

通过惰性气体氙判断核试验信息的方法

伍怀龙[†] 龚建 李伟 王茜 张昌繁 熊宗华 储诚胜 田东风

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

(2013年7月28日收到; 2013年9月2日收到修改稿)

全面禁止核试验条约的达成是防止核武器扩散的重要手段. 如何判断一次核试验的发生是一个关键课题. 研究了基于测量惰性气体氙同位素 ^{133m}Xe , ^{133}Xe , ^{135}Xe 和 ^{131m}Xe 来鉴别核试验和民用反应堆泄漏的方法. 通过分析这些处于复杂衰变链上核素的数量随时间的变化, 寻找核试验与反应堆泄露事件的区别. 对两次朝鲜可疑的事件进行了测量和分析. 为了验证理论计算结果, 设计了一次热中子辐照钚的模拟实验.

关键词: 全面禁止核试验条约核查, 气体裂变产物, 核试验判据, 惰性气体氙核素

PACS: 28.41.Te

DOI: 10.7498/aps.62.242802

1 引言

全面禁止并彻底销毁核武器, 是人类的美好愿望和终极目标. 全面禁止核试验条约 (CTBT) 的达成, 是实现这一目标的重要里程碑, 对推进核裁军进程和防止核武器扩散将发挥重要的现实作用. CTBT 实际上是核不扩散条约的一个重要支撑和保证措施^[1].

CTBT 的实现需要具有判断某次可疑事件是否是核试验的能力, 即监测地下核试验的能力. 对疑似核试验事件可使用遥感卫星、地震波测量等多种方法进行监测, 但判断核爆炸事件最直接、可靠的证据仍是对核裂变产物的监测. 以朝鲜首次核试验为例, 尽管遥感卫星、地震波测量等已发现了异常, 但最初国际上怀疑朝鲜也可能使用大量炸药模拟核爆炸进行核讹诈. 最终, 仍然以监测到核裂变产物作为确定发生了低当量地下核爆炸的依据. 因此在远离试验场的地点监测到泄漏出来的气体裂变产物和裂变产物气溶胶备受关注^[2,3].

应当指出, 核试验不是监测到的裂变产物的唯一来源, 运行中的民用反应堆也会泄漏出气体裂变产物, 特别是在有大量的核电站的北半球地区. 如何判断测到的气体裂变产物来自核试验, 而不是来自核反应堆泄露事件, 成为一个值得重视的问题.

由于地下核试验中核材料裂变的产物中的惰性气体并不发生化学反应, 因而能够泄漏到大气中被探测到. 核材料裂变产生的惰性气体有氙和氙两种, 本文研究利用氙同位素鉴别核试验和民用反应堆泄露事件的方法.

2 分析方法

测量材料中某核素的方法, 有放射性测量和质谱分析等非放射性测量两类方法, 如下式:

$$A = N \frac{\ln 2}{T_{1/2}}, \quad N = N_0 R, \quad (1)$$

其中, A 为放射性活度, $T_{1/2}$ 为半衰期, N 为材料的核数量, R 为质谱分析的灵敏度, N_0 为阿伏伽德罗常数.

在目前的技术水平下, 质谱分析的灵敏度一般在 10^{-12} — 10^{-13} , 放射性活度分析下限在 1 Bq 以下. 因此, 核素半衰期 10^4 y 应是一个分界点, 半衰期 10^4 y 以下应采用放射性分析方法, 半衰期 10^4 y 以上则应采用非放射性分析方法. 核材料裂变产生的主要气体裂变产物的半衰期列于表 1^[4].

军控核查中, 对地下核试验泄漏出来的裂变气体进行收集制样和测量都应在日量级的时间以后. 对一个放射性核素进行测量的最佳时间点在一个半衰期处. 如果测量时刻远大于半衰期, 由于该核

[†] 通讯作者. E-mail: wuhuilong2050@Aliyuan.com.cn

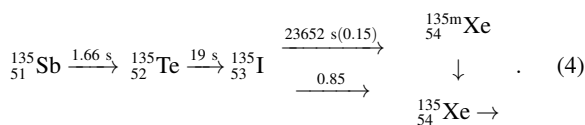
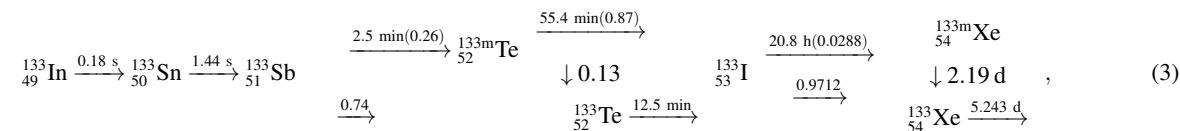
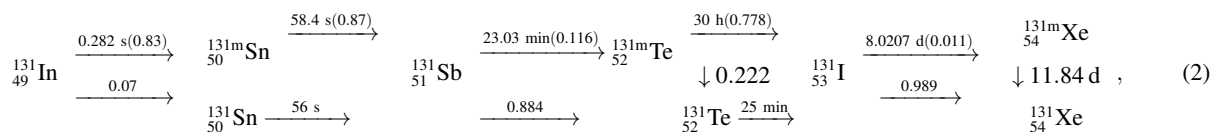
素大部分已衰变为其他核素, 导致测量困难; 若测量时刻远小于半衰期, 则会出现其他短半衰期核素的活度远大于目标核素活度的情况, 对测量造成很

大的干扰. 鉴于表 1 中氙同位素的半衰期都在日量级, 因而对惰性放射性氙进行监测是开展 CTBT 核查的恰当选择.

表 1 气体裂变产物半衰期

核素	⁸⁷ Kr	⁸⁸ Kr	^{85m} Kr	⁸⁵ Kr	^{133m} Xe	^{131m} Xe	¹³³ Xe	¹³⁵ Xe
半衰期	76.3 min	2.84 h	4.48 h	10.756 y	2.19 d	11.84 d	5.243 d	9.14 h

应该指出的是, 上述氙同位素都具有下列很复杂的衰变链形式 [5]:



$$B_i = \sum_{j=1}^i \frac{\prod_{m=j}^{n-1} \lambda_m}{\prod_{k=j, k \neq i}^n (\lambda_k - \lambda_i)} y_j a_j \quad (6)$$

一个核材料原子核裂变后, 会以不同的概率产生上面衰变链中所有的核素. 处于如此复杂衰变链的目标核素 ^{131m}Xe, ¹³¹Xe, ¹³³Xe, ¹³⁵Xe 除了直接来自裂变的以外, 还含有各个前驱物衰变产物的成分. 由此产生的问题是在某一特定时刻核爆后, 在后续时间取得的目标核素的数量随时间是变化的, 需要仔细研究这种变化关系.

此外, 气体裂变产物的来源除了核试验, 还有核反应堆等民用设施泄露出的气体. 在从大气中取样监测到各个氙同位素时, 如何确切地判断是否为核试验产生的也是需要研究的问题.

3 算法

对于 N_f 个材料核裂变某一个衰变链中第 n 个核素的数量可以通过求解微分方程按下面的计算公式 [6] 确定:

$$N_n = N_f \sum_{i=1}^n B_i e^{-\lambda_i t} \quad (5)$$

其中, a_j 为衰变链分支比; λ 为衰变常数; y_j 为一次核裂变产生该核素的概率, 即独立产额; B_i 是解微分方程得到的连乘因子, 它可以理解为该衰变链上第 i 个核素对 N_n 的贡献. 可以看出 (5) 式对计算单调的衰变链是适用的; 但对于 (2)–(4) 式这样具有复杂分支结构的衰变链, 显然不可能推算出解析的数学计算公式 [7], 只能采用数值计算方法.

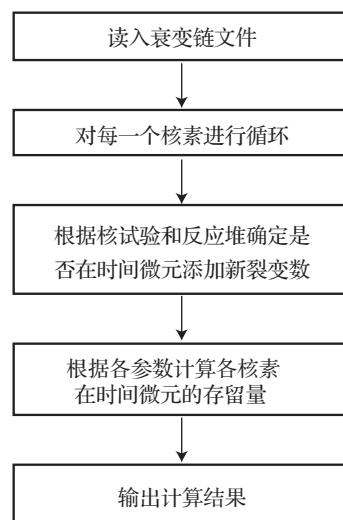


图 1 衰变链的数值模拟计算方法

对于不固定初始条件的情况, 如反应堆和脉冲辐照, 反应链上随时有新的裂变产物添加, 也只能通过数值计算的方法进行模拟准确地得到残留量. 我们设计数值模拟计算方法, 如图 1 所示.

利用图 1 的计算方法, 设计了适用于广泛衰变链的计算程序, 如图 2 所示.

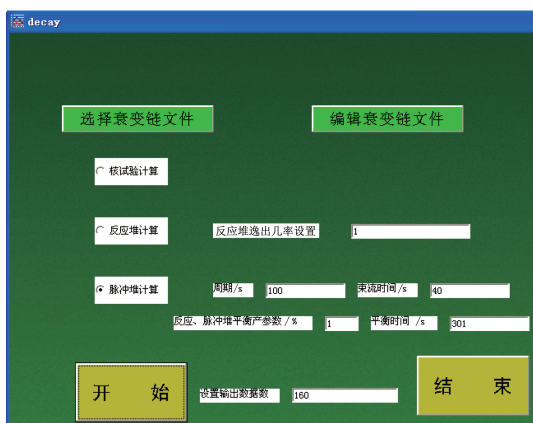


图 2 适用各场景的衰变链计算程序

4 计算结果

作为上述程序的应用, 我们计算了 ^{239}Pu 和 ^{235}U 的核试验中 ^{133}Xe , ^{135}Xe 存留核数量随时间的变化, 如图 3 所示.

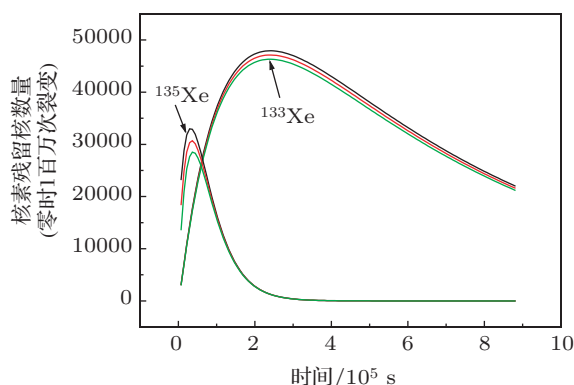


图 3 核试验场景的计算结果 上、中、下三线分别为 ^{239}Pu , ^{239}Pu 和 ^{235}U 各占一半

在核事故发生后, 可以通过在不同的时间取样测得的 ^{133}Xe , ^{135}Xe 数量与图 3 中曲线的比较判断是否具有核试验的特征. 由图 3 可以看出, 对于核试验事件, 距零时 1 d 左右 (93324 s), ^{133}Xe 的残留量为 32675, ^{135}Xe 的残留量为 18375, 考虑半衰期的

差异 (5.243 d 和 9.14 h), ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 的残留活度比为 0.129.

图 4 显示反应堆稳定运行条件下 $^{131\text{m}}\text{Xe}$, ^{131}Xe , ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 的存留数量随时间变化的计算结果. 假定每秒钟发生一百万次裂变, ^{133}Xe 的数量在 2799972 s = 32.4 d 后基本稳定在 41039704180; ^{135}Xe 的数量在 233324 s = 2.7 d 后基本稳定在 3507540828. 考虑半衰期的差异 (5.243 d 和 9.14 h), ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 的活度比为 0.850. 对于长期运作的反应堆, 作为相同元素的 ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 泄露出堆体的情形没有差异, 测到的活度比即计算的活度比.

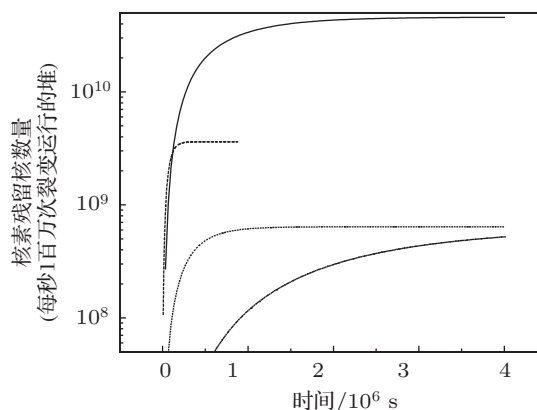


图 4 反应堆场景的计算结果 从上到下实线为 ^{133}Xe , 短虚线为 ^{135}Xe , 点线为 $^{131\text{m}}\text{Xe}$, 短、点线为 ^{131}Xe

在大气监测中, 将测到的上述核素的数量与图中的计算结果进行比较, 可以综合判断数据特征是倾向于核试验还是民用反应堆的泄露事件.

图 5 和 6 分别展示对某次可疑事件采用气溶胶样品和气体样品的测量结果.

用气溶胶样品测到的 ^7Be 是高能宇宙射线与 ^{14}N 反应的产物. 在两个样品中均未测到 $^{131\text{m}}\text{Xe}$, ^{131}Xe , ^{133}Xe , ^{135}Xe 四种核素, 表明在样品收集和测量方法上还有需要改进的地方.

5 实验验证

核试验采用的是 ^{239}Pu 或 ^{235}U 中的哪一种材料也是备受关注的问题 [8,9], 表 2 列出了采用 ^{235}U 和 ^{239}Pu 两种材料 $^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 数量比值随时间的变化.

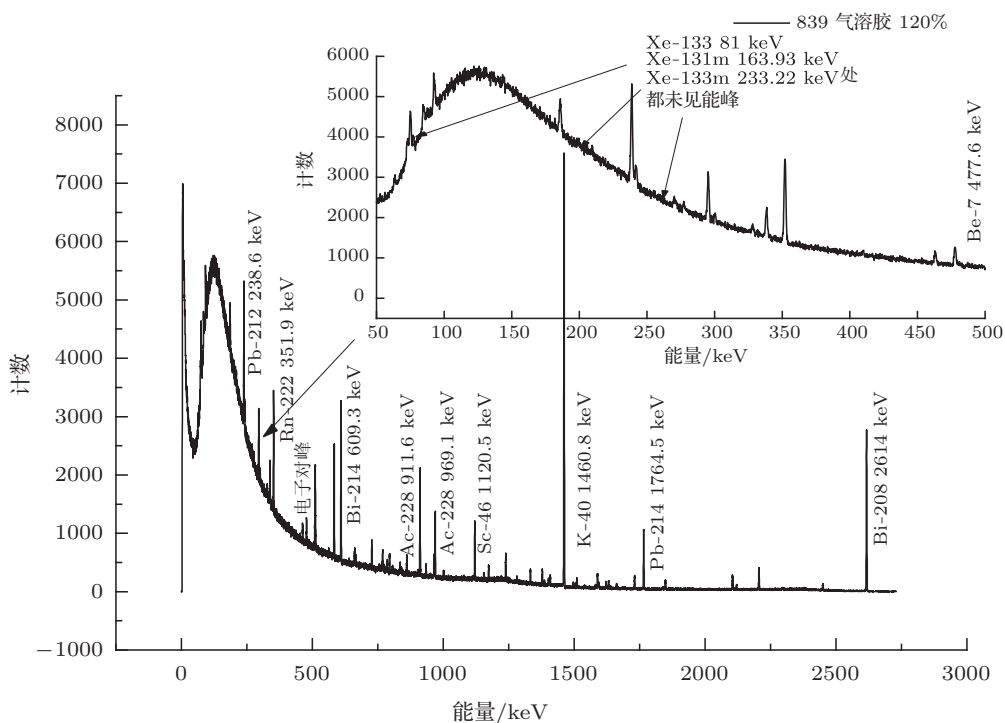


图5 某次可疑事件的气溶胶测量结果

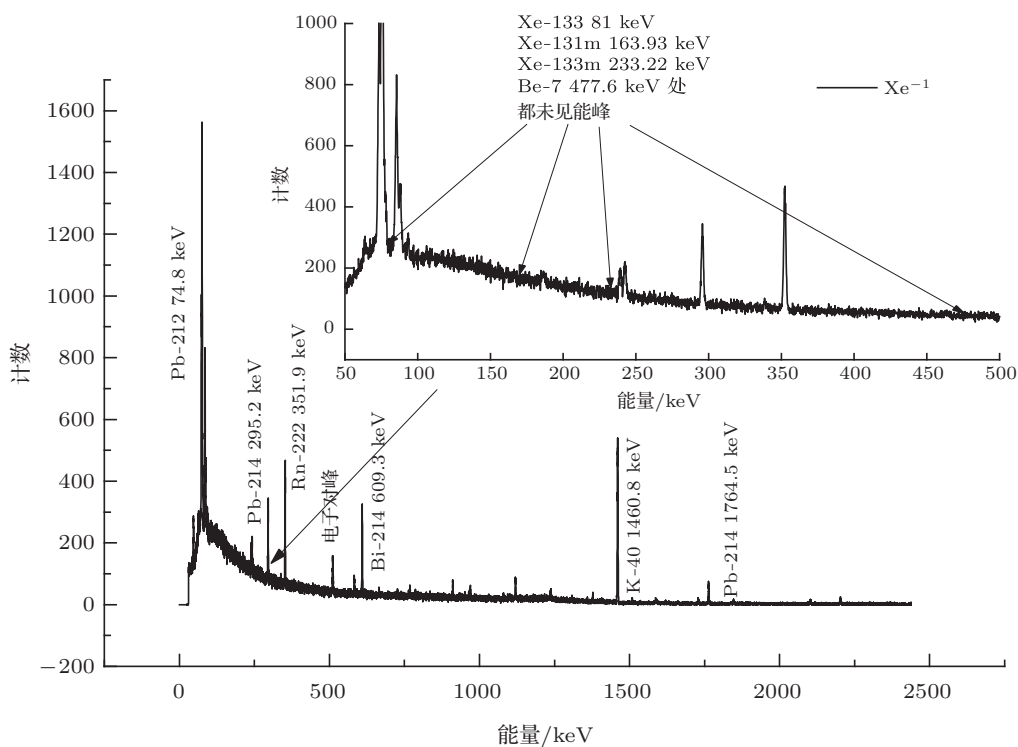


图6 某次可疑事件的气体测量结果

根据表 2 中的数据可以看出, 在 1 d 后对泄露出的惰性氙气体取样, 两种核材料 $^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 数量比值的差异为 2.7%, 以目前的测量精度不可能辨别这样的差异; 在 8 h 后取样, 两种核材料下

$^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 数量比值的差异为 16%, 辨别这样的差异对于很弱的样品仍有一定困难; 在 2 h 后取样, $^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 数量比值的差异达到 64%, 只要能测到这两种核素, 辨别这样的差异是没有问题的。

为了验证上述计算结果,我们做了一个模拟实验.取一定质量的金属钚材料,因其中的 ^{240}Pu 发生自发裂变生成的氙同位素并被密封在材料中,因此它可以模拟 ^{239}Pu 热中子堆情况^[10].使用一定方

法使这一金属钚材料完全气化,释放出里面的气体;1 h后收集其中的气体进行测量,结果如图7所示.

使用自主编写的解谱软件解谱^[11],结果列于表3.

表2 不同核材料 ^{135}Xe , ^{133}Xe 比值随时间的变化关系

时间/s	核材料	^{133}Xe 核数量	^{135}Xe 核数量	$^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 比值	两种材料比值差异
87996	^{235}U	33302	18705	1.7804	1.0273
	^{239}Pu	34403	19850	1.7331	
29332	^{235}U	14047	27643	0.5082	1.1595
	^{239}Pu	14456	32984	0.4383	
7333	^{235}U	3075	13668	0.2250	1.6437
	^{239}Pu	3187	23285	0.1369	

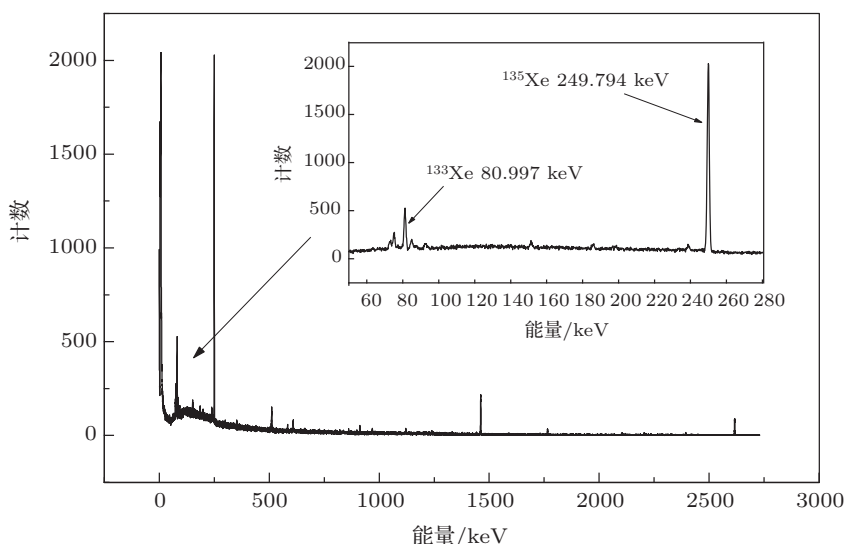


图7 ^{133}Xe , ^{135}Xe 测量能谱

表3 ^{239}Pu 热中子模拟实验结果

核素	半衰期	计算的平衡核数量	计算的 $^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 比值	测量的取样时刻活度	测量的取样时刻 $^{133}\text{Xe}/^{135}\text{Xe}$ 比值	计算/测量
^{133}Xe	5.243 d	4.57×10^{10}	12.66	9.664 Bq	12.28	1.031
^{135}Xe	9.14 h	3.61×10^9		10.83 Bq		

6 结论

收集分析核试验生成的惰性气体放射性核素氙是CTBT核查中确认一次疑似核试验的重要依据.本文通过计算,分别得到核试验和长期运行的核反应堆各种氙同位素数量随时间的变化,证明可以通过氙同位素数量之间的比值判断是真实的核试验还是民用设施的气体排放.根据计算得到的曲

线可以看出,核试验1 d后测量的 ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 的活度比为0.129,而反应堆测量 ^{133}Xe 和 ^{135}Xe 活度比0.85.差异比较明显,完全可以通过收集分析惰性气体氙判断是核试验还是民用核设施泄露事件.

此外,计算和分析还可以判断疑似核试验的一些感兴趣信息,比如试验所用材料是 ^{235}U 还是 ^{239}Pu .通过一次模拟 ^{239}Pu 热中子辐照实验,证明计算和实验结果是一致的.

- [1] Liu S P, Gong J, Hao F H 2008 *Chin. Phys. B* **17** 0363
- [2] Zuo H Y, Yang J G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6132 (in Chinese) [左浩毅, 杨经国 2007 物理学报 **56** 6132]
- [3] Wu H L, Tian D F 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 032801 (in Chinese) [伍怀龙, 田东风 2011 物理学报 **60** 032801]
- [4] Yu M 2001 *Chinese Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Test Measurement and Analysis* (Beijing: Atomic Energy Press) p222 (in Chinese) [于敏 2001 中国军用测试核数据库 —— 裂变产额 (北京: 原子能出版社) p222]
- [5] Firestone R B 1996 *Table of Isotope* (8th Ed.) (USA: Lawrence Berkeley National Laboratory) p4480
- [6] Wang S L, Chang Y F, Wang J 2004 *Atomic Energy Science and Technology* **38** 210 (in Chinese) [王世联, 常永福, 王军 2004 原子能科学技术 **38** 210]
- [7] Wu H L, Gong J 2006 *Nucl. Techniq.* **29** 261 (in Chinese) [伍怀龙, 龚建 2006 核技术 **29** 261]
- [8] Wu H L, Tian D F 2009 *Sci. China E* **39** 261 (in Chinese) [伍怀龙, 田东风 2009 中国科学 E 辑 **39** 261]
- [9] Liu S P, Wu H L, Gu D C 2002 *Acta Phys. Sin.* **50** 2411 (in Chinese) [刘素萍, 伍怀龙, 古当长 2002 物理学报 **50** 2411]
- [10] Xu S R, Zhang J F, Gu W P 2012 *Chin. Phys. B* **21** 027802
- [11] Wu H L, Liu S P 2006 *Atom. Energy Sci. Technol.* **40** 10 (in Chinese) [伍怀龙, 刘素萍 2006 原子能科学技术 **40** 10]

Nuclear test criterion by inert gas xenon

Wu Huai-Long[†] Gong Jian Li Wei Wang Qian Zhang Chang-Fan

Xiong Zong-Hua Chu Cheng-Sheng Tian Dong-Feng

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

(Received 28 July 2013; revised manuscript received 2 September 2013)

Abstract

It is an important approach to preventing nuclear proliferation that comprehensive nuclear test ban treaty is reached. How to judge whether a nuclear test has happened is a key point. In this paper we investigate a method to distinguish between a nuclear test and leakage from civilian nuclear reactor by measuring inert gas xenon nuclides $^{133\text{m}}\text{Xe}$, ^{133}Xe , ^{135}Xe , and $^{131\text{m}}\text{Xe}$. The distinction between the nuclear test and the reactor leakage is found by analyzing the variation of nuclide quantity with time in a complex decay chain. Two suspicious events in North Korea are measured and analyzed. In order to verify the theoretical results, an experiment of imitating plutonium irradiated by thermal neutron is designed.

Keywords: comprehensive nuclear test ban treaty verification, gas fission products, nuclear test criterion, inert gas xenon nuclide

PACS: 28.41.Te

DOI: 10.7498/aps.62.242802

[†] Corresponding author. E-mail: wuhuailong2050@Aliyuan.com.cn