

核视察的关键工具

环境取样进展加强保障

DAVID L. DONOHUE

对于国际社会来说,1991年夏是科学发现的一个转折点,它为更强有力的核保障创造了条件。IAEA 和联合国的视察员们彻底搜查了伊拉克核设施的碎石瓦砾,以寻找伊拉克制造原子弹秘密计划的证据。制造原子弹是伊拉克批准《不扩散核武器条约》(NPT)所显然禁止的事情。这年夏天视察员们发现了铀钚之类放射性元素的蛛丝马迹,使他们得以拼合该计划的细节、规模、时间表和可能的目的。

国际核保障发展于是揭开新的篇章。一些国家曾于1995年通过加强了保障体系的措施,为视察员提供授权和装备,以确保不漏掉任何未申报的核活动。

支持这一增强能力的科学——后来被命名为“保障环境取样”(ESS)——依靠高度灵敏的和有选择性的分析测量来探测在已知的或可疑的核设施“环境”收集的核材料的踪迹。这一科学应用证明,掌握一套先进的分析和

测量技术对于解决重大的国际问题是非常重要的。

IAEA 视察员在 20 世纪 90 年代初的伊拉克视察中曾使用一些方法。自那以来,IAEA 在各国和在国际的专家的协作下,为在(NPT 型)全面保障协定所涵盖的所有国家中建立和实施保障环境取样做了大量工作。2002 年 11 月底根据安理会的增强授权恢复现场视察的 IAEA 伊拉克行动小组的视察员也将运用保障环境取样的工具(见第 18 页方框)。

为获得这种能力,必须同时做大量的工作:开发和确认取样方法;提供经检定的清洁取样材料;为在无交叉污染风险条件下处理样品建立一个 100 级清洁设施;协调具有高度专业化测量能力的分析实验室网络(NW-AL);以及应用一个无懈可击

的质量保证系统来消除对有关结果可信性的怀疑。

现在,IAEA 视察员每年从全世界的设施提取数百个环境样品。IAEA 及其分析实验室网络的实验室对这些样品进行数以千计的测量。然后利用旨在寻找重大差异的复杂计算机程序和统计方法将测量结果与被视察设施的申报相比较。

尽管用于分析这些样品的方法对于所涉元素或同位素的灵敏性和选择性来说是最初的,但仍在不断地开发更新的、更强有力的方法。从收集的少量材料,例如,视察员在一块 10×10 厘米的棉布上擦拭的一个样品中,就可以获得确实令人吃惊的信息量。可以获得的结果证明了这些方法的威力。

保障环境取样的关键工具 IAEA在保障环境取样

Donohue 先生是保障清洁实验室主任,该实验室是设在奥地利塞伯斯多夫的 IAEA 保障分析实验室(SAL)的一部分。本文根据 2002 年 1 月发表在《分析化学》杂志(Vol. 74, No/1)的一篇文章改编而成。这篇论文是在保障分析实验室、清洁实验室和保障司的同事帮助下撰写的。

1991年夏的发现

十多年前,IAEA 视察员在伊拉克揭露了秘密核武器计划。这一发现靠的是 IAEA 分析核和放射性物质样品的技术和能力,包括环境监测技术。视察员提取设施内部和附近的材料的样品,以及聚集在设备表面的灰尘的擦拭样品。

■ 分析人员令人吃惊地发现了与任何已知的申报材料不相配的铀浓缩证据,具体地说,同位素上被改变的铀。他们还发现只能用电磁分离技术生产的极端贫铀,而据了解这种技术在世界其他地方已不再使用。他们通过进一步的视察和分析,揭露了伊拉克浓缩计划。

■ 对其他样品的分析还揭示,伊拉克曾进行未申报的铀辐照以生产少量的钚。另外,3 个不同矿冶机构生产的铀被发现,包括作为一家伊拉克磷肥厂副产品的本国生产。

■ 从 1991 年到 1998 年利用环境监测技术核实了伊拉克核计划最终申报的准确性。1998 年视察中止时,IAEA 得以描绘伊拉克核计划,并使之无效。



伊拉克的经验教训,促使 IAEA 加强保障体系以及环境取样与分析的更广泛使用。这些技术是在 1996 年作为根据全面保障协定和与这些协定有关的更广泛的附加议定书可以适用的一种视察措施引入的。附加议定书使机构视察员能够核实申报和未申报的核材料和活动。

欲了解更全面的说明,请参见《IAEA 通报》第 34 卷,1992 年第 1 期中 David Donohue 和 R. Zeisler 撰写的“幕后工作:伊拉克核视察样品的科学分析”。亦见前美国技术评估局的 1995 年核保障报告第 3 章“流出物探测技术”。

方面的能力在于保障清洁实验室,该实验室是设在奥地利维也纳附近的保障分析实验室的一部分。这两个实验室使用以下分析技术筛选和测量环境样品:

高分辨率 γ 谱测定法 (HRGS) 在塞伯斯多夫先收到样品时用来对样品进行初步辐射测量筛选。进行筛选时可以不从袋子或瓶子中取出,从而减少交叉污染的机会。

放射性同位素或 X 射线

管激发 X 射线荧光 (XRF) 光谱测定法 可以探测环境样品中的亚纳克量的铀。利用这个信息可就样品在清洁实验室的安全操作做出决定,以及选择稍后应用的详细分析方法。

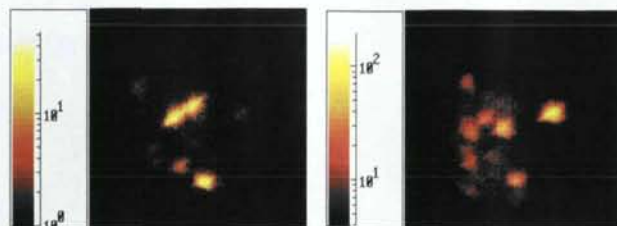
将电子激发 X 射线荧光光谱测定法与扫描电子显微镜 (SEM/XRF) 联用 可以测量从环境样品中取出的微米大小颗粒的元素组成。特别是,铀/钚和钼/钚的比率在从手套箱或热室内提取的

样品中至关重要。

利用离子计数探测技术的热电离质谱测定法 (TIMS) 可在样品溶解后用来测定亚纳克量的铀或钚 (所谓“全分析”)。全分析可以给出样品的平均组成,不管所存在的元素的物理形态如何,还可以补充利用 SEM/XRF 等“颗粒分析”方法获得的信息。

次级离子质谱测定法 (SIMS) 可用来测量微米大小颗粒的同位素组成。同位

铀同位素颗粒分析



IAEA 分析人员利用次级离子质谱测定法获得的铀-235和铀-238 离子图像。图像展示的是来自直径为 150 微米面积的离子。每个亮点是一个颗粒,通过利用数学方法比较这两个图像,可以容易地计算出探测到的所有颗粒的浓缩度。(来源:IAEA)

素铀-235 和铀-238 是最重要的,因为它们可以揭示铀的浓缩度,说明是计划在反应堆燃料中使用还是用于核炸药(见本页图)。

丰富的经验 IAEA 在收集大多数类型的环境样品方面获得了经验:土壤、沉积物、水、植物和生物群。然而,这些样品类型的提取通常离已知的或可疑的设施有一定的距离,因此稀释效应可能较大。

由于 IAEA 视察员可以进入核场址的实际建筑物,因此决定集中力量提取和分析表面擦拭样品。擦拭样品有几个优点:小而简洁(相比之下土壤样品需要 1 公斤,水样需要 1 升);便于在每个

场所提取多个同样的子样品;擦拭介质可以选定本底低的有关元素;并且它们非常适合从建筑物内的水平表面和设备的粉尘颗粒取样。

已经研制出两种擦拭取样盒。每个取样盒都包含一名经培训的视察员在一个场所提取同样的擦拭样品所需的供应品——手套、袋子、瓶子、数据记录表(背面有取样说明)、钢笔,等等。清洁实验室在有充分质量保证措施的 100 级清洁区制造这些取样盒,以证明擦拭样品在使用以前不被锕系元素或放射性核素污染。不用的取样盒和最终样品都始终在视察员的控制之下,以防止疏忽引起的交叉污染或被人篡改。

虽然保障分析实验室和清洁实验室均配备完善,能够进行环境样品的详细分析,但仍有必要在 IAEA 成员国建立一个实验室网络,以便能满足三个基本需要:应用 IAEA 无法建立的分析方法(例如裂变径迹分析或加速器质谱测定法),为 IAEA 实验室应对峰样品负荷提供后备能力,以及为提高对结果准确度的信心对同样的样品提供平行测量。

清洁实验室还制造空白和“钉牢的”质量控制样品,这些样品连同视察样品一同“封闭”寄出,来监控虚假的正面或负面结果的发生。最后,保障分析实验室和清洁实验室通过获得 ISO-9002/1994 质量保证标准证书,证明对质量的郑重承诺。

分析的例子 环境监测的对象是带有同位素浓缩或中子辐照等人为过程的惟一“签字”的元素和同位素。分析人员以类似于法医实验室研究罪证的方式,寻找那些明确指向一个特殊情景的模式——开始材料是什么,转换这些材料的工艺过程是什么?以及这是什么时候发生的?

当结果与设施的申报单一致时,它们可以提供没有发生过滥用的额外保证。当发现有可能的差异时,则采取行动加以证实,其办法包

先进工具支持在伊拉克的视察员

IAEA 核视察员掌握了各种高科技工具用于在伊拉克的武器视察。视察中断 4 年后于 2002 年 11 月得到恢复。自 1998 年以来,在技术上已有重大的改善。

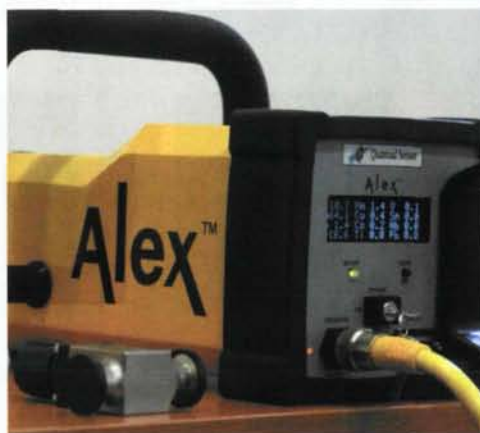
IAEA 视察员的主要任务之一将是,在相当于法国大小的伊拉克撒下网一样的探测系统。它的网孔必须不使重要证据从中滑过。这种方法被称作广泛搜索。将在一个特定网内选择一些目标区进行更严密的视察和实况调查。

视察员在收集证据时,将使用大量技术,例如手提式辐射探测仪和测量仪表。一些小的仪器被用来寻找已知与武器制造有关的核和放射性物质。被称作多道分析仪的其他技术可以鉴别视察员收集供实验室更全面分析的样品中的特定放射性元素。

样品分析可以决定“核指纹”,揭示处理核材料的场所,尤其是与铀转化、制造和浓缩有关的场所的过去和现在活动的指标。然而,判别这样的场合需要专门知识和合适的设备——例如不同同位素的指纹可以重叠,一种元素的一个丰富的成份可以掩盖一个稀少的成份。

得出结论可以说是错综复杂的,经常需要多尺度分析方法。IAEA 通过设在奥地利的保障分析实验室,使自己的专家和设施有了样品测量和分析经验,这些样品包括数以百计的从 20 世纪 90 年代伊拉克视察中获得的样品。IAEA 后来还完全运行了一个“清洁实验室”,该实验室装备有高灵敏仪器,包括电子显微镜和质谱仪。专家们可以精确地测量甚至微小的纳克(十亿分之一克)颗粒和探测在已知的或可疑的核设施的环境中收集的核材料的踪迹。

多道分析仪(MCA) IAEA 视察员使用的这些标准的和手提式的工具可以记录



放射源释放的能量。多道分析仪使用软件读取能量输出模式,将其与一个图形匹配,显示结果。便携式分析仪可以专门探测放射性同位素中的 γ 辐射和中子的存在,从而增强对钚的探测。钚是在反应堆中通过辐照铀-238 制造的。和一般的辐射探测器不同,该装置可用于寻找和定位未知辐射源,测定相对剂量率和从同位素方面鉴别源。结果显示在数字屏幕上。例如铀和钚的同位素能很好地显示出核燃料是否已经被后处理。另一个类型,手提式 γ 能谱仪,可以专门测量铀和它是否已经被浓缩。在实验室、设施或其他工业环境中,它都能完成准确和迅速的铀核测量。某些同位素的比率可以给出重要信息——例如使用过的浓缩技术类型。

合金探测器 面对充满金属物体的工场,视察员可以使用另一个手提式装置,通称 ALEX,商标“合金专家”的略称。核活动经常使用外来钢和诸如锆等稀有元素。ALEX 可以迅速进行现场识别,在发现重要情况时,可以有机会加强视察。例如 UF_6 (六

照片:核视察员在伊拉克使用各种工具。(来源:Calma/IAEA)

氟化铀)是铀浓缩中使用的一种腐蚀性很强的材料。ALEX 会迅速识别生产器械中所需的特种合金。在技术上,该装置是一种 X 射线荧光光谱仪。它产生 X 射线穿透被检查的材料。ALEX 可以将合金中的元素对 X 射线的响应模式与其软件中的信息匹配,并且显示结果。

环境监测仪器 监测水、空气和植物将构成在伊拉克搜索网的另一些部分。核武器研发计划尽管尽力隐藏,但仍很可能在自然中留下指纹。将利用一个系统对整个伊拉克进行水监测,用一个滤层对原水进行 1 小时的过滤,相当于测试大量的水。对滤层进行实验室分析,就能够非常准确地发现水中材料的蛛丝马迹。在伊拉克不同地点可以建立空气取样站,分析植物样品以测定氙,即氢的一种同位素。例如在水道或空气中发现氙,则强烈暗示进行过反应堆操作。

数字视频监视系统 可以使用防篡改和数字视频系统监视和监测一些设施。它们可以包括可能进行双重目的活动——例如可能利用机床制造核计划部件——的工厂。数据输入到高效计算机系统中,供视察员用来评价和分析图像和相关资料。

卫星图像 为了监测,利用商用卫星获得图像可以帮助视察员跟踪活动。新一代全球卫星定位(GPS)装置将使视察员更容易地监视大的国家。

视察数据库 除了整套辐射探测装置及其他监控设备外,视察员依靠的一个关键工具是行动小组的秘密数据库。它包含从过去视察、伊拉克申报、背叛者揭发、情报资料及其他多个来源获得的有关伊拉克核相关活动的全面和极其详细的信息。例如,视察员可以发现装置已经从室中的一边挪到另一边,并且知道为什么。

成功的许多关键 广泛的工具为视察



员增加自己的知识和经验提供了一个强大的和附加的资源包。

然而,在伊拉克的视察最终取决于视察员经验和工具箱以外的因素。正如 IAEA 总干事巴拉迪所强调的,成功将取决于 5 个相互关联的前题:(1)立即和不受限制地进入伊拉克全部的场所和场址,并且充分使用安理会提供给视察组织的权限;(2)及时获得所有信息来源,包括国家可用的一切信息;(3)安理会在视察全过程提供统一和全面的支持;(4)保持视察过程的完整性和公正性,不受外来干扰;和(5)伊拉克主动合作,持续证明它愿意保持透明,帮助视察组织完全地执行他们的任务。

本报告最初发表于 IAEA 的“WorldAtom”(www.iaea.org)网站。欲了解 IAEA 在伊拉克视察新情况及其他主题,请访问该网站。

照片:对利用商用卫星和数字监控系统获得的图像进行分析,是 IAEA 视察员在伊拉克活动的一部分。
(来源:Calma/IAEA)

括,例如由报告实验室复核结果,分析存档样品或提取新样品。数据评价人员必须非常了解分析方法的局限性,并且必须不断地注意由污染、干扰或错误所引起的误导数据。

裂变和活化产物 擦拭样品可以在几年前操作过反应堆乏燃料的热室内提取。预期利用 HRGS 方法测量的裂变和活化产物的比率将说明在这一期间的放射性衰变的效应。主要考虑的是半衰期从不到 1 年到近 9 年不等的放射性核素,例如铯-144 和锶-154。擦拭样品测量前一般未经处理,测量时间一般长达 24 小时。每个同位素的结果以与铯-137 相比的活度比率来表示。

含钚颗粒 在为颗粒的扫描电子显微镜观察而进行样品制备时,要用黏性碳盘触及擦拭样品表面。用导电粘剂将颗粒从擦拭样品表面粘下来,并且固定住。在将碳盘放入电子显微镜后,自动化搜索例行程序便开始启动,寻找与存在重元素有关的颗粒,这些颗粒会发出高反向散射电子信号。

用能量分散 X 射线荧光光谱测定法(EDX)测量经这种方法鉴定的每个颗粒,并将结果进行储存,供分析人员稍后检查。一次自动测量过程一般要用 4—6 小时,覆

盖几平方毫米的样品表面。在对 EDX 数据分类和检查后,分析人员选择若干有意义的颗粒,供利用波长分散 X 射线光谱测定法(WDX)进行更详细测量。这样做可以对每个颗粒中的锕系元素比率,例如铀/钚或镅/钚,进行精密的测量。这些元素在这样一个颗粒中的相对浓度可以给出有关铀燃料辐照历史的信息,并且揭示是否进行过化学分离操作。

对于这样的钚颗粒,分析镅-241 的可能增加,可以估计最后进行钚化学提纯的时间。这种“年龄测定”能力非常有助于对已关闭或退役的设施实施保障,可以探查最近有无化学分离操作。评价这些结果要考虑这一事实,即 1 微米直径颗粒中的钚量只有几皮克(约 10^{10} 原子),而 X 射线荧光光谱分析仪可以探测诸如镅之类的不到毫微微克的少量成份。

颗粒中的铀浓缩度测量

SEM/XRF 的优点是:元素灵敏度高,并且能筛选和测量大量的颗粒。然而,主要的缺点是:SEM/XRF 不能给出铀或钚的同位素情况,而这一点可能起到关键作用。为此,分析人员应用次级离子质谱测定(SIMS)技术,利用显像检测系统产生所关心的每个同位素的空间分解图像。通过将铀-235 的总累积

计数与铀-238 的总累积计数相比较,计算每个颗粒的“浓缩度”;监测其他同位素,以探测可能的分子干扰。

一次覆盖几平方毫米区域的自动测量可能涉及 200 多个视场,包含多达数千个铀颗粒。高浓铀颗粒一旦显示在分析散布图上,就可以很容易地鉴别。然而,分析人员必须考虑测量的不确定性,这主要是由少量同位素(大多数场合下是铀-235)的计数统计误差造成的。

铀和钚的测量 环境擦拭样品中应用的最具挑战性的测量方法之一是所谓的“全分析”。它涉及整个样品的溶解、用分离同位素示踪剂示踪、化学分离,以及铀和钚部分的提纯,供热电离质谱测定法(TIMS)测量。同位素示踪剂是相当纯的,有合格的浓度值。

擦拭样品例如可以在制造反应堆高浓铀燃料元件的设施中提取。一些样品可以明确显示钚的存在。这些样品还可以显示高浓铀的最高浓度,从而暗示高浓铀和钚之间的相互关系。这说明了所使用方法的灵敏性。

服务于全球目的 保障环境取样方法的 5 年多例行实施,已使 IAEA 对所使用的取样和分析方法的价值得出某些结论。尽管保障环境取样方法像其他的分析工具

一样,不是治百病的灵药,但可以给出关键信息。同位素比率是首要的,因为它们可以揭示核材料的历史和浓缩或中子辐照的效应。裂变或活化产物彼此的比率可以成为确定反应堆燃料燃耗和从反应堆中卸出后的时间的一

个有用的方法。一些年龄测定技术也可以用于检查已关闭设施的状况。

应该指出,用于保障环境取样的分析方法可直接应用于其他有某种关系的领域。其中一个领域是,海关官员或警察查获的与非法贩卖

事件有关的核材料的分析,从而迎来一个新的领域——“核法医分析”(见本页方框)。像在伊拉克的国际保障和核视察场合一样,国际社会可以通过应用科学技术解决严重的全球问题而显著受益。 □

核法医学与非法贩卖

指纹和法医分析法一个世纪多以来一直在刑法中起着重要的作用。随着科学技术的进步,调查的方法变得越来越尖端,以致现在专家可以从一根毛发中提取遗传物质。

在相对较新的“核法医学”领域——集中于分析核材料的性质、使用和来源——目前正在应用相似的方法高精度地测定材料特性。正如同对人的指纹一样,可以对核材料进行鉴定、检查和描述。放射性同位素、同位素和质量比、材料年龄、杂质含量、化学形式和物理参数的确定,可以揭示材料的“核指纹”。根据试验结果以及收集的其他证据,就可以准确地追踪蛛丝马迹。为了达到上述目的而开发的分析方法已被用于国际保障以及核法医学中。

在当今不断变化的世界中,IAEA正在和欧盟联合研究委员会的超铀元素研究所一起率先帮助各国建立提高对核走私案例的响应的系统。一个重要的目标是提高准确鉴定和表征查获材料的能力。在已运用尖端技术的实验室进行了很好的研究,从密封蜡、玻璃和纸到残留放射性核素等核材料和非核材料都可以分析。

该领域的国际专家在2002年10月于德国卡尔斯鲁厄举行的IAEA环境监测和核法医学破坏性和非破坏性分析进展国际



会议上研讨了最新的进展。与会者包括各国从事广泛问题研究的实验室科学人员和执法官员,他们讨论了一系列问题:从材料收集、保护和分析到不同国家的法律体系和要求。会议还讨论了IAEA在通力打击核贩卖中的作用,包括帮助分析实验室和就安全处理贩卖案例中查获的样品提出建议。

另外,会议还讨论了核贩卖案件中查获材料起源鉴定技术。一个主要焦点是进一步加强核保安策略和分析实验室之间合作的方法。计划包括为必要的分析工作提供专门的国际支持——本报告最初发表于IAEA“WorldAtom”网站(www.iaea.org)。可访问该网站了解详细信息。

照片:可以分析样品找出其“核指纹”。(来源:IAEA)