

我国禁核试核素核查技术发展及展望

党海军, 刘龙波, 武 山

西北核技术研究所, 陕西 西安 710024

摘要:自 1996 年签署《全面禁止核试验条约》(CTBT) 以来, 我国在禁核试核素核查监测技术方面取得重要进展。作为唯一能够提供核爆炸定性证据的技术手段, 核素核查技术研究经过二十年的发展, 建立了满足台站和现场核素监测要求的取样与测量技术手段和禁核试北京放射性核素实验室, 拥有了能够有效履行条约义务、保障我国国土和环境安全的技术能力, 在周边各类核事件、核事故等应急监测中发挥了重要作用。本文简要回顾我国禁核试核素核查技术的发展历程、重要成果和技术现状, 分析后续核素核查和监测技术发展的主要方向。

关键词:CTBT; 核素核查; 大气放射性; 氙同位素; 放射性监测

中图分类号:TL751; O647.3 **文献标志码:**A **文章编号:**0253-9950(2019)01-0133-11

doi:10.7538/hhx.2019.41.01.0133

Progress and Prospect of Radionuclide Verification Techniques for CTBT in China

DANG Hai-jun, LIU Long-bo, WU Shan

Northwest Institute of Nuclear Technology, Xi'an 710024, China

Abstract: Since the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty (CTBT) was assigned in 1996, great progress has been achieved in China in all fields of verification techniques. As the only technique which can provide confirmative evidence of a nuclear explosion, radionuclide verification has been paid more attention. Aerosol and xenon samplers were developed to meet the qualification of CTBT together with the nuclide measurement techniques, and the national nuclide laboratory has been established. These developments assure China to carry the obligation in CTBT and improve its capability to guard the territory and environment of China. Also the techniques developed will play important roles in emergency monitoring in case of nuclear event and nuclear accident. In this review, the development of radionuclide verification techniques and the main achievements are outlined, and the future scopes of research are prospected.

Key words: CTBT; radionuclide verification; atmospheric radioactivity; radioxenon; radioactivity monitoring

自1945年7月6日美国成功爆炸世界上第一颗原子弹以来,美国、俄罗斯(前苏联)、英国、法国、中国、印度、巴基斯坦和朝鲜等国家共进行了2058次不同形式的核试验。1945年8月在日本的广岛和长崎使用的两颗原子武器,将人类社会推向核恐怖和核讹诈的梦魇。此后的半个世纪里,国际社会一直致力于推动禁止核试验,最终于1996年9月10日,第50届联合国大会通过了《全面禁止核试验条约》(Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty, CTBT)。到目前为止,全球196个国家中共有184个国家签署了该条约,167个国家批准了该条约。我国是第一批签署条约的国家,并自1996年开始部署开展地震、核素、次声、水声、卫星等各种核查监测技术研究,建立了多个国际监测台站、国家数据中心和核素实验室等。作为唯一能够提供核爆炸事件定性证据的手段,禁核试核素核查技术经过二十年的发展,达到国际先进水平,建立了满足台站和现场核素监测要求的相应国家技术手段^[1-3]。

1 核素核查技术

1.1 核素核查的作用

核素核查是监测和甄别核爆炸的高灵敏度技术,是获取违约事件确凿证据的主要手段之一^[4],其作用是通过核爆炸泄漏的放射性核素(主要是裂变产物核素)的监测与分析提供核爆炸事件的直接证据,并结合不同核素的比值分析和大气输运模拟对事件进行定时和定位。核素核查包括全球性的台站监测、现场视察(on site inspection, OSI)监测、可疑样品实验室分析和事件溯源。

1.2 核素核查的技术内容和指标要求

核素核查的技术内容包括取样、核素测量、大气输运模拟和事件定性方法与判据。取样通常包括大气气溶胶取样和惰性气体氙的取样;核素测量方面,气溶胶样品通常采用高分辨的 γ 能谱测量其中的 ^{140}Ba 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 等核素,大气氙样品多采用 β - γ 符合法或高分辨 γ 能谱分析法测量其中的 $^{131}\text{Xe}^m$ 、 $^{133}\text{Xe}^m$ 、 ^{133}Xe 、 ^{135}Xe 等放射性氙同位素。现场视察中 ^{85}Kr 和 ^{37}Ar 也是气体监测的重要对象核素。综合考虑核试验场址、监测灵敏度要求和全球大气输运与混合特征等,条约组织(Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization, CTBTO)在全球设立了80个核素

监测台站,具有大气放射性气溶胶监测功能,其中40个同时具备惰性气体监测功能,截至2017年12月台站已建成69个,认证64个。我国境内设有北京(RN20)、兰州(RN21)和广州(RN22)3个台站,其中RN20和RN22同时具有气溶胶和惰性气体监测的能力。另外,禁核试北京放射性核素实验室(简称北京核素实验室)是我国禁核试核查体系的重要组成部分,也是国际监测系统(International Monitoring System, IMS)16个国际放射性核素实验室之一,其主要职能是对IMS和OSI的样品进行精细分析,提供权威的分析结果。

CTBT组织对核素核查台站和设备系统指标要求为:气溶胶监测系统空气取样流速大于 $500\text{ m}^3/\text{h}$,气溶胶过滤效率大于80%($0.2\text{ }\mu\text{m}$ 粒径),24小时冷却、24小时测量对大气中 ^{140}Ba 的活度浓度探测限为($10\sim 30$) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$;惰性气体监测系统24小时内空气取样量大于 10 m^3 ,24小时测量对 ^{133}Xe 的最小探测活度浓度为 $1\text{ mBq}/\text{m}^3$ ^[3-4]。

1.3 国外核素核查技术发展现状

气溶胶取样在大气环境监测中应用已久,技术相对成熟,发展相对较快。至20世纪末,国外已有几种商业产品,如德国的ASS-500、美国的RASA、法国的TGD 152和芬兰的Snow White等^[5-7],其中ASS-500和TGD 152使用高压风机作为采样动力,负载较小,只适合在空气质量比较好的环境中采样;Snow White使用了耐受压阻为20 kPa的气环真空泵作动力,适用范围较宽,在国际核查应用较广。此外,加拿大卫生部的辐射防护局开发了灰鹰(Grey Owl)大流量气溶胶取样器,可满足低成本高可靠运行的需求^[8];波兰的超大流量取样器AZA-1000安装于波兰科学院的极地观测站,可在极端环境下运行^[9]。

在取样器设计和优化方面,取样器效率与风速和风向的关系研究一般采用理论模拟和风洞实验^[10-11]相结合的手段。样品分析一般采用低本底的HPGe γ 能谱技术^[6],必要时对滤材消解后进行放射化学分析^[12]。

惰性气体难以封闭,在地下和水下核试验监测中非常重要,因此大气氙取样和测量技术得到各国的高度重视。国际上主要的惰性气体取样分析系统有4种(表1):美国的ARSA^[13]、俄罗斯的ARIX^[14]、瑞典的SAUNA^[15]和法国的SPAL-AXTM^[16]。这些系统采用 β - γ 符合法或者高分辨 γ 能谱法测量分离纯化后的Xe样品, ^{133}Xe 的

表1 国外主要的氙取样分析系统

Table 1 Atmospheric radioxenon sampling and measurement system developed abroad

系统	收集原理	纯化原理	活度测量方法	取样量/ m ³	取样 时间/h	MDC/(mBq·m ⁻³)	文献
ARSA (USA)	低温活性炭吸附	分子筛-NaOH-活性炭吸附色层	β-γ符合技术法, β-γ双能谱法	20	8	0.5(¹³³ Xe)	[13]
ARIX (RUS)	沸石和低温活性炭吸附	活性炭吸附色层	β-γ符合, γ能谱法	8.2	12	0.5(¹³³ Xe)	[14]
SAUNA (SWE)	常温分子筛和活性炭吸附	制备型气相色谱纯化	β-γ符合技术法, β-γ双能谱法	7.0	12	1.0(¹³³ Xe, ¹³⁵ Xe, ¹³¹ Xe ^m , ¹³³ Xe ^m)	[15]
SPALAX TM NG(FRA)	气体渗透膜和特效吸附剂联用	浸渍 Ag 的沸石吸附色层	由两个面-面硅探测器与一个或两个锗探测器联合的三复合探测系统	≈70	12	0.1(¹³³ Xe, ¹³¹ Xe ^m , ¹³³ Xe ^m) 0.4(¹³³ Xe, ¹³¹ Xe ^m , ¹³³ Xe ^m)	[16-18]

最小探测浓度(minimal detection concentration, MDC)在 0.2~0.3 mBq/m³ 水平,均满足 CTBT 关于¹³³Xe活度浓度小于 1 mBq/m³ 的要求,并在各种考核与应用中不断改进和完善^[19-21]。

为提高符合法测量¹³¹Xe^m和¹³³Xe^m的灵敏度,单通道层叠井式探测器近年来得到广泛研究,主要是理论模拟研究叠层闪烁体 β-γ 符合探测系统的效率影响因素,开展二维、三维谱的分析和性能评定^[22-24];具有康普顿抑制的井式叠层探测器,可将 662 keV 产生的康普顿坪降低 23%~50%,对 4 种 Xe 同位素的最小探测活度浓度均接近或小于 1 mBq/m³^[25]。在事件溯源和数据分析方面,CTBTO 组织联合多个国家的原子能机构、气象部门和国家数据中心等开展了大气输运模型研究,细致研究不同泄漏源项的同位素比值特征和监测数据的变化特征^[26-29],开展本底数据的积累和分析,评估主要核设施的排放对 CTBTO 的监测系统的灵敏度的影响^[30-35]。应用广泛的大气输运模型包括美国的 HYSPLIT 和欧洲的 FLEX-PART,另外还有美国的 LODI 和 CALPUFF、丹麦的 DREAM 和 DERMA、瑞典的 MATCH、日本的 GERAN-new 等。

2 我国禁核试核素核查技术的研究进展

2.1 整体技术发展历程

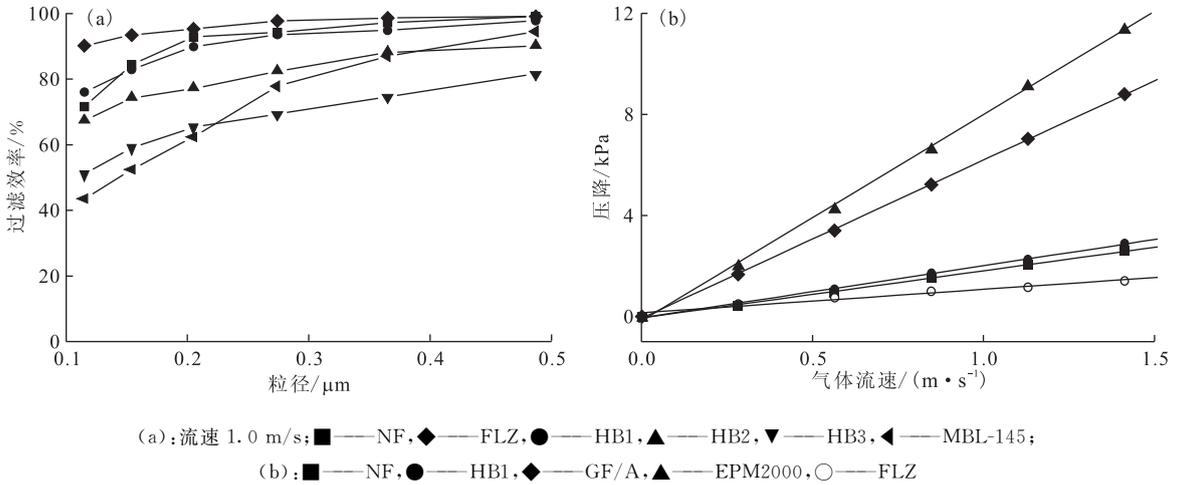
1996 年以来,我国在超大流量气溶胶和大气氙取样器、气溶胶和惰性气体样品活度测量系统、现场视察放射性核素监测、大气放射性核素大尺度输运的正反演模拟、放射性核素来源与核爆识

别判据等核素核查技术方面开展了长期的研究,取得了重要的进展,主要的研究单位是西北核技术研究所和中国工程物理研究院。先后研制了多种类型的大流量气溶胶取样器和大气氙取样器,建立了放射性气溶胶和放射性氙同位素的高灵敏度测量技术,空气取样流速分别达到 800 m³/h 和 4 m³/h,大气中¹³¹I和¹³³Xe的最小可探测活度浓度分别为 5 μBq/m³ 和 0.25 mBq/m³,已应用于朝鲜核试验和日本福岛核事故后我国的环境监测中^[1-2,4,36],其中关键的两种取样器研制都经历了“基础研究—样机研制—技术改进—设备研发”的过程。

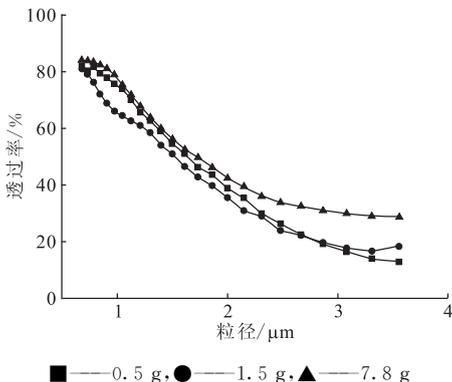
2.2 大气气溶胶取样技术

气溶胶取样器的原理是采用过滤法捕集大气中的气溶胶,技术比较成熟。国内市场用于环境大气颗粒物监测的采样器工作流速一般为 63 m³/h,而核素核查用的气溶胶取样器流速要求不小于 500 m³/h,这一项指标的提升涉及了滤材选型、滤材缓堵、流量测量和控制等关键工程技术研究。

2.2.1 滤材选型和性能测试 市售颗粒物采样器一般采用的截留效率大于 99%(0.3 μm 颗粒物)的玻璃纤维滤材在超大流量采样器中(过滤流速达到 1 m/s)压阻过大,且不适于压片,不能使用。根据大气气溶胶采样的实际条件,研究建立了滤材性能测试装置和方法,对多种市售滤材在 0.5~1.2 m/s 流速下的收集效率和候选滤材的压阻(图 1)进行了测试,选定效率较高的 NF 和 HBI 聚丙烯纤维滤材作为大气气溶胶取样用滤材^[37]。

图1 几种典型滤材的效率(a)和压阻特性(b)^[37]Fig. 1 Filtration efficiency(a) and pressure drop(b) of commercial filter materials^[37]

2.2.2 延缓滤材堵塞技术 超大流量采样器中过滤流速较大,滤材的压阻较大,在环境空气质量较差(如沙尘或重污染天气下)时会频繁发生滤材堵塞,导致停机,影响台站的连续运行^[38],CTBTO建议使用预分离器将直径大于 $10\ \mu\text{m}$ 的颗粒除去以减少滤材堵塞。研究发现,这种方法对于沙尘天气有一定作用,但对雾霾等较小颗粒物造成的污染大气,仅去除大颗粒的缓堵效果不显著,而且还可能引起样品丢失。因此,我国采用“分级取样、合并测量”的技术思路^[39],将颗粒物按粒径大小分两步收集,采用分级撞击器分离收集大颗粒,切割粒径最小设为约 $1.5\ \mu\text{m}$,使到达滤材的颗粒物减少。运行数据显示,分级撞击器可以捕集约50%(质量分数)的大气颗粒物,有效地延缓了滤材的堵塞(图2^[39])。

图2 不同容尘量时颗粒物在分级撞击器中的透过曲线($600\ \text{m}^3/\text{h}$)^[39]Fig. 2 Transmission curves of particles through impactor at different dust load($600\ \text{m}^3/\text{h}$)^[39]

2.2.3 流量测量和控制 为解决常用的涡街流量计不利于控制取样器总体尺寸的问题,先后研究了皮托管、变径喷嘴和均速管等流量计的适用性能,最终选择压力损失小、精度高、前后直管段要求低的带整流翼的均速管作为流量测试的核心元件,使用同尺寸管路进行流量标定^[40]。作为固定安装的连续运行设备,采样器需要实现流量计的在线检定,为此研究了以孔板式标准流量计为基准的超大流量气溶胶采样器在线流量校准的技术方法,质量流量控制精度好于10%^[41-42]。

2.2.4 大流量气溶胶取样器研制 在技术研究的基础上,西北核技术研究所先后完成了超大流量气溶胶采样器样机、PMS-500可吸入颗粒物采样器^[43]、PMS-800固定式大气颗粒物采样器^[44]和pAS型分体式气溶胶采样器等多种类型的大气气溶胶取样器^[40](表2),不仅满足了CTBT放射性核素核查的技术需求,也满足了我国大气环境监测、局地大面积地表污染再悬浮研究、核事故应急监测的需求。其中,固定台站大流量气溶胶取样器的取样流速大于 $800\ \text{m}^3/\text{h}$,取样效率大于80%,技术水平与国际先进的同类系统齐平。

2.3 大气氙取样技术

氙取样器一般采用多级吸附的方法富集大气中的氙。由于大气中氙浓度非常低(体积分数 8.7×10^{-8}),富集系数要求达到 10^6 以上,因此氙取样器的技术和构成比较复杂。1997年以来,持续开展了氙吸附材料的性能、氙的富集和纯化工艺、气体预处理和除杂技术与工艺和系统控制等氙取样器关键技术研究。

2.3.1 氙的多级吸附-脱附纯化工艺 氙的富集纯化可以通过选择性吸附来实现,也可以利用其与杂质气体脱附行为的差异、控制脱附工艺来实现。武山等^[45]研究了多种气体组分在多级吸附柱中的脱附行为,结合样机运行实际效果,确定利

用不同物质在活性炭上的脱附温度差异(图3),通过4级吸附和变温脱附富集纯化氙至很小的体积,有利于高灵敏度测量;冯淑娟等^[46]研究了氙在活性炭和碳分子筛上的动态吸附性能,通过低温和高压提高氙的吸附效率。

表2 常见国内外超大流量气溶胶取样器的性能比较

Table 2 Specifications of typical high volume atmospheric aerosol samplers

型号	国家	标称流速/(m ³ ·h ⁻¹)	最大负载/kPa	固定/移动	更换滤材方式
ASS500	德国	500	4	固定	人工
TGD 152	法国	500	6	移动	人工
Snow White	芬兰	500	20	固定	人工
RASA Mark4	美国	500	20	固定	自动
PMS-500	中国	500	20	移动	人工
PMS-800	中国	800	20	固定	人工
pAS	中国	8	8	移动	人工

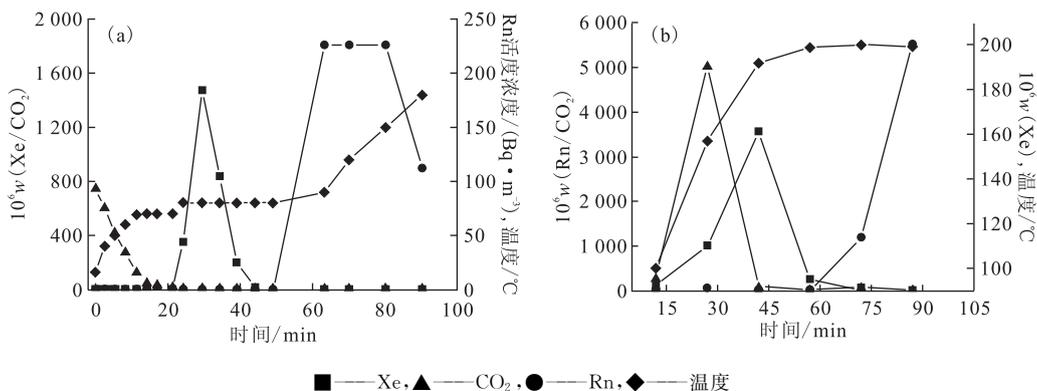


图3 一级(a)和三级(b)吸附柱的变温脱附曲线^[45]

Fig. 3 Desorption curves for the first(a) and the third(b) adsorption columns with programmed temperature^[45]

2.3.2 空气预处理技术与氙氡分离 研究了低温和常温两种条件下的预处理技术和工艺。低温下,活性炭对氙的动态吸附系数显著增大,空气中CO₂对氙吸附产生的影响较小,取样空气经过分子筛除水后,可在低温条件下直接上柱吸附^[47];对于常温吸附,需要同时考虑水分和CO₂对氙吸附的影响,特别是工程化系统中CO₂对氙的吸附影响需要研究克服^[48];近年来,中空纤维膜更多地应用于空气中的氧气、水分和二氧化碳的去除,可促进后续氙进一步的分离纯化^[49-50]。由于氡钍子体对放射性氙的测量有很大干扰,氙氡分离是氙取样器设计中分离纯化的另一重点。基于制备色谱的氙纯化工艺和基于G-M制冷的氙冷凝收集方法能明显改善氙氡分离效果,特定条件下氡的分离因子可达10⁵以上^[51]。

2.3.3 大气氙取样器研制 21世纪伊始,大气氙取样技术研究开始以氙取样器研制为目标:2006年,我国台站用核素监测大气取样技术主要研究单位西北核技术研究所研制了大气氙取样器样机(Axes01),初步实现了氙取样器的工程化;在此基础上,深入研究不同吸附柱中气体的脱附行为,优化多级吸附-脱附工艺,采用制备色谱技术进一步分离氙氡,解决了氙的高度富集和纯化问题;2010年研制了分体式大气氙取样器(pANS-1),2011年研制了固定式台站氙取样器(fANX)。主要取样器的指标和技术路线列于表3。

2.4 放射性气溶胶测量技术

气溶胶样品主要采用HPGe γ能谱无损测量样品中裂变产物¹⁴⁰Ba、¹³¹I、¹³⁷Cs、¹³⁴Cs等的含量,对存疑样品需要在实验室进行详细分析。HPGe

表3 西北核技术研究所大气氙取样器研制进程

Table 3 Development of atmospheric xenon samplers at Northwest Institute of Nuclear Technology

取样器	研发时间	取样能力/ (mL Xe/24 h)	氙去除 因子	主要技术	应用场景
氙取样器样机 AXES01	2006	1.5	3×10^4	采用椰壳活性炭作为吸附剂, 两级低温吸附, 采用两级吸附/脱附工艺富集浓缩纯化氙	固定点应用
分体式氙取样器 pANS	2010	4		高分子膜式空气干燥器进行空气预处理, 采用 椰壳活性炭作为吸附剂, 一级低温吸附, 后级 常温吸附, 采用四级吸附/脱附工艺富集浓缩 纯化氙和去除氙	野外机动监测
固定式氙取样器 fANS	2011	3.5	3.4×10^5	中空纤维半透膜组进行空气预处理, 采用椰壳 活性炭作常温吸附剂富集氙, 采用四级吸附/ 脱附工艺富集浓缩纯化氙和去除氙	台站监测

γ 能谱无损测量是一种常规的分析方法。21世纪初期,西北核技术研究所建立了HPGe γ 谱仪测量大气气溶胶放射性的技术^[52],以及效率刻度^[53-54]、能量漂移校正^[55]等,并研制建立了一套反康普顿 γ 谱仪系统,应用于CTBT国际比对^[56]。针对实验室放射化学分析,李冬梅等^[57-58]研究建立了微波密闭消解或浸取滤材样品的方法,可显著减小样品体积以提高 γ 探测效率,降低MDC;唐寒冰等^[59]提出浸取-灰化-消解联用的方法处理实际滤材样品,样品中的铯、钍和钍可以定量回收。在气溶胶滤材样品国际比对中,北京核素实验室识别出20种放射性核素并推算了零时,活度浓度和零时推算与参考值一致^[60-61],数据质量位于多个实验室前列,反映了我国在极弱放射性测量和核素识别方面的技术水平。

2.5 放射性氙同位素测量技术

放射性氙同位素分析通常采用HPGe γ 谱仪系统或 β - γ 符合系统进行监测样品的测量,准确刻度系统的探测效率是同位素测量的基本问题。北京核素实验室采用内充气正比计数管系统绝对测量了¹³⁵Xe活度,为放射性核素实验室探测系统提供准确的绝对刻度标准^[62];采用效率过渡和理论模拟方法标定了HPGe探测系统的峰效率,建立了CTBTO氙归档样品的高分辨HPGe γ 能谱分析方法,24小时测量¹³³Xe的最小可探测活度为8.7 mBq^[63]。 β - γ 符合法具有更高的探测灵敏度,西北核技术研究所建立了基于NaI(Tl)闪烁体和塑料闪烁体的 β - γ 符合测量系统,利用¹³⁷Cs 662 keV γ 射线康普顿散射电子刻度塑料闪烁体

β 射线能量及分辨率,利用 β - γ 符合效率外推法测量放射性核素¹³³Xe和¹³¹Xe^m的活度,采用镀铝薄膜塑料闪烁体和铝酸钇无机闪烁体(YAP)可显著减小惰性气体记忆效应,测量准确度明显提高(不确定度约为0.3%)^[64-67]。

在能谱分析和监测数据分析方面,杨文静等^[68]对符合能谱数据的感兴趣区(ROI)干扰因素等进行了详细分析,推导了放射性氙同位素最小可探测活度浓度公式;张新军等^[69-70]对CTBT放射性核素台站SAUNA系统的有效监测数据利用统计学方法进行研究,发现4种惰性气体氙同位素¹³³Xe、¹³¹Xe^m、¹³³Xe^m和¹³⁵Xe的最小可探测浓度和实测活度浓度均呈高斯分布,监测结果能够反映所在地区氙本底水平,并剖析了4种氙同位素的符合关系,建立了基于相关法的符合谱解谱算法。为提高低浓度氙同位素样品的测量水平,北京核素实验室研究建立了一套反宇宙射线 γ 谱仪系统,全谱积分本底降低了约6倍,测量3天对¹³¹Xe^m、¹³³Xe^m、¹³³Xe和¹³⁵Xe的最小可探测活度分别为3.2、4.3、2.8 mBq和6.1 mBq^[71];西北核技术研究所^[72]建立了基于井式HPGe和塑料闪烁体的 β - γ 符合测量系统,¹³³Xe的81 keV的射线符合效率为 0.340 ± 0.009 ,24小时测量的最小探测浓度降低至1.8 mBq。

在核素核查数据分析和大气输运反演方面,中国辐射防护研究院一方面对引进的程序进行处理和评估^[73-74],另一方面也开发自己的程序^[75];中国工程物理研究院^[76]、中国人民解放军军事科学院防化研究院^[77]和西北核技术研究所^[78-79]等

单位均开展了大气输运软件研制及应用工作,但总得来说,我国的自主成果不多,研究深度不足,在监测数据解译的深度研究方面进展有限。

2.6 现场视察核素监测技术

现场视察主要针对地下核试验残余放射性的近场泄漏,核素监测技术包括视察区辐射剂量调查、航空 γ 放射性测量、地表车载机动放射性测量、环境样品(包括固体、液体和气体)采样分析以及爆炸残余放射性物质钻探取样分析等。针对现场核素监测技术,我国在 ^{37}Ar 的取样和活度测量、氙的分离纯化和现场测量、航空放射性测量等技术方面也取得了重要成果^[80-86]。

西北核技术研究所研制了一种车载 NaI(Tl) γ 谱仪测量系统,以 ^{40}K 的1461 keV能峰为稳定参考峰实时校准峰位,用抽样率转换方法进行多能谱合成,并采用基于噪声调整的奇异值分解法(NASVD)实现能谱降噪、本底剥离与放射性异常甄别,能够快速甄别地面及空中的人工放射性异常^[87];建立了一套满足现场视察要求的取样-分离-测量的氙监测系统 XESPM2,采用多级分子筛除杂-碳分子筛分离氙氪-HPGe γ 谱仪测量的方案,氙去污因子为 $(2.3\sim 40)\times 10^7$, ^{133}Xe 探测限为 $0.73\sim 1.6\text{ mBq}/\text{m}^3$ ^[88]。中国工程物理研究院曾对地下核爆泄漏气体中的放射性核素 ^{37}Ar 进行监测分析,建立了初步的样品分离纯化装置^[89],改进后的移动式 ^{37}Ar 快速探测系统(MARDS)采用分子筛低温分离 Ar,电子能谱法测量,反符合和铅屏蔽降低本底,系统的最低探测活度浓度约为 $1\text{ Bq}/\text{m}^3$ ^[90],是国际上唯一满足现场应用要求的系统。以上两种现场核素取样测量技术均达到

国际先进水平,相应设备通过了 CTBTO 组织的现场视察考核。

3 禁核试核素核查技术发展展望

经过 20 年的发展,我国禁核试核素监测技术取得了长足进步,气溶胶分离、Xe 的吸附行为、极弱放射性测量以及设备工程化等方面的技术水平均达到国际先进,并在我国核环境监测和核应急监测中得到应用:为应对我国边境附近的朝鲜核试验,多个部门利用核素核查技术成果进行了多个地点的大气放射性监测,为我国公众辐射防护提供了重要数据,为突发核事件的环境安全评估提供了较高精度的本底数据^[91-92];在日本福岛核事故后,西北核技术研究所应用建立的取样测量技术在西安地区进行了长达 2 个月的监测,发现 2011 年 3 月 25 日和 4 月 5 日有两次放射性核素浓度峰值,指示了核电站的两次主要泄漏,且此后没有新的明显泄漏(见图 4)^[93];甘肃省疾病预防控制中心利用兰州台站启动了大气颗粒物放射性的监测,从 2011 年 3 月 26 日至 5 月 2 日检测到多种人工放射性核素, ^{137}Cs 的浓度比事故前高 1 个量级^[94]。

为进一步提高核素核查监测的灵敏度和机动性,提高数据综合分析能力,需要加强以下方面的技术研究:

1) 突发事件释放的放射性物质传输扩散方向完全不可控,随机性高,固定点监测获得有效数据的几率很小,因此需要研究适应于车载、机载和船载等机动平台的取样技术和设备,重点解决高湿、高盐和低温等复杂环境对气溶胶清除、Xe 吸

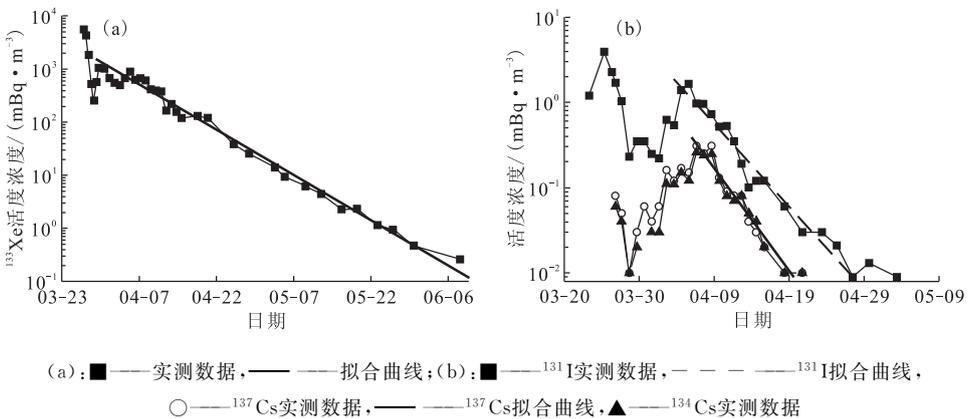


图 4 日本福岛核事故后西安地区监测的大气中 ^{133}Xe (a)和气溶胶中 ^{131}I 、 ^{134}Cs 和 ^{137}Cs (b)的活度浓度变化^[93]

Fig. 4 Activity concentration temporal profiles of ^{133}Xe (a) and ^{131}I , ^{134}Cs ,

^{137}Cs (b) in air at Xi'an, China after Fukushima accident^[93]

附解吸的效率和速率、极弱放射性在线测量等技术难题,并开展适应不同环境的取样技术路线和工艺设计研究^[95-96]。

2) 在释放量很小的情况下,台站远程有效监测气载放射性核素的途径是进一步增大取样量和降低测量系统的探测限。北京核素实验室已经发展了 5 000 m³/h 的气溶胶取样器,进一步提高取样流量必须创新取样原理,发展滤材基体剥离方法或探索无滤材的气溶胶取样技术,开发新型大容量、快动力学的大气氙取样专用吸附材料,提高取样和分离纯化的效率与速度;另一方面发展更低本底、更高灵敏度的放射性测量系统,对长寿命核素可探索先进的质谱分析技术的应用。

3) 加强监测数据的综合分析和解译方法研究,提高源项反演的科学性和准确性。一方面持续开展各个台站和地区的本底数据积累,研究小样本概率统计方法;另一方面,探索新的大气输运方法和软件的开发,研究反演计算的参数敏感度分析和不确定度评估方法,并发展核素核查与其他核查技术的交叉融合。

参考文献:

- [1] 徐雪峰,刘恭梁.核禁试中放射性核素监测技术[R]//中国核科学技术进展报告(第三卷):核技术工业应用分卷.哈尔滨:中国核学会,2013:66-72.
- [2] 武山,刘龙波,张昌云,等.大气中放射性核素监测技术研究[C]//北京国际环境技术研讨会会议文集.北京:中国环境科学学会,2013:15-21.
- [3] 张利兴.禁核试核查中放射性惰性气体的监测[J].核技术,2004,27(10):771-778.
- [4] 张利兴,朱凤蓉.核试验放射性核素监测核查技术[M].北京:国防工业出版社,2006:8-9.
- [5] Fischer U D, Fenzel E, Kolb W. High volume air samplers; a valuable tool to determine radionuclide concentrations[J]. Strahlenschutz Praxis-Koeln, 1996, 2(4): 83-87.
- [6] Miley H S, Bowyer S M, Hubbard C W, et al. A description of the DOE radionuclide aerosol sampler/analyzer for the Comprehensive Test Ban Treaty[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1998, 235(1): 83-87.
- [7] Toivonen H, Honkama T. Automated high-volume aerosol sampling station for environmental radiation monitoring: STUK-A153[R]. Helsinki: Radiation and Nuclear Safety Authority of Finland, 1998.
- [8] Zhang W H, Bean M, Benotto M, et al. Development of a new aerosol monitoring system and its application in Fukushima nuclear accident related aerosol radioactivity measurement at the CTBT radionuclide station in Sidney of Canada[J]. J Environ Radioact, 2011, 102: 1065-1069.
- [9] Mysiek-Laurikainen B, Matul M, Mikołajewski S, et al. Air aerosol sampling station AZA-1000 at Polish Polar Station in Hornsund, Spitsbergen[J]. Nukleonika, 2006, 51(2): 137-140.
- [10] Irshad H, Su W C, Cheng Y S, et al. Testing of high-volume sampler inlets for the sampling of atmospheric radionuclides[J]. Health Phys, 2006, 91(3): 188-199.
- [11] Cheng Y S, Irshad H, McFarland A R, et al. An aerosol wind tunnel for evaluation of massive-flow air samplers and calibration of Snow White sampler[J]. Aerosol Sci Tech, 2004, 38: 1099-1107.
- [12] Bowyer S M, Gerlach D C, Miley H S, et al. Radiochemistry of the 3M SBMF-40VF filter media used by the DOE CTBT radionuclide aerosol sampler/analyzer(RASA)[J]. J Radioanal Nucl Chem, 1998, 235(1-2): 121-124.
- [13] Bowyer T W, Schlosser C, Abel K H, et al. Detection and analysis of xenon isotopes for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty International Monitoring System[J]. J Environ Radioact, 2002, 59: 139-151.
- [14] Prelovskii V V, Kazarinov N M, Donets A Y, et al. The ARIX-03F mobile semiautomatic facility for measuring low concentrations of radioactive xenon isotopes in air and subsoil gas[J]. Instruments and Experimental Techniques, 2007, 50(3): 393-397.
- [15] Ringbom A, Larsson T, Axelsson A, et al. SAUNA: a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res, Sect A, 2003, 508: 542-553.
- [16] Fontaine J P, Pointurier F, Blanchard X, et al. Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring[J]. J Environ Radioact, 2004, 72: 129-135.
- [17] le Petit G, Cagniant A, Gross P, et al. SPALAXTM new generation: a sensitive and selective noble gas system for nuclear explosion monitoring[J]. Appl Radiat Isotopes, 2015, 103: 102-114.
- [18] Topin S, Greau C, Deliere L, et al. SPALAX new generation: new process design for a more efficient xenon production system for the CTBT noble gas

- network[J]. *J Environ Radioact*, 2015, 149: 43-50.
- [19] Saey P R J, de Geer L E. Notes on radioxenon measurements for CTBT verification purposes[J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2005, 63: 765-773.
- [20] Auer M, Axelsson A, Blanchard X, et al. Inter-comparison experiments of systems for the measurement of xenon radionuclides in the atmosphere[J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2004, 60: 863-877.
- [21] Stocki T J, Blanchard X, D'Amours R, et al. Automated radioxenon monitoring for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty in two distinctive locations: Ottawa and Tahiti[J]. *J Environ Radioact*, 2005, 80: 305-326.
- [22] Zhang W H, Mekarski P, Ungar K. Beta-gamma coincidence counting efficiency and energy resolution optimization by Geant4 Monte Carlo simulations for a phoswich well detector[J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2010, 68: 2377-2381.
- [23] Zhang W H, Mekarski P, Lam J, et al. Geant4 Monte Carlo radioxenon beta-gamma coincidence efficiency simulation for a phoswich detector[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2010, 285: 475-482.
- [24] Mekarski P, Zhang W, Ungar K, et al. Monte Carlo simulation of a PhosWatch detector using Geant4 for xenon isotope beta-gamma coincidence spectrum profile and detection efficiency calculations[J]. *Appl Radiat Isotopes*, 2009, 67: 1957-1963.
- [25] Farsoni Abi T, Alemayehu B, Alhawsawi A, et al. A phoswich detector with compton suppression capability for radioxenon measurements[J]. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 2013, 60(1): 456-464.
- [26] Wotawa G, de Geer L E, Denier P, et al. Atmospheric transport modeling in support of CTBT verification: overview and basic concepts[J]. *Atmos Environ*, 2003, 37: 2529-2537.
- [27] Brandt J, Bastrup-Birk A, Christensen J H, et al. Testing the importance of accurate meteorological input fields and parameterizations in atmospheric transport modelling using dream-validation against ETEX-1[J]. *Atmos Environ*, 1998, 32(24): 4167-4186.
- [28] Baklanov A, Sorensen J H. Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling[J]. *Phys Chem Earth (B)*, 2001, 26(10): 787-799.
- [29] Plastino W, Plenteda R, Azzari G, et al. Radioxenon time series and meteorological pattern analysis for CTBT event categorization[J]. *Pure Appl Geophys*, 2010, 167: 559-573.
- [30] Zähringer M, Kirchner G. Nuclide ratios and source identification from high-resolution gamma-ray spectra with Bayesian decision methods[J]. *Nucl Instrum Methods Phys Res, Sect A*, 2008, 594: 400-406.
- [31] Saey P R J. The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background[J]. *J Environ Radioact*, 2009, 100: 396-406.
- [32] Wotawa G, Becker A, Kalinowski M, et al. Computation and analysis of the global distribution of the radioxenon isotope ^{133}Xe based on emissions from nuclear power plants and radioisotope production facilities and its relevance for the verification of the Nuclear-Test-Ban Treaty[J]. *Pure Appl Geophys*, 2010, 167: 541-557.
- [33] Kalinowski M B, Pistner C. Isotopic signature of atmospheric xenon released from light water reactors[J]. *J Environ Radioact*, 2006, 88: 215-235.
- [34] Kalinowski M B, Axelsson A, Bean M, et al. Discrimination of nuclear explosions against civilian sources based on atmospheric xenon isotopic activity ratios[J]. *Pure Appl Geophys*, 2010, 167: 517-539.
- [35] Saey P R J, Schlosser C, Achim P, et al. Environmental radioxenon levels in Europe: a comprehensive overview[J]. *Pure Appl Geophys*, 2010, 167: 499-515.
- [36] Wu S, Liu L, Zhang C, et al. Study on sampling technique of atmospheric radionuclide[J]. *Meteorological and Environmental Research*, 2014, 5(6): 1-3, 8.
- [37] 吴艳敏,王旭辉,刘龙波,等.高流速下气溶胶取样滤材的性能测试[J].*辐射防护*,2009,29(1):13-17.
- [38] Werzi R. The operational status of the IMS radionuclide particulate network[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2009, 282: 749-754.
- [39] Liu L, Tang H, Liu S, et al. A method lessening filter clogging on atmospheric aerosol samplers at IMS[C]. *International Scientific Studies Conference (ISS09)*. Vienna, Austria, 2009.
- [40] 刘龙波,唐寒冰,吴艳敏,等.分体式大气气溶胶采样器的研制及应用[J].*辐射防护*,2015,35(S1):76-79.
- [41] 刘龙波,唐寒冰,吴艳敏.一种气溶胶采样器流量在

- 线校准装置:中国,CN205861169U[P]. 2017-01-04.
- [42] 常印忠,王世联,刘蜀疆,等. 大流量大气颗粒物采样器质量控制技术[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(2):287-289.
- [43] 刘龙波,王旭辉,刘蜀疆,等. PMS-500 可吸入颗粒物采样器的研制和性能测试[J]. 辐射防护, 2006, 26(15):257-283.
- [44] 常印忠,刘龙波,王世联,等. PMS-800 大流量大气颗粒物采样器的研制[J]. 辐射防护, 2011, 31(1):39-45.
- [45] 武山,张昌云,陈莉云,等. 多级吸附-脱附法浓缩纯化氙技术研究[J]. 原子能科学技术, 2014, 48(增刊):72-75.
- [46] 冯淑娟,周崇阳,周国庆,等. 氙在活性炭和碳分子筛上的动态吸附性能[J]. 核化学与放射化学, 2010, 32(5):274-279.
- [47] 武山,张昌云,陈莉云,等. 一种大气中氙的低温富集取样方法和装置:中国, CN102508285B[P]. 2014-12-03.
- [48] 陈莉云,张昌云,武山,等. CO₂ 对活性炭捕集氙工程的影响[J]. 核化学与放射化学, 2015, 37(1):61-64.
- [49] 武山,陈占营,张昌云,等. 一种大气中氙的常温富集取样方法:中国, CN102359895B[P]. 2014-08-06.
- [50] 周国庆,吴王锁,周崇阳,等. 聚酰亚胺中空纤维膜对 CO₂、O₂、H₂O 和 Xe 的分离性能[J]. 核化学与放射化学, 2017, 39(2):158-163.
- [51] 陈莉云. 微量氙低温分凝条件优化研究[D]. 西安:西北核技术研究所, 2006.
- [52] 常印忠,王旭辉,王军,等. 大气气溶胶样品中放射性核素分析(I):气溶胶样品中放射性 γ 能谱分析方法[J]. 核技术, 2004, 27(6):430-434.
- [53] 张佳媚,师全林,包敏,等. 气溶胶滤材样品 γ 探测效率与测量源尺寸的关系[J]. 核电子学与探测技术, 2003, 23(3):212-216.
- [54] 张新军,王世联,王军,等. 大气颗粒物滤材样品探测效率的模拟计算[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(增刊):303-306.
- [55] 张新军,王世联,李奇,等. CTBT 气溶胶 γ 能谱的能量漂移校正方法[J]. 原子能科学技术, 2018, 52(1):146-150.
- [56] 樊元庆,王军,王世联,等. 反康普顿 γ 谱仪在CTBT滤材样品国际比对中的应用[J]. 核电子学与探测技术, 2008, 28(3):490-495.
- [57] Li D M, Zhang L X, Wang X H, et al. Ashing and microwave digestion of aerosol samples with a polypropylene fibrous filter matrix[J]. Anal Chim Acta, 2003, 482: 129-135.
- [58] Li D M, Zhang L X, Wang X H, et al. Microwave-assisted extraction of metal elements from glass fibrous filters for aerosol sampling[J]. J Radioanal Nucl Chem, 2003, 258: 195-197.
- [59] 唐寒冰,刘龙波,刘蜀疆,等. 聚丙烯纤维滤材气溶胶样品的浸取-灰化-消解前处理方法[J]. 核化学与放射化学, 2012, 34(2):114-118.
- [60] 樊元庆,王世联,李奇,等. 2010 年度 CTBT 放射性核素实验室滤材样品国际比对[J]. 原子能科学技术, 2012, 46(增刊):708-712.
- [61] 李奇,王世联,樊元庆,等. 2012 年度 CTBT 放射性核素实验室滤材样品能力验证[J]. 核技术, 2015, 38(3):030502-1-6.
- [62] 李奇,王世联,樊元庆,等. 内充气正比计数管系统绝对测量¹³⁵Xe活度[J]. 核电子学与探测技术, 2008, 28(3):486-490.
- [63] 王世联,李奇,王军,等. 井式 HPGe 探测器测量放射性氙活度方法研究[J]. 核技术, 2009, 32(10):760-763.
- [64] 贾怀茂,王世联,李奇,等. 惰性气体 β - γ 符合测量系统探测器能量及分辨率刻度[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(10):1233-1237.
- [65] 贾怀茂,张新军,李奇,等. β - γ 符合效率外推法绝对测量¹³³Xe活度[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(2):193-196.
- [66] 贾怀茂,张新军,李奇,等. 符合效率外推法绝对测量^{131m}Xe活度[J]. 原子能科学技术, 2016, 50(12):2245-2248.
- [67] 贾怀茂,王世联,王军,等. β - γ 符合测量放射性氙同位素记忆效应研究[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(2):201-205.
- [68] 杨文静,殷经鹏,黄雄亮,等. 放射性氙同位素 β - γ 符合能谱分析方法[J]. 核电子学与探测技术, 2012, 32(4):453-457.
- [69] 张新军,王世联,樊元庆,等. SAUNA 系统惰性气体氙监测数据的统计规律研究[J]. 核电子学与探测技术, 2011, 31(10):1120-1125.
- [70] 张新军,王世联,贾怀茂,等. 惰性气体氙 β - γ 符合能谱分析软件的研制[J]. 原子能科学技术, 2012, 46(增刊):572-576.
- [71] 李奇,王世联,樊元庆,等. 反宇宙射线 γ 谱仪系统测量氙同位素活度[J]. 原子能科学技术, 2017, 51(2):330-337.
- [72] Xie F, Jiang W G, Li X S, et al. Single channel beta-gamma coincidence system for radioxenon measurement using well-type HPGe and plastic scintillator detectors[J]. Nucl Instrum Methods Phys Res, Sect A, 2013, 729: 900-904.
- [73] 姚仁太,郝宏伟,胡二邦,等. RODOS 系统中两种大

- 气弥散模型链的比较[J]. 辐射防护, 2003, 23(3): 146-155.
- [74] 崔慧玲. CALPUFF 模式用于放射性核素不同尺度的迁移扩散研究[D]. 太原:太原理工大学, 2012.
- [75] 姚仁太, 徐向军, 郝宏伟, 等. 远东地区核风险厂址释放的气载放射性污染物长距离迁移的模拟[J]. 辐射防护, 2005, 25(4): 193-205.
- [76] 李凯波, 刘成安, 田东风. 放射性物质在大气中运输的方法分析及算例计算[J]. 高技术通讯, 2002(10): 74-78.
- [77] 郑毅, 王自发, 黄美元. 一个大气层核试验放射性碎片长距离输送的三维欧拉模型[J]. 气候与环境研究, 2000, 5(2): 118-128.
- [78] 邝飞虹, 王世联, 刘龙波, 等. 日本福岛核电站事故泄漏放射性核素漂移扩散状况分析[J]. 原子能科学技术, 2012, 46(12): 1533-1536.
- [79] 李华, 邓继勇, 王旭辉, 等. 用高斯模型计算大气中放射性核素云团的扩散[J]. 辐射防护, 2004, 24(2): 92-99.
- [80] 曹琳, 亢武, 向永春, 等. ^{37}Ar 活度比对测量[J]. 核技术, 2009, 32(1): 14-18.
- [81] 王茜, 彭述明, 郝樊华, 等. 放射性氙分离纯化技术[J]. 核化学与放射化学, 2011, 33(4): 230-235.
- [82] 王茜, 张丽, 郝樊华, 等. 大气中放射性氙的分离纯化系统研制[J]. 中国测试, 2013, 39(5): 76-79.
- [83] 罗飞, 龚建, 向永春, 等. 放射性氙叠层闪烁探测器的设计与初步实验[J]. 原子能科学技术, 2015, 49(3): 552-559.
- [84] 田自宁, 欧阳晓平, 曾鸣, 等. 积分中值定理在放射性氙样品 γ 谱效率刻度技术中的应用[J]. 物理学报, 2013, 62(16): 162902-1-6.
- [85] 龙斌, 吴睿, 成智威, 等. 放射性氙测量中的天然源 γ 谱仪校准技术[J]. 原子能科学技术, 2014, 48(1): 137-141.
- [86] 骆遥, 米耀辉. 航空伽玛能谱测量系统标定技术与标定程序[J]. 核电子学与探测技术, 2014, 34(5): 590-597.
- [87] 冯天成, 雷卫国, 刘俊, 等. 一套用于现场视察的车载 $\text{NaI(Tl)}\gamma$ 谱仪系统的研制[J]. 核电子学与探测技术, 2013, 33(3): 296-271.
- [88] Zhou C, Zhou G, Feng S, et al. The determination of trace amounts of natural ^{133}Xe in gas under high radon activity concentration levels[J]. J Environ Radioact, 2013, 122: 9-15.
- [89] 段荣良, 刘素萍, 杨晓波, 等. ^{37}Ar 用于视察地下核试验的尝试[J]. 原子能科学技术, 2000, 34(3): 270-273.
- [90] 向永春, 龚建, 李伟, 等. ^{37}Ar 测量系统的研制与能谱测量方法研究[J]. 物理学报, 2008, 57(2): 784-789.
- [91] 王文海, 李慧娟, 娄云, 等. 大气放射性气溶胶连续监测最小可探测活度浓度研究[J]. 核电子学与探测技术, 2010, 30(11): 1413-1417.
- [92] 樊元庆, 王世联, 李慧娟, 等. 北京地区大气中 ^7Be 、 ^{137}Cs 和 ^{131}I 活度浓度分布规律初步研究[J]. 原子能科学技术, 2013, 47(2): 189-192.
- [93] 刘龙波, 武山, 曹军骥, 等. 福岛核事故泄漏的大气放射性核素监测及其对西安地区的影响[J]. 科学通报, 2013, 58(4): 372-378.
- [94] 邬家龙, 孙卫, 王赟, 等. 日本福岛核事故对兰州地区所致放射性污染的监测与分析[J]. 核电子学与探测技术, 2013, 33(5): 603-606.
- [95] 王茜, 卞直上, 王红侠, 等. Xe 核查空中取样器研究[J]. 中国核科技报告, 2008(1): 156-162.
- [96] 刘龙波, 吴艳敏, 武山, 等. 不可压缩流条件下冲压过滤装置的取样流量[J]. 现代应用物理, 2018(2): 21003-1-6.