic Energy Commission, 1973.
- [36] K. Eckerman, J. Ryman, Federal Guidance Report No. 12: External exposure to radionuclides in air, water, and soil[R]. US Environmental Protection Agency, Washington, DC, 1993.
- [37] K. Eckerman, A. Wolbarst, A. Richardson, Federal Guidance Report No. 11, Limiting Values of Radionuclide Intake and Air Concentration and Dose Conversion Factors for Inhalation, Submersion, and Ingestion[R], US Environmental Protection Agency, Washington, DC, 1988.
- [38] ICRP, ICRP Publication 60, 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection[R], International Commission on radiological protection, 1991.
- [39] ICRP, ICRP Publication 72, Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation

-
- Coefficients[R], International Commission on radiological protection, 1995.
- [40] ICRP, ICRP Publication 103, The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection[R], International Commission on radiological protection, 2007.
- [41] M. Bellamy, K. Veinot, M. Hiller, et al, Effective Dose Rate Coefficients for Immersions in Radioactive Air and Water[J], Radiat. Prot. Dosim., (2016) (doi: 10.1093/rpd/ncw103).
- [42] O. Connan, L. Solier, D. Hébert, et al, Near-field krypton-85 measurements in stable meteorological conditions around the AREVA NC La Hague reprocessing plant: estimation of atmospheric transfer coefficients[J], J. Environ. Radioactiv., 137 (2014) 142-149.