

探知非法核活动的关键技术:环境取样分析

高雪梅,黎春,杨丽芳,王岚,谭西早,李多宏

国家核安保技术中心,北京 102401

摘要 回顾了国际原子能机构环境取样分析技术的产生背景和发展历程,介绍了目前主要应用的环境取样分析技术,分析了环境取样分析技术在全面保障监督和探知非法核活动中所起的重要作用。

关键词 非法核活动;环境取样;核安保

核材料衡算和封隔监视是国际原子能机构(IAEA)传统的保障监督方法,通过这两种方法可以核实成员国申报的核材料存量。1991年IAEA和联合国的视察员在彻底搜查伊拉克核设施的碎石瓦砾时,发现了铀、钚之类放射性元素的蛛丝马迹,通过使用环境取样分析技术,得出该设施所开展的核活动与申报不一致的结论。为此,1993年IAEA提出了加强的核保障“93+2”发展计划,以确保视察员可对可疑的核设施进行环境取样,探查相关国家是否存在未申报的核活动^[1]。1997年5月15日,IAEA理事会核准了保障协定附加议定书,加强的核保障措施正式实施。从此,环境取样技术成为IAEA保障监督检查中广泛使用的技术手段之一。

1 环境取样

环境取样是将采集环境样品与超灵敏分析技术,如质谱法、粒子分析和低活度辐射测量技术相结合,用以揭示过去和现在与操作核材料有关活动的信息^[2]。核保障中的环境取样是基于假设未申报的核活动将导致常规或意外释放到环境中的放射性核素,特别是钚或高浓缩铀(HEU)等制造核武器所

需的核材料。燃料组件经过反应堆辐照,如进行后处理,就会向周围环境释放多种裂变产物和锕系元素的同位素。通过对这些放射性核素的测量,可以探知设施是否开展过铀浓缩或钚生产等活动。其中,铀同位素比是判断是否进行铀浓缩的一个重要指标。

环境取样作为一种新的加强措施已在IAEA开展了20多年的工作。现在,IAEA视察员每年从全世界的设施中提取数百个环境样品。所有样品都被送往IAEA的塞伯斯多夫洁净实验室(NWAL)进行筛选,筛选后的样品被送往机构的网络分析实验室进行分析^[3]。这些网络分析实验室均具有测量极低同位素和辐射的特殊能力。机构通过专用软件进行评估测量,如测量结果与设施申报存在不一致,相关的评估报告将会在成员国内部进行讨论。

2 样品采集

就IAEA保障监督而言,采集环境样品的目的是通过分析其中的材料痕迹揭示操作核材料或进行核活动的信息^[4]。被采集的介质包括各种表面,例如,设备和建筑结构的表面、空气、水、沉积物、植物、土壤和生物群等。应用

环境取样通常分为两个阶段:一是为建立一个参照的“环境特征”而进行的基准取样阶段,二是随后进行的为比较申报的运行操作与已建立的基准环境特征的一致性而获取数据的常规取样阶段。

随着样品分析技术对所涉元素或同位素的分析灵敏性和选择性越来越高,从少量样品中得到的信息也越来越丰富。在广泛应用的擦拭取样(图1(a))中,一般可以采集到纳克级的铀、皮克或费克级的钚,以及其他放射性的裂片核素(图1(b))。通过擦拭取样,环境取样分析的范围也从开始的铀浓缩和钚生产设施,扩展到铀开采、钚转化、燃料制造、后处理及其他申报了或未申报核活动的研究设施。

除了环境样品,IAEA还会采集诸如铀金属、燃料芯块等核材料,以及铝合金、混凝土、核级石墨等非核材料进行分析。

3 样品处理

IAEA建立的洁净实验室是保障分析实验室的一部分,为支持IAEA保障司环境取样计划提供分析服务。洁净实验室负责准备和验证取样工具,以及

收稿日期:2016-06-22;修回日期:2016-07-20

作者简介:高雪梅,高级工程师,研究方向为核安保,电子信箱:gaoxuemei74@163.com

引用格式:高雪梅,黎春,杨丽芳,等.探知非法核活动的关键技术:环境取样分析[J].科技导报,2016,34(15):60-62;doi:10.3981/j.issn.1000-7857.2016.15.007



(a) 金属表面的擦拭取样



(b) 收集的擦拭样品

图1 擦拭取样

Fig. 1 Wipe sampling



(a) 环境样品制备



(b) 热电离质谱仪

图2 国家核安保技术中心洁净实验室

Fig. 2 Clean Laboratory in SNSTC

接受、筛选和分发采集的环境样品。为了将交叉污染的风险降低到可接受的水平,该设施将其部分实验室空间的洁净度保持在100级,以避免交叉污染。2016年,国家核安保技术中心洁净实验室建成并开始运行,部分实验室空间的洁净度水平也保持在100级(图2)。

4 样品分析

国际原子能机构塞伯斯多夫洁净实验室通过使用高分辨率 γ 谱测定法(High Resolution Gamma Spectrometry, HRGS)对样品进行筛选测量(Screening Measurement),以确定其放射性水平和探测是否存在铀系元素(主要是铀、钍和其他裂变或活化产物)。筛选测量之后,根据取样的目的,样品可被分发到IAEA的网络分析实验室,采用总体分析或粒子分析的方式进行分析,也可以由IAEA的洁净实验室做进一步测量或存档。最后通过各种分析方法,获取环境样品的颗粒大小、形态、元素和同位素组成等信息。

在环境取样分析中应用较为广泛的分析方法(表1)有:

1) α 谱仪、 β 谱仪、 γ 谱仪。 α 谱仪,测量 α 粒子的能谱, ^{238}Pu 是 α 比活度最高的Pu同位素,以测定被测量材料中的 α 发射同位素(例如 ^{238}Pu)的丰度。在保障分析实验室,这种技术与同位素稀释质谱测定法一起用于乏燃料样品的分析。 γ 谱仪,该方法是测定被测物项中源同位素的总量和有贡献

同位素的特性与丰度而建立的,如锞探测器测量入射探测器的 γ 射线能谱和强度的方法。通过将测得的能谱参与确定几何结构的标准样品的能谱进行比较完成测量。其能量分辨率取决于所使用的探测器:当使用高能量分辨率的探测器(如锞探测器)时,相邻的 γ 射线能量谱线通常能被很好地区分开。高分辨率 γ 射线能谱测定法是Pu同位素组成分析和乏燃料中裂变产物的能谱分析中的基本方法。

2) X射线荧光(X-Ray Fluorescence spectrometry, XRF)通过测定能量与U或Pu的K电子吸收边界接近相同的光子透射比,测量溶液中U或Pu浓度的技术。将K边界密度计和X射线荧光分析结合的混合式仪器用于测定混合溶液(包括高放射性的乏燃料溶液)中的U和Pu的浓度。

3) 电感耦合等离子体质谱测定法(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, ICP-MS)是测量痕量同位素含量的方法,可用于测量环境样品的元素和同位素浓度。通过将样品制成溶液,在载气(氦气)中形成喷雾,载气两端加高压形成等离子体,使得样品离子化。样品中的不同同位素形成的离子束在质谱仪中被分离,探测器收集待测同位素的离子束,通过与浓度标准溶液进行比较,得出样品中各同位素的浓度。

4) 热电离质谱测定法(Thermal Ionization Mass Spectrometry, TIMS),也

表1 环境样品分析技术

Table 1 Assay technologies of environmental sampling

序号	分析仪器和技术	用途
1	α 谱仪、 β 谱仪、 γ 谱仪	样品筛选、能谱测量
2	中子活化分析	^{129}I , ^{99}Tc 等
3	缓发中子技术	^{235}U , ^{239}Pu
4	X射线荧光	Na~U的大部分元素,样品筛选
5	激光荧光分析	U元素等
6	电感耦合等离子体质谱测定法	U、Pu同位素及70余种元素快速分析
7	热电离质谱测定法	精确测定(0.5%) ^[5]
8	二次离子质谱法	粒子分析
9	加速器质谱法	^{14}C , ^{129}I 高灵敏度分析
10	扫描电子显微镜法	粒子分析

称为表面电离质谱法。将皮克至微克量的样品沉积在金属带上,随后在高真空状态下加热到 1600~2000℃,使得样品离子化。由样品中存在的不同同位素形成的离子束,在质谱仪中被分离并被多个探测器同时收集,从而得出同位素比。这种技术在保障分析实验室中被广泛应用。如要得到高准确度的结果则需要将样品的交叉污染减至最小。

5) 二次离子质谱法 (Secondary Ion Mass Spectroscopy, SIMS), 该方法是通过将环境微粒固定在导电衬底上并在真空中用高能离子轰击,测量微米级的环境微粒中核材料同位素组成的一种技术。通过质谱仪对二次离子溅射结果的分析测量微粒中 U 和 Pu 的同位素组成。

6) 加速器质谱 (Accelerator Mass Spectrometry, AMS) 是测量由裂变产物,如 ^{129}I , 以及中子活化或低同位素产生的长寿命周期核素的一种技术。

7) 扫描电子显微镜法 (Scanning Electron Microscopy, SEM), 这是一种用于分析环境样品上微粒的技术,通过将微粒沉积到导电衬底上并在高放大倍数 (1000~5000 倍) 下检查微粒。用背散射电子信号确定包含重元素的微粒的位置。重元素微粒可以随后通过电子激发 X 射线荧光光谱学进行半定量的元素分析。将电子激发 X 射线荧光光谱 (X-ray fluorescence) 测定法与扫描电子显微镜 (SEM/XRF) 联用,可以测量从环境样品中取出的微米级颗粒的元素组成。特别需要注意的是, U/

Pu 和 Am/Pu 的比率在从手套箱或热室内提取的样品中至关重要。

5 结论

环境监测技术可以显著提高探知当事国在已申报的核设施中进行隐蔽核活动的的能力。广泛地采用环境监测技术,可以减少对例行保障监督视察的需求。

环境取样技术经过 20 多年的实施和发展,已经成为 IAEA 核保障监督非常有效和重要的技术手段。随着防核扩散形势越来越严峻,IAEA 正不断努力与更多的国家签署保障监督协议附加议定书,环境取样技术也将不断发展,在核保障领域做出更大的贡献。

参考文献 (References)

- [1] 朱荣保. IAEA 核保障技术的进展[J]. 原子能科学技术, 1998, 32(3): 282-282.
Zhu Rongbao. Progress of iaea safeguards technology[J]. Atomic Energy Science and Technology, 1998, 32(3): 282-282.
- [2] Cooley J N, Kuhn E, Donohue D L. Current status of environmental sampling for IAEA safeguards[C]. Proceedings of the 19th Annual ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Vienna: IAEA, 1997.
- [3] Fischer D M. The evolution of environmental sampling for safeguards[J]. Evolution, 2010(2): 10-25.
- [4] Donohue D L. Strengthening IAEA safeguards through environmental sampling and analysis[J]. Journal of Alloys & Compounds, 1998, 271(13):11-18.
- [5] 陈彦,沈彦,常志远,等. CRM 铀微粒的 FT-TIMS 分析方法研究[J].原子能科学技术, 2011, 45(9): 1031-1033.
Chen Yan, Shen Yan, Chang Zhiyuan, et al. Analysis of single uranium particle by FT-TIMS[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2011, 45(9): 1031-1033.

The critical technology of detecting undeclared nuclear activities: Environmental sampling

GAO Xuemei, LI Chun, YANG Lifang, WANG Lan, TAN Xizao, LI Duohong

State Nuclear Security Technology Center, Beijing 102401, China

Abstract This paper reviews the background and the development of the Environmental Sampling (ES) technique in the International Atomic Energy Agency (IAEA), including the major ES techniques and the major effort of the IAEA to strengthen the nuclear safeguards. The techniques of detecting illegal nuclear activities are also discussed.

Keywords illegal nuclear activities; environmental sampling; nuclear security

(编辑 韩丹焘)