

行政院原子能委員會  
放射性物料管理局  
委託研究計畫研究報告

111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布  
及殘餘水對燃料護套影響研析  
期末總報告

委託單位：行政院原子能委員會放射性物料管理局  
執行單位：國立清華大學  
計畫主持人：許榮鈞  
子項主持人：曾永信、王美雅  
計畫編號：111FCMA001  
報告日期：中華民國 111 年 12 月 15 日

# 111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布 及殘餘水對燃料護套影響研析

受委託單位：國立清華大學

研究主持人：許榮鈞

協同主持人：曾永信、王美雅

研究期程：中華民國 111 年 02 月至 111 年 12 月

研究經費：新臺幣 2,260,000 元

放射性物料管理局 委託研究

中華民國 111 年 12 月

(本報告內容純係作者個人之觀點，不應引申為本機關之意見)

# 目 錄

一、 摘要(中、英文) .....	1
二、 計畫目標.....	2
三、 重要成果.....	4
四、 展望.....	7
五、 附件 .....	I
子計畫 1:「乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布 研析」期末報告.....	I
子計畫 2:「乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子 燃料護套腐蝕影響研析」期末報告.....	II

# 計畫名稱：111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布及殘餘水對燃料護套影響研析

## 一、摘要

本研究結合蒙地卡羅模擬軟體 SCALE/MAVRIC、計算流體力學工具 FLUENT 以及自行開發之輔助分析工具，建立具有評估輻射遷移、熱水流模擬、輻射分解及再結合分析能力之整合方法，可用於探討殘餘水對燃料護套的影響研析，提升對於燃料護套在中期乾式貯存可能腐蝕風險的了解。本研究選擇以 NAC-UMS 為標的，有系統地進行各種分析模式的建立與案例的計算，深入討論相關議題與影響。最終，研究結果指出即使考慮各項保守之射源強度、含水量與貯存溫度等條件，用過核子燃料於乾貯期間之潛在氧化因子皆遠小於運轉與溼式貯存時期，並無破壞燃料護套完整性之疑慮。

In order to evaluate the potential corrosion of fuel cladding during interim dry storage period, this study combined the Monte Carlo software SCALE/MAVRIC, Computational Fluid Dynamics (CFD) toolkit FLUENT, and some self-developed codes to establish a methodology with the capability to evaluate radiation transport, thermal-hydraulic, and radiolysis and recombination mechanisms. The NAC-UMS cask model was selected for demonstration in this project. The results confirmed that, even in conservative conditions of radiation sources, residual water quantities, and storage temperatures, the potential oxidation on the cladding of spent nuclear fuels during dry storage is considerably less than that in routine operation or wet storage period, ensuring the integrity of spent nuclear fuels during long-term storage.

## 二、計畫目標

本研究結合「輻射遷移」、「熱流」與「輻射分解及再結合」分析技術，用以評估乾貯護箱於標準乾燥作業後仍殘留有假設性水分時，因中子與加馬輻射作用之下，是否因為輻射分解與再結合效應而使護箱內部產生氧化還原反應並對於燃料護套完整造成影響，整體研究流程如圖一所示。

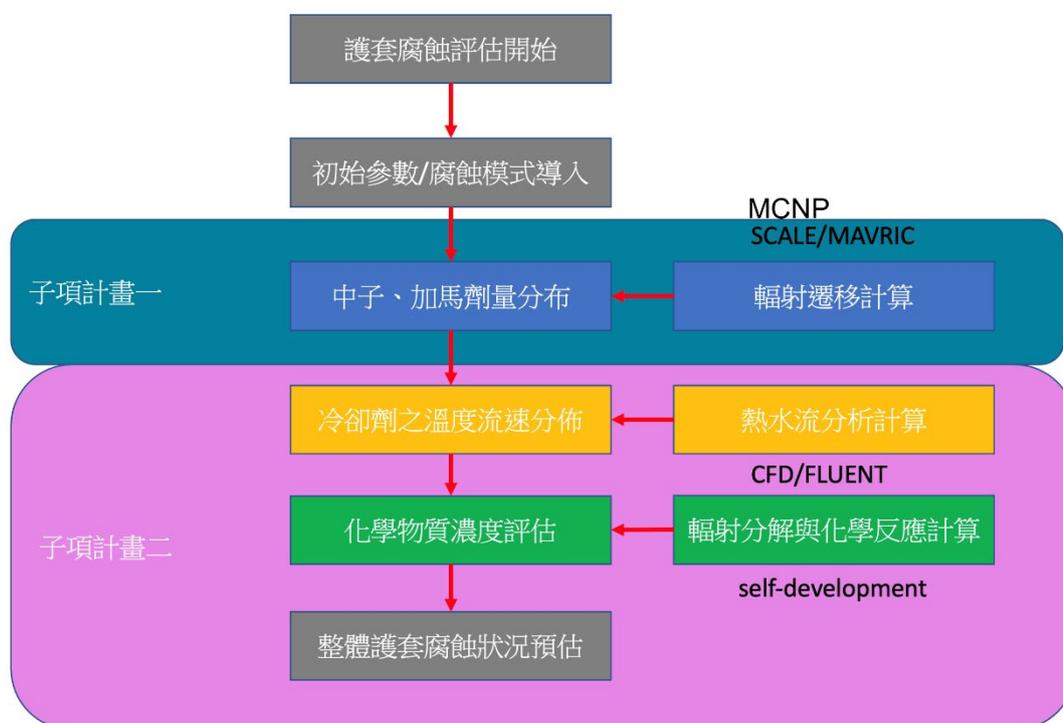


圖 1、本研究各項分析的整體流程與關聯性

為達成此一目的，本研究依技術關聯性，將此研究工作劃分為兩個子計畫來執行，其中：

子項計畫一：「乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析」係利用 SCALE/MAVRIC 分析程式針對如圖二所示之護箱進行不同幾何細節的建模，再搭配平均與真實裝填燃料分區之源項，用

以探討不同模型假設對於護箱內外輻射場之影響，並提供可靠之中子及加馬射線劑量分布作為子項計畫二輻射分解與再結合分析之輸入參數。

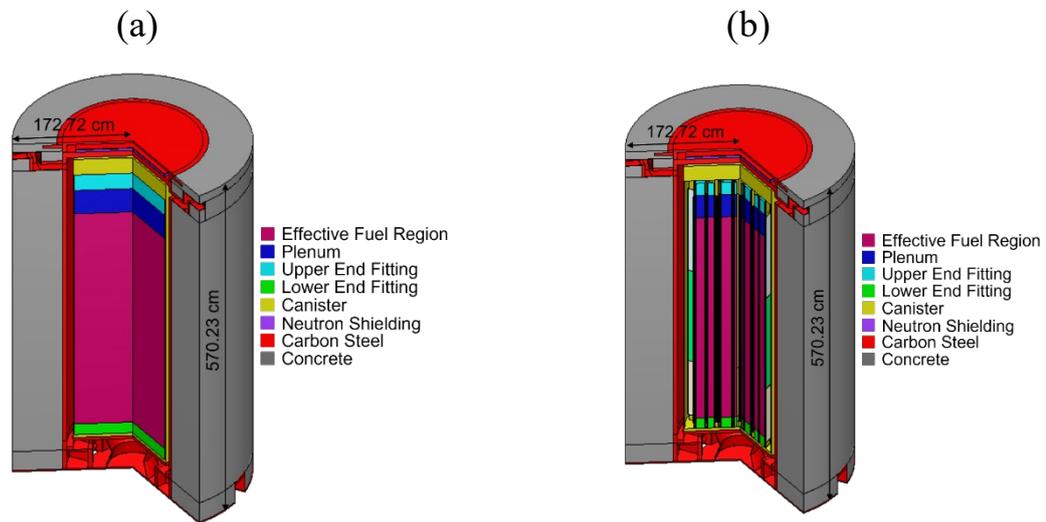


圖 2、NAC-UMS 乾貯護箱輻射遷移分析模式：(a)均質化燃料、(b)詳細燃料束結構

子項計畫二：「乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析」，則是以計算流體力學進行護箱熱流場分析、殘餘水評估以及相對溼度計算外，亦將結果進一步轉換對應之流路模型，並匯入子項計畫一所提供之輻射場分布，再行以自建輻射分解及再結合技術進行氧化、還原劑之評估。本項工作之分析模式則如圖 3 所示。

兩個子項計畫工作之結合除了可釐清過往輻射屏蔽分析模式之保守度與潛在水汽之數量外，亦可進一步對護箱內部是否因殘餘水而潛藏腐蝕作用進而影響護套完整性之議題進行研析，以消弭國人對乾貯護箱之安全疑慮，並提出具體管制要點或發現以供主管機關佐參。

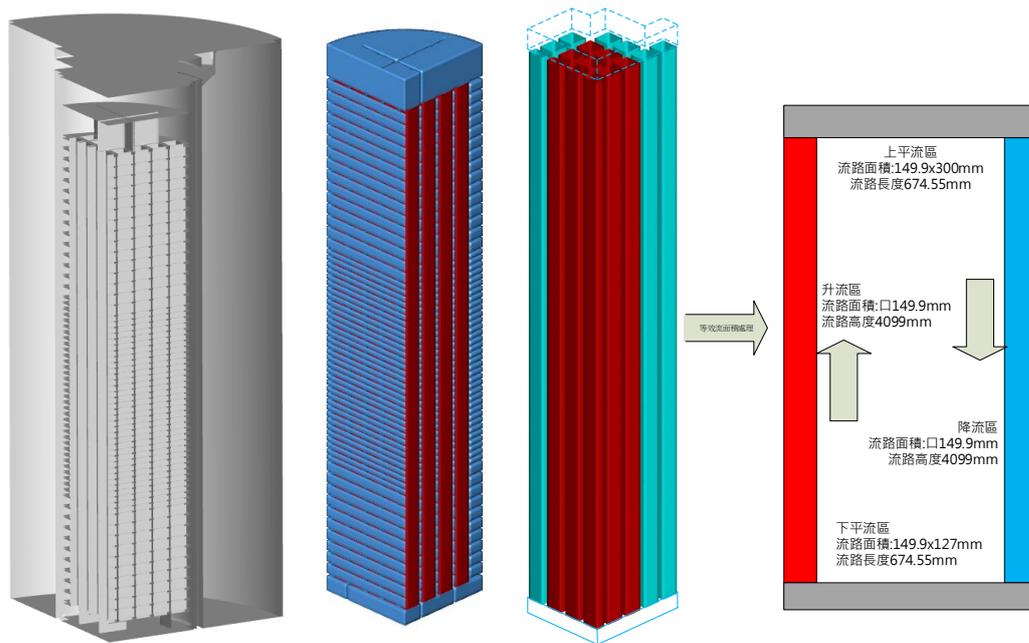


圖 3、整合計算流體力學與自建分析技術之熱流場與氧化、還原劑分布計算技術

### 三、重要成果

(一) 本研究建立乾貯護箱詳細內部構造模擬與分析能力，以 SCALE/MAVRIC 程式建構二種乾貯護箱的幾何模型(均質化與詳細的密封鋼筒)，以及二種裝載燃料的射源模型(平均射源與 56 束個別射源)，藉以探討護箱模型差異對於後續輻射場分布的影響。乾貯護箱內外詳細的中子與加馬射線劑量分布並非安全分析報告所必須，但相關資訊與研究經驗可以強化對於安全分析所使用假設的認識，提升分析與審查品質。

(二) 如圖 3 與 4 所示，本研究完成詳細密封鋼筒建模，以及考量 56 束用過燃料的排列造成非均勻射源的效應。若考慮均質化密封鋼筒且裝載平均源項(Model 1)最為保守；使用具燃料束結構的詳

細密封鋼筒模型，若假設裝載平均源項((Model 2)其結果亦傾向保守，相對於最貼近真實的模型((Model 3)而言；詳細密封鋼筒模型加上考慮實際裝載之個別燃料束源項的案例建模困難且計算費時，但其評估結果可用於量化相關假設引發的差異，並與未來現場實測進行有意義的比較。

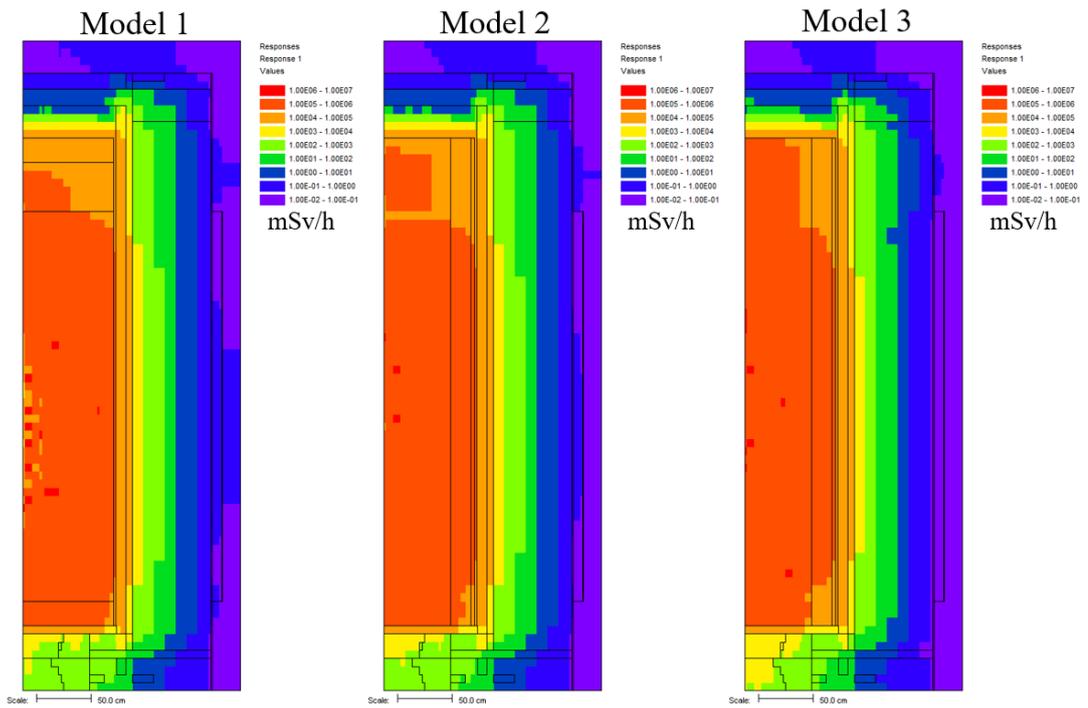


圖 4、三種模型計算所的護箱內外輻射劑量率的分布

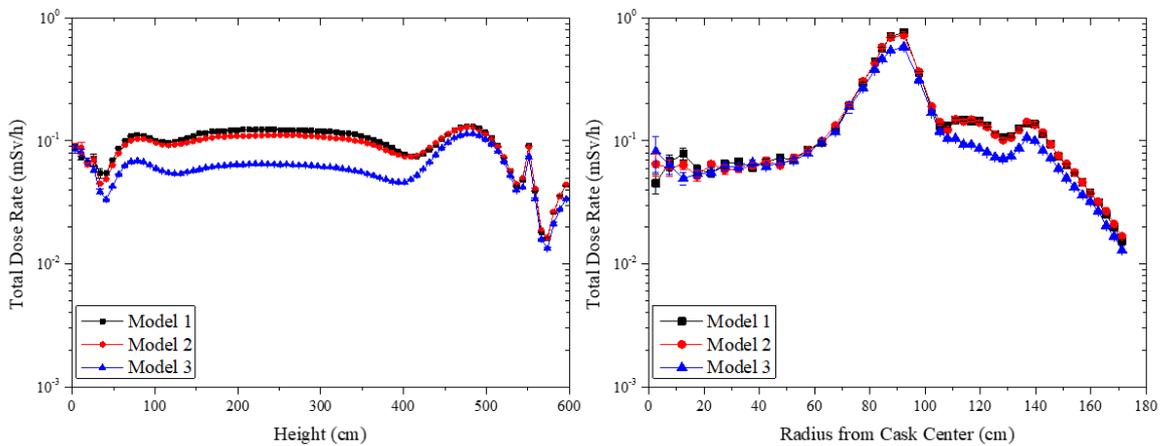


圖 5、三種模型對於護箱表面輻射劑量率分布的比較

(三) 經計算流體力學就乾燥作業產生之燃料溫度分布本研究評估所得之護箱內保守殘餘水量如表 1 所示，其結果顯示只有同時考慮低熱負載與高燃耗之非實質裝載條件，方有可能出現相對溼度大於氧化閾值(20%)之狀況。且利用 NRC 報告中所載之評估模式求得之貯存期間(20 年)氧化層厚度亦僅有  $0.04 \mu\text{m}$ 。

表 1、保守分析所得之護箱內部殘餘水及其對內部環境之溼度表現

含水量 燃耗 (GWD/MTU)	含水量(mole)		絕對溼度(mg/L) (相對溼度 RH)			
	14kW	7kW	14kW	7kW	14kW	7kW
35	10.38	66.67	32.7	201.1	0.46	11.5
45	19.44	121.22	58.6	365.7	0.84	20.8

(四) 進一步將子項計畫一所獲得之加馬、中子輻射場，以及子項計畫二以計算流體力學求得之溫度場及流速分布(如圖 6(a)所示)匯入自建之水化學分析模式後，即可獲得各處之氧化劑與還原劑分佈，其中作用相對較強之氧化劑(過氧化氫)之分佈顯示，乾貯護箱內即使殘餘有若干水汽，但所造成之氧化劑濃度仍較溼式貯存遠低近 3 個數量級。結果可證採用乾式貯存之用過核子燃料暫無需顧慮貯存期間護套潛在之劣化議題。

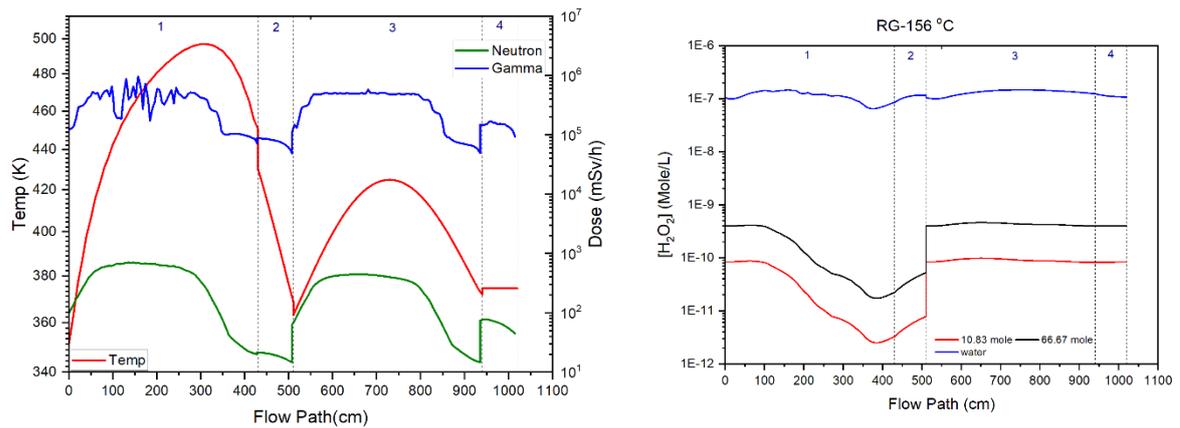


圖 6、(a)進行輻射分佈與再結合評之各項場域參數；(b)分析所之過氧化氫分布

#### 四、展望

透過結合輻射遷移、熱流分析及輻射分解與再結合分析技術，本研究建立可對燃料護套在乾貯期間受殘餘水影響進行量化評估之技術。研究成果可為國內未來乾式貯存設施於管制、審查乃至民眾溝通，提出具體學理與佐證資料。未來研究方向建議對於少數特殊性議題(例如破損燃料相關處置與分析)加強研究，本團隊亦擬著手進行其分析模式靈敏度、源項合適性、以及安全分析常見簡化合理性與保守度等進行深入探討，以利提升國內用過核子燃料乾貯安全分析技術與審查品質。

#### 五、附件

- 子計畫 1「乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析」期末報告
- 子計畫 2「乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析」期末報告

行政院原子能委員會  
放射性物料管理局  
委託研究計畫研究報告

111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布  
及殘餘水對燃料護套影響研析

子項一：乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料  
期間護箱內輻射場分布研析  
期末報告

委託單位：行政院原子能委員會放射性物料管理局

執行單位：國立清華大學

計畫主持人：許榮鈞

子項主持人：許榮鈞

計畫編號：111FCMA001

報告日期：中華民國 111 年 12 月 15 日

111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布  
及殘餘水對燃料護套影響研析

子項一：乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料  
期間護箱內輻射場分布研析

受委託單位：國立清華大學

研究主持人：許榮鈞

子項主持人：許榮鈞

研究期程：中華民國 111 年 02 月至 111 年 12 月

研究經費：新臺幣 1,130,000 元

放射性物料管理局 委託研究

中華民國 111 年 12 月

(本報告內容純係作者個人之觀點，不應引申為本機關之意見)

## 摘要

本計畫結合輻射遷移、熱流分析與水化學的技術深入探討用過核子燃料乾貯護箱內殘餘水對燃料護套的影響，提升乾貯相關安全分析與審查的技術能力。為深入瞭解殘餘水經護箱內部輻射場影響產生輻射分解效應後，其於燃料護套上之分布情形與相關影響，原子能委員會辦理「111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布及殘餘水對燃料護套影響研析」委託研究計畫案，計畫重點有二部分：(1) 乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析，(2) 乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析。子計畫一建立護箱內輻射場的評估模式，計算詳細的中子與加馬射線輻射分布，提供後續輻射分解效應的輸入參數，並研析護箱內部輻射分布對護箱表面劑量之關聯與影響；子計畫二建立可評估護箱內熱流場及輻射分解及再結合效應之分析技術，進行乾貯護箱殘餘水與熱流場計算，以瞭解殘餘水經輻射分解與再結合效應對護套之影響。最後彙整研究成果，研提乾式貯存輻射場及殘餘水影響評估之審查重點或注意事項，以精進管制技術並強化室內乾貯安全分析審查能力。

關鍵字：室內乾貯、輻射屏蔽、輻射場特性

## **ABSTRACT**

This project combines the techniques of radiation transport, thermal hydraulic and water chemistry to investigate the residual water distribution and its effect on fuel cladding behavior of spent nuclear fuels in a dry storage cask, aiming at increasing the understanding of related phenomena and further enhancing domestic capability to address the problem in safety analysis and review. The project consists of two major parts: (1) establishing a detailed radiation map for spent fuels in the canister and (2) performing corresponding thermal hydraulic and radiolysis analysis to examine the influence of residual water on the corrosion of spent nuclear fuels in a dry storage cask. Accordingly, sub-project 1 established a high-fidelity model of a full loaded dry storage cask and calculated the neutron and gamma-ray distributions in fine meshes. The resulting dose maps were used as an input of the next-step radiolysis analysis. In addition, how the radiation in the canister propagates to the surface of the storage cask was scrutinized in this study. Sub-project 2 established an integrated technique that can evaluate heat flow and radiation decomposition and recombination effects of residual water in the canister. The technique is useful in calculating the residual water distribution and assessing related corrosion effects of spent nuclear fuels in dry storage conditions. In the end, the results and experience gained in this study were compiled to provide an overview of the problem and critical items to be paid attention to in safety analysis review of spent nuclear fuel dry storage facilities.

**Keywords:** Indoor dry storage, radiation shielding, radiation field characterization

# 目錄

摘要.....	i
ABSTRACT.....	ii
目錄.....	iii
圖目錄.....	iv
表目錄.....	vii
第一章、背景說明與目的.....	1
第二章、輻射屏蔽安全分析方法.....	3
第三章、乾貯護箱內輻射場相關資訊蒐集研析.....	8
第四章、護箱內加馬及中子輻射場之假想護箱評估模式.....	19
4.1 標的護箱屏蔽分析模型.....	19
4.1.1 均質化的密封鋼筒護箱屏蔽分析模型.....	23
4.1.2 具詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱屏蔽分析模型.....	24
4.2 假想用過核子燃料源項.....	26
第五章、代表案例之加馬與中子輻射場分析計算.....	35
5.1 案例一：均質化護箱幾何搭配平均燃料束源項.....	36
5.2 案例二：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配平均燃料束源項.....	40
5.3 案例三：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配 56 束燃料束源項.....	42
5.4 計算案例整合討論.....	44
第六章、護箱內加馬與中子輻射場分布差異及對表面劑量貢獻研析.....	48
6.1 護箱劑量率分布軸向分區.....	51
6.2 護箱劑量率分布徑向分區.....	58
6.3 護箱內密封鋼筒劑量率分布.....	65
第七章、研提護箱內輻射場評估審查重點或注意事項.....	68
第八章、結論.....	70
參考文獻.....	73

## 圖目錄

圖 1-1、計畫分析流程圖 .....	2
圖 2-1、MAVRIC 控制模組的執行流程[5].....	5
圖 3-1、護箱表面側邊與頂部中子和光子劑量率分布[6].....	9
圖 3-2、(左)TN85 金屬護箱實體圖及(右)SCALE 建構 TN85 金屬護箱模型[7].10	
圖 3-3、TN85 金屬護箱表面劑量率實驗量測值與計算評估值(左)加馬(右)中子 [7].....	10
圖 3-4、CASTOR 與 CONSTOR 護箱總劑量率經長期貯存之評估結果[8].....	12
圖 3-5、CASTOR 與 CONSTOR 護箱中子與光子兩種輻射貢獻之劑量率經長期 貯存之評估結果[8].....	13
圖 3-6、TN-32 護箱屏蔽模型，(左)均質化燃料束結構，(右)詳細燃料束結構[9] .....	15
圖 3-7、TN-32 護箱(1)側邊及(2)頂部表面劑量率分布，(a)光子劑量率、(b)中子 劑量率、(c)二次光子劑量率、(d)總劑量率。[9].....	15
圖 3-8、TN-32 護箱(1)側邊及(2)頂部表面劑量率分布經不同貯存時間，(a)護箱 表面劑量率分布(b)護箱表面平均劑量率隨貯存時間變化[10].....	16
圖 3-9、HI-TRAC VW 護箱屏蔽分析模型，(a)軸向切面、(b)徑向切面[11].....	17
圖 3-10、HIHI-TRAC VW 護箱劑量率分布[11].....	17
圖 4-1、NAC-UMS 混凝土護箱模型[3].....	21
圖 4-2、NAC-UMS 混凝土護箱與密封鋼筒材料組成[3].....	22
圖 4-3、均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 .....	23
圖 4-4、均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面.....	24
圖 4-5、具有詳細燃料束結構密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 .....	25
圖 4-6、具有詳細燃料束結構密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面.....	25
圖 4-7、56 束燃料束源項內部燃料配置(A：12、B：18、C：26).....	28
圖 4-8、用過核子燃料射源能譜(左)燃料中子、(中)燃料光子、(右)結構光子 ..29	
圖 4-9、用過核子燃料射源軸向分布(左)燃料中子、(中)燃料光子、(右)結構光 子.....	29
圖 5-1、案例一護箱側邊表面劑量率分布 .....	38
圖 5-2、案例一護箱頂部表面劑量率分布 .....	39
圖 5-3、案例一護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻 .....	39
圖 5-4、案例一護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻 .....	39
圖 5-5、案例二護箱側邊表面劑量率分布 .....	40
圖 5-6、案例二護箱頂部表面劑量率分布 .....	40
圖 5-7、案例二護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻 .....	41
圖 5-8、案例二護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻 .....	41

圖 5- 9、案例三護箱側邊表面劑量率分布 .....	42
圖 5- 10、案例三護箱頂部表面劑量率分布 .....	42
圖 5- 11、案例三護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻 .....	43
圖 5- 12、案例三護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻 .....	43
圖 5- 13、案例一至案例三護箱側邊表面總劑量率分布 .....	46
圖 5- 14、案例一至案例三護箱側邊表面(左)中子(右)光子劑量率分布 .....	46
圖 5- 15、案例一至案例三護箱頂部表面總劑量率分布 .....	47
圖 5- 16、案例一至案例三護箱頂部表面(左)中子(右)光子劑量率分布 .....	47
圖 6- 1、案例一至案例三(左至右)護箱內部劑量率分布(mSvh).....	49
圖 6- 2、乾貯護箱劑量率分布軸向分區 .....	50
圖 6- 3、乾貯護箱劑量率分布徑向分區 .....	50
圖 6- 4、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例一).....	53
圖 6- 5、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例二).....	53
圖 6- 6、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例三).....	53
圖 6- 7、密封鋼筒內側軸向劑量率分布三案例比較 .....	54
圖 6- 8、密封鋼筒中間軸向劑量率分布三案例比較 .....	54
圖 6- 9、密封鋼筒外側軸向劑量率分布三案例比較 .....	54
圖 6- 10、空氣通道軸向劑量率分布三案例比較 .....	55
圖 6- 11、混凝土殼層內側軸向劑量率分布三案例比較 .....	55
圖 6- 12、混凝土殼層外側軸向劑量率分布三案例比較 .....	55
圖 6- 13、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例一).....	56
圖 6- 14、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例二).....	56
圖 6- 15、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例三).....	56
圖 6- 16、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例一).....	57
圖 6- 17、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例二).....	57
圖 6- 18、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例三).....	57
圖 6- 19、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例一).....	60
圖 6- 20、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例二).....	60
圖 6- 21、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例三).....	60
圖 6- 22、下端板區高度徑向劑量率分布三案例比較 .....	61
圖 6- 23、有效燃料區高度徑向劑量率分布三案例比較 .....	61
圖 6- 24、充氣區高度徑向劑量率分布三案例比較 .....	62
圖 6- 25、上端板區高度徑向劑量率分布三案例比較 .....	62
圖 6- 26、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例一).....	63
圖 6- 27、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例二).....	63
圖 6- 28、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例三).....	63
圖 6- 29、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例一).....	64
圖 6- 30、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例二).....	64

圖 6-31、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例三).....	64
圖 6-32、密封鋼筒內部(左)軸向分區(右)徑向分區 .....	65
圖 6-33、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例一).....	66
圖 6-34、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例二).....	66
圖 6-35、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例三).....	66
圖 6-36、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例一).....	67
圖 6-37、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例二).....	67
圖 6-38、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例三).....	67

## 表目錄

表 4- 1、假設用過核子燃料束源項類別 .....	30
表 4- 2、燃料中子射源能譜 .....	31
表 4- 3、燃料光子射源能譜 .....	32
表 4- 4、結構光子射源能譜 .....	33
表 4- 5、BWR 燃料軸向射源率[3] .....	34
表 4- 6、假想護箱射源強度 .....	34
表 5- 1、MAVRIC 程式採用之粒子作用截面資訊.....	36
表 5- 2、NAC-UMS 護箱表面劑量率評估結果比較.....	38
表 5- 3、屏蔽計算模型差異結果討論 .....	45

## 第一章、背景說明與目的

行政院原子能委員會(以下簡稱原能會)為嚴密落實核電廠除役期間之各項安全管制要求，持續監督台電公司確實依核定除役計畫執行相關作業，以確保公眾安全並如期完成電廠除役工作。針對用過核子燃料的貯存方面，台電公司於核一、二廠除役計畫規劃採室內乾式貯存型式[1]，以貯存自反應器退出及燃料池中的用過核子燃料，俾利後續除役拆除工作進行。

為瞭解用過核子燃料進行室內乾貯之安全性，原能會放射性物料管理局(以下簡稱物管局)應管制需求進行先期研究，於 110 年辦理「室內乾貯設施輻射特性及乾貯護箱乾操作業之管制技術研究」工作[2]，研析範疇包含對室內乾貯設施之乾貯護箱內部殘餘水分對用過燃料貯存安全技術議題進行探討，並獲得乾貯護箱內總殘餘水量對燃料影響性相關研究成果。計畫重要成果包括：(1)針對室內乾貯設施輻射劑量貢獻路徑之議題，建立了一種特殊的輻射屏蔽分析方法，可以有效地區分各輻射遷移路徑(直接穿透、輻射滲流、天空散射)的劑量貢獻。不同路徑輻射貢獻的分析模式能提供各路徑輻射劑量貢獻占比，供檢視此乾貯設施輻射屏蔽設計是否有需要進行優化。(2)針對國際間尚未發展之護套表面鍵結水分布，結合燃料軸向功率分布及燃耗與護套氧化層之關係，建立完整初始殘餘水預估模式，透過與汽化熱評估模式整合，以計算流體力學技術求解獲得溫度分布與殘餘水分布。結果顯示護套表面的鍵結水需要高操作溫度方可乾化，隨著燃料溫度的增加可以有效移除燃料護套表面殘餘水；惟熱負載較低時預期將影響其乾化能力，建議對於過低裝載之設計宜進一步要求申照單位提出其乾操作業合適性。

為深入瞭解殘餘水經輻射場影響產生輻射分解效應後，其於護套上之分布情形與相關影響，有必要進一步研究貯存期間輻射場分布情形，並就殘餘水經輻射分解與再結合效應產生氧化劑、還原劑之分布、產量及影響性等要項，進行乾貯安全影響性評估，爰規劃辦理「111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布及殘

餘水對燃料護套影響研析」委託研究計畫案，以研究用過核子燃料貯存護箱內部於乾貯期間之輻射場分布情形，並探討殘餘水經輻射分解與再結合效應對燃料護套之影響。本計畫主要重點如下：(1)乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析，(2)乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析。子計畫一將建立護箱內輻射場評估模式與分析計算，並研析輻射對表面劑量之貢獻；子計畫二規劃建立可評估護箱內熱流場及輻射分解及再結合效應之分析技術，進行乾貯護箱殘餘水與熱流場計算，以瞭解殘餘水經輻射分解與再結合效應對護套之影響。

相關計畫規劃分析流程與兩子項技術整合如圖 1- 1 所示，由子項一對標的護箱進行輻射屏蔽分析，產生護箱內外於用過核子燃料貯存期間之輻射場特性，再與子項二熱流分析結合，二者探討輻射分解與再結合效應及其對用過核子燃料護套之劣化影響研析。

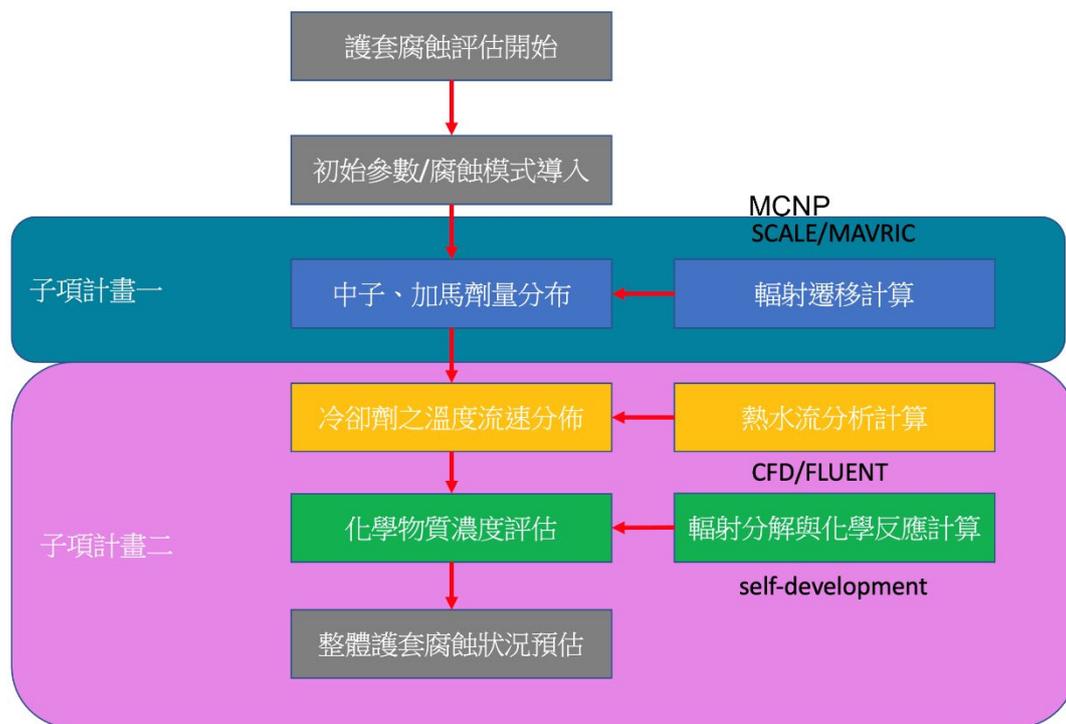


圖 1- 1、計畫分析流程圖

## 第二章、輻射屏蔽安全分析方法

用過核子燃料乾式貯存設施相關輻射屏蔽計算可分為兩個重要區塊：(1)用過核子燃料輻射源項評估及(2)乾式貯存護箱與設施的輻射屏蔽分析。本子計畫著重於後者，乾貯護箱輻射屏蔽評估研究。藉由本子計畫評估的用過核子燃料貯存期間護箱內部劑量率分布，結合子計畫二所建立之可評估護箱內熱流場及輻射分解及再結合效應之分析技術，進行乾貯護箱殘餘水與熱流場計算，以瞭解殘餘水經輻射分解與再結合效應對護套之影響。其中，用過核子燃料輻射源項非為計畫主要探討目標，在此不針對用過核子燃料輻射源項(燃料中子、燃料光子、活化光子)作重新評估，規劃採用假設的標的射源，將於後續章節作詳細說明，相關射源項資訊不足部分主要參考核一廠第一期乾貯安全分析報告內的公開資料[3]；計畫主要著力於護箱內外詳細的輻射場特性分析，針對選定假想護箱建構高精度的護箱輻射屏蔽分析模型，探討中子與光子由用過核子燃料束內部出發，模擬輻射粒子隨機與周遭物質作用與遷移的過程，先建構護箱內部完整的輻射場分布，再持續追蹤輻射遷移到護箱外部表面，護箱表面劑量率分布可與護箱內部完整的輻射場分布一起比對探討，增加對於乾貯護箱輻射屏蔽的認識，其結果亦可提供安全分析與審查參考。本子計畫的相關成果，除了可用於結合熱流與水化學分析，亦可精進國內未來對貯存護箱輻射屏蔽安全分析技術，並提供主管機關審查技術支援。

本子計畫選擇以 NAC-UMS 混凝土護箱為標的模型，該護箱內部設計可裝填 56 束沸水式反應器的用過核子燃料束。本研究分別建構兩種護箱屏蔽分析模型作討論，護箱外部依參採資料進行詳細的幾何模型建構，內部裝載 56 束用過核子燃料束的密封鋼筒則採兩種截然不同的模型近似：(1)均質化的密封鋼筒(Homogenized Canister)，其密封鋼筒內部的幾何與材料設定將用過核子燃料束作均質化處理[3]，依其燃料特性均勻化為四區：上端板區(Upper End-Fitting, UEF)、

充氣區(Plenum)、有效燃料區(Effective Fuel)、下端板區(Lower End-Fitting, LEF)，值得注意的是均質化密封鋼筒的模型也是國內過往案例乾貯護箱安全分析報告所採用的方式。(2)具詳細燃料束裝載安排結構的密封鋼筒(Detailed Canister)，其密封鋼筒內部具有 56 束燃料束幾何結構。雖然建模與計算均費時費力，此一模型毫無疑問更符合真實情況。子計畫一內容的第一部分為以上述兩種護箱屏蔽分析模型作護箱內部輻射場分布與外部表面劑量率分布，第二部分規劃以詳細燃料束模型，配載不同射源分布的燃料束進行作護箱內部輻射場分布與外部表面劑量率分布的探討。

本團隊過往的研究已建立起 ADVANTG/MCNP[4]與 SCALE/MAVRIC[5]等大範圍深穿透輻射遷移問題的分析技術，此二方法的理論基礎均採所謂 Consistent Adjoint Driven Importance Sampling (CADIS)技巧，同時結合決定論法(Deterministic Methods)與蒙地卡羅法(Monte Carlo Methods)的優點，以決定論法程式先執行一次簡易近似的伴隨遷移(Adjoint Transport)計算，自動化地產生適用於三維蒙地卡羅程式的權重射源分布(Biased Source)及粒子權重地圖(Weight Window Map)，可非常有效地優化後續蒙地卡羅程式的計算效率。上述二方法均具備有在短時間內能快速驗證困難輻射屏蔽相關計算的能力，但其有效實現要求使用者同時具備對於決定論法與蒙地卡羅法輻射遷移計算的深入了解與經驗，因此持續對於此議題的深入探討有利未來協助國內用過核子燃料乾貯系統的輻射安全分析與審查作業。

針對此研究的主題，原則上 ADVANTG/MCNP 或是 SCALE/MAVRIC 應該都可以使用，本團隊考量整體使用與繪圖呈現的便利性，本計畫選擇 MAVRIC 程式為主。MAVRIC 程式屬於知名 SCALE (Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation)程式集中的專門用於輻射屏蔽分析的一個控制模組，SCALE 程式集是由橡樹嶺國家實驗室(ORNL)所建立與維護的計算機程式集合，可應用於反應器物理、臨界安全、燃耗計算、輻射屏蔽、用過核子燃料特性等分析，該

程式集目前最新版本為 6.2 版。SCALE 程式集中有許多具有不同功能的子程式，稱之功能模組(通常設計來解決一個定義清楚但相對小範圍的特定物理問題或資料處理，例如：Resolved 共振截面處理、Unresolved 共振截面處理、一維輻射遷移計算、核種累積與衰變等等)，透過 SCALE 程式集設計良好的介面，功能模組通常可以獨立執行，亦可以串接的方式連接其他功能組成完整控制模組以進行大範圍實際問題的整合性分析。以本研究的主角 MAVRIC 控制模組為例，為其執行流程，此控制模組自動化地串接特定功能的子程式進行不同功能的串接計算：MAVRIC 控制模組依序以串接 XSPROC(新設計之截面處理程式，整合取代過往 BONAMI、NITAWL 或其他相關程式)產生計算問題所需的 Problem-dependent 核子截面資料，再以 Denovo 程式執行決定論法的常規與伴隨遷移計算，再利用目前最先進的 Consistent Adjoint Driven Importance Sampling (CADIS)理論建構產生權重射源分布以及各區域粒子遷移的權重地圖，最後以 Monaco 程式應用 Denovo 產生之變異數降低參數有效地執行蒙地卡羅法的粒子遷移計算。

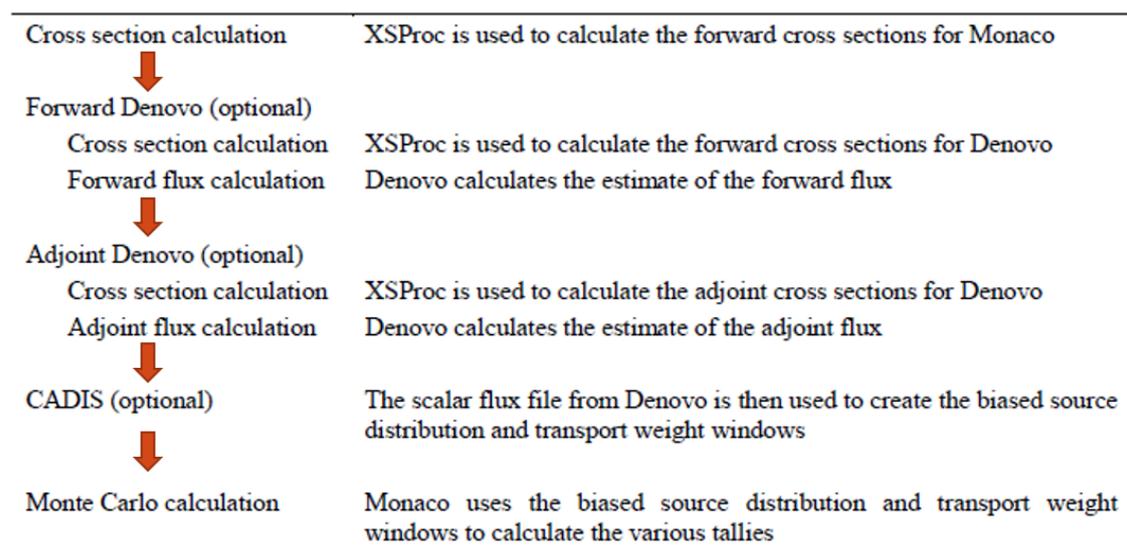


圖 2- 1、MAVRIC 控制模組的執行流程[5]

本子計畫的主要工作與執行的步驟擬定如下：

(1)乾貯護箱內輻射場相關資訊蒐集研析：特別著重那些有考慮密封鋼桶內

部詳細構造的文獻，以利本研究建立合適模型的參考，以及後續分析比較的對象。乾貯護箱輻射屏蔽分析文獻眾多，但絕大部分都是採用四區均質化(UEF、Plenum、Effective Fuel、LEF)密封鋼筒的近似，此一近似作法也符合美國核管會對於乾貯護箱輻射安全分析的要求，但是對於本研究的目的(結合詳細輻射與熱流分布藉以探討殘存水對燃料護套的影響)可能不夠精細，值得進一步探討比較；

(2)護箱內加馬及中子輻射場之假想護箱評估模式建立：以 SCALE/MAVRIC 程式建構假想護箱的屏蔽分析模型，本團隊初步考量二個幾何模型，分別對應到均質化的密封鋼筒與具有詳細燃料束排列結構的密封鋼筒。實務上，建構詳細的護箱模型不容易，尤其是有關密封鋼筒內部的構造，因為文獻中公開的各式乾貯護箱安全分析報告通常著重護箱外部表面劑量率，不會也不需要提供護箱內部的劑量率分布，因此通常缺乏有關密封鋼筒內部的尺寸與材質描述。本研究幾何模型建立與用過核子射源項描述首先參照核一廠乾貯安全分析報告[5]，不足之處再透過其他文獻或是依學理進行合理推測；

(3)代表案例之加馬與中子輻射場分析計算：基於前述二種護箱模型(均質化與詳細的密封鋼筒)，本團隊以 SCALE/MAVRIC 程式進行假想護箱全尺寸細網格的中子與加馬射線劑量率分布。以輻射安全分析角度可接受之均質化密封鋼筒護箱模型為基礎，比較具有詳細密封鋼筒構造之護箱的計算結果，探討用過燃料束與密封鋼筒幾何對於護箱內外中子與加馬射線劑量率的影響，量化相關差異以利未來應用的參考；

(4)護箱內加馬與中子輻射場分布差異及對表面劑量貢獻研析：此一階段的研究是基於前述詳細密封鋼筒之護箱的計算結果延伸發揮，進一步考量 56 束用過核子燃料特性的可能分布(不同於安全分析中假設 56 束皆裝載設計基準燃料的情況)，考量密封鋼筒內部用過核子燃料為非均勻射源，將燃料束區分為三群(不同燃耗高低與不同冷卻時間的組合)作討論，考慮不同裝載排列的方式，探討其對護箱內外中子與加馬射線劑量率的影響，一方面提供更可靠的輻射分布資訊

給熱流與水化學分布使用，一方面可以更深入內部輻射場特性如何影響護箱外部表面中子與加馬射線劑量率的分布，有利未來輻射安全分析的審查；

(5)研提護箱內輻射場評估審查重點或注意事項：綜合前述二個護箱模型(均質化與詳細密封鋼筒)的分析結果，加上二種用過核子燃料裝載情節(均勻射源與分群排列)的分析結果，彙整研究的經驗與成果，研提護箱內外輻射場評估審查重點或注意事項，以利未來應用。

上述 5 個工作項目的研究成果與討論分別呈現於下列第三章到第七章，最後第八章則彙整說明本計畫的概況與主要貢獻。

### 第三章、乾貯護箱內輻射場相關資訊蒐集研析

本研究蒐集了 6 篇針對乾式貯存護箱相關輻射安全分析技術與護箱內外劑量評估的議題，極具重要參考價值之文獻，研析如下：

第一篇文獻為 Jiang et al. (2012)等人發表的論文[6]，針對台電公司核一廠預計進行熱測試的 TSC01 護箱作護箱表面劑量率分析以利後續熱測試實驗進行作準備。採用 SCALE6 程式集的 MAVRIC 運算序列進行輻射屏蔽分析，建構 TSC01 護箱的屏蔽分析模型，特別著重於討論以詳細的護箱模型(具細部燃料束結構)與裝載的用過燃料束個別具有各自的射源評估結果。

其中，論文內討論的 56 束用過核子燃料束，是針對台電核一廠熱測試所特別挑選的，具有其每束詳細的燃耗歷程與冷卻時間，每根燃料束有個別對應的射源強度、能譜、與軸向分布。於護箱密封鋼筒內的擺放配置，將衰變熱較強的燃料束至於護箱中間，其餘衰變熱較弱的放置於護箱外側的方式。

最後，文獻分析結果顯示護箱具有詳細的燃料束結構與均質化結構其表面劑量率，特別是總加馬輻射劑量率評估結果(燃料中子、燃料光子、結構光子總和貢獻)，均質化結構約略會有大三倍的結果。文獻特別也與護箱安全分析報告結果作比較，繪製護箱於側邊表面和頂部表面劑量率分布(圖 3-1)確保安全分析報告為保守的合理假設。

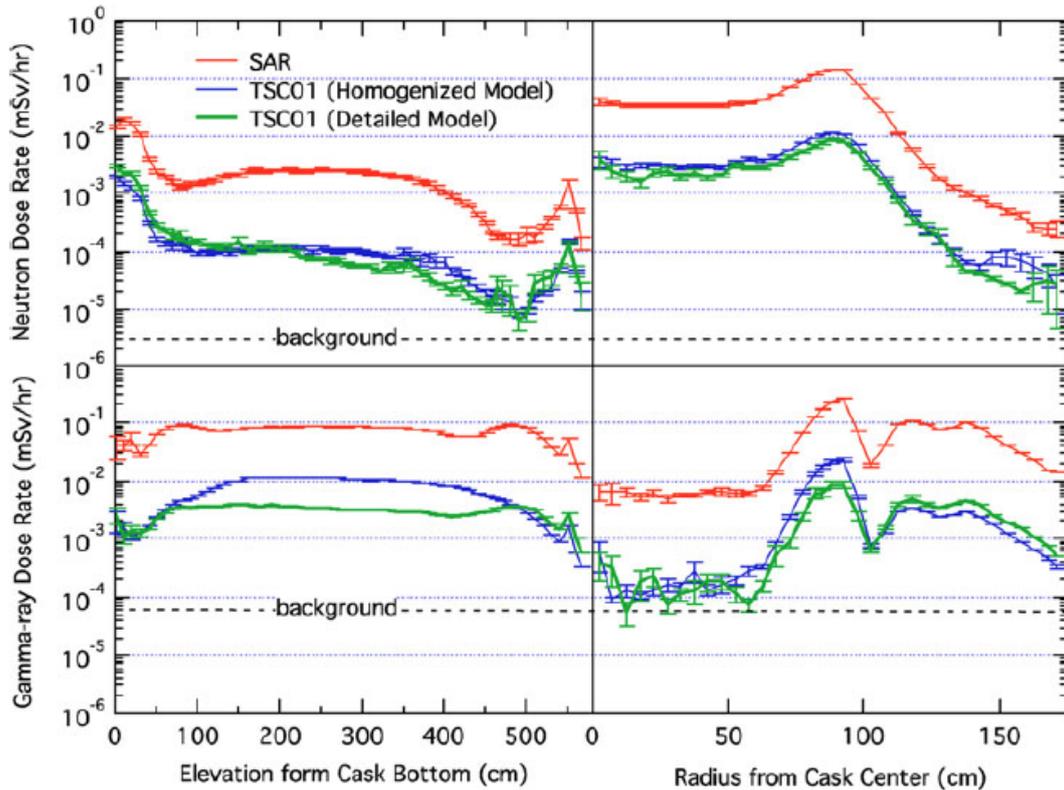


圖 3-1、護箱表面側邊與頂部中子和光子劑量率分布[6]

第二篇為 2017 年德國研究團隊於 ICRS-13&RPSD-2016 國際會議發表的論文[7]。於 2009 年 4 月，德國中期貯存設施 Gorleben 對 TN85 護箱進行了一系列劑量率和能譜測量的實驗，其實驗利用 AD 6 偵檢器(Automess)進行加馬輻射劑量率量測；及利用 LB 6411 偵檢器(Berthold)與一系列商用波那球(Bonner Spheres)進行中子輻射劑量率量測。此篇論文主要為以 SCALE/MAVRIC 程式對 TN85 護箱進行屏蔽分析模擬，並與前述的實驗量測數值作比較討論。

TN85 護箱為貯放用過核子燃料再處理後的玻璃固化物，為運輸和貯存的兩用金屬護箱。TN85 護箱，外觀直徑約為 2.3 m，高度約為 6 m，可裝載 28 束玻璃固化物，其護箱實體示意圖與以 SCALE 程式建構的護箱屏蔽模型如圖 3-2 所示。德國研究團隊以 SCALE 程式下的 ORIGEN-ARP 進行玻璃固化物的射源項評估，以 SCALE 程式下的 MAVRIC 程式進行 TN85 護箱劑量率分析。

圖 3-3 為 TN85 護箱表面實驗量測值與計算評估值，圖 3-3 左為加馬輻射，右為中子輻射。TN85 護箱計算評估的劑量率大多低於量測數值，僅有少數幾個點除外，加馬劑量率平均低於量測值 49%，中子劑量率平均約低於量測值 19%。造成評估結果與量測數值差異的原因可能在於評估模型的差異、實際量測時周遭環境的影響、與量測儀器的能量依存性。此論文成功展示以 SCALE/MAVRIC 程式進行護箱表面劑量率的評估(與本研究採用的分析程式相同)，更與一系列的金屬護箱量測實驗數值作比較，提供兩者比對上的差異原因探討。

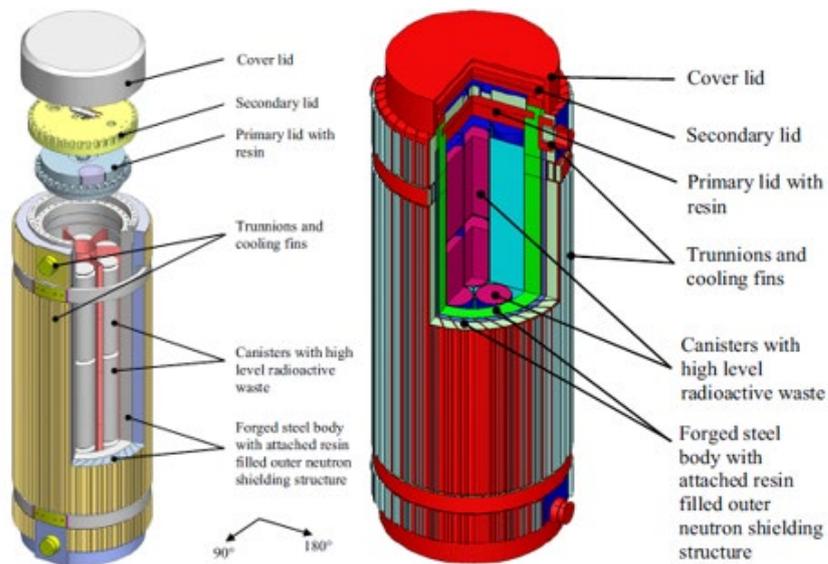


圖 3-2、(左)TN85 金屬護箱實體圖及(右)SCALE 建構 TN85 金屬護箱模型[7]

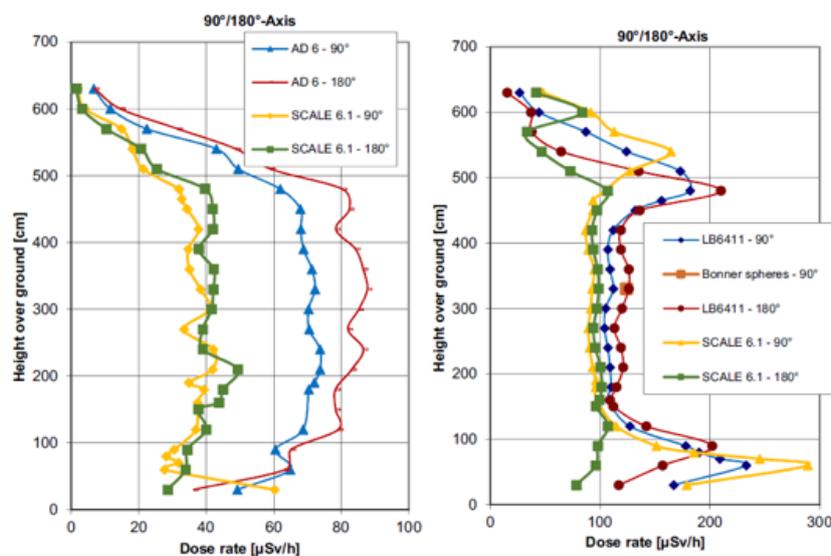


圖 3-3、TN85 金屬護箱表面劑量率實驗量測值與計算評估值(左)加馬(右)中子[7]

第三篇文獻為 2017 年立陶宛團隊發表的論文[8]，主要介紹兩種護箱 CASTOR RBMK-1500(金屬護箱)和 CONSTOR RBMK-1500(混凝土護箱)經長期貯存(300 年)的總劑量率評估結果。此外，也對長期貯存期間中子和加馬劑量率變化，與其對應中子和光子不同能群間對劑量貢獻的差異作討論。

整體研究主要分析模式過程分兩步驟：第一部分，以 SCALE6.1/TRITON 程式進行用過燃料特性分析，包含爐心燃耗過程中用過燃料束內核種存量與燃料束輻射特性變化及後續長期貯存期間核種衰變；第二部分，利用前步驟取得的用過燃料特性以 SCALE6.1/MAVRIC 程式進行兩種護箱劑量率評估。

CASTOR RBMK-1500(金屬護箱)和 CONSTOR RBMK-1500(混凝土護箱)的外觀，直徑大於 2 m，高度大於 4 m，內部搭配 32 M 提籃，可放置 102 支半束的 RBMK-1500 用過核子燃料(102 used RBMK-1500 fuel half-assemblies)。此篇論文以 MAVRIC 程式建構詳細的上述兩種護箱屏蔽分析模型，進行護箱外總劑量率(探討距離護箱 0 和 2 m 處位置)經長期貯存(5-300 年)的結果評估(圖 3-4)，分頂部(Lid)、側牆(Side wall)和底部(Bottom)三處作討論，後續更詳細地區分出其中兩種輻射(中子和加馬輻射)各別的劑量率貢獻圖 3-5，並對應中子和光子不同能群間對劑量貢獻的差異作討論。

在護箱側牆跟底部兩處，對於 CASTOR 護箱而言，貯存初期中子和光子的劑量率貢獻是相近的；對 CONSTOR 護箱而言，貯存初期兩處皆以光子為最主要貢獻。在護箱頂部，兩護箱在貯存初期皆以中子為主要貢獻來源。經長期貯存 300 年後，兩種護箱外部三處的總劑量率貢獻來源主要來自於中子。文獻內對於兩種護箱經長期貯存後劑量率貢獻變化分輻射種類、能量作了詳細的討論。

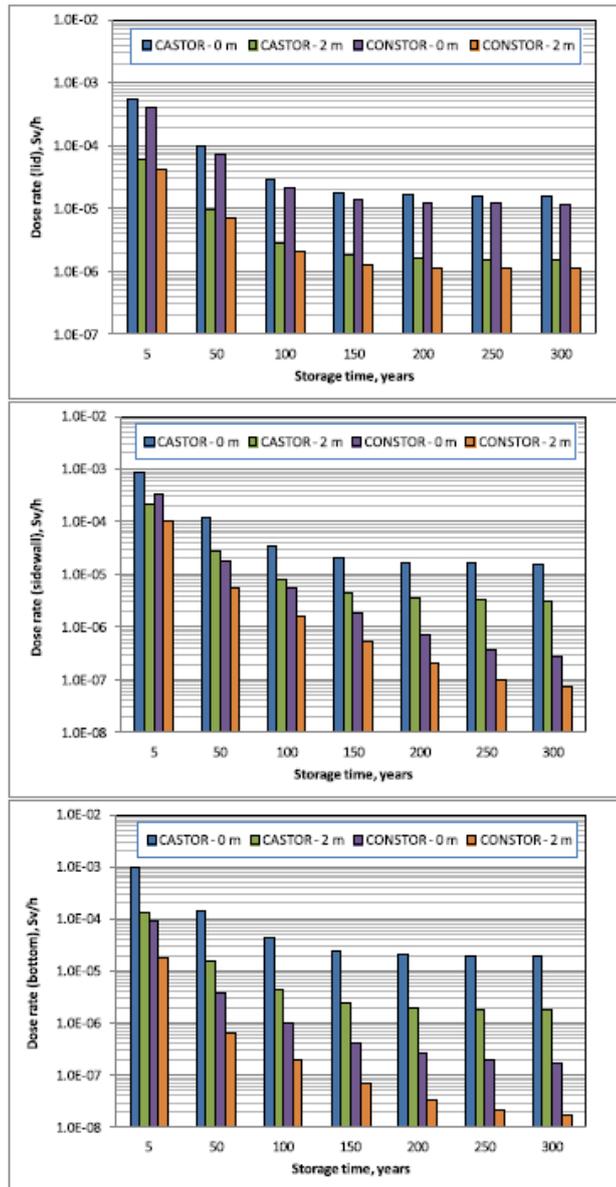


圖 3-4、CASTOR 與 CONSTOR 護箱總劑量率經長期貯存之評估結果[8]

**CASTOR® RBMK-1500**

**CONSTOR® RBMK-1500**

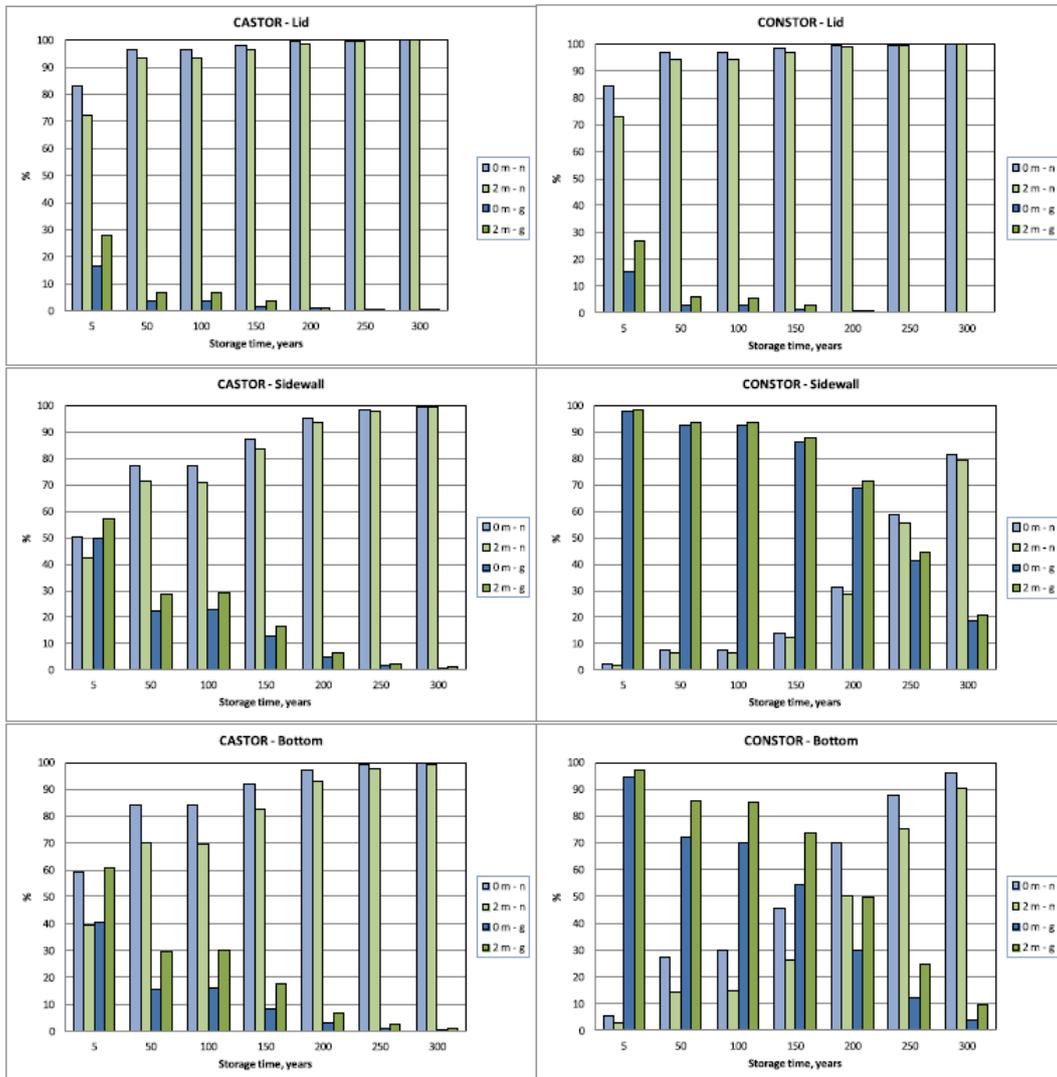


圖 3- 5、CASTOR 與 CONSTOR 護箱中子與光子兩種輻射貢獻之劑量率經長期貯存之評估結果[8]

第四篇文獻和第五篇文獻為美國團隊在2018年和2019年發表的論文[9, 10]，2018年論文探討應用兩種護箱屏蔽模型(詳細燃料束結構和均質化燃料束結構)，考慮不同的輻射粒子作用截面(多能群粒子截面與連續能量粒子截面)，呈現在TN-32金屬護箱周遭劑量率分布評估之正確性與蒙地卡羅計算效率的優劣探討，文獻中強調以具有自動化變異係數降低功能的SCALE/MAVRIC程式來分析實際乾貯護箱此類的深穿透屏蔽問題是非常有效的。作者仔細地比較護箱劑量率分布應用均質化的與詳細結構的用過核子燃料束兩種幾何模型(圖3-6)和考慮兩種粒子作用截面(V7-200N47G與Continuous energy)。圖3-7呈現TN-32護箱側邊與頂部劑量率分布，發現對於中子劑量率而言，其對於幾何模型差異的依存性是大於粒子作用截面的；對於中子造成的二次光子而言，幾何與作用截面同樣重要；對於佔劑量率貢獻大宗的(~90%)燃料光子而言，作用截面重要性更甚於燃料幾何結構。整體文獻研究流程包含從射源項計算到四種護箱模擬案例情節劑量率結果比較，上述相關成果與經驗值得本研究注意與參考。

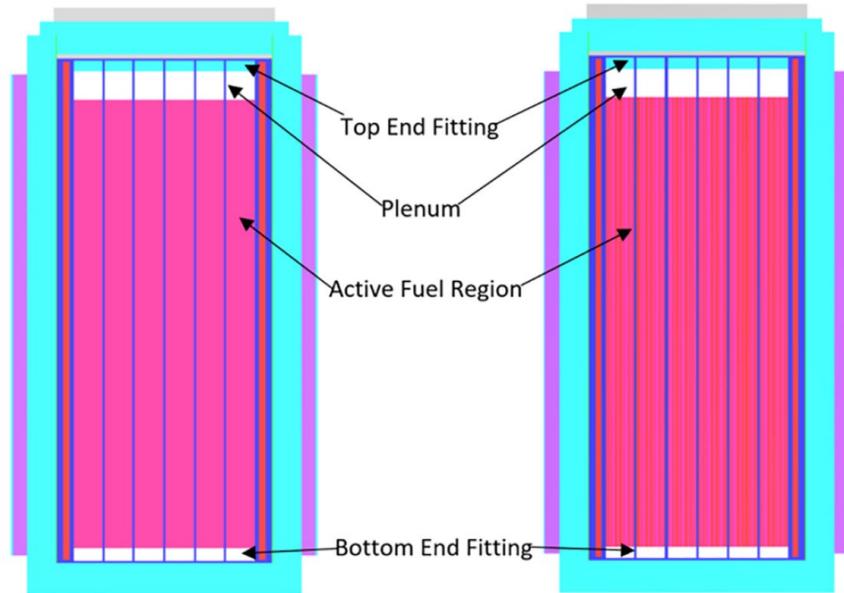


圖 3- 6、TN-32 護箱屏蔽模型，(左)均質化燃料束結構，(右)詳細燃料束結構[9]

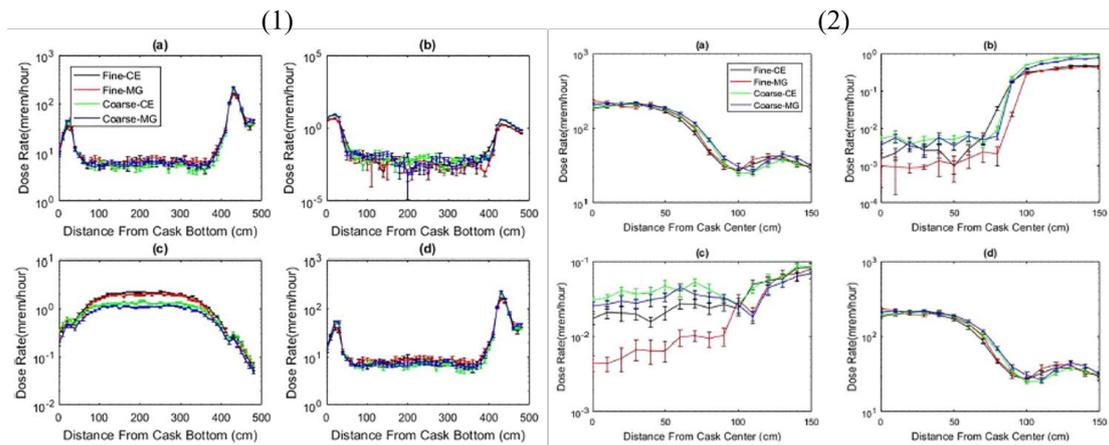


圖 3- 7、TN-32 護箱(1)側邊及(2)頂部表面劑量率分布，(a)光子劑量率、(b)中子劑量率、(c)二次光子劑量率、(d)總劑量率。[9]

2019 年論文為該作者延續之前的研究標的 TN-32 金屬護箱，進而探討長期貯放(300 年)的護箱劑量變化，並以 SCALE/MAVRIC 進行評估結果與量測數據作比較，評估模式結果顯示與實驗數值總劑量率為 7% 的差異[10]。後續仍評估區分燃料光子、結構光子、燃料中子、二次光子的劑量率貢獻，並探討護箱各角度對劑量評估的影響等。圖 3- 8 為護箱側邊和頂部表面劑量率分布隨貯存時間變化。

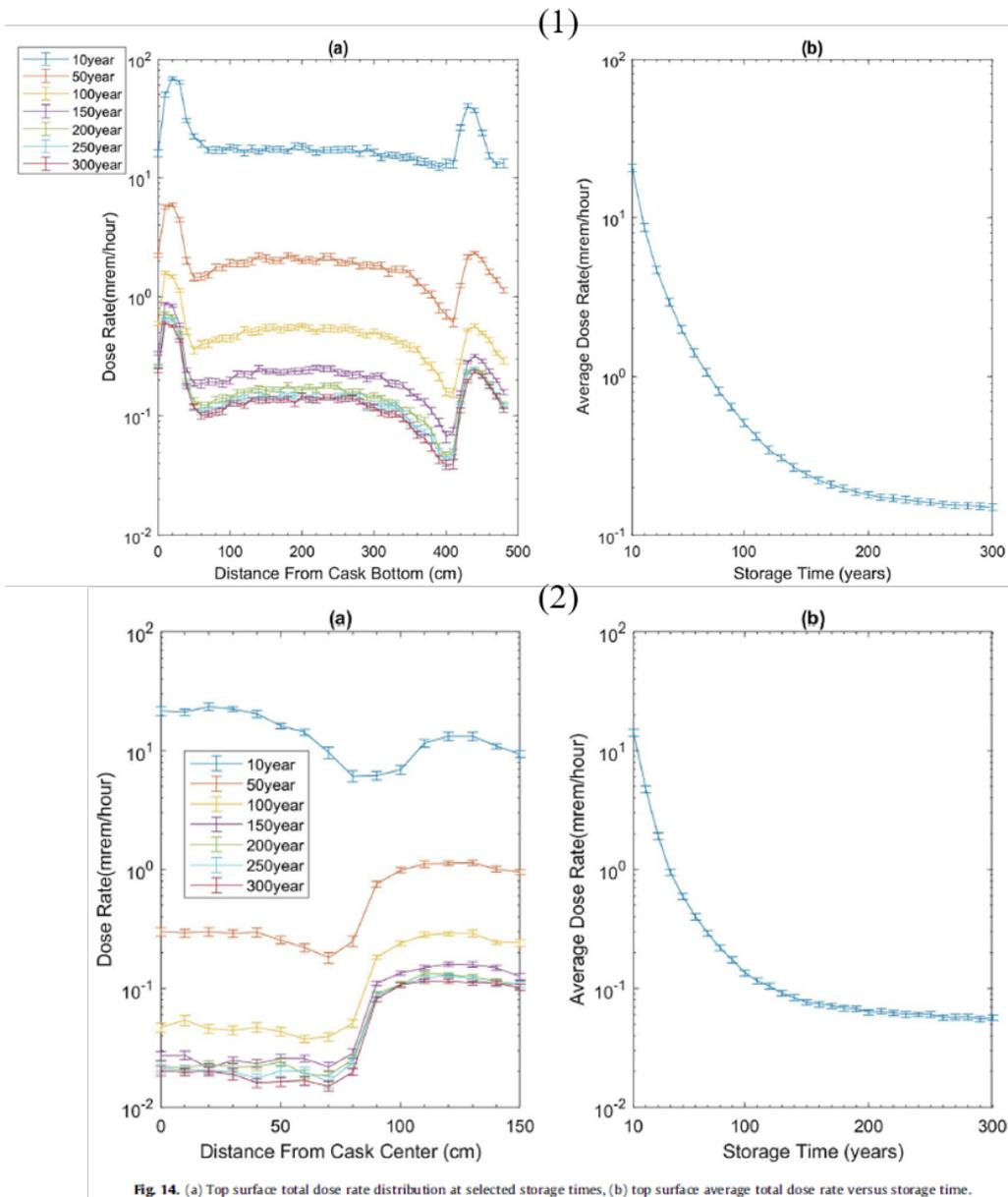


Fig. 14. (a) Top surface total dose rate distribution at selected storage times, (b) top surface average total dose rate versus storage time.

圖 3- 8、TN-32 護箱(1)側邊及(2)頂部表面劑量率分布經不同貯存時間，(a)護箱表面劑量率分布(b)護箱表面平均劑量率隨貯存時間變化[10]

第六篇文獻為克羅埃西亞團隊 2022 年近期發表的論文，分析標的為 HI-TRAC VW 傳送護箱，可裝載 37 束用過核子燃料。屏蔽分析分兩部分進行(1)使用 ORIGEN-S 模組進行射源項分析，需考慮燃料在爐心的運轉歷程及貯放於用過燃料池的時間；(2)使用 MCNP 程式進行護箱在正常貯存與意外事故的護箱劑量率分析，考慮燃料中子、燃料光子、結構光子等源項的貢獻。為有效加速蒙地卡羅計算，本研究引入 ADVANTG 對 MCNP 作加速，其原理與本研究採用的

MAVRIC 相同，只是實現工具有差異。該研究以 MCNP 程式建構 HI-TRAC VW 屏蔽分析模型，考慮了細部的燃料束結構(圖 3- 9)。並且在劑量率評估結果呈現護箱內部劑量率分布情形(圖 3- 10)，與本計畫研究目的有所類似，值得進行更深入探討。

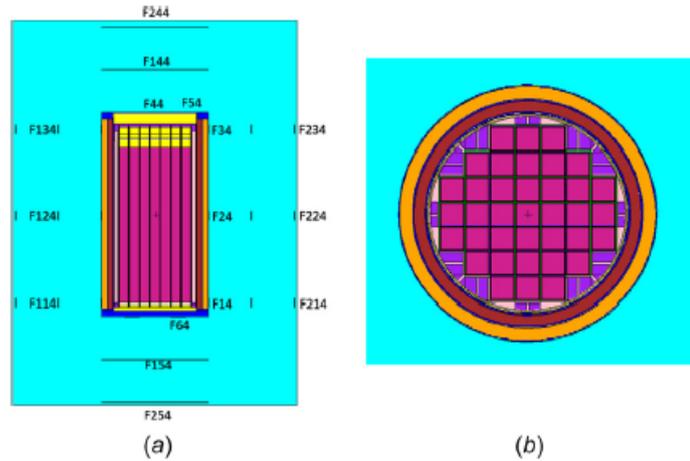


圖 3- 9、HI-TRAC VW 護箱屏蔽分析模型，(a)軸向切面、(b)徑向切面[11]

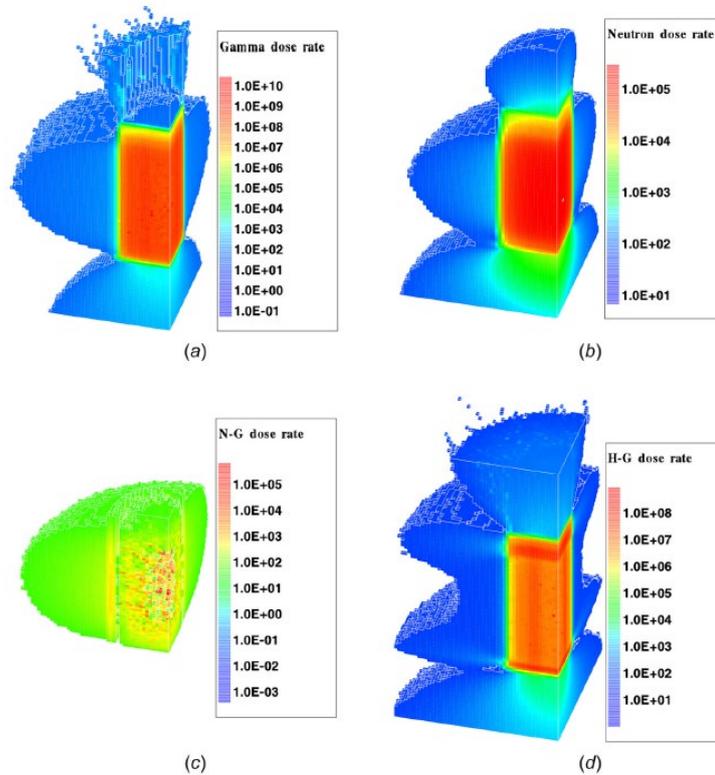


Fig. 5 Dose rate ( $\mu\text{Sv/h}$ ) volume distributions: (a) neutron, (b) fuel gamma, (c)  $n-\gamma$  gamma, and (d) hardware gamma

圖 3- 10、HI-TRAC VW 護箱劑量率分布[11]

總結蒐集的六篇論文內容如下：

- (1) Jiang et al. (2012)：文獻針對預計進行熱測試的 TSC01 護箱(每根燃料束有個別對應的射源強度、能譜、與軸向分布)，以 MAVRIC 運算序列進行輻射屏蔽分析，著重於討論以詳細的護箱模型(具細部燃料束結構)與裝載的用過燃料束個別具有各自的射源評估結果。護箱表面側邊和頂部劑量率分布析結果顯示護箱具有詳細的燃料束結構與均質化結構其表面劑量率，特別是總加馬輻射劑量率評估結果(燃料中子、燃料光子、結構光子總和貢獻)，均質化結構約略會有大三倍的結果。
- (2) Thiele and Borst (2017)：展示以 SCALE/MAVRIC 程式進行護箱表面劑量率的評估，更與一系列的金屬護箱量測實驗數值作比較，提供兩者比對上的差異原因探討。
- (3) Šmaizys et al. (2017)：以 MAVRIC 程式進行 CASTOR 與 CONSTOR 兩種護箱劑量率評估，呈現長期貯存期間護箱中子和加馬劑量率變化，與其對應中子和光子不同能群間對劑量貢獻的差異作討論。
- (4) Gao et al. (2018)：探討應用兩種護箱屏蔽模型(詳細燃料束結構和均質化燃料束結構)，考慮不同的輻射粒子作用截面(多能群粒子截面與連續能量粒子截面)，強調以具有自動化變異係數降低功能的 SCALE/MAVRIC 程式來分析實際乾貯護箱此類的深穿透屏蔽問題是非常有效的。
- (5) Gao et al. (2019)：建立針對護箱長期貯存的屏蔽分析與劑量評估計算方法與工具，區分劑量率貢獻來源，並探討護箱各角度對劑量評估的影響等，可提供本計畫相關蒙地卡羅模擬計算學習參考與注意事項。
- (6) Grgić et al. (2022)：引入 ADVANTG 對 MCNP 作加速，其原理與本研究採用的 MAVRIC 相同，只是實現工具有差異。以 MCNP 程式建構細部的燃料束結構護箱模型，並在劑量率結果呈現護箱內部劑量率分布情形，與本計畫研究目的有所類似，值得參考。

## 第四章、護箱內加馬及中子輻射場之假想護箱評估模式

為了精進乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布的研析技術，本研究以第二章闡述的混合式輻射遷移程式 SCALE/MAVRIC，應用 CADIS 理論，結合決定論法與蒙地卡羅法的優點，來進行後續乾貯護箱三維的輻射遷移計算。

此章分為兩個部分：4.1 節描述標的護箱相關資訊，並建構兩種護箱屏蔽分析模型：(1)均質化的密封鋼筒護箱模型、(2)具詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱模型；4.2 節描述假設用過核子燃料源項，同樣分兩種用過核子燃料束源項：(1)平均燃料束源、(2)56 束燃料束源項(56 區分為 A、B、C 類用過核子燃料射源)，再分別對燃料中子、燃料光子及結構光子作說明。

### 4.1 標的護箱屏蔽分析模型

本研究選擇以 NAC-UMS 混凝土護箱作為標的護箱，其護箱內部可裝載 56 束沸水式反應器的用過核子燃料束，建構模型部分幾何結構與材料設定主要參考自核一廠第一期乾貯安全分析報告內的公開資料[3]。本節分別建構兩種護箱屏蔽分析模型作討論，護箱外部依參採資料進行詳細的幾何模型建構，內部裝載 56 束用過核子燃料束的密封鋼筒則採兩種截然不同的模型近似：(1)均質化的密封鋼筒(Homogenized Canister)，其密封鋼筒內部的幾何與材料設定將用過核子燃料束作均質化處理，依其燃料特性均勻化為四區：上端板區(Upper End-Fitting, UEF)、充氣區(Plenum)、有效燃料區(Effective Fuel)、下端板區(Lower End-Fitting, LEF)，值得注意的是均質化密封鋼筒的模型也是國內過往案例乾貯護箱安全分析報告所採用的方式。(2)具詳細燃料束裝載安排結構的密封鋼筒(Detailed Canister)，其密封鋼筒內部具有 56 束燃料束幾何結構。雖然建模與計算均費時費力，此一模型毫無疑問更符合真實情況，密封鋼筒內部燃料束結構於公開資料[3]不足部分

為研究者自行假設資料。

NAC-UMS 護箱模型主要分兩部分：內部不鏽鋼材質的密封鋼筒與外部具有碳鋼內襯與混凝土材質的混凝土外殼。其中重要屏蔽部件：徑向由密封鋼筒內而外為密封鋼筒殼(1.6 cm)、內襯(6.4 cm)及混凝土外殼(71.9 cm)所組成；軸向由密封鋼筒下往上為密封鋼筒蓋(25.4 cm)、鋼屏蔽塞(10.5 cm)、混凝土屏蔽材料(3.8 cm)，以及混凝土護箱鋼蓋(3.8 cm)所組成。圖 4- 1 為 NAC-UMS 護箱幾何參考圖，圖 4-2 為護箱與密封鋼筒材料組成，建構屏蔽模型過程主要參考自核一廠第一期乾貯安全分析報告內的公開資料[3]，密封鋼筒內部燃料束結構於公開資料[3]不足部分為研究者自行假設資料(僅考慮燃料束格架主體結構，忽略周圍其他小型組件與構造；另外，報告中未明列之材料組成皆假設為不鏽鋼材質)。

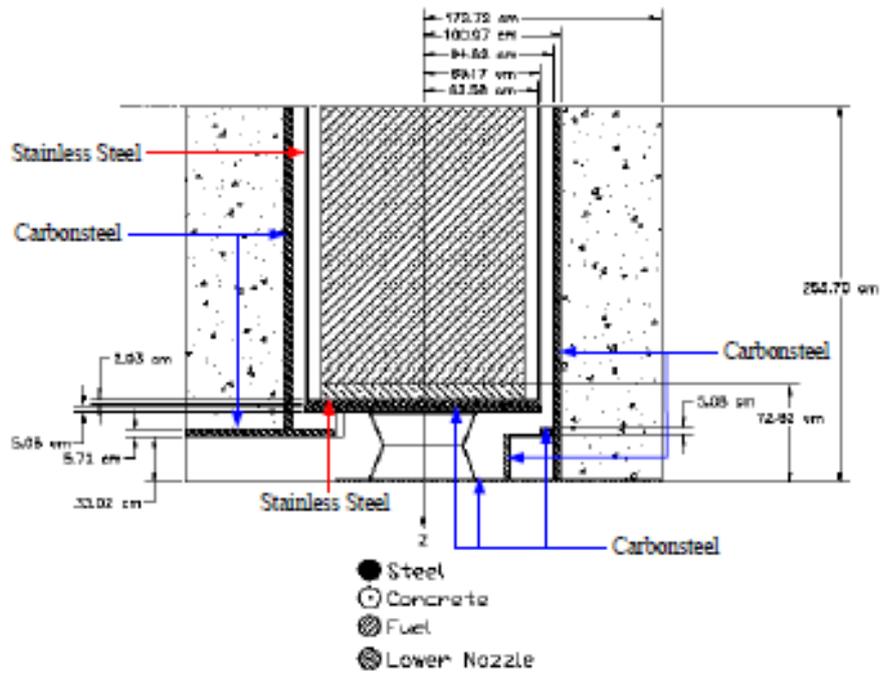
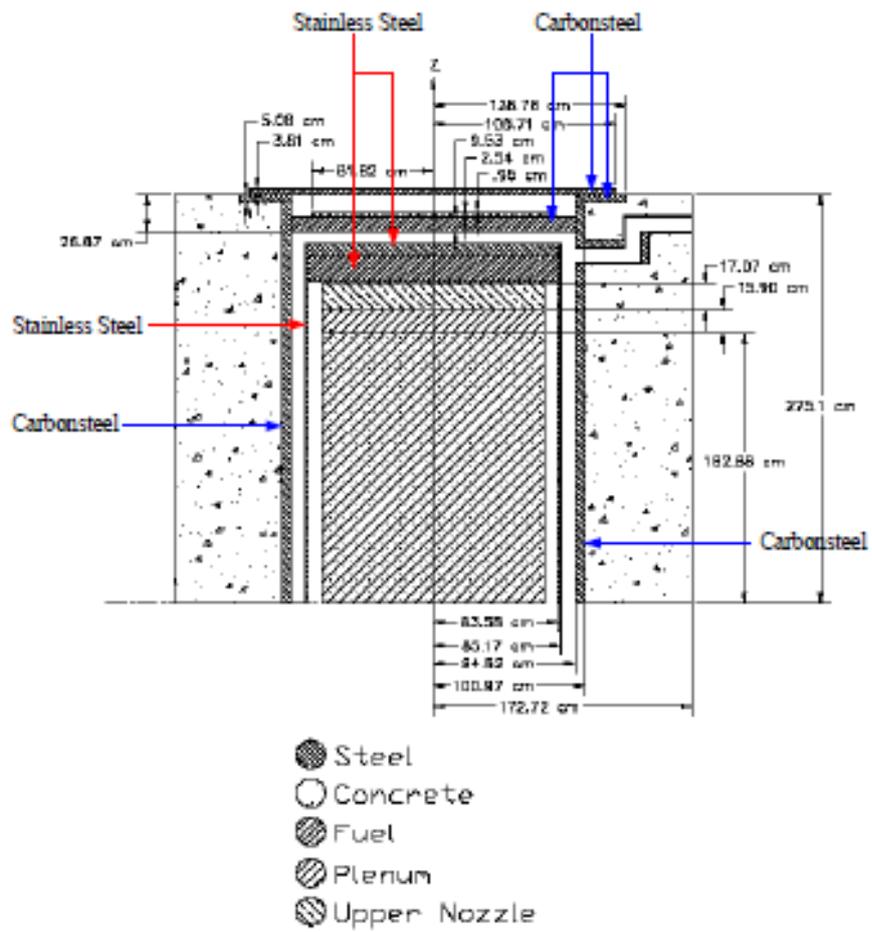


圖 4-1、NAC-UMS 混凝土護箱模型[3]

材質名稱	組成元素	重量百分比 (%)	密度 (g/cm <sup>3</sup> )
混凝土	H	0.999887	2.2426
	O	53.2129	
	Na	2.89923	
	Al	3.39904	
	Si	33.6908	
	Ca	4.39857	
	Fe	1.39962	
不銹鋼 (SS-304)	Cr	18.9995	7.9200
	Mn	1.99990	
	Fe	69.5003	
	Ni	9.50029	
碳鋼	C	1.00088	7.8212
	Fe	98.9991	
鉛	Pb	100.00	11.344
中子屏蔽 (NS-4-FR)	H	6.00890	1.63
	<sup>10</sup> B	0.0872125	
	<sup>11</sup> B	0.383659	
	C	27.6920	
	N	1.98790	
	O	42.5097	
	Al	21.3306	
空氣	C	0.00012	0.001225
	N	0.75527	
	O	0.23178	
	Ar	0.01283	

圖 4-2、NAC-UMS 混凝土護箱與密封鋼筒材料組成[3]

#### 4.1.1 均質化的密封鋼筒護箱屏蔽分析模型

圖 4-3 為具有均質化的密封鋼筒 NAC-UMS 護箱屏蔽分析模型，內部密封鋼筒依其燃料特性均勻化為四區：上端板區、充氣區、有效燃料區及下端板區。內部的密封鋼筒與外部具有碳鋼內襯的混凝土外殼間有空氣通道，且在護箱上下方各具有四個進出氣通道，並為 90° 角度交錯。圖 4-4 為均質化護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面，可以更清楚的看到內部均質化四區的密封鋼筒結構。

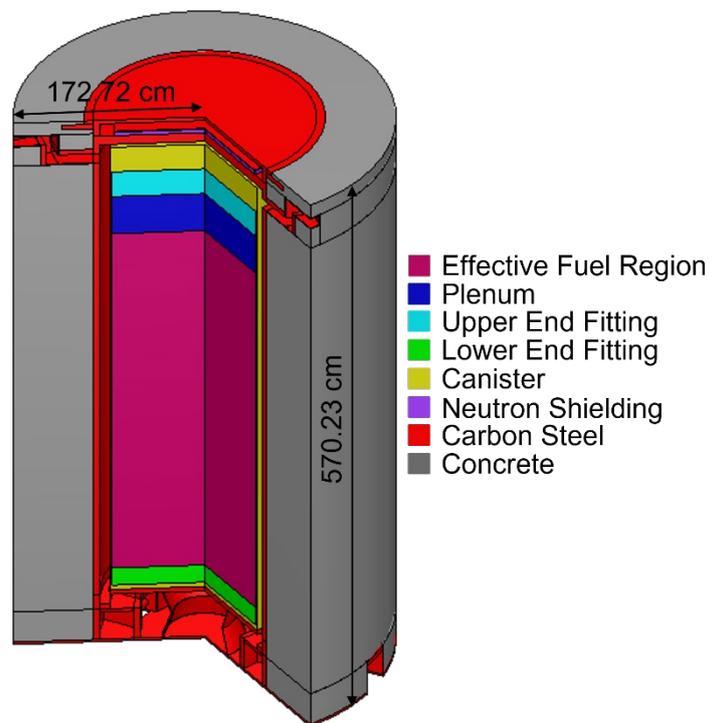


圖 4-3、均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型

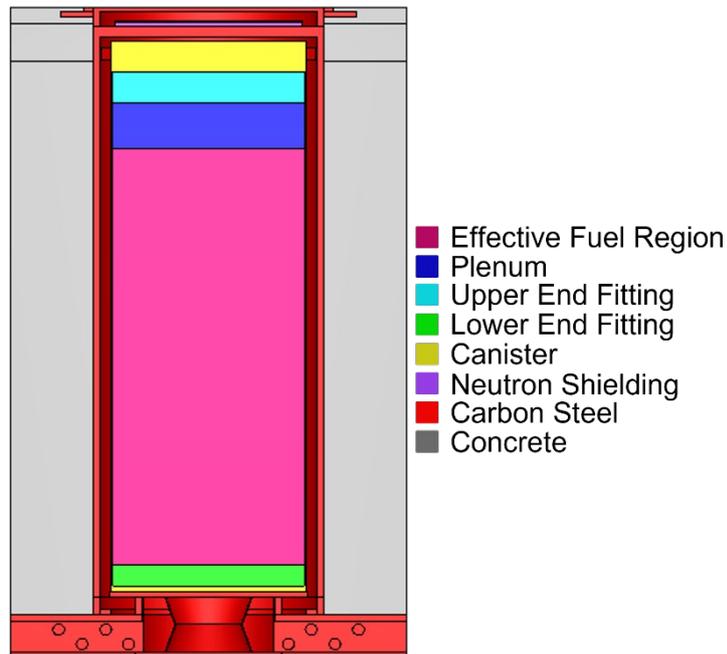


圖 4-4、均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面

#### 4.1.2 具詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱屏蔽分析模型

圖 4-5 為具有詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱屏蔽分析模型，其幾何與 4.1.1 節均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型完全一致，僅在內部密封鋼筒有所不同，圖 4-5 區分密封鋼筒內部裝載的 56 束沸水式用過核子燃料束結構。圖 4-6 為具有詳細燃料束結構密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面，可以清楚的看到每束用過核子燃料束結構，每一束燃料束結構同樣區分上端板區、充氣區、有效燃料區及下端板區等四區。

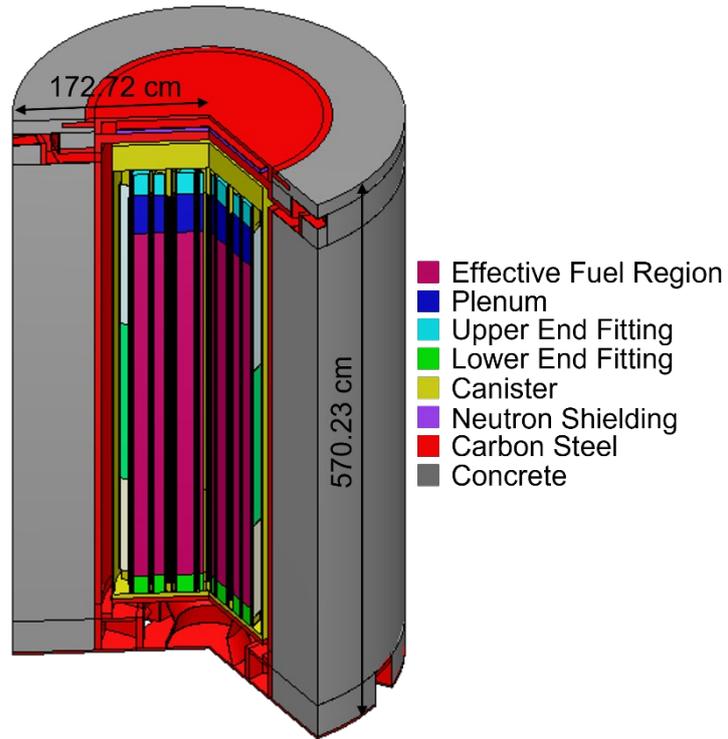


圖 4-5、具有詳細燃料束結構密封鋼筒護箱屏蔽分析模型

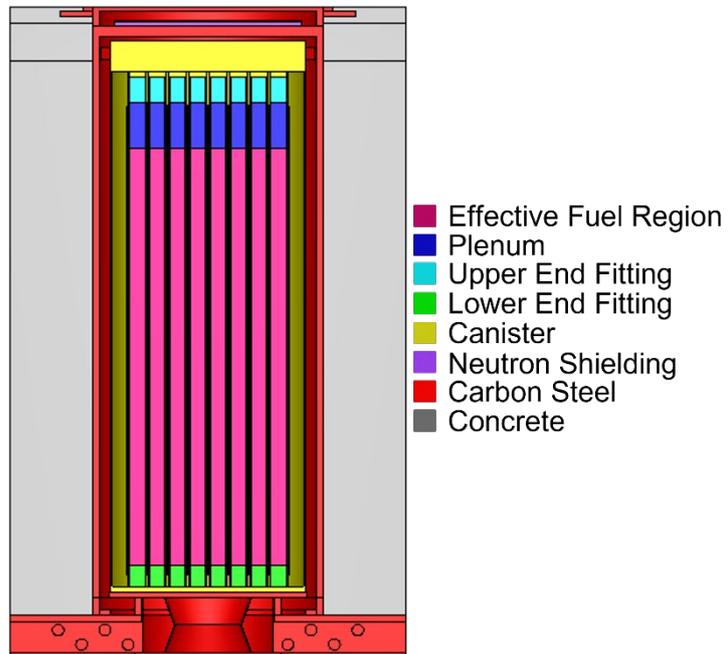


圖 4-6、具有詳細燃料束結構密封鋼筒護箱屏蔽分析模型 X-Z 平面剖面

## 4.2 假想用過核子燃料源項

本研究目的為精進乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布的研析技術，非作為演練實際乾貯護箱屏蔽安全分析報告內容，在此採用一假設之用過核子燃料射源，其具有沸水式用過核子燃料輻射源特性，已足以符合本研究目的。

假設考慮之用過核子燃料束分三種類別：A、B、C 類，A 類燃料束衰變熱最強，B 類次之，C 類最小。其三類燃料束燃耗、 $^{235}\text{U}$  初始濃縮度、冷卻時間等資訊列於表 4-1。為方便後續在第五章進行代表案例之加馬與中子輻射場分析計算比較，本節首先分別描述兩種用過核子燃料束源項。NAC-UMS 裝載的密封鋼筒內能放置 56 束的用過燃料束，三種燃料束類別個別占比如下，A：12，B：18，C：26。(1)平均燃料束源項：將以上述三種燃料束類別數目比例，作射源項的加權平均，以此平均射源項進行後續案例評估。(2)56 束燃料束源項：其配置如圖 4-7，考慮個別燃料束能譜(按 A、B、C 類別區分)，將衰變熱最高的放置在最裡面，依序向外排列，即以 A 類燃料束放置在內圈，B 類燃料束放置在中間，C 類燃料束放置在外圈，區分為三圈，以此 56 束燃料束源項作後續案例評估。

用過核子燃料射源項可區分為三種射源：燃料中子(Fuel neutron, FN)、燃料光子(Fuel Gamma, FG)及結構光子(Hardware Gamma, HG)。燃料中子射源大部分來自鈾系元素的自發性分裂，少部分來自鈾系元素( $\alpha, n$ )衰變反應釋出的中子。燃料光子射源則主要來自分裂產物和鈾系元素衰變放出的加馬射線和 X 射線。結構光子射源主要來自不鏽鋼內含的  $^{59}\text{Co}$  雜質經中子活化後產生之  $^{60}\text{Co}$ ，因燃料束在爐心燃耗的過程中，其結構材料會受到中子照射而被活化，在此參考自核一廠第一期乾貯安全分析報告[3]，假設不鏽鋼材質所含的  $^{59}\text{Co}$  雜質為 1.2 g/kg，並參採安全分析報告[3]內提供之燃料束各區不鏽鋼質量和區域通量比例，以每公斤結構光子能譜與前述兩者相乘後即得到各區段結構光子射源強度。

燃料中子射源強度為燃料中子能譜總合，乘以 r 值( $r=1.582$ [3])，r 值為總射源

率和平均燃耗射源率的比值，引用自核一廠第一期乾貯安全分析報告)，原因為軸向射源分布與軸向燃耗剖面相關，但因中子射源與燃耗間的關係並非為線性，若採用平均燃耗所計算的射源時，需再以  $r$  值作修正， $r$  值為總射源率和平均燃耗射源率之比值；燃料光子射源，同上述燃料中子射源作法，光子之  $r$  值為 1；結構光子軸向分布即為各區域結構光子射源強度比例[3]。

表 4-2 至表 4-4 各別列出燃料中子、燃料光子、結構光子的各能群能譜，圖 4-8 為燃料中子、燃料光子、結構光子個別歸一化能譜圖，可以發現平均燃料束源向(Mix)與 A、B、C 類燃料束歸一化能譜近乎一致，代表此平均燃料束源項作法並無錯誤，可作為 56 束燃料束的平均代表源項。表 4-5 提供燃耗剖面、燃料中子與燃料光子射源軸向分布資訊。圖 4-9 為燃料中子、燃料光子、結構光子軸項分部繪圖。

表 4-6 提供假想護箱燃料中子、燃料光子、結構光子各別射源強度。燃料中子，由表 4-2 提供的平均 Mix 能譜總和，考慮 56 束燃料數目，與經  $r$  值修正後而得；燃料光子，由表 4-3 表提供的平均 Mix 能譜總和，考慮 56 束燃料數目而得；結構光子，考慮燃料束各區不鏽鋼質量和區域通量比例，以由表 4-4 提供的平均 Mix 能譜總和(每公斤結構光子能譜)與前述兩者相乘後即得到各區段結構光子射源強度，再考慮 56 束燃料數目而得。

	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1			C	C	C	C	C		
2		C	C	B	B	B	C	C	
3		C	B	A	A	A	B	C	
4	C	B	B	A	A	A	B	B	C
5	C	B	B	A	A	A	B	B	C
6		C	B	A	A	A	B	C	
7		C	C	B	B	B	C	C	
8			C	C	C	C	C		

圖 4-7、56 束燃料束源項內部燃料配置(A : 12、B : 18、C : 26)

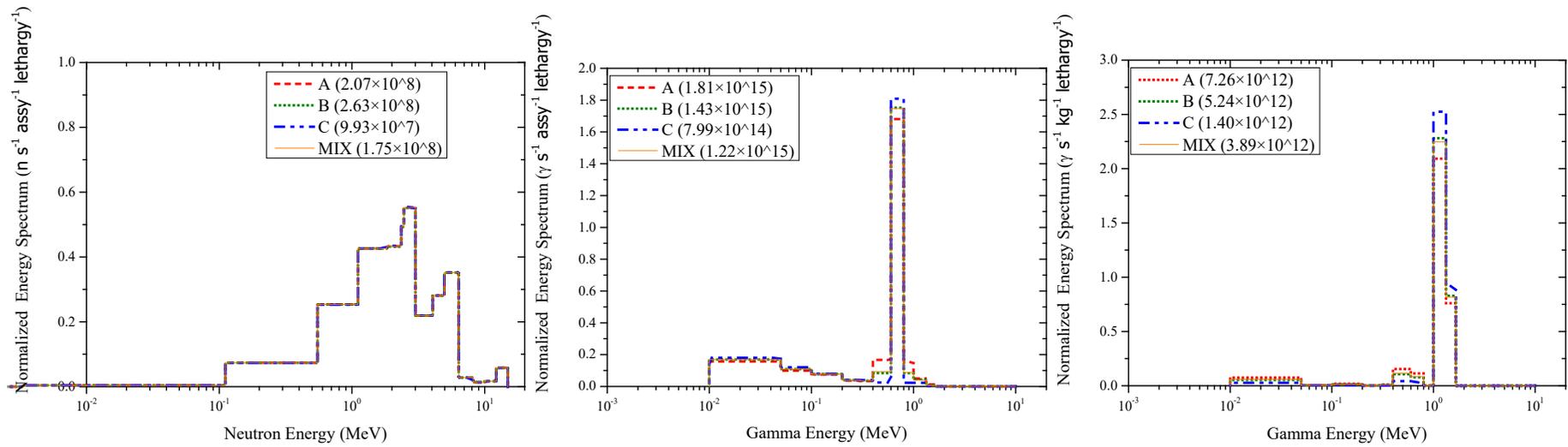


圖 4-8、用過核子燃料射源能譜(左)燃料中子、(中)燃料光子、(右)結構光子

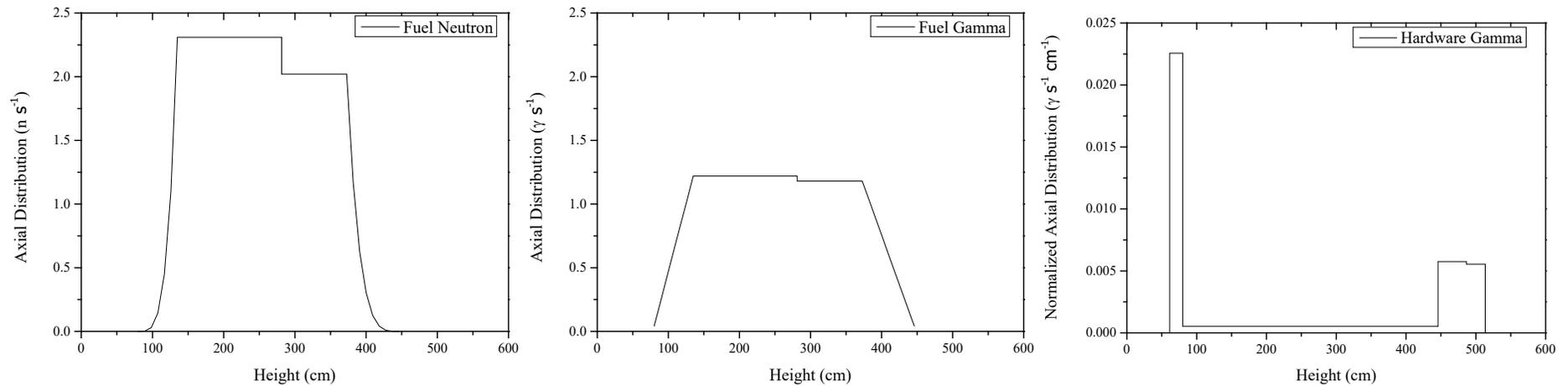


圖 4-9、用過核子燃料射源軸向分布(左)燃料中子、(中)燃料光子、(右)結構光子

表 4-1、假設用過核子燃料束源項類別

類別	計算參數	燃料中子 (n/s/assy)	燃料光子 ( $\gamma$ /s/assy)	結構光子 ( $\gamma$ /s/kg)
A	BU : 54,000 UE : 4.053 CT : 8	<b>2.07E+08</b>	<b>1.81E+15</b>	<b>7.26E+12</b>
B	BU : 52,000 UE : 2.99-4.053 CT : 11	<b>2.63E+08</b>	<b>1.43E+15</b>	<b>5.24E+12</b>
C	BU : 37,000 UE : 1.9-3.3 CT : 20	<b>9.93E+07</b>	<b>7.99E+14</b>	<b>1.40E+12</b>

BU : 燃耗(MWD/MTU)、UE :  $^{235}\text{U}$  初始濃縮度(wt%)、CT : 冷卻時間(y)

表 4-2、燃料中子射源能譜

能群	能量(MeV)		射源強度(n/s/assy)			
	E <sub>low</sub>	E <sub>high</sub>	A	B	C	平均 Mix
1	1.22E+01	1.49E+01	2.43E+06	3.09E+06	1.15E+06	2.05E+06
2	1.00E+01	1.22E+01	6.85E+05	8.78E+05	3.27E+05	5.79E+05
3	8.18E+00	1.00E+01	5.66E+05	7.21E+05	2.71E+05	4.79E+05
4	6.36E+00	8.18E+00	1.45E+06	1.85E+06	6.95E+05	1.23E+06
5	4.96E+00	6.36E+00	1.81E+07	2.30E+07	8.69E+06	1.53E+07
6	4.06E+00	4.96E+00	1.16E+07	1.48E+07	5.59E+06	9.85E+06
7	3.01E+00	4.06E+00	1.36E+07	1.73E+07	6.52E+06	1.15E+07
8	2.46E+00	3.01E+00	2.31E+07	2.93E+07	1.11E+07	1.95E+07
9	2.35E+00	2.46E+00	4.67E+06	5.93E+06	2.25E+06	3.95E+06
10	1.83E+00	2.35E+00	2.24E+07	2.85E+07	1.08E+07	1.90E+07
11	1.11E+00	1.83E+00	4.41E+07	5.62E+07	2.11E+07	3.73E+07
12	5.50E-01	1.11E+00	3.68E+07	4.69E+07	1.76E+07	3.11E+07
13	1.11E-01	5.50E-01	2.44E+07	3.11E+07	1.17E+07	2.06E+07
14	3.35E-03	1.11E-01	2.93E+06	3.74E+06	1.40E+06	2.48E+06
15	5.83E-04	3.35E-03	1.56E+04	1.99E+04	7.48E+03	1.32E+04
16	1.01E-04	5.83E-04	1.08E+03	1.38E+03	5.20E+02	9.18E+02
17	2.90E-05	1.01E-04	6.78E+01	8.65E+01	3.25E+01	5.74E+01
18	1.01E-05	2.90E-05	9.75E+00	1.25E+01	4.67E+00	8.26E+00
19	3.06E-06	1.01E-05	2.09E+00	2.67E+00	1.00E+00	1.77E+00
20	1.12E-06	3.06E-06	3.25E-01	4.14E-01	1.55E-01	2.75E-01
21	4.14E-07	1.12E-06	7.12E-02	9.09E-02	3.41E-02	6.03E-02
22	1.00E-08	4.14E-07	2.09E-02	2.67E-02	1.00E-02	1.77E-02
加總			2.07E+08	2.63E+08	9.93E+07	1.75E+08

表 4-3、燃料光子射源能譜

能群	能量(MeV)		射源強度( $\gamma$ /s/assy)			
	E <sub>low</sub>	E <sub>high</sub>	A	B	C	平均 Mix
1	8.00E+00	1.00E+01	1.20E+05	9.12E+04	2.23E+04	6.54E+04
2	6.50E+00	8.00E+00	5.66E+05	4.29E+05	1.05E+05	3.08E+05
3	5.00E+00	6.50E+00	2.89E+06	2.19E+06	5.36E+05	1.57E+06
4	4.00E+00	5.00E+00	7.19E+06	5.45E+06	1.34E+06	3.91E+06
5	3.00E+00	4.00E+00	3.92E+08	6.24E+07	4.04E+06	1.06E+08
6	2.50E+00	3.00E+00	4.05E+09	5.70E+08	3.38E+07	1.07E+09
7	2.00E+00	2.50E+00	6.80E+10	8.18E+09	1.21E+09	1.78E+10
8	1.66E+00	2.00E+00	9.07E+10	4.43E+10	2.36E+10	4.46E+10
9	1.33E+00	1.66E+00	5.02E+12	2.45E+12	4.91E+11	2.09E+12
10	1.00E+00	1.33E+00	2.59E+13	1.80E+13	5.20E+12	1.37E+13
11	8.00E-01	1.00E+00	6.14E+13	2.69E+13	4.19E+12	2.38E+13
12	6.00E-01	8.00E-01	8.76E+14	7.23E+14	4.16E+14	6.13E+14
13	4.00E-01	6.00E-01	1.23E+14	4.89E+13	8.12E+12	4.57E+13
14	3.00E-01	4.00E-01	1.77E+13	1.50E+13	9.19E+12	1.29E+13
15	2.00E-01	3.00E-01	2.73E+13	2.31E+13	1.35E+13	1.95E+13
16	1.00E-01	2.00E-01	9.39E+13	7.82E+13	4.40E+13	6.57E+13
17	5.00E-02	1.00E-01	1.25E+14	1.08E+14	6.69E+13	9.26E+13
18	1.00E-02	5.00E-02	4.57E+14	3.90E+14	2.32E+14	3.31E+14
加總			1.81E+15	1.43E+15	7.94E+14	1.22E+15

表 4-4、結構光子射源能譜

能群	能量(MeV)		射源強度( $\gamma/s/kg$ )			
	$E_{low}$	$E_{high}$	A	B	C	平均 Mix
1	8.00E+00	1.00E+01	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
2	6.50E+00	8.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
3	5.00E+00	6.50E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
4	4.00E+00	5.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
5	3.00E+00	4.00E+00	6.84E-12	9.02E-12	3.65E-12	6.06E-12
6	2.50E+00	3.00E+00	2.50E+04	1.97E+04	5.84E+03	1.44E+04
7	2.00E+00	2.50E+00	2.93E+07	2.30E+07	6.83E+06	1.68E+07
8	1.66E+00	2.00E+00	6.07E-01	2.83E-02	2.60E-06	1.39E-01
9	1.33E+00	1.66E+00	1.22E+12	9.63E+11	2.86E+11	7.04E+11
10	1.00E+00	1.33E+00	4.33E+12	3.41E+12	1.01E+12	2.49E+12
11	8.00E-01	1.00E+00	3.54E+09	4.66E+08	4.56E+07	9.28E+08
12	6.00E-01	8.00E-01	2.36E+11	1.18E+11	1.26E+10	9.44E+10
13	4.00E-01	6.00E-01	4.52E+11	2.26E+11	2.41E+10	1.81E+11
14	3.00E-01	4.00E-01	2.03E+10	1.02E+10	1.12E+09	8.16E+09
15	2.00E-01	3.00E-01	6.25E+09	3.18E+09	3.65E+08	2.53E+09
16	1.00E-01	2.00E-01	8.90E+10	4.56E+10	5.38E+09	3.62E+10
17	5.00E-02	1.00E-01	2.02E+10	1.44E+10	3.75E+09	1.07E+10
18	1.00E-02	5.00E-02	8.77E+11	4.52E+11	6.02E+10	3.61E+11
加總			7.26E+12	5.24E+12	1.40E+12	3.89E+12

表 4-5、BWR 燃料軸向射源率[3]

%爐心高度	燃耗剖面	光子射源剖面	中子射源剖面
0.00%	4.30E-02	4.30E-02	1.71E-06
2.50%	2.39E-01	2.39E-01	2.39E-03
5.00%	4.35E-01	4.35E-01	2.99E-02
7.50%	6.32E-01	6.32E-01	1.44E-01
10.00%	8.28E-01	8.28E-01	4.50E-01
12.50%	1.02E+00	1.02E+00	1.10E+00
15.00%	1.22E+00	1.22E+00	2.31E+00
55.00%	1.22E+00	1.22E+00	2.31E+00
55.00%	1.18E+00	1.18E+00	2.02E+00
80.00%	1.18E+00	1.18E+00	2.02E+00
82.50%	1.04E+00	1.04E+00	1.17E+00
85.00%	8.96E-01	8.96E-01	6.28E-01
87.50%	7.54E-01	7.54E-01	3.03E-01
90.00%	6.11E-01	6.11E-01	1.25E-01
92.50%	4.69E-01	4.69E-01	4.11E-02
95.00%	3.27E-01	3.27E-01	8.97E-03
97.50%	1.85E-01	1.85E-01	8.10E-04
100.00%	4.30E-02	4.30E-02	1.71E-06

表 4-6、假想護箱射源強度

Source	Region	Strength (n or $\gamma$ /s/cask)
FN	Effective fuel	$1.55 \times 10^{10}$
FG	Effective fuel	$6.83 \times 10^{16}$
HG	Lower end fitting (LEF)	$1.58 \times 10^{14}$
	Effective fuel	$7.19 \times 10^{13}$
	Plenum	$8.72 \times 10^{13}$
	Upper end fitting (UEF)	$5.58 \times 10^{13}$
	Total HG	$3.73 \times 10^{14}$

## 第五章、代表案例之加馬與中子輻射場分析計算

本計畫主軸可分為兩大部分：第一部分為以兩種護箱屏蔽分析模型作護箱內部輻射場分布與外部表面劑量率分布，第二部分規劃以詳細燃料束護箱模型，再搭載不同射源分布的燃料束進行作護箱內部輻射場分布與外部表面劑量率分布的探討。依此規劃，將前述 4.1 節與 4.2 節建構之兩種護箱屏蔽分析模型與兩種用過核子燃料束源項，劃分為以下三種代表案例：

(1) 案例一(Model 1)：均質化護箱幾何搭配平均燃料束源項

(Homogenized geo & Mix source(FN×1、FG×1、HG×1))

(2) 案例二(Model 2)：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配平均燃料束源項

(Detailed geo& Mix source(FN×1、FG×1、HG×1))

(3) 案例三(Model 3)：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配 56 束燃料束源項

(Detailed geo& A、B、C source(FN×3、FG×3、HG×3))

本章成果依據第二章所述之輻射屏蔽分析方法與和第四章建構的屏蔽分析模型進行計算所得，內容呈現案例一、案例二與案例三假想貯存護箱表面劑量率分布，並對其劑量率結果差異處作探討。

本章採用的屏蔽遷移計算程式，皆為 SCALE/MAVRIC 序列，6.2 版為其最新版本。此序列套用 CADIS 理論，可自動化地產生並應用具有一致性的權重射源分布及粒子權重地圖參數作為蒙地卡羅程式模擬過程的變異數降低技巧，適合於類比蒙地卡羅計算較困難的輻射遷移問題，改善其蒙地卡羅模擬效率。CADIS 計算理論為先進行一次粗略的決定論格點座標(Discrete Ordinates,  $S_N$ )計算，由伴隨通量的分布關係建構粒子權重地圖及權重射源分布，應用於後續的蒙地卡羅模擬，使最終能在合理的時間內得到一相對低誤差範圍的結果。MAVRIC 序列利用 Denovo 功能模組作決定論法計算，產生對應之變異數降低參數用於三維 Monaco

功能模組作粒子遷移模擬。後續分析計算，MAVRIC 控制序列之版本，功能模組，與遷移計算各粒子的作用截面庫資訊如所列。

表 5- 1、MAVRIC 程式採用之粒子作用截面資訊

Code package	Hybrid method	Cross-section data
MAVRIC-v6.2.4	$S_N$ (Denovo) + MC (Monaco)	ENDF/B-VII.1 multigroup 28n19g (Denovo) + ENDF/BVII.1 continuous-energy (Monaco)

### 5.1 案例一：均質化護箱幾何搭配平均燃料來源項

案例一，均質化密封鋼筒護箱幾何搭配平均燃料來源項。以 MAVRIC 序列採用 FW-CADIS 理論作計算，其中會進行兩次決定論法計算後再搭配蒙地卡羅法計算。兩次決定論法有個別的作用，第一次的  $S_N$  計算目的為決定模擬問題中多個計分區域各自的權重比例，再搭配正常的 CADIS 理論作計算，此方法的優勢為可以使多個計分區域在一次計算內皆能得到較可靠且一致的計分結果。

護箱表面劑量率分布，以格點計分(Mesh Tally)，採總徑跡長計量方法(Total Track Length Estimator)來定出總粒子通量率，再乘以給定之劑量轉換因子轉成周圍等效劑量。在此，本研究選擇以 ICRP-74 號報告提供的周圍等效劑量轉換因子 (Ambient Dose Equivalent)  $H^*(10)$  作為計分的響應函數值。格點計分定義在護箱側邊和頂部表面 1 cm 處，側邊格點計分將每個高度的各方位角作平均，而頂部格點計分將每個半徑的各方位角作平均。

針對案例一均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型(圖 4- 3)，考量有興趣之格點計分範圍，將決定論法的伴隨射源定義為包覆護箱表面的區域，為使後續的遷移粒子能更有效地遷移至護箱表面造成有效計分。Denovo 將假想護箱屏蔽模型切割為 201,600 (72×70×40)格點，作兩次(Forward  $S_N$  與 Adjoint  $S_N$ )簡化決定論法計

算，格點分布集中於密封鋼筒、進出氣通道、混凝土殼層側邊和頂部等粒子遷移變化較劇烈之區域，再連接 Monaco 蒙地卡羅程式作模擬。

本節以個人桌上型電腦 Windows 10 作業系統搭載 3.70 GHz i9-10900K CPU 和 128 GB RAM 進行分析，三個射源(FN、FG、HG)案例各別總計算時間約 20 h。燃料光子與結構光子兩次  $S_N$  計算約花費 4 min，而燃料中子因需同時考慮中子和光子兩種粒子花費時間較長約 15 min，後續各別再進行蒙地卡羅計算。此處的決定論法計算時間，受案例格點數影響，格點區分越詳細案例幾何與材料特性將更顯著，但對應耗費在  $S_N$  計算的時間將越長，此過程需依靠使用者經驗作取捨，因主要引入 CADIS 理論的目的為對蒙地卡羅模擬作加速。

將案例一評估結果與核一廠第一期乾貯安全分析報告內的表 6.4.7-2[3]相比，列於表 5-2。發現護箱側邊劑量率安全分析報告與案例一皆以光子為主要貢獻，護箱頂部劑量率同樣呈現中子劑量率大於光子劑量率。考慮兩者幾何評估模型近乎一致，用過核子燃料射源能譜近似，惟在射源強度(案例一/安全分析報告：FN=1.38、FG=1.1、HG=0.81)與表面計分範圍有所差別，但大體劑量率分析結果呈現一致，可推論此次在案例一建構的 NAC-UMS 均質化密封鋼筒護箱屏蔽分析模型的分析結果是具有參考價值的。

案例一護箱表面劑量率評估結果，呈現於圖 5-1 至圖 5-4。圖 5-1 為護箱表面側邊劑量率分布，以光子劑量率為主要貢獻，中子劑量率約略小一個數量級，整體平均劑量率約為 0.1 mSv/h。中子分布在護箱上下進出氣口端會有劑量高點，光子分布在有效燃料區呈現劑量平坦分布，且劑量率高於進出氣通道位置。圖 5-2 為案例一護箱表面頂部劑量率，密封鋼筒半徑內以中子劑量率為主要貢獻，密封鋼筒外則以光子劑量為主要貢獻，在密封鋼筒與混凝土殼層間的空氣通道有劑量率高點接近 0.8 mSv/h。

圖 5-3 為護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻，在有效燃料區以燃料光子為主要貢獻，燃料中子產生的二次光子次之，結構光子最小；但在其他區域皆以結構光子為貢獻最大宗，此現象主要原因為燃料中子與燃料光子射源僅存在於有效

燃料區位置，而結構光子在燃料束的四個區域皆有分布。圖 5-4 為護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻，因護箱在密封鋼筒半徑內頂部有多層的金屬屏蔽，所以光子粒子穿越層層屏蔽抵達有效計分位置較為困難，故燃料光子只呈現部分計算結果且統計誤差仍較大。密封鋼筒半徑內以結構光子和燃料中子產生的二次光子為主要貢獻；密封鋼筒半徑外以結構光子為主要貢獻。

表 5-2、NAC-UMS 護箱表面劑量率評估結果比較

評估位置	輻射	核一廠安全分析報告 表 6.4.7-2 劑量率[3] (mSv/h)	案例一評估結果 劑量率 (mSv/h)
距離護箱側邊表面 1 cm 處	中子	$6.28 \times 10^{-3}$	$7.58 \times 10^{-3}$
	光子	$1.07 \times 10^{-1}$	$8.96 \times 10^{-2}$
	總和	$1.13 \times 10^{-1}$	$9.71 \times 10^{-2}$
距離護箱頂部表面 1 cm 處	中子	$1.59 \times 10^{-1}$	$7.99 \times 10^{-2}$
	光子	$3.33 \times 10^{-2}$	$6.81 \times 10^{-2}$
	總和	$1.92 \times 10^{-1}$	$1.48 \times 10^{-1}$

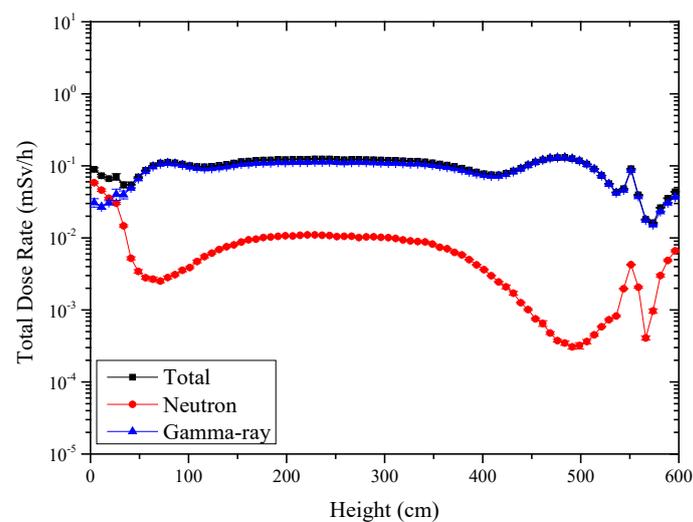


圖 5-1、案例一護箱側邊表面劑量率分布

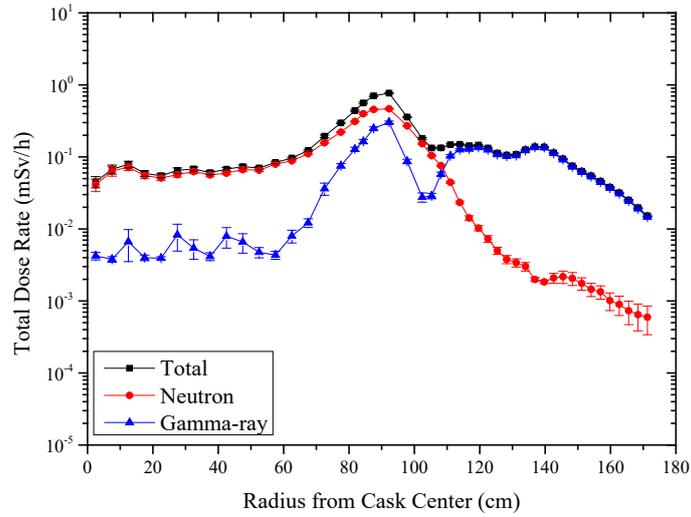


圖 5-2、案例一護箱頂部表面劑量率分布

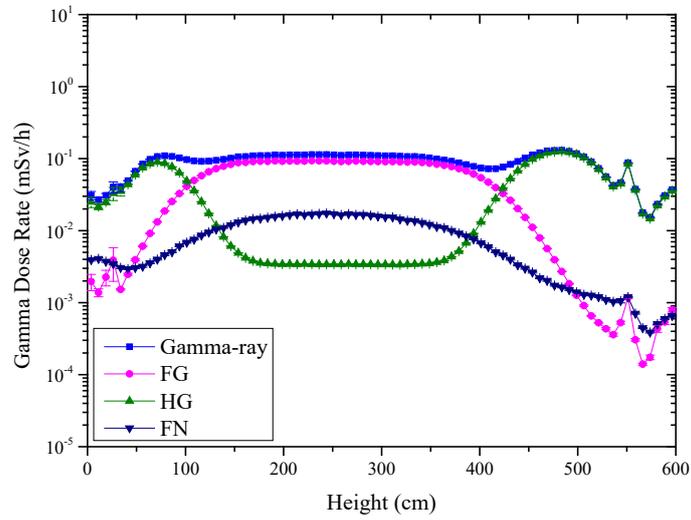


圖 5-3、案例一護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻

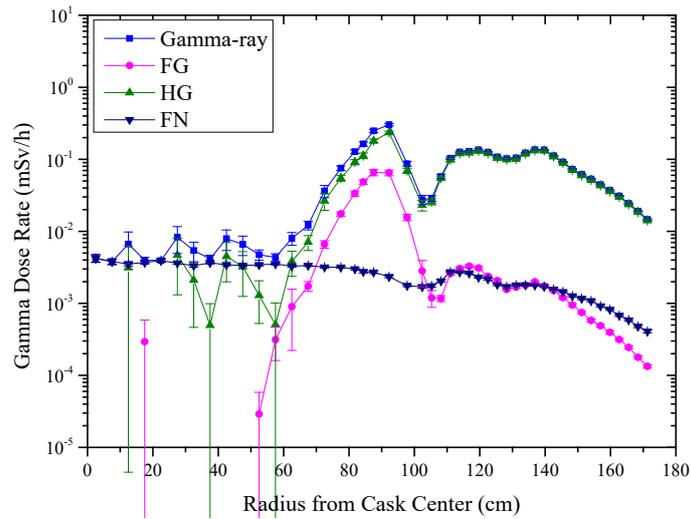


圖 5-4、案例一護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻

## 5.2 案例二：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配平均燃料束源項

案例二，具詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱幾何搭配平均燃料束源項。同樣以 MAVRIC 序列採用 FW-CADIS 理論作計算，計算參數與計算環境皆與案例一相同。案例二護箱表面劑量率評估結果，呈現於圖 5-5 至圖 5-8。圖 5-5 為護箱表面側邊劑量率分布，圖 5-6 為案例二護箱表面頂部劑量率，圖 5-7 和圖 5-8 為護箱側邊和頂部表面劑量率加馬射源貢獻，上述護箱表面劑量率分布特性皆與案例一相同，將在 5.4 節作整合案例討論。

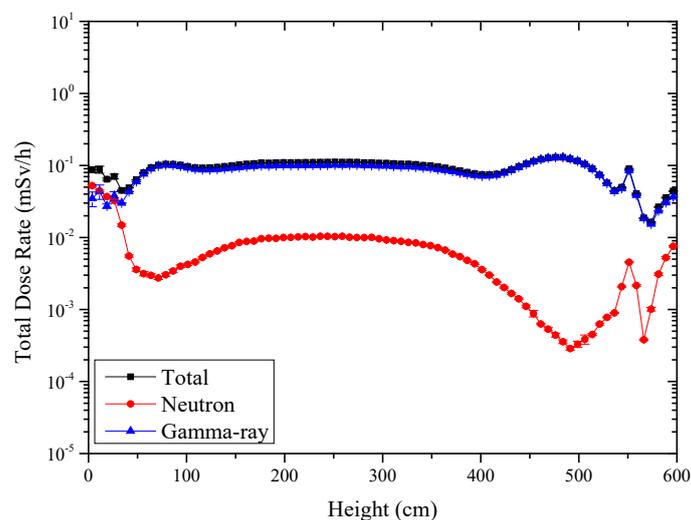


圖 5-5、案例二護箱側邊表面劑量率分布

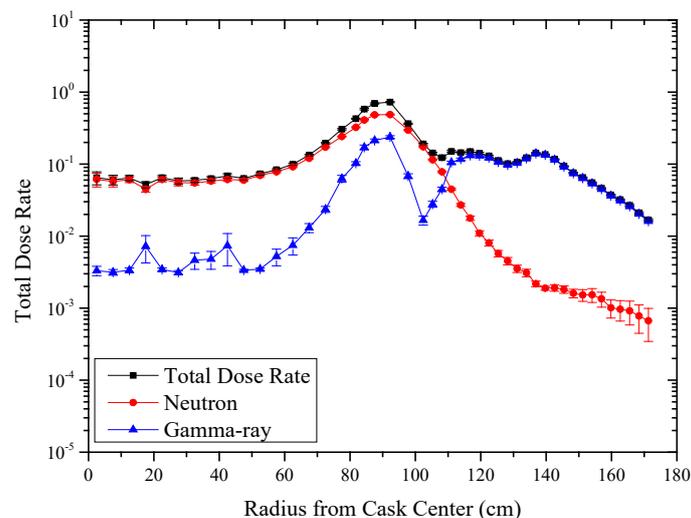


圖 5-6、案例二護箱頂部表面劑量率分布

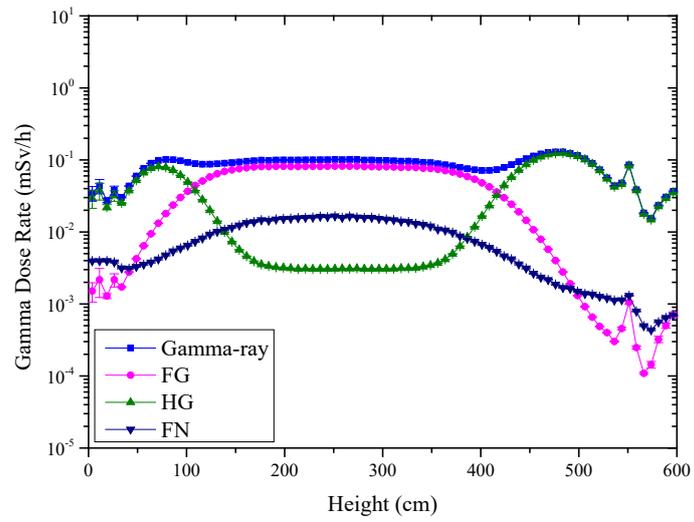


圖 5-7、案例二護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻

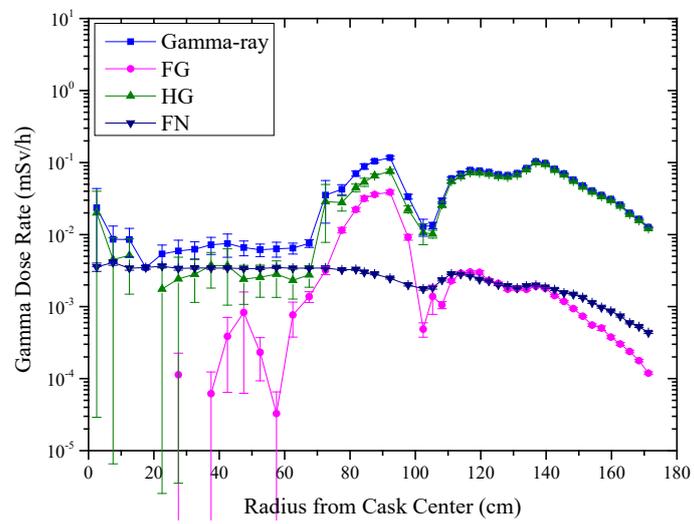


圖 5-8、案例二護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻

### 5.3 案例三：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配 56 束燃料束源項

案例三，具詳細燃料束結構的密封鋼筒護箱幾何搭配 56 束燃料束源項，燃料束排列方式參採圖 4- 7。同樣以 MAVRIC 序列採用 FW-CADIS 理論作計算，計算參數與計算環境皆與案例一相同。案例三護箱表面劑量率評估結果，呈現於圖 5- 9 至圖 5- 12。圖 5- 9 為護箱表面側邊劑量率分布，圖 5- 10 為護箱表面頂部劑量率，圖 5- 11 和圖 5- 12 為護箱側邊和頂部表面劑量率加馬射源貢獻，上述護箱表面劑量率分布特性皆與案例一相同，將在 5.4 節作整合案例討論。

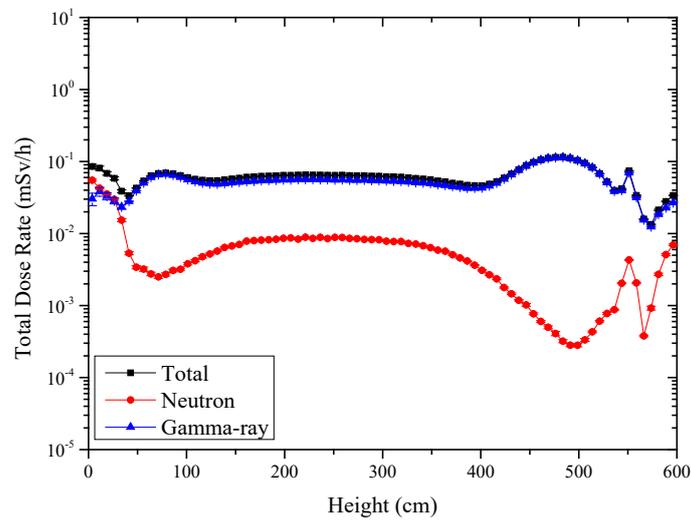


圖 5- 9、案例三護箱側邊表面劑量率分布

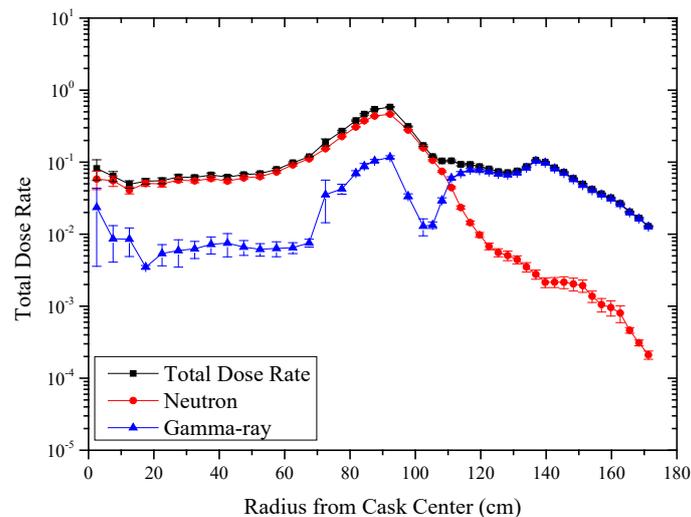


圖 5- 10、案例三護箱頂部表面劑量率分布

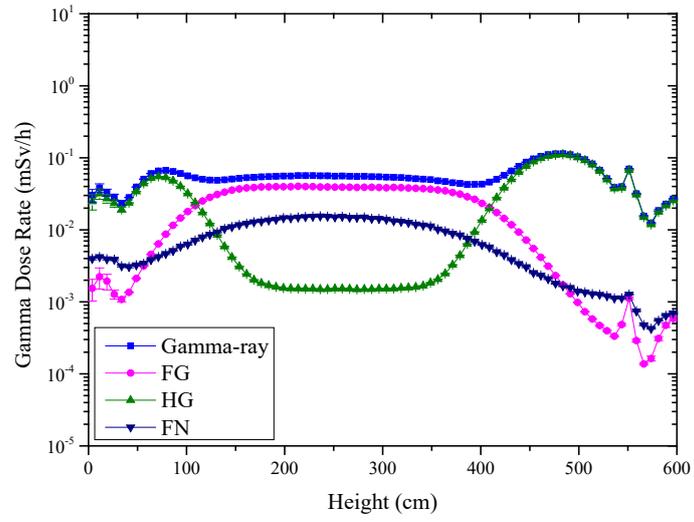


圖 5- 11、案例三護箱側邊表面劑量率加馬射源貢獻

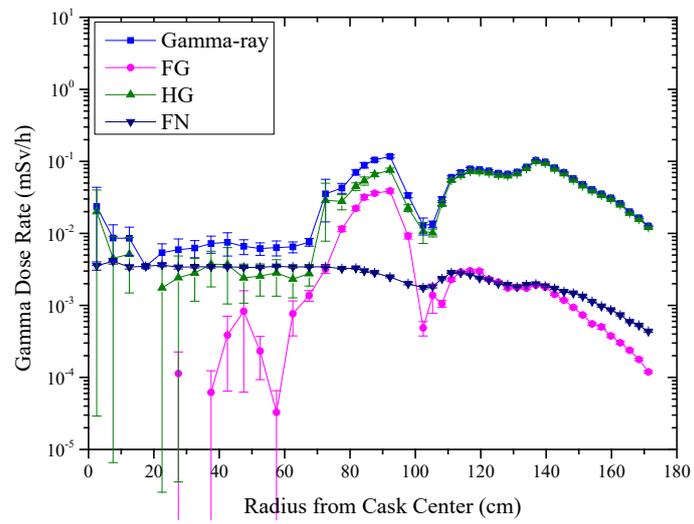


圖 5- 12、案例三護箱頂部表面劑量率加馬射源貢獻

## 5.4 計算案例整合討論

5.1 節至 5.3 節呈現了案例一至案例三護箱表面劑量率分布評估結果。本節整合 5.1 節至 5.3 節內容，作案例一至案例三整合性探討。

圖 5-13 為案例一至案例三護箱側邊表面總劑量率分布，三計算案例分布趨勢一致，主要在燃料所在位置有所差異( $Z=60-510$  cm)。案例一對比案例二，考慮同樣的射源項，均質化護箱模型對比詳細燃料束結構護箱模型，劑量率分布結果，案例一劑量率較為保守，劑量率約為案例二的 1.07 倍；案例二對比案例三，考慮同樣的詳細燃料束結構護箱模型，平均燃料束源項對比 56 束燃料束源項，劑量率分布結果，案例二劑量率較保守，劑量率約為案例三的 1.53 倍。圖 5-14 為案例一至案例三護箱側邊表面中子和光子劑量率分布，其中護箱側邊劑量主要貢獻為光子，故光子劑量率差異相似於圖 5-13 總劑量率。中子劑量率，案例一劑量率數值約為案例二的 1.04 倍，案例二劑量率數值約為案例三的 1.17 倍。

圖 5-15 為案例一至案例三護箱頂部表面總劑量率分布，三計算案例分布在密封鋼筒頂部趨勢一致，但在進出氣通道與混凝土外殼( $R=100-172$  cm)頂部劑量率有所差異，故後續劑量率差異主要考慮此兩區塊。案例一對比案例二，考慮同樣的射源項，均質化護箱模型對比詳細燃料束結構護箱模型，劑量率分布結果，案例一近乎等於案例二；案例二對比案例三，考慮同樣的詳細燃料束結構護箱模型，平均燃料束源項對比 56 束燃料束源項，劑量率分布結果，案例二劑量率較保守，劑量率約為案例三的 1.31 倍。圖 5-16 為案例一至案例三護箱頂部表面中子和光子劑量率分布，中子劑量率三案例近乎趨於一致；光子劑量率，案例一劑量率數值約為案例二的 1.06 倍，案例二劑量率數值約為案例三的 1.55 倍。整理案例一至案例三護箱側邊( $Z=60-510$  cm)與頂部( $R=100-172$  cm)表面平均總劑量率、中子劑量率及光子劑量率於表 5-3。

表 5-3、屏蔽計算模型差異結果討論

	Dose Rate	Model 1		Ratio (Model 1/Model 2)	Model 2		Ratio (Model 2/Model 3)	Model 3	
Side (Z=60-510 cm)	Total	1.10E-01	0.05%	1.07	1.02E-01	0.04%	1.53	6.69E-02	0.05%
	Neutron	6.29E-03	0.21%	1.04	6.03E-03	0.22%	1.17	5.17E-03	0.22%
	Gamma-ray	1.04E-01	0.05%	1.08	9.65E-02	0.04%	1.56	6.17E-02	0.05%
Top (R=100-172 cm)	Total	1.54E-01	0.61%	1.01	1.52E-01	0.57%	1.31	1.16E-01	0.57%
	Neutron	6.08E-02	0.87%	1.00	6.02E-02	0.81%	1.07	5.63E-02	0.83%
	Gamma-ray	9.44E-02	0.83%	1.06	8.89E-02	0.79%	1.55	5.72E-02	0.78%

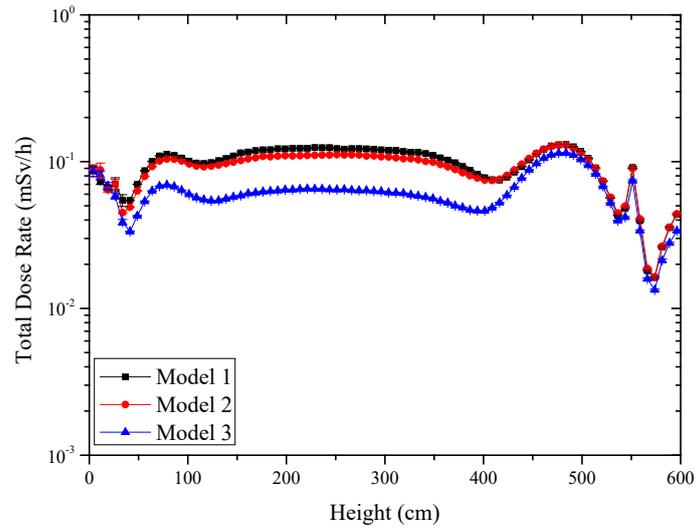


圖 5-13、案例一至案例三護箱側邊表面總劑量率分布

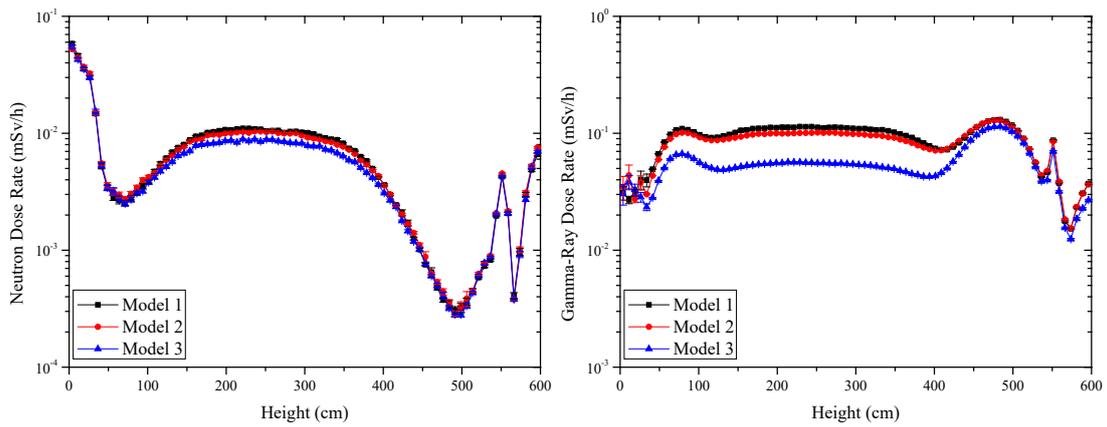


圖 5-14、案例一至案例三護箱側邊表面(左)中子(右)光子劑量率分布

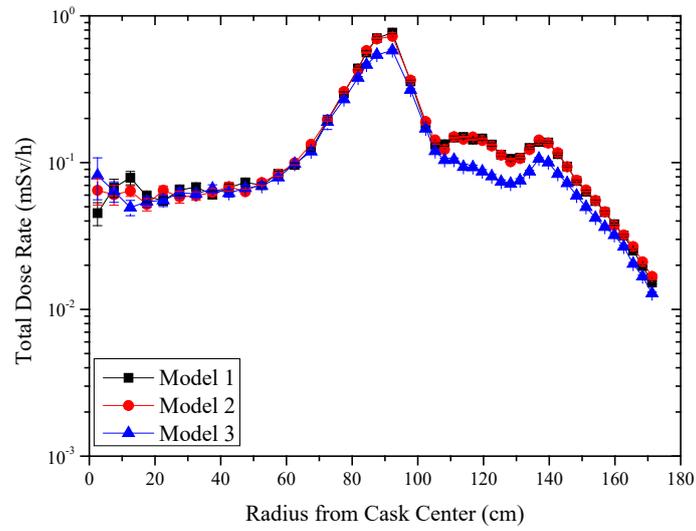


圖 5- 15、案例一至案例三護箱頂部表面總劑量率分布

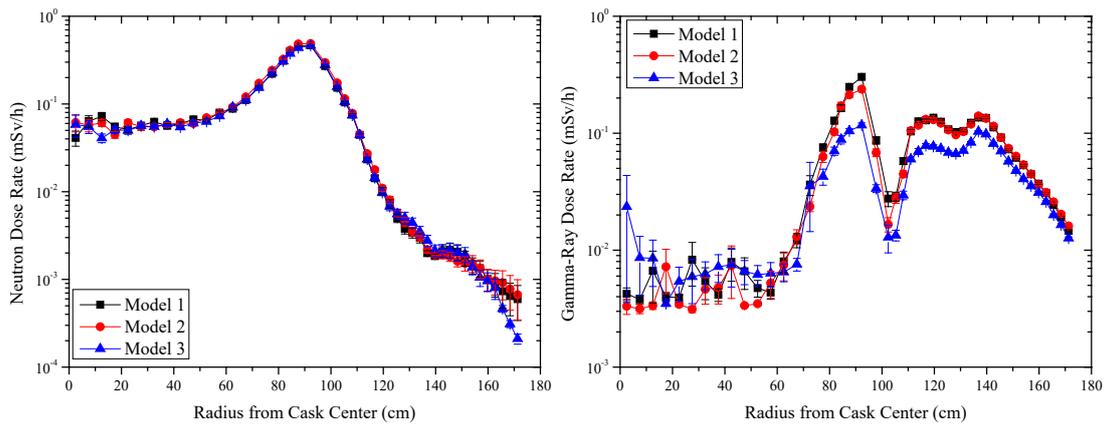


圖 5- 16、案例一至案例三護箱頂部表面(左)中子(右)光子劑量率分布

## 第六章、護箱內加馬與中子輻射場分布差異及對表面劑量

### 貢獻研析

本章依據第二章和第四章所述之輻射屏蔽分析方法與建構的屏蔽分析模型進行護箱屏蔽分析計算，第五章已完成三個代表案例的加馬與中子輻射場評估分析，並呈現護箱外部表面劑量率分布，此章延續評估結果對護箱內加馬與中子輻射場分布作差異討論。

本研究藉由第二章和第四章所述之輻射屏蔽分析方法與建構的屏蔽分析模型，完整地進行護箱內和外部的加馬和中子輻射場分布評估，擷取三個代表案例護箱內部和外部劑量(mSv/h)分布如圖 6-1，由左至右依序為案例一至案例三。圖 6-1 呈現三案例之徑向由密封鋼筒中心處往外至距箱體側邊表面約 30 cm 處(360 度平均)與軸向(Z 軸)由箱體底部至距箱體頂部表面約 30 cm 處的格點計分結果，已涵蓋完整的護箱內加馬與中子輻射場分布與箱體側邊與頂部表面劑量分布。其中案例一為均質化護箱幾何，另外兩案例為具詳細燃料束結構護箱幾何，護箱內自密封鋼筒外至護箱外部劑量率分布結果皆呈現案例一較另外兩者結果保守。

圖 6-1 為二維(R-Z 平面)劑量率分布，較難進行細部劑量率分布探討，後續將自圖 6-1 中提取三個案例在箱體內部與外部特定位置的一維劑量率分布來作討論。將圖 6-1 的箱體格點劑量率分布區分為軸向(Z 軸，由箱體底部(Z=0 cm)至箱體頂部往上延伸 30 cm 處(Z=600 cm))和徑向(R 方向 360 度平均，由密封鋼筒中心處(R=0 cm)至箱體側邊表面往外延伸約 30 cm 處(R=175 cm))兩方向。軸向劑量率分布區分為 7 個區塊由內(中心)而外依序為：密封鋼筒內側(R=0-40 cm)、密封鋼筒中間(R=40-60 cm)、密封鋼筒外側(R=60-85 cm)、空氣通道(Air channel)、混凝土殼層內側(Inner concrete)、混凝土殼層外側(Outer concrete)、護箱表面(Surface)，可參考圖 6-2；徑向劑量率分布區分為五個區塊由下而上依序為：下端板區(LEF)、有效燃料區(Fuel)、充氣區(Plenum)、上端板區(UEF)、護箱表面(Surface)、可參考圖 6-3。

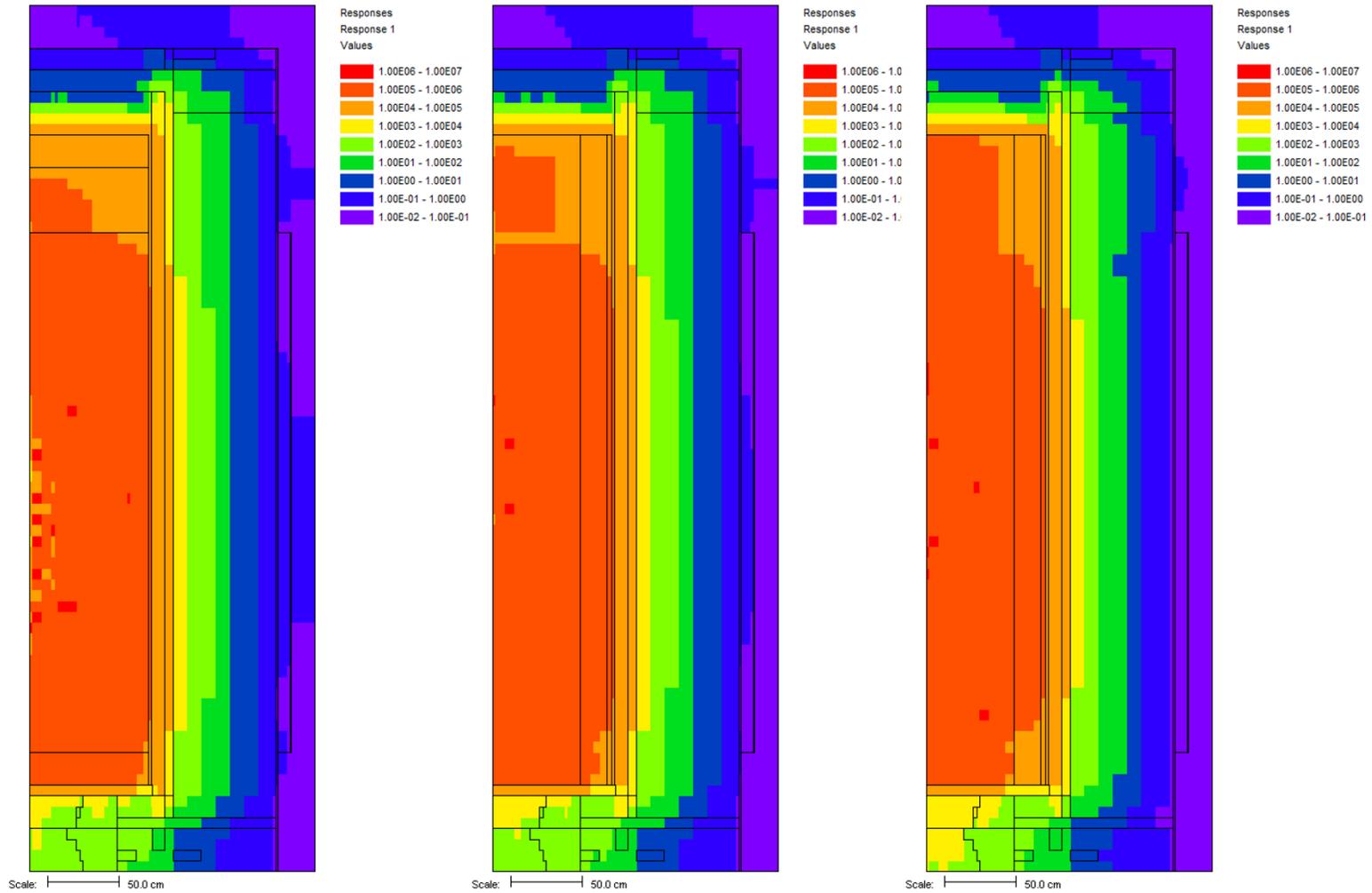


圖 6-1、案例一至案例三(左至右)護箱內部劑量率分布(mSvh)

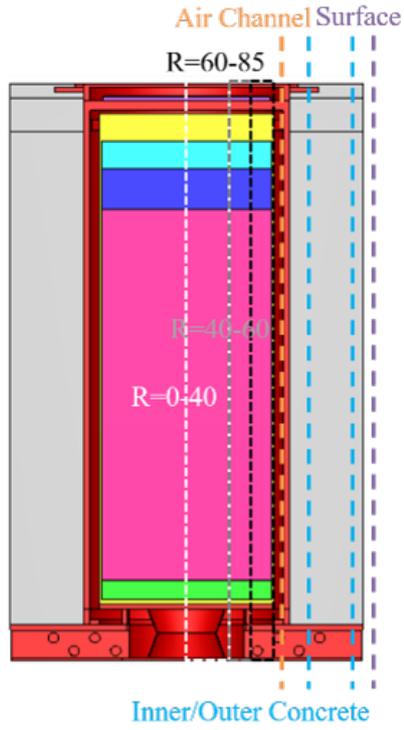


圖 6-2、乾貯護箱劑量率分布軸向分區

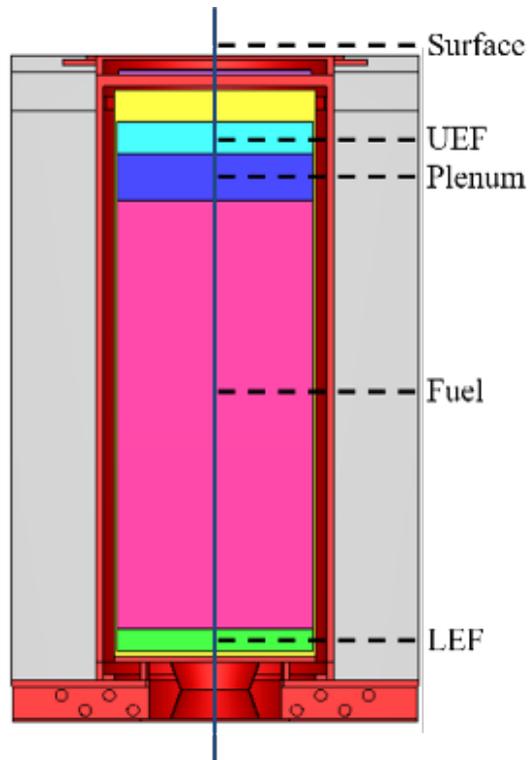


圖 6-3、乾貯護箱劑量率分布徑向分區

## 6.1 護箱劑量率分布軸向分區

參照圖 6-2 護箱軸向分區，區分為 7 組軸向劑量分布(Z 軸劑量率分布)，個別為：密封鋼筒內側(R=0-40 cm)、密封鋼筒中間(R=40-60 cm)、密封鋼筒外側(R=60-85 cm)、空氣通道(Air channel)、混凝土殼層內側(Inner concrete)、混凝土殼層外側(Outer concrete)、護箱表面(Surface)。

圖 6-4 至圖 6-6 為案例一至案例三之護箱內部與外部軸向劑量率分布，因為 7 組軸向分布涵蓋護箱由內而外，故軸向劑量率分布數量級橫跨  $10^{-2}$  至  $10^7$  mSv/h。案例一至案例三軸向劑量率分布大小依序由內部的密封鋼筒、空氣通道、混凝土殼層、護箱表面逐步降低。箱體內部劑量率分布主要依用過燃料束特性分區，以有效燃料區範圍為劑量最大值區域，依序為下端板區、充氣區、上端板區，但軸向劑量分布越往外時上述的分布特性會趨於不明顯，直到箱體外部表面劑量率分布會多呈現出護箱外部幾何設計特性，增加有上、下進出氣通道的劑量峰值區域。圖 6-4 至圖 6-6(案例一至案例三)軸向劑量率分布較明顯的差異在於密封鋼筒內部，案例一軸向劑量率分布大小依序為密封鋼筒內側、外側和中間，而案例二與案例三軸向劑量率大小皆為密封鋼筒內側、中間和外側，此差異主要原因為均質化護箱幾何與具詳細燃料束結構的護箱幾何的差別，後者增加考慮有燃料束幾何自體屏蔽的效果。但以對護箱進行安全分析報告的觀點而言，案例一的均質化護箱幾何假設是為較保守之考慮。

圖 6-7 至圖 6-12 依序為密封鋼筒內側、中間、外側、空氣通道、混凝土殼層內側和外側的軸向劑量率分布三案例比較。其中圖 6-7 劑量率分布帶有較大的統計誤差，原因為採用的屏蔽分析分法仍以使模擬粒子向外遷移為較優先，故密封鋼筒內側的劑量評估值統計誤差較大。圖 6-7 呈現以案例三的評估結果為較大值，圖 6-8 呈現三者評估結果相近，圖 6-9 則呈現以案例一的評估結果為較大值，造成此處的差異原因為三者的用過核子燃料束源項假設，案例一與案例二為平均燃料束源項，而案例三為具有 56 束燃料束源項，且案例三的射源項布

置為內圈衰變熱較大而外圈衰變熱較小，故案例三的評估結果與其餘兩者相比，在圖 6- 7 至圖 6- 9 依序降低。離開密封鋼筒區域，圖 6- 10 至圖 6- 12 軸向劑量率分布則依屏蔽材料的設計逐步衰減。

圖 6- 13 至圖 6- 15 為案例一至案例三之護箱內部與外部軸向中子劑量率分布，圖 6- 16 至圖 6- 18 為案例一至案例三之護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布。圖 5- 1 已呈現 NAC-UMS 箱體表面軸向劑量率分布以加馬劑量率為最主要貢獻，中子劑量率貢獻占比小於 10 %。圖 6- 13 至圖 6- 15 護箱內部與外部軸向中子劑量率分布，護箱內部以有效燃料區為主要劑量峰值範圍，而護箱外部以進、出氣通道為劑量峰值區域。圖 6- 16 至圖 6- 18 護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布與圖 6- 4 至圖 6- 6 總劑量率分布特性相同。

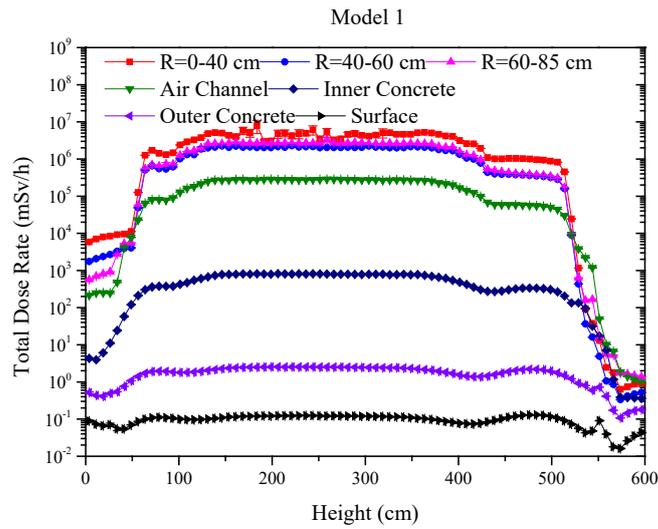


圖 6-4、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例一)

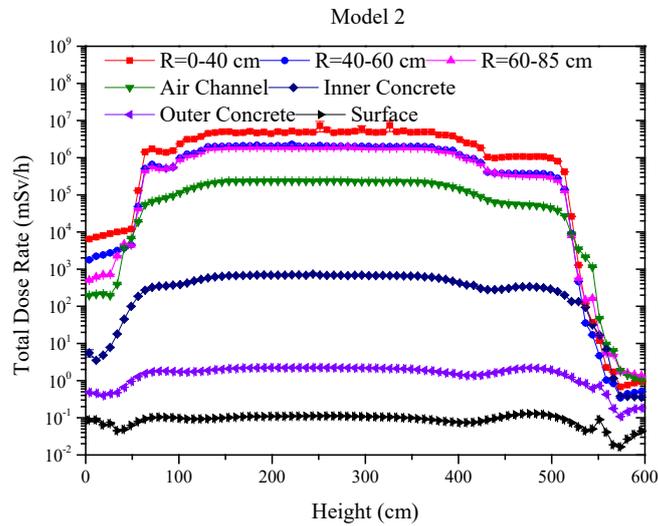


圖 6-5、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例二)

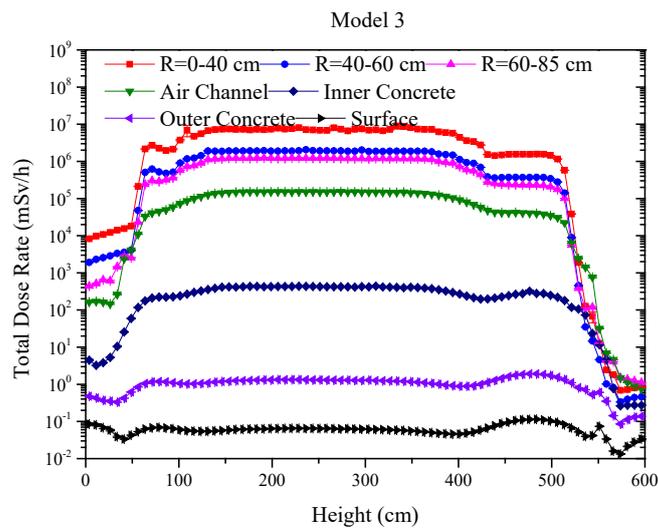


圖 6-6、護箱內部與外部軸向劑量率分布(案例三)

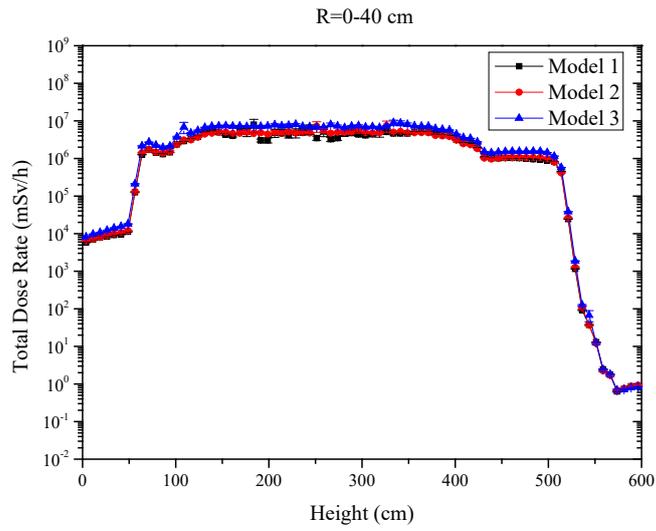


圖 6-7、密封鋼筒內側軸向劑量率分布三案例比較

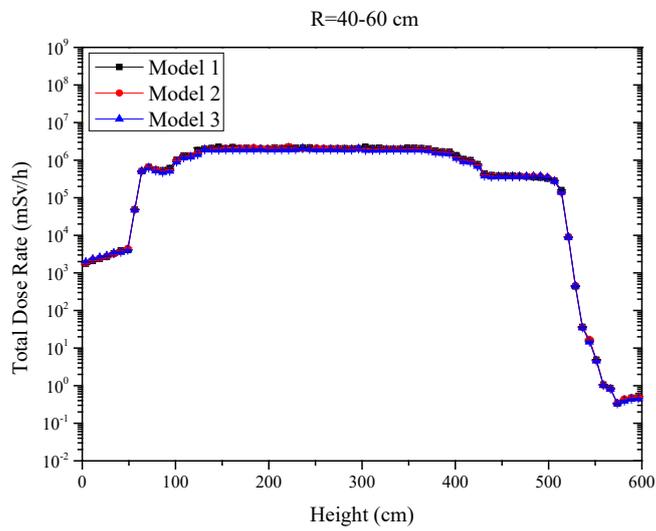


圖 6-8、密封鋼筒中間軸向劑量率分布三案例比較

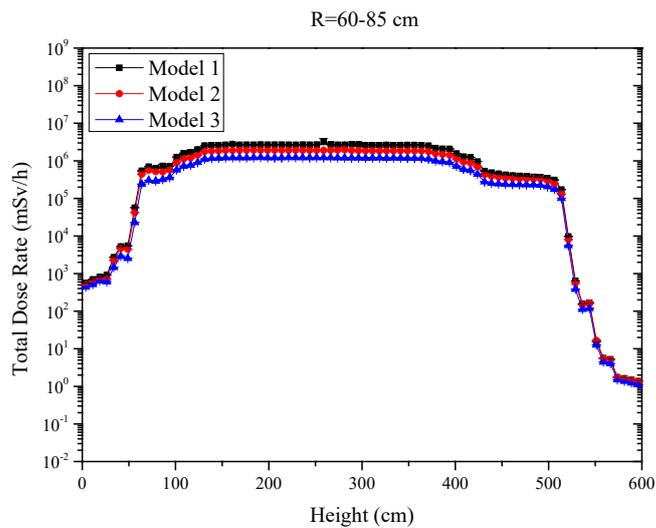


圖 6-9、密封鋼筒外側軸向劑量率分布三案例比較

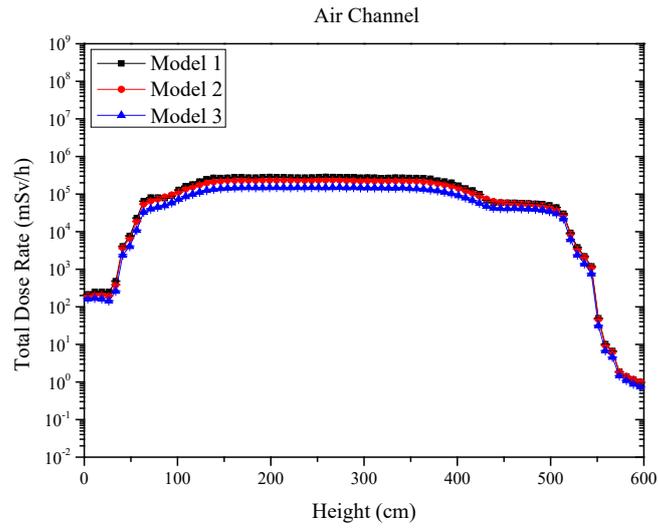


圖 6- 10、空氣通道軸向劑量率分布三案例比較

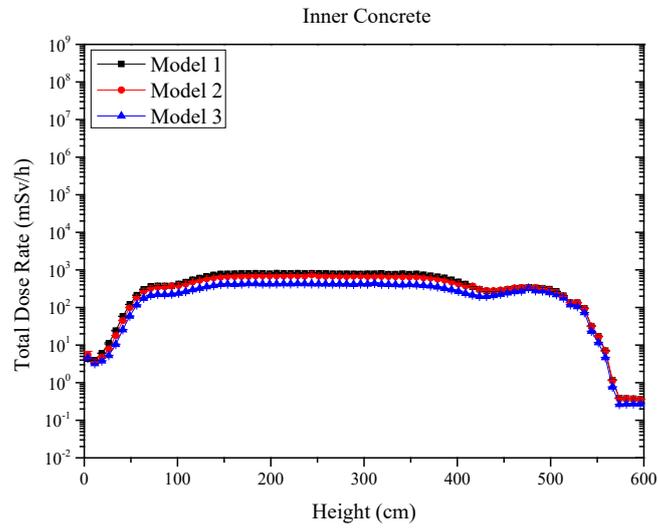


圖 6- 11、混凝土殼層內側軸向劑量率分布三案例比較

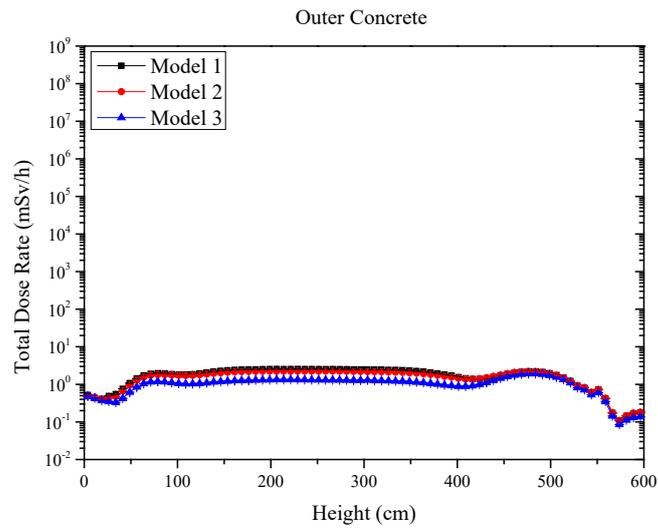


圖 6- 12、混凝土殼層外側軸向劑量率分布三案例比較

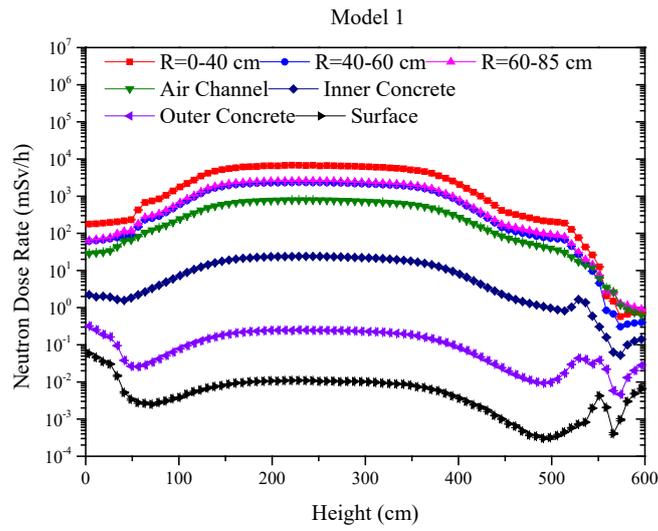


圖 6-13、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例一)

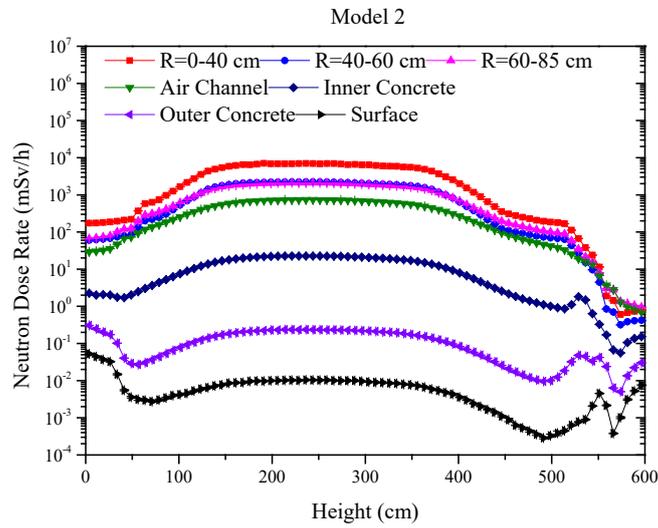


圖 6-14、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例二)

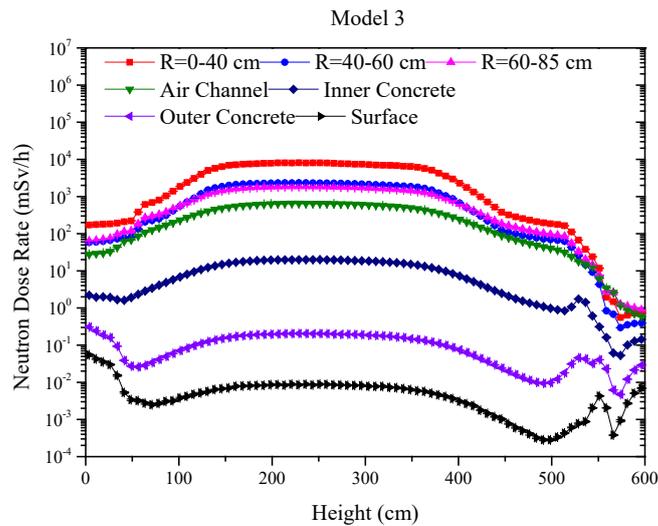


圖 6-15、護箱內部與外部軸向中子劑量率分布(案例三)

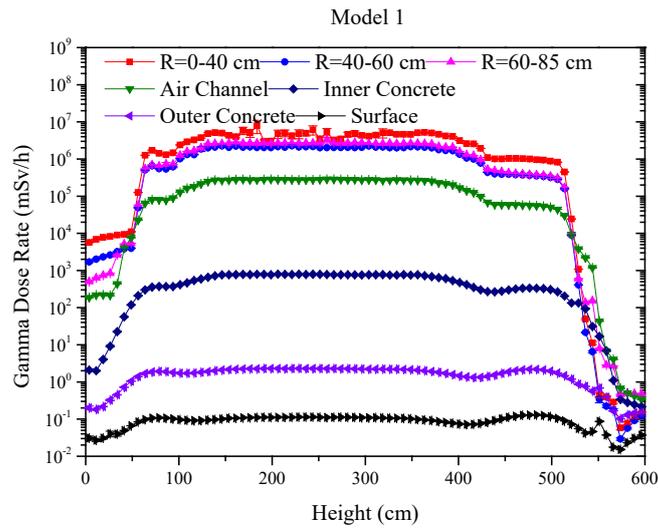


圖 6-16、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例一)

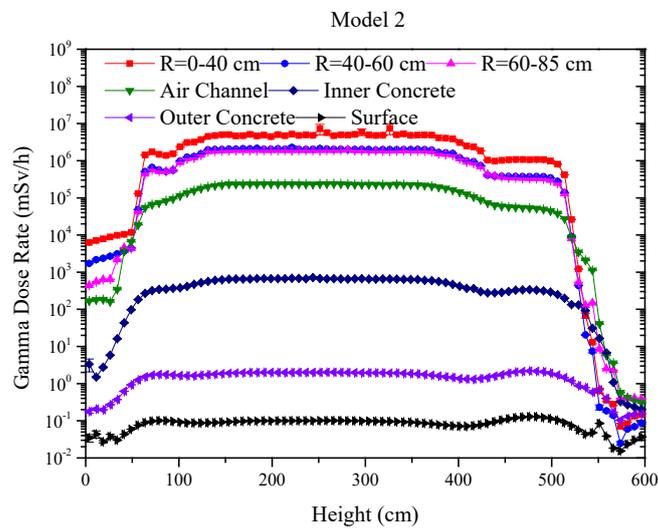


圖 6-17、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例二)

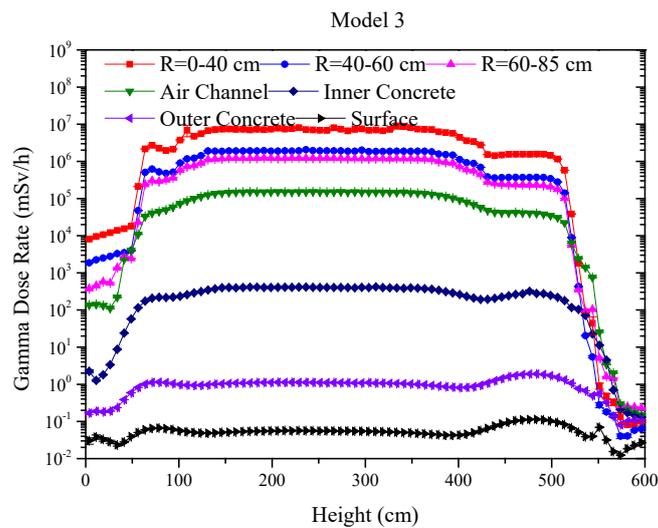


圖 6-18、護箱內部與外部軸向加馬劑量率分布(案例三)

## 6.2 護箱劑量率分布徑向分區

參照圖 6-3 護箱徑向分區，區分為 5 組徑向劑量分布(沿半徑方向，360 度方位角平均劑量率)，由 Z 軸低處依序往高處分區，個別為：下端板區(LEF)、燃料區(Fuel)、充氣區(Plenum)、上端板區(UEF)、護箱表面(Surface)。

圖 6-19 至圖 6-21 為案例一至案例三之護箱內部與外部徑向劑量率分布，因為 5 組徑向分布，其涵蓋半徑包括護箱的密封鋼筒至外部混凝土殼層，同一條劑量分布數值橫跨 1 至  $10^8$  mSv/h。護箱內部徑向劑量率分布在密封鋼筒半徑範圍內劑量率最大，隨半徑逐步往外劑量率隨之下降；護箱外部徑向劑量率分布則以密封鋼筒與混凝土殼層間的空氣通道為劑量峰值區域。案例一至案例三在護箱內部與外部徑向劑量率分布大小皆以燃料區為最大值，護箱表面為最小值。

圖 6-22 至圖 6-25 依序為護箱內部下端板區、燃料區、充氣區、上端板區高度範圍徑向劑量率分布三案例比較。其中，圖 6-22 至圖 6-25 在密封鋼筒半徑範圍內皆明顯發現案例三的劑量分布相較另外兩案例更類似於餘弦函數的形狀。護箱屏蔽分析模型的差異為造成上述結果的主因，案例三為具詳細燃料束結構的護箱幾何且具有 56 束燃料束源項，射源項布置內圈衰變熱較大而外圈衰變熱較小，故徑向劑量率分布呈現類似餘弦函數的形狀。圖 6-22 至圖 6-25 在密封鋼筒範圍外，劑量劑量率分布隨半徑越大逐步衰減。

圖 6-26 至圖 6-28 為案例一至案例三之護箱內部與外部徑向中子劑量率分布，圖 6-29 至圖 6-31 為案例一至案例三之護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布。圖 6-26 至圖 6-28 護箱內部與外部徑向中子劑量率分布，以燃料區為最大值，依序為下端板區、充氣區、上端板區及護箱表面。圖 6-29 至圖 6-31 護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布，以燃料區為最大值，依序為充氣區、下端板區、上端板區及護箱表面。圖 6-26 至圖 6-31 其餘特性與圖 6-19 至圖 6-21 護箱內部與外部徑向劑量率分布特性相同。

護箱內部與外部各分區的徑向劑量率，中子劑量率大小排序為”燃料區>下端

板區>充氣區>上端板區>護箱表面”，加馬劑量率排序為”燃料區>充氣區>下端板區>上端板區>護箱表面”。不論中子或加馬劑量率，燃料區射源最強，因此其劑量率明顯高於其他區域；另外，護箱表面處於屏蔽體外，因此劑量率最低。針對只有位於有效燃料區的中子射源，下端板區劑量率較高於充氣區是因為燃料下方射源略強(中子射源因 Burnup profile 加權影響)，上端板區距離有效燃料區略遠，因此劑量率最低。至於加馬劑量率在三區(充氣區、上端板區、下端板區)的徑向分佈則差異不大，因其貢獻來自三種射源(燃料中子產生的二次光子、燃料光子及結構光子)遷移的加總。

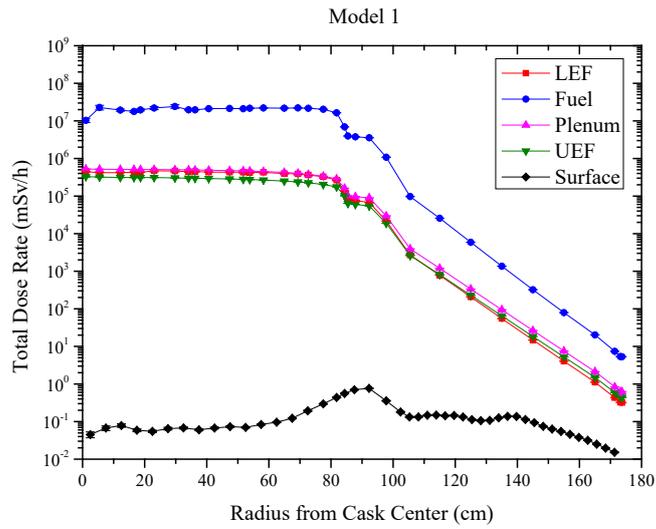


圖 6-19、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例一)

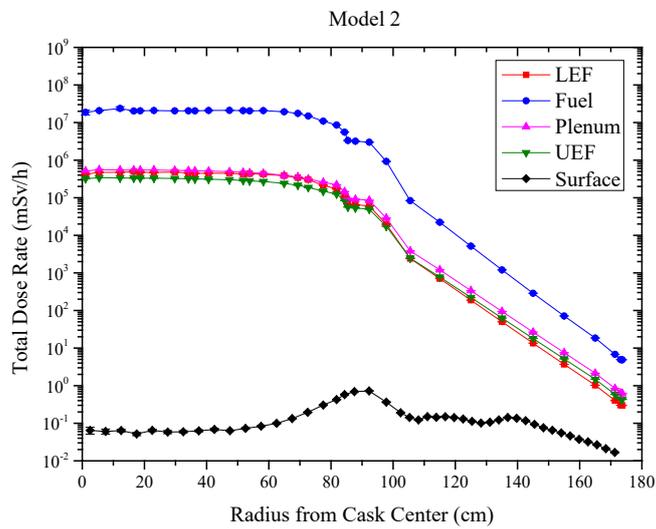


圖 6-20、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例二)

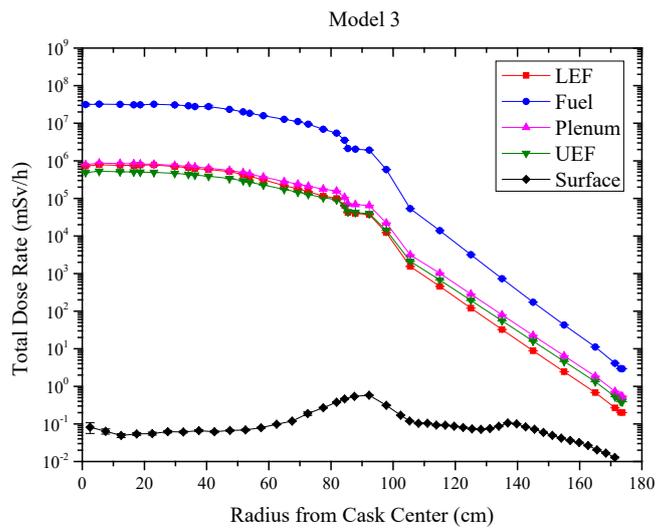


圖 6-21、護箱內部與外部徑向劑量率分布(案例三)

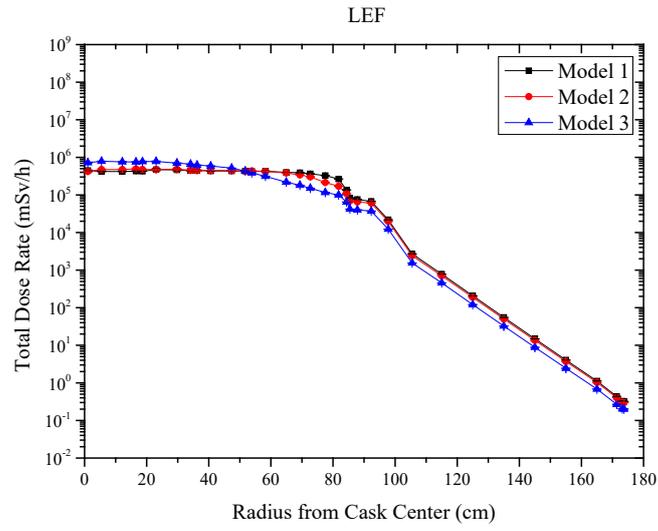


圖 6-22、下端板區高度徑向劑量率分布三案例比較

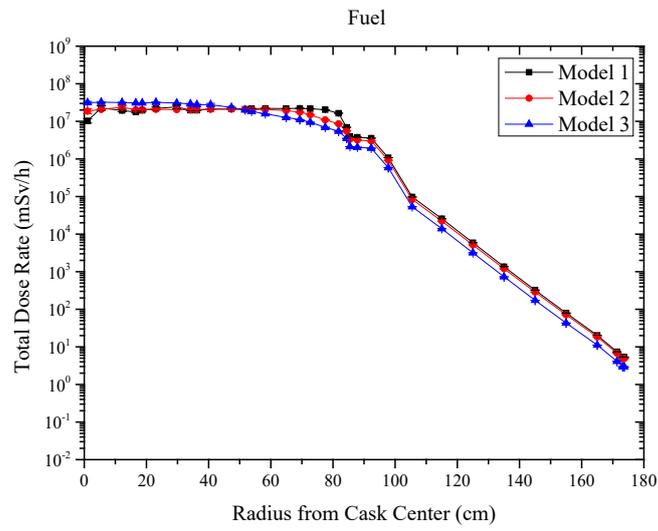


圖 6-23、有效燃料區高度徑向劑量率分布三案例比較

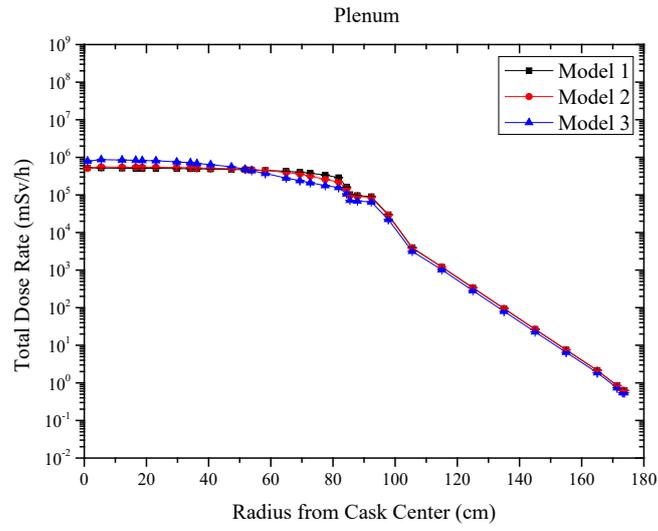


圖 6- 24、充氣區高度徑向劑量率分布三案例比較

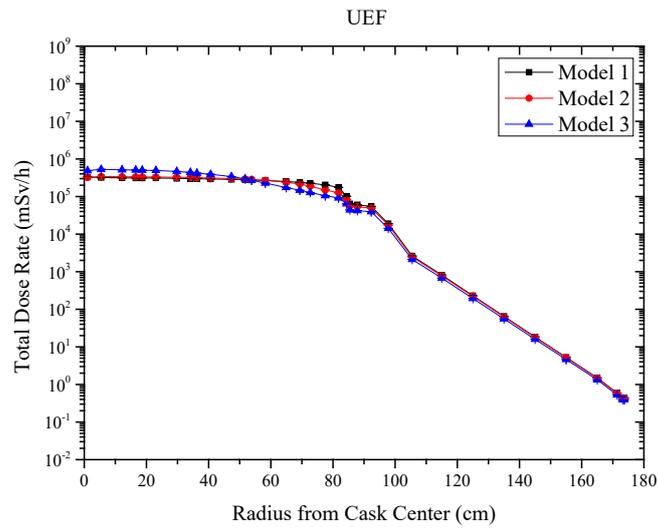


圖 6- 25、上端板區高度徑向劑量率分布三案例比較

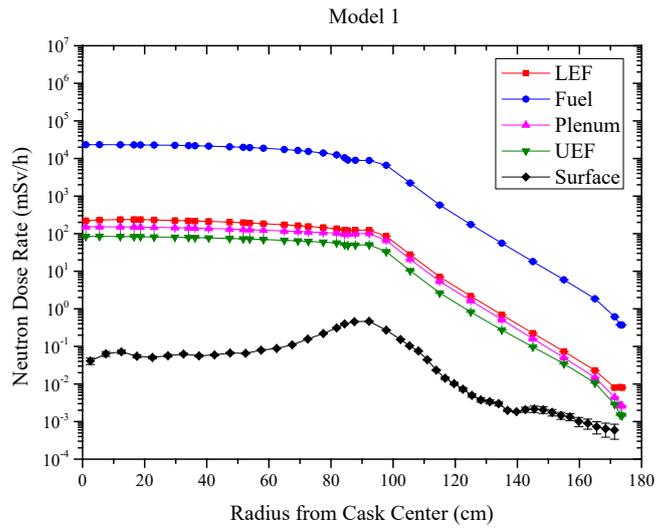


圖 6-26、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例一)

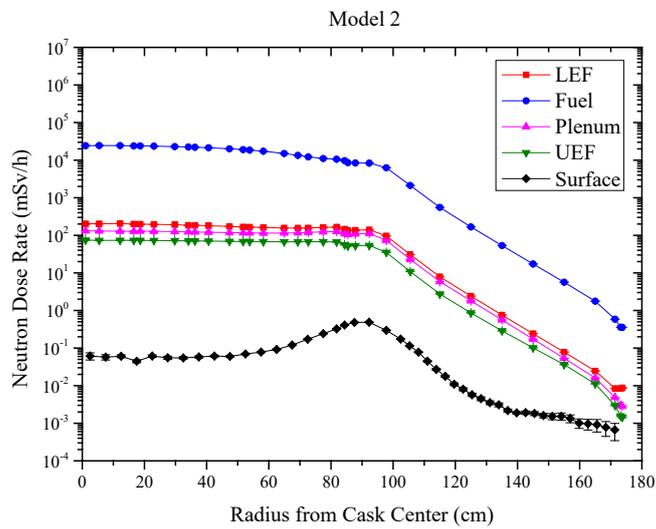


圖 6-27、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例二)

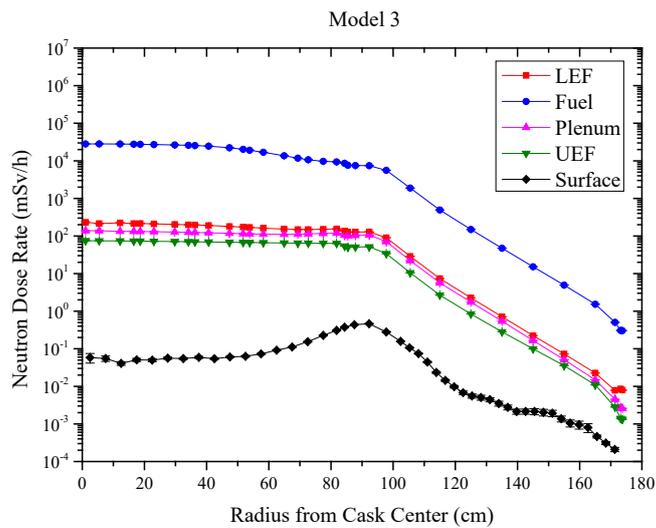


圖 6-28、護箱內部與外部徑向中子劑量率分布(案例三)

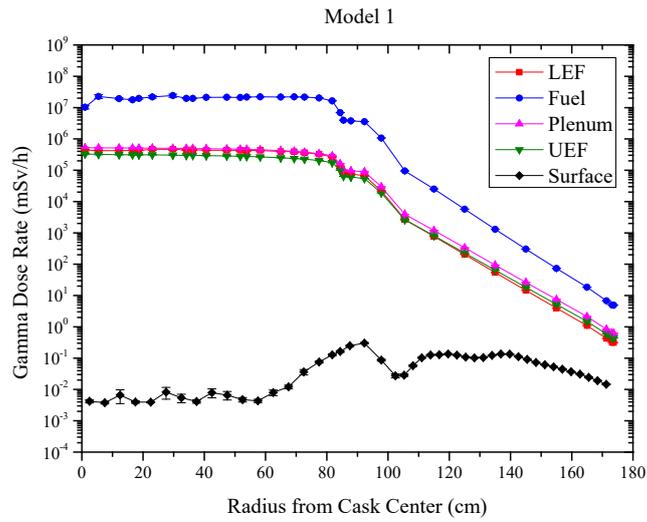


圖 6-29、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例一)

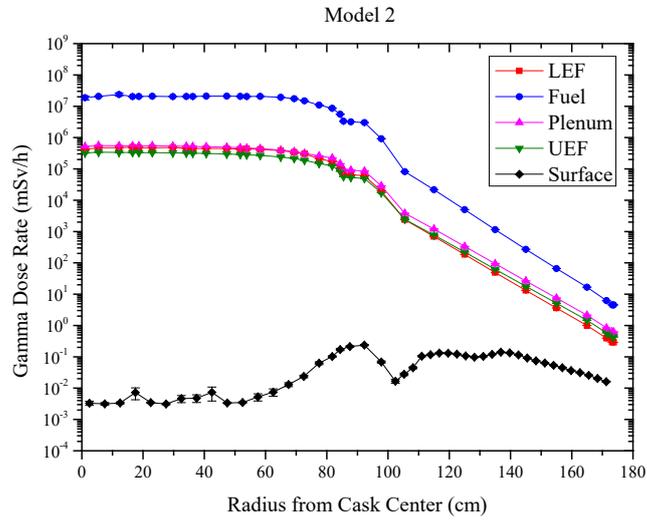


圖 6-30、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例二)

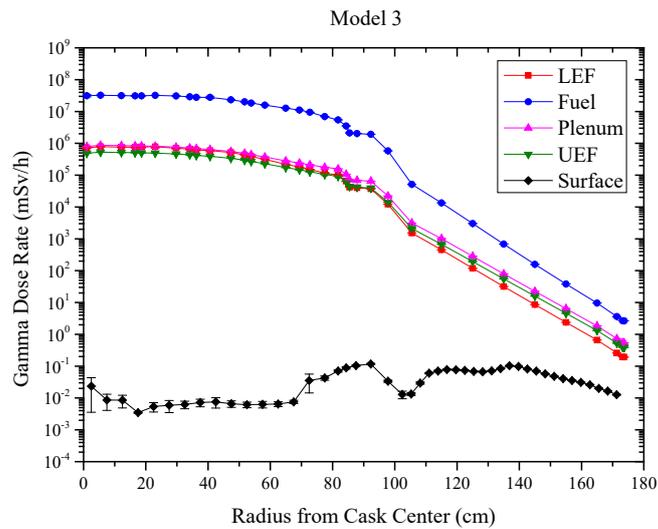


圖 6-31、護箱內部與外部徑向加馬劑量率分布(案例三)

### 6.3 護箱內密封鋼筒劑量率分布

本節呈現三個護箱代表案例之內部與外部加馬與中子輻射場特性分析結果，提供予計畫子項二熱流分析，結合探討輻射分解與再結合效應及其對用過核子燃料護套之劣化影響研析。

參考圖 6-2 與圖 6-3，圖 6-32 為密封鋼筒內部軸向與徑向分區示意，其中軸向分區區分為三區：密封鋼筒內側(R=0-40 cm)、密封鋼筒中間(R=40-60 cm)、密封鋼筒外側(R=60-85 cm)；徑向分區區分為 4 區：下端板區(LEF)、燃料區(Fuel)、充氣區(Plenum)及上端板區(UEF)。

圖 6-33 至圖 6-35 為案例一至案例三之密封鋼筒內部軸向劑量率分布，其軸向劑量率分布特性與 6.1 節呈現相同，皆以密封鋼筒內側為最大值，但案例一軸向劑量率分布大小依序為密封鋼筒內側、外側和中間，而案例二與案例三軸向劑量率大小皆為密封鋼筒內側、中間和外側，因均質化護箱幾何與具詳細燃料束結構的護箱幾何的差別，後者增加考慮有燃料束幾何自體屏蔽的效果；圖 6-36 至圖 6-38 為案例一至案例三之密封鋼筒內部徑向劑量率分布，徑向劑量率分布以燃料區為最大值，依序為下端板區、充氣區及上端板區。

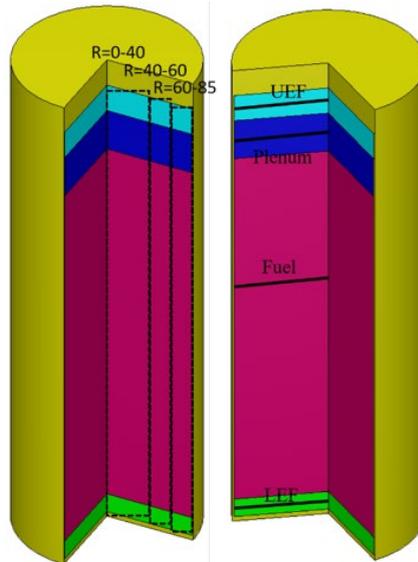


圖 6-32、密封鋼筒內部(左)軸向分區(右)徑向分區

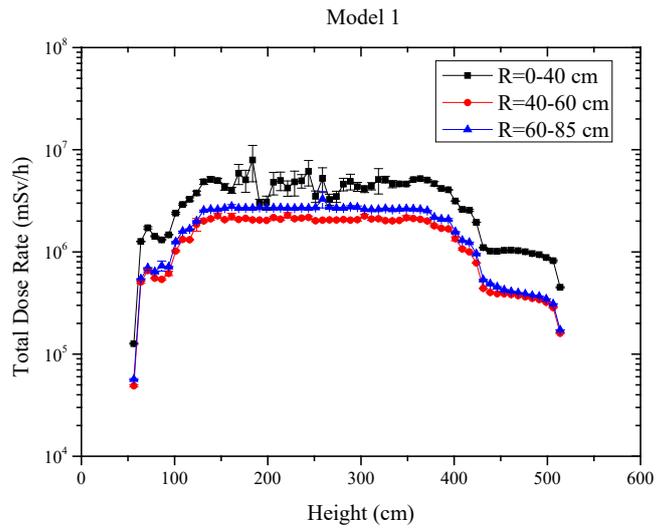


圖 6-33、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例一)

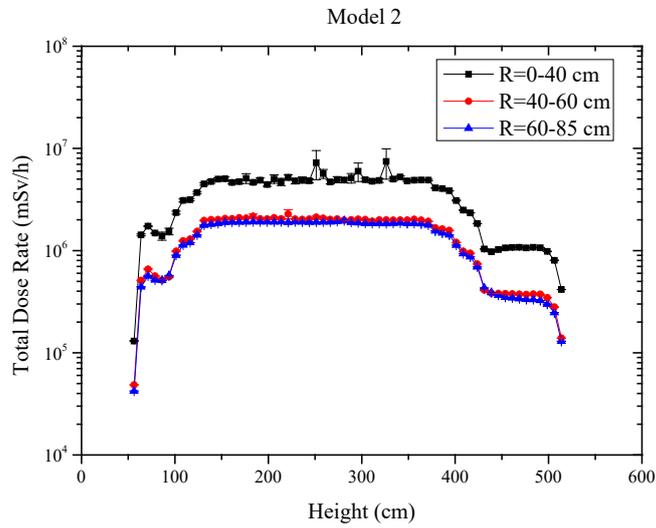


圖 6-34、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例二)

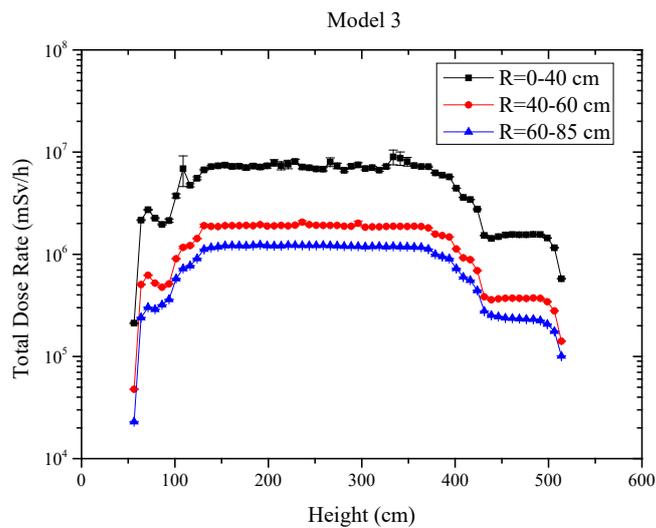


圖 6-35、密封鋼筒內部軸向劑量率分布(案例三)

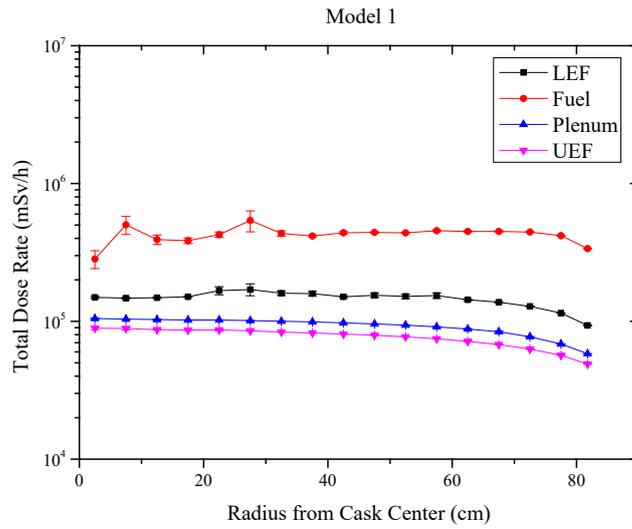


圖 6-36、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例一)

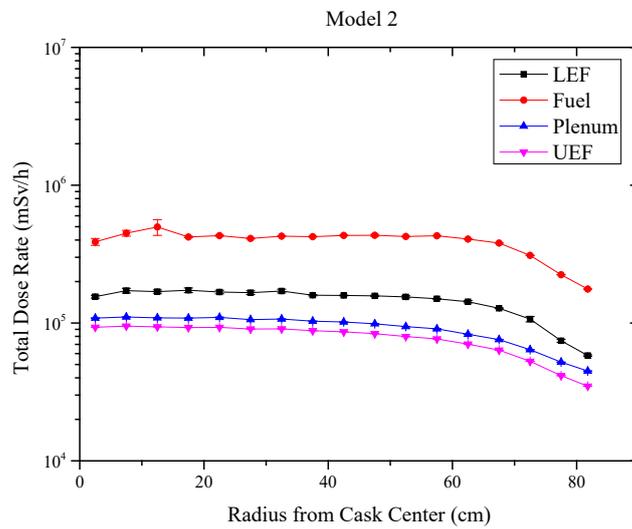


圖 6-37、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例二)

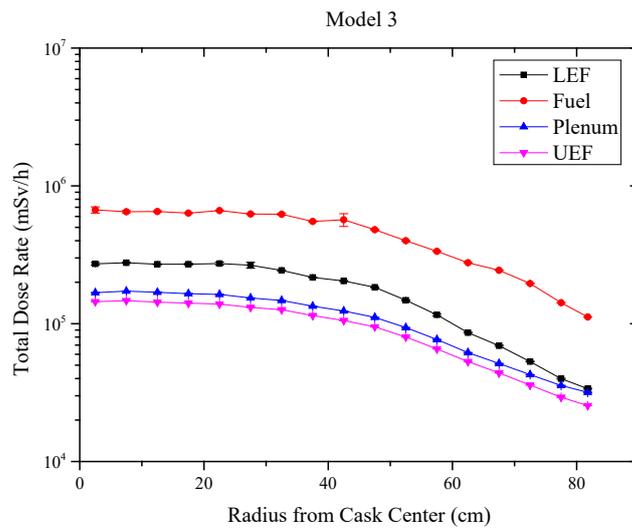


圖 6-38、密封鋼筒內部徑向劑量率分布(案例三)

## 第七章、研提護箱內輻射場評估審查重點或注意事項

彙整前述分析結果，對於護箱內輻射場評估的安全審查注意事項，摘錄下列重點：

1. NAC-UMS 護箱，側邊表面劑量率分布以光子劑量率為主要貢獻(90%)，中子劑量率約略小一個數量級(10%)，整體平均劑量率約為 0.1 mSv/h。混凝土護箱上下進出氣口端為劑量評估重點位置。護箱表面頂部劑量率在密封鋼筒半徑內以中子劑量率為主要貢獻，密封鋼筒外則以光子劑量為主要貢獻，在密封鋼筒與混凝土殼層間的空氣通道有劑量率高點接近 0.8 mSv/h。
2. 進行乾貯護箱表面劑量率分析時，考慮均質化護箱模型對比具有詳細燃料束結構護箱模型，裝載相同的平均用過核子燃料源項(案例一對比案例二)，護箱表面劑量率分布結果為案例一劑量率較為保守，側邊劑量率約為案例二的 1.11 倍，頂部劑量率案例一近乎等於案例二。
3. 進行乾貯護箱表面劑量率分析時，同樣採用具有詳細燃料束結構護箱模型，但考慮裝載平均燃料束源項對比 56 束燃料束源項(案例二對比案例三)，護箱表面劑量率分布結果為案例二劑量率較為保守，側邊劑量率約為案例三的 1.73 倍，頂部劑量率約為案例三的 1.32 倍。
4. 進行護箱內部與外部軸向劑量率分布探討時，本研究由內而外針對 7 組軸向分布，其劑量率分布大小依序由內部的密封鋼筒、空氣通道、混凝土殼層、護箱表面逐步降低。箱體內部劑量率分布主要依用過燃料束特性分區，以有效燃料區範圍為劑量最大值區域，依序為下端板區、充氣區、上端板區，但軸向劑量分布越往外時上述的分布特性會趨於不明顯，直到箱體外部表面劑量率分布會多呈現出護箱外部幾何設計特性，增加有上、下進出氣通道的劑量峰值區域。

5. 進行護箱內部與外部軸向劑量率分布探討時，考慮均質化護箱幾何與具詳細燃料束結構護箱幾何的差別，後者增加考慮有燃料束幾何自體屏蔽的效果，造成影響差異為案例一軸向劑量率分布大小依序為密封鋼筒內側、外側和中間，而案例二與案例三軸向劑量率大小皆為密封鋼筒內側、中間和外側。以對護箱進行安全分析報告的觀點而言，案例一的均質化護箱幾何假設是為較保守之考慮。
6. 進行護箱內部與外部軸向劑量率分布探討時，考慮平均燃料束源項或者是具有 56 束燃料束源項(射源項布置為內圈衰變熱較大而外圈衰變熱較小)，密封鋼筒內的軸向劑量率分布由內而外依序降低。
7. 進行護箱內部與外部徑向劑量率分布探討時，徑向劑量率分布在密封鋼筒半徑範圍內劑量率最大，隨半徑逐步往外劑量率隨之下降；護箱外部徑向劑量率分布則以密封鋼筒與混凝土殼層間的空氣通道為劑量峰值區域。
8. 進行護箱內部與外部徑向劑量率分布探討時，考慮平均燃料束源項或者是具有 56 束燃料束源項(射源項布置為內圈衰變熱較大而外圈衰變熱較小)，在密封鋼筒半徑範圍內皆呈現徑向劑量分布會類似於餘弦函數的形狀。

## 第八章、結論

原能會為嚴密落實核電廠除役期間之各項安全管制要求，持續監督台電公司確實依核定除役計畫執行相關作業，以確保公眾安全並如期完成電廠除役工作。為深入瞭解殘餘水經輻射場影響產生輻射分解效應後，其於護套上之分布情形與相關影響，有必要進一步研究貯存期間輻射場分布情形，並就殘餘水經輻射分解與再結合效應產生氧化劑、還原劑之分布、產量及影響性等要項，進行乾貯安全影響性評估。因此，本委託計畫案研究用過核子燃料貯存護箱內部於乾貯期間之輻射場分布情形，並探討殘餘水經輻射分解與再結合效應對燃料護套之影響。主要重點如下：(1)乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析，(2)乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析。子計畫一建立護箱內輻射場評估模式與分析計算，並研析輻射對表面劑量之貢獻；子計畫二建立可評估護箱內熱流場及輻射分解及再結合效應之分析技術，進行乾貯護箱殘餘水與熱流場計算，以瞭解殘餘水經輻射分解與再結合效應對護套之影響。

第三章彙整文獻研析結果，針對本計畫的主題(護箱內部詳細的輻射場分布)而言，我們蒐集了 6 篇相關論文，有別於傳統均質化的密封鋼筒假設，其護箱模型不同程度地考量了內部構造(密封鋼筒與燃料排列)，研析並彙整 6 篇論文的重點論述，包含計算方法、工具程式、模型建立以及分析結果的代表意義，做為後續計畫分析與比較的參考。

第四章描述本研究針對護箱內加馬及中子輻射場之假想護箱評估模式的建立，以 SCALE/MAVRIC 程式工具建構二種乾貯護箱模型，以 NAC-UMS 混凝土護箱為標的，一是均質化密封鋼筒，二是具詳細結構的密封鋼筒(裝填 56 束沸水式反應器的用過核子燃料束)，二者差異可探討護箱模型的影響。

第五章說明代表案例之加馬與中子輻射場分析的計算，代表案例一：均質化護箱幾何搭配平均燃料束源項(Homogenized geo & Mix source(FN×1、FG×1、HG×1))、代表案例二：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配平均燃料束源項(Detailed geo& Mix source(FN×1、FG×1、HG×1))、代表案例三：具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配 56 束燃料束源項(Detailed geo& A、B、C source(FN×3、FG×3、HG×3))。基於前述二種護箱模型(均質化與詳細的密封鋼筒)，套用護箱全尺寸細網格的計數，已獲得完整三度空間中子與加馬射線劑量率分布。

第六章進一步藉由本研究所建構之輻射屏蔽分析方法與模型，完整地進行護箱內和外部的加馬和中子輻射場分布評估，擷取三個代表案例護箱內部和外部劑量(mSv/h)分布。案例一為均質化護箱幾何，另外兩案例為具詳細燃料束結構護箱幾何，護箱內自密封鋼筒外至護箱外部劑量率分布結果皆呈現案例一較另外兩者結果保守。細部探討三個案例在箱體內部與外部特定位置的一維劑量率分布，將軸向劑量率分布區分為 7 個區塊由內(中心)而外依序為：密封鋼筒內側、中間、外側、空氣通道、混凝土殼層內側、外側及護箱表面；徑向劑量率分布區分為五個區塊由下而上依序為：下端板區、有效燃料區、充氣區、上端板區及護箱表面。護箱內部與外部軸向劑量率分布，案例一至案例三軸向劑量率分布大小依序由內部的密封鋼筒、空氣通道、混凝土殼層、護箱表面逐步降低。箱體內部劑量率分布主要依用過燃料束特性分區，以有效燃料區範圍為劑量最大值區域，依序為下端板區、充氣區、上端板區，但軸向劑量分布越往外時上述的分布特性會趨於不明顯，直到箱體外部表面劑量率分布會多呈現出護箱外部幾何設計特性，增加有上、下進出氣通道的劑量峰值區域。案例一至案例三軸向劑量率分布較明顯的差異在於密封鋼筒內部，此差異主要因為均質化護箱幾何與具詳細燃料束結構的護箱幾何的差別，後者增加考慮有燃料束幾何自體屏蔽的效果。但以對護箱進行安全分析報告的觀點而言，案例一的均質化護箱幾何假設是為較保守之考慮。案例一至案例三之護箱內部與外部徑向劑量率分布，因為 5 組徑向分布，其涵蓋半

徑包括護箱的密封鋼筒至外部混凝土殼層。護箱內部徑向劑量率分布在密封鋼筒半徑範圍內劑量率最大，隨半徑逐步往外劑量率隨之下降；護箱外部徑向劑量率分布則以密封鋼筒與混凝土殼層間的空氣通道為劑量峰值區域。最後，總結三個護箱代表案例之密封鋼筒內部加馬與中子輻射場特性分析結果，提供予計畫子項二熱流分析，結合探討輻射分解與再結合效應及其對用過核子燃料護套之劣化影響研析。

第七章彙整研究成果，提取研究重點羅列 8 項護箱外部與內部輻射場評估或安全審查時應注意重點。總結本計畫研究成果，除提供乾貯護箱內密封鋼筒的劑量率分布於子項二，用於結合探討輻射遷移、熱流分析與水化學於用過核子燃料乾貯護箱內殘餘水對燃料護套的影響；仍詳細比較三種護箱模型案例(均質化護箱幾何搭配平均燃料束源項、詳細燃料束結構的護箱幾何搭配平均燃料束源項及具詳細燃料束結構的護箱幾何搭配 56 束燃料束源項)，獲取完整的三度空間中子與加馬射線劑量率分布，節錄其護箱內外輻射場分布差異進行研析討論，計畫成果有利於精進管制技術並強化室內乾貯安全分析審查能力。

## 參考文獻

- 1 放射性物料管理局，“用過核子燃料乾式貯存設施安全分析報告審查導則”，108年1月。
- 2 許榮鈞等人，“110年室內乾貯設施輻射特性及乾貯護箱乾燥作業之管制技術研究”，期末報告，110年12月。
- 3 台灣電力股份有限公司，“核一廠用過燃料乾式貯存設施安全分析報告”，97年1月。
- 4 C.J. Werner, et. al, “Monte Carlo N-Particle® Transport Code System Version 6.2,” LA-UR-17-29981, Los Alamos National Laboratory report , 2017.
- 5 W. A. Wieselquist, R. A. Lefebvre and M. A. Jessee, Eds., ”SCALE Code System”, ORNL/TM-2005/39, Version 6.2.4, Oak Ridge National Laboratory, 2020
- 6 Y. F. Chen, Y. F. Chiou, S. J. Chang, S. H. Jiang, R. J. Sheu, Effects of Source and Geometry Modeling on the Shielding Calculations for a Spent Nuclear Fuel Dry Storage Cask, Nuclear Technology, 182:2, 224-234, DOI: 10.13182/NT13-A16432, 2013.
- 7 H. Thiele and F. Borst, ”Shielding Calculations with SCALE/MAVRIC and Comparison with Measurements for the TN85 Cask with Vitrified High Level Radioactive Waste,” ICRS-13 & RPSD-2016, 2017.  
DOI : 10.1051/epjconf/201715307017
- 8 A. Šmaizys, P. Poškas, E. Narkunas, “Evaluation of Dose Rate Variation During Very Long Term Storage of RBMK-1500 Reactor Used Fuel”, Annals of Nuclear Energy, 109, 192-198, 2017  
<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2017.03.050>
- 9 Y. Gao, C. R. Hughes, and C. R. Greulich, J. E. Tulenko, A. Enqvist, J. E. Baciak, “Radiation Dose Rate Distributions of Spent Fuel Dry Casks Estimated with MAVRIC Based on Detailed Geometry and Continuous-Energy Models”, Annals of Nuclear Energy, 117, 84-97, 2018.

<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2018.03.015>

- 10 Y. Gao, N. J. McFerran, A. Enqvist, J. E. Tulenko, J. E. Baciak, “Dry Cask Radiation Shielding Validation and Estimation of Cask Surface Dose Rate with MAVRIC During Long-Term Storage,” *Annals of Nuclear Energy*, 140, 2020.

<https://doi.org/10.1016/j.anucene.2019.107145>

- 11 D. Grgić, M. Matijević, P. Dučkić, and R. Ječmenica, “Analysis of the HI-TRAC VW Transfer Cask Dose Rates for Spent Fuel Assemblies Loaded in Nuclear Power Plant Krsko Storage Campaign One,” *ASME Journal of Nuclear Engineering and Radiation Science*, 8, 2021

<https://doi.org/10.1115/1.4051447>

行政院原子能委員會  
放射性物料管理局  
委託研究計畫研究報告

111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布及殘  
餘水對燃料護套影響研析  
子項二：乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再  
結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析  
期末報告

委託單位：行政院原子能委員會放射性物料管理局  
執行單位：國立清華大學  
計畫主持人：許榮鈞  
子項主持人：曾永信、王美雅  
計畫編號：111FCMA001  
報告日期：中華民國 111 年 12 月 15 日

111 年用過核子燃料乾貯護箱內輻射場分布及殘  
餘水對燃料護套影響研析

子項二：乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再  
結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析

受委託單位：國立清華大學

研究主持人：許榮鈞

子項主持人：曾永信、王美雅

研究期程：中華民國 111 年 02 月至 111 年 12 月

研究經費：新臺幣 1,130,000 元

放射性物料管理局 委託研究

中華民國 111 年 12 月

(本報告內容純係作者個人之觀點，不應引申為本機關之意見)

## 摘要

為能進一步探討乾貯設施於乾操作業後所殘餘之水份，是否使護箱內呈現潮溼狀況並於長期貯存期間造成護套顯著氧化；或是殘餘水汽受中子或加馬輻射的照射而分解，並於再結合之過程中形成額外的腐蝕機制進而影響護套之完整性。本研究以 NAC-UMS 護箱作為研究標的，建立了一套具有廣泛應用性的評估技術，可以有效率的利用計算流體力學所擅長求解之熱流場提供護套劣化所需之各項參數。初步分析結果顯示，經過標準乾操作業之燃料束即使仍有殘餘水，仍不致造成護箱內溼度過高，僅有同時考慮高燃耗與低熱負載之保守假想情境才可能導致護箱內部相對溼度趨近氧化閾值(20%)。即使如此，本研究基於已完成之熱流場與相對溼度條件將各項參數匯整為一個具代表性之涵蓋案例，並建立了燃料熱源項與整體溫度關係式，以作為長期貯存時間下之氧化速率評估。整體評估結果顯示，不論是溼度或是輻射分解與再結合效應所造成的腐蝕，其速率皆遠小於燃料於運轉期間所累積之氧化厚度，可證實即使乾貯護箱內殘留有些許水份，仍有優於溼式貯存之護套保護效果。

關鍵字：NAC-UMS、計算流體力學、熱流分析、輻射分解與再結合、護套完整性。

## **ABSTRACT**

To further investigate whether the residual moisture in the dry storage cask after the drying process may cause a humid environment in the canister and induces significant oxidation on the cladding during long-term storage. Or, the water is decomposed by neutron or Gamma radiation and forms additional corrosion during recombination mechanisms. Based on NAC-UMS canister design, this research establishes an evaluation methodology with wide applicability, which can effectively use the thermal-hydraulic knowledge to provide various parameters information for cladding deterioration. Preliminary analysis results show that the fuel bundle after standard drying process will not cause a high humidity environment in the canister. Only the conservative hypothetical situation of high burnup combined with low thermal load can cause the relative humidity inside the canister to approach the threshold (20%). Based on the completed thermal and relative humidity (RH) conditions, this study developed a representative bounding case for long-term-storage corrosion estimation, and considering the relation between thermal load and temperature distribution.

The overall evaluation results show that the thickness of corrosion caused by humidity or radiation decomposition and recombination effects is far less than the thickness of the fuel accumulated during operation, which proves that dry storage method does not cause more cladding degradation issues than wet storage method, even if cask contains enough residual water.

Keywords: NAC-UMS, CFD, Thermal analysis, radiation decomposition and recombination effects.

# 目錄

摘要.....	i
ABSTRACT.....	ii
目錄.....	iii
圖目錄.....	v
表目錄.....	vii
第一章、前言與目的.....	1
1.1 研究背景說明.....	1
1.2 計畫研究標的.....	6
1.2.1 標的用過核子燃料特性說明.....	6
1.2.2 標的護箱之選用.....	7
1.2.3 其它與研究相關之分析參數研析.....	8
第二章、研究方法.....	10
2.1 統御方程式.....	10
2.2 數值模式.....	13
2.2.1 DO 熱輻射模式.....	13
2.2.2 紊流模式.....	14
2.2.3 自然對流模式.....	15
第三章、乾貯護箱內部殘餘水對熱流與水化學特性及護套腐蝕之資訊研析.....	17
3.1 殘餘水量與相對溼度評估技術合適性研析.....	17
3.2 殘餘水輻射分解與再結合對護套之完整性之相關文獻研析.....	19
3.3 護箱內部流場特性與氣體性質之相關性資訊研析.....	26
第四章、護箱熱流場及輻射分解再結合效應分析技術建立.....	29
4.1 熱流分析幾何模式建立.....	29
4.1.1 標的護箱幾何模式發展.....	29
4.1.2 多孔性材質之表徵速度修正.....	32
4.2 材料性質.....	34
4.2.1 固體材料.....	34
4.2.2 流體材料.....	36
4.2.3 燃料束均質化性質.....	37

4.3 燃料熱源配置.....	37
4.3.1 標的護箱之熱源配置.....	37
4.3.2 軸向源項配置.....	40
4.4 輻射分解及再結合效應流路模式建立.....	42
第五章、乾貯護箱殘餘水分對用過核燃料長期貯存安全之探討.....	45
5.1 代表案例中護箱之護套表面殘餘水計算.....	45
5.2 代表案例中護箱之熱流場計算.....	50
5.3 護箱內燃料護套氧化趨勢計算.....	55
5.4 護箱內輻射水化學特性計算.....	61
第六章、研提熱傳分析評估審查重點或注意事項.....	68
第七章、結論與建議.....	70
參考文獻.....	71

## 圖目錄

圖 1、110 年物管局計畫針對 NAC-UMS 護箱鍵結水進行乾化研析之結果[1]....	2
圖 2、Tseng [4]等人針對近似 NAC-UMS 護箱之等效殘餘水效厚度(t)分布研析 結果.....	3
圖 3、結合輻射屏蔽、熱流與水化學分析技術進行護套腐蝕速率評估之流程示 意圖.....	5
圖 4、研究中選為標的護箱之 NAC UMS 護箱設計[8].....	8
圖 5、水分子經輻射分解過程中產生的各種放射性物質成分.....	19
圖 6、Tseng 等人利用 NAC-UMS 進行氣體成分變化對內部流場影響之研究 [26].....	27
圖 7、NAC-UMS 內部整體對流特性 [26] .....	28
圖 8、標的護箱以 1/4 對稱進行簡化後之模型示意圖 .....	30
圖 9、標的護箱之網格配置.....	31
圖 10、ATRIUM-10 燃料束幾何示意圖 .....	32
圖 11、ATRIUM-10 燃料束實際流路孔隙比估算模型 .....	33
圖 12、標的護箱所使用之基準型熱源配置.....	38
圖 13、本研究團隊使用詳實熱源配置技術 W 之示意圖[27].....	38
圖 14、以核一乾貯 CASK 1 配置為例，於調整為 1/4 對稱後利用詳實熱源配置 技術所獲之燃料源項(W/Bundle)示意圖 .....	39
圖 15、本研究選定之 BWR 燃料軸向功率因子分布圖[1].....	41
圖 16、標的護箱內之金屬盤間空隙(藍)以及燃料束流路(紅)之示意圖 .....	43
圖 17、由 CFD 模型轉換為輻射分解與再結合分析流路模式之示意圖.....	44
圖 18、正常貯存狀況下 7kW 熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖.....	48
圖 19、正常貯存狀況下 14kW 熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖...	49

圖 20、正常貯存狀況下 (a)14kW 純氦氣、(b) 14kW 含蒸汽、(c) 7kW 含蒸汽之 內部流場與溫度場之影響比較熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖 .....	52
圖 21、護箱底部與頂部焊件之流道溫度(a)底部流道(b)頂部流道 .....	53
圖 22、內部與外部燃料溫度分布.....	54
圖 23、利用 CFD 進行護套氧化趨勢分析所獲之初步結果.....	56
圖 24、燃料最高溫度與熱源項之相關性.....	57
圖 25、不同熱負載下之燃料溫度分布.....	57
圖 26、以不同溫度條件進行氧化層估算之結果.....	59
圖 27、以實際溫度估算貯存 20 年間，每 4 年間之累積氧化厚度.....	60
圖 28、轉換後匯入流路模式之乾貯護箱內部四區溫度與中子、光子劑量分布 .....	61
圖 29、乾貯護箱內部，氧化還原劑濃度隨流徑的分布情形。.....	65
圖 30、乾貯護箱內部，氧化還原劑濃度隨流徑的分布情形。.....	67

## 表目錄

表 1、國內常見沸水式反應器燃料設計資料.....	7
表 2、SRNL[28]報告中採用分區平均法計算各區體積與溫度.....	18
表 3、本研究所建立之分析技術與 SRNL 報告中對殘餘水量結果之比對 .....	18
表 4、乾貯護箱內部狀態下，每種化學成分的輻射分解產率(Number/100 eV) .....	22
表 5、乾貯護箱內部狀態下，採用的化學反應式及速率常數(L/Mol-sec) .....	23
表 6、不同護套材料之氧化速率參數[25].....	25
表 7、中子屏蔽熱傳性質.....	34
表 8、不銹鋼(304 及 304L)熱傳特性 .....	34
表 9、碳鋼(A-36、A-533 及 SA-588)熱傳特性 .....	34
表 10、鋁合金熱傳特性.....	35
表 11、燃料丸(UO <sub>2</sub> )熱傳特性 .....	35
表 12、鋁合金(6061-T651)熱傳特性 .....	35
表 13、氬氣熱傳性質.....	36
表 14、空氣熱傳性質.....	36
表 15、充氬階段燃料束均質化等效熱傳性質.....	37
表 16、利用暫態與穩態殘餘水模式進行評估之結果比對.....	47
表 17、不同熱負載條件下之護箱內絕對/相對溼度計算結果 .....	47
表 18、不同參數對護箱劣化條件之比對與參數選用表.....	54

# 第一章、前言與目的

## 1.1 研究背景說明

我國境內各個已運轉或曾運轉並產生用過核子燃料之核電廠共計有位於新北市的核一、二廠四個 BWR 機組以及位於屏東之核三廠計有兩個 PWR 機組。目前各電廠機組於政策指引下已逐步朝向除役作業邁進，其中最早取得運轉許可的核一廠已經進入除役過渡階段，靜待燃料池與爐心之用過核子燃料移除後即可進行輻射特性調查並著手拆除。而核二廠一號機之執照雖至 110 年 12 月 27 日，但因為爐心燃料池無法容納足夠用過核子燃料而只能停止運轉。上述電廠之狀況皆顯示，國內核一二廠由於其用過核子燃料中期貯存設施規劃的延宕，致使機組在運轉近 40 年後，即會面臨燃料池滿載以及停止運轉後用過核子燃料無法退出爐心及燃料池之情境。

上述機組遲遲未能進行乾貯作業之要原因主要係因乾貯設施初設之際，部分對安全議題的處理與宣答仍未能被國人接受，以及最終處置場尚未定案所衍生之疑慮。這是因為非政府組織(Non-Governmental Organization, NGO)與機組所在處之地方政府仍然擔憂，萬一上述電廠採用乾貯設施進行中期貯存，且未能順利完成最終處置規劃時，原先規劃作為中期貯存的設施恐在最終處置設施完成前成為實質的貯存場所。國內對乾貯設施的安全顧慮，主要來自於貯存容器與被貯存用過核子燃料在長達 20-40 年之貯存後，仍否維持原有的安全設計功能之顧慮。例如護箱是否因為環境與護箱材料的作用而衍生加速腐蝕之狀況，進而影響其包封能力與輻射屏蔽效果，或是內部燃料在貯存期間能有效避免燃料護套劣化並維持其完整性以滿足再取出作業性等相關疑慮。

針對乾式貯存設施之貯存條件能否滿足上述燃料護套之保護目的可以概由護箱內潛在腐蝕物質之總量以及該物質是否能夠造成顯著之腐蝕效應兩個面向來加以評估。為此，主管機關行政院原子能委員會放射性物料管理局(以下簡稱物管局)於 110 年即著手委託國內研究單位進行乾貯護箱於乾燥作業之有效性進行評估(如圖 1)。其研究結果[1]指出即使是在較低熱負載下、極保守考量護套表面鍵結水等條件下，除了乾貯護箱的殘餘水量仍較 NRC 延長乾貯之評估報告[2, 3]為低之外，單位護套面積所具有之含水量比例，亦較 NRC 之研究報告為低。該研究[1]指出燃耗雖與氧化層厚度呈正相關，並直接影響潛在氧化層水合物之厚度，但也因為燃耗亦與衰變熱分布相關，且大多因爐心設計之軸向尖峰因子而位於中央位置。故絕大多數的氧化層水合物皆可被有效的移除，僅有燃料束頂部與底部因所在位置之燃耗較低且散熱較佳，以致因元件溫度較低並殘留水份(如圖 2)。

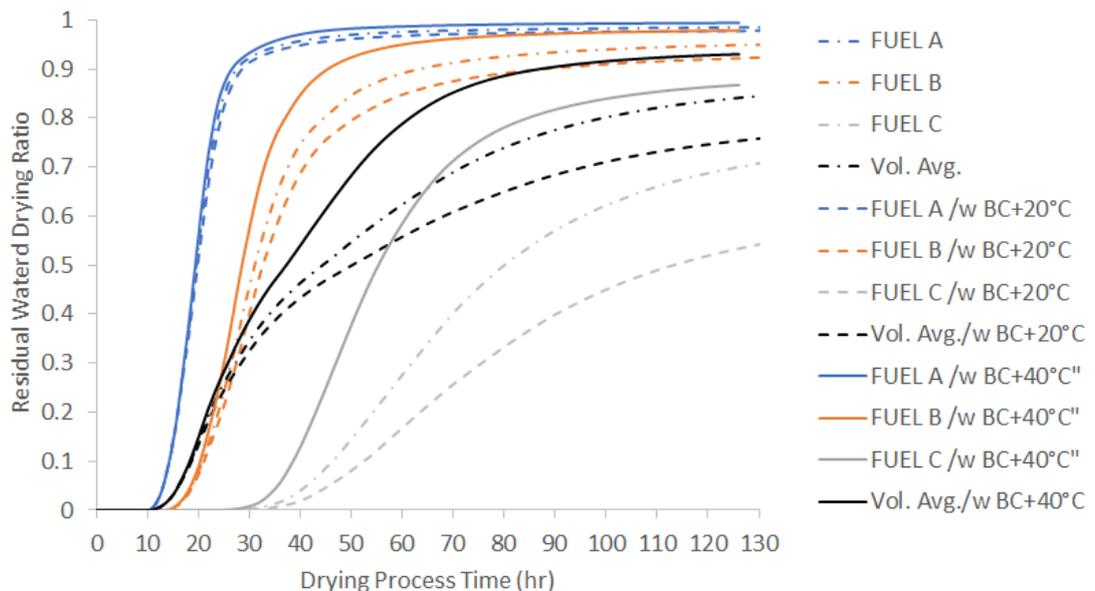


圖 1、110 年物管局計畫針對 NAC-UMS 護箱鍵結水進行乾化研析之結果[1]

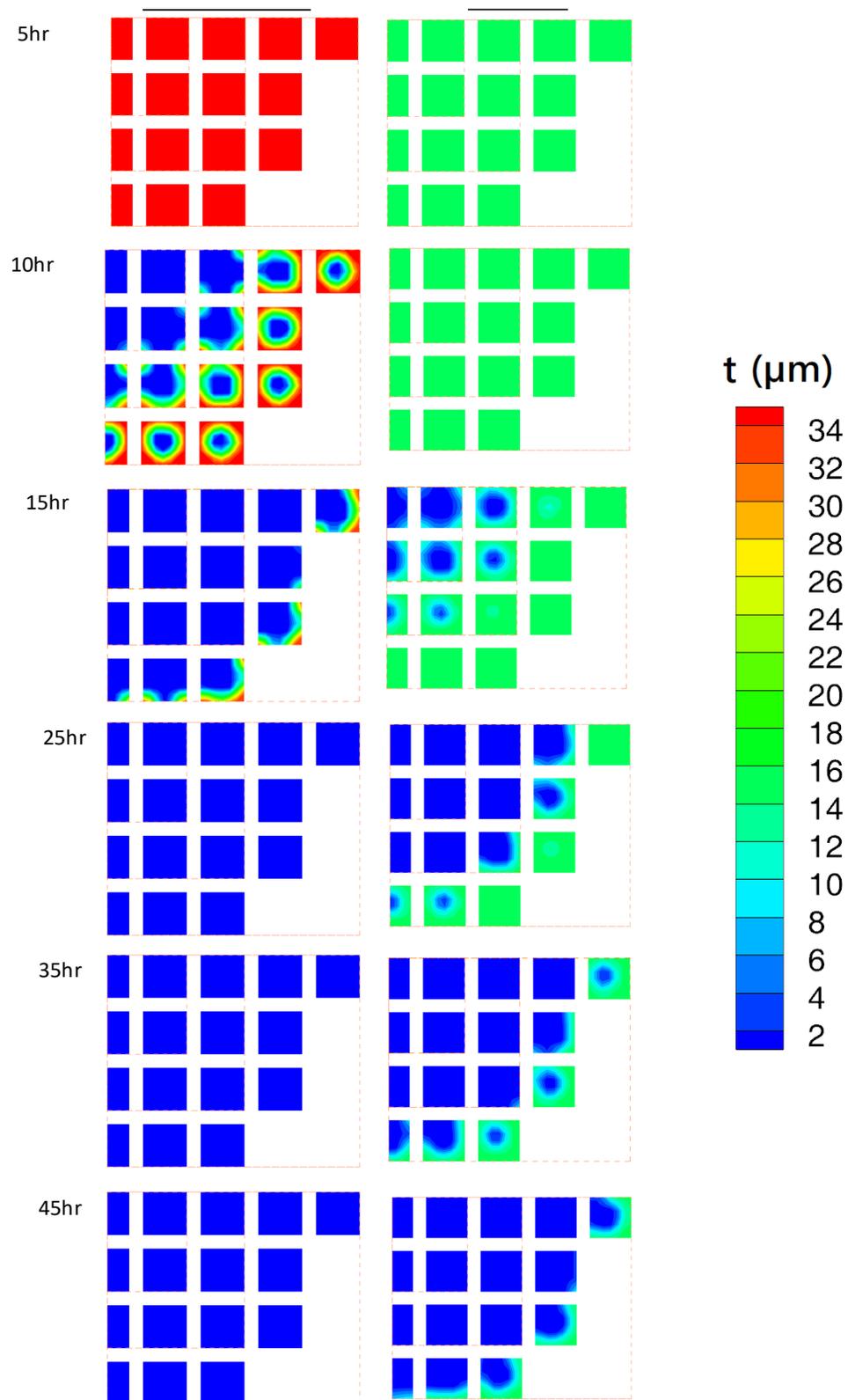


圖 2、Tseng [4] 等人針對近似 NAC-UMS 護箱之等效殘餘水效厚度( $t$ )分布研  
析結果

另一方面，在綜合計畫本身之研究發現並與國際間其它以實驗(如 Bang 等人[5])或是模擬(Saha[6])方法探討護箱乾操作業之結果相比對後可知，現行護箱之乾操作業往往採用重複抽氣與回充氬氣的方法，結合由護箱底部直接抽離液態水的程序，有效避免液態水在乾操作業因為顯熱不足而造成的結冰現象；故整體殘餘水之水量主要將受限於鍵結水的乾化狀況所影響。然而，經由過往對乾貯作業的瞭解可以得知，真空乾操作業屬於一短期之暫態作業，其目的係在護套本身不致出現超過 10 次 60°C 周期性溫升之前提下進行。預期在正常貯存時，護箱內所填充之氬氣將因為內部對流而使存在於護箱內的水汽，持續隨氬氣的對流而均勻分布在護箱內各處。

當上述水汽隨氬氣持續於護箱內部空間循環時，用過核子燃料所產生的中子與光子輻射能量，將有可能進一步與水分子作用，進而造成輻射分解效應，並於其重新再結合成為較穩定之產物前形成具有腐蝕性的產物；例如氧氣、過氧化氫等物質。過往針對輻射分解與再結合效應所造成的腐蝕，主要係考慮在電廠爐心水化學之領域，以探討機組於不同運轉功率(溫度 vs 流量、輻射通量)甚至防蝕措施(如飼水加氬)等水化學條件下所造成的腐蝕效應。然而上述的作用機制預期將不會因為在機組內或是乾貯護箱內而有差異，兩者間僅將因為用過核子燃料之輻射強度、所在乾貯環境中水汽較液態水稀少而存在作用機率差異，以及環境溫度之不同造成再結合速率差異，進而使護箱內之燃料護套受到與過往在爐心運轉時不同的腐蝕程度。

基於以上描述，主管機關若要進一步探討護箱內殘餘水於乾貯期間所可能造成的護套完整性差異，除了需要導入 110 年「室內乾貯設施輻射特性及乾貯護箱乾操作業之管制技術研究」計畫中所建立之殘餘水量預估技術，以進行傳送護箱作業階段之殘餘水量之評估外；更需進一步將其導入貯存護箱模型中，並計算其內部水汽之釋出狀況外，更需結合適切的輻射屏蔽分析技術與熱流技術，求解標

的護箱之密封容器內速度場、溫度場與輻射場，再行利用輻射分解與再結合效應計算模式，計算各區域之輻射分解與再結合效應，以獲得護套表面受上述產物影響下可能引發之腐蝕速率。

為此，本研究擬針對上述各項參數，建立如圖 3 所示之分析技術，並以計算流體力學分析技術為工具，針對具代表性之標的護箱經乾燥作業後仍有些許殘餘水之假想情境進行正常貯存期間的熱流特性研析，以探討不同參數條件下之流速、溫度分布，並進一步於計畫中建立相關殘餘水之輻射分解與再結合技術，期能藉此瞭解上述殘餘水量於長期貯存時對護套完整性之潛在影響。

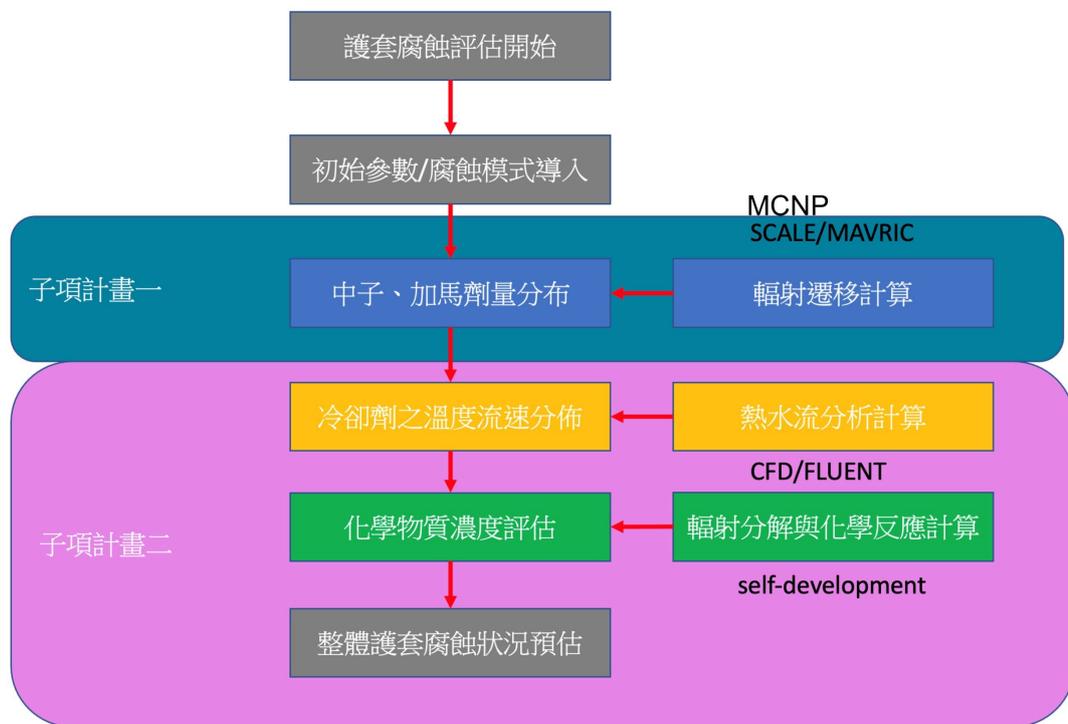


圖 3、結合輻射屏蔽、熱流與水化學分析技術進行護套腐蝕速率評估之流程示意圖

## 1.2 計畫研究標的

本子項計畫「乾式貯存期間殘餘水經輻射分解與再結合效應對用過核子燃料護套腐蝕影響研析」之計畫目標主要係結合熱水流與水化學分析技術，針對所選定之燃料熱流條件與殘餘水狀態，結合子項一「乾式貯存護箱於貯存用過核子燃料期間護箱內輻射場分布研析」利用蒙地卡羅法所求得之輻射場，以探討殘餘水在護箱內部因為輻射分解與再結合效應所導致的護套腐蝕機制，在長期貯存期間對燃料護套所造成的可能影響進行探討；而為能達成此一目標，本研究需逐步進行以下各項工作：

- 乾貯護箱內殘餘水、熱流場與輻射分解及再結合效應對護套腐蝕之相關資訊蒐集研析
- 護箱內熱流場及輻射分解及再結合效應之分析技術建立
- 代表案例中護箱之殘餘水、熱流場計算
- 輻射與熱流場結合下之輻射分解與再結合效應對護套氧化影響性探討
- 研提殘餘水經輻射分解與再結合效應對護套影響審查重點或注意事項

### 1.2.1 標的用過核子燃料特性說明

考量我國機組所使用的燃料雖然包括了國際間常見的沸水式(核一、二廠)以及壓水式(核三廠)反應器。但以目前各廠狀態進行考量後可知，現階段國內係以使用沸水式反應器之核一廠所需之中期貯存規劃時程最為緊迫。是故，本研究綜合國際間對燃耗與護套特性之研究資訊[7]並考慮我國用過核子燃料中期貯存規劃時程後[8, 9]，先行以 BWR 燃料作為本研究之代表性燃料類別，未來待相關分析技術發展成熟並針對已選用的護箱建立對應分析模式後，即可將其應用於壓水式反應器用過核子燃料之相關管制作業。

因此，在考量近年研究工作之一致性以及用過核子燃料特徵的代表性後，擇定各式商用 BWR 燃料中具有最大表面積、最小護套厚度(如表 1 所列)之 ATRIUM-10 燃料作為研究之標的燃料類型。

表 1、國內常見沸水式反應器燃料設計資料

燃料類型	燃料幾何資訊		燃料棒數	燃料表面積(cm <sup>2</sup> )	燃料護套厚度(cm)
	外直徑 (cm)	內直徑 (cm)			
GE 8×8-1	1.252	1.08	63	9.18E+04	0.086
GE 8×8-2	1.227	1.064	62	9.10E+04	0.0815
GE 9B	1.227	1.052	60	8.81E+04	0.0815
SPC 8×8	1.229	1.064	62	9.12E+04	0.0885
ATRIUM-10	1.005	0.884	91	<b><u>1.09E+05</u></b>	<b><u>0.0605</u></b>

### 1.2.2 標的護箱之選用

本研究係以建置評估輻射分解與再結合效應及其造成的腐蝕機制所需分析能力為目的，未來再視需求擴展至國內可能出現之管制標的進行再評估。因此，在檢視國際間護箱資訊之設計可取得狀況後，選擇以 NAC-UMS(如圖 4 所示)作為研究標的。

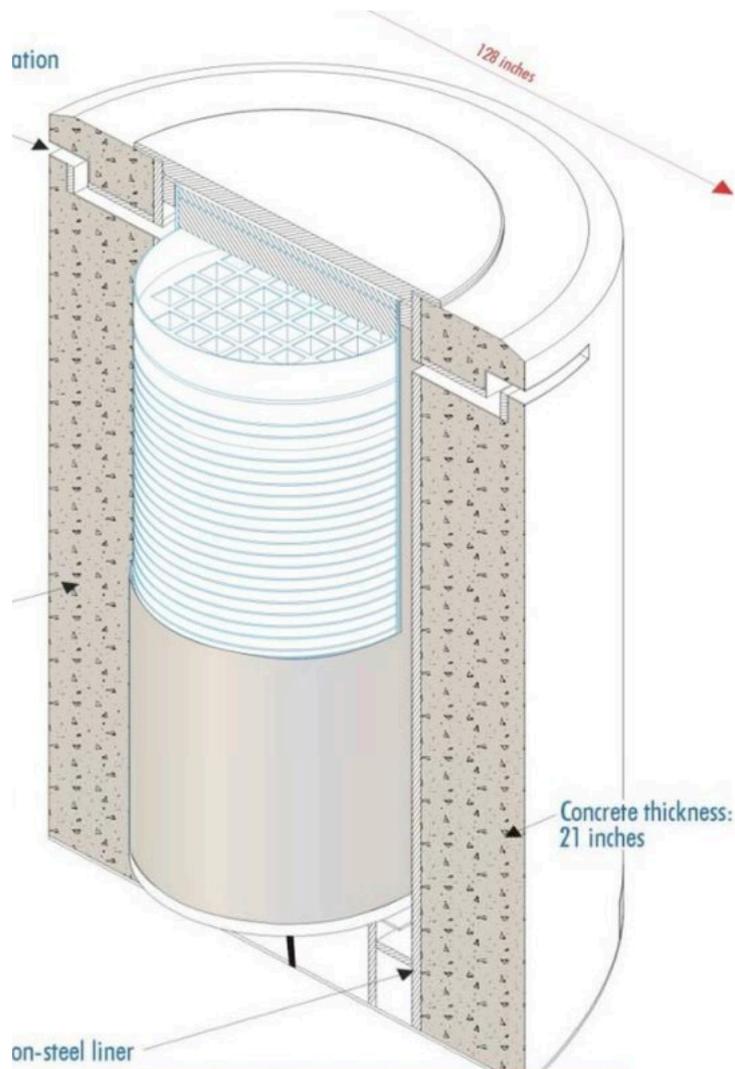


圖 4、研究中選為標的護箱之 NAC UMS 護箱設計[8]

### 1.2.3 其它與研究相關之分析參數研析

透過以上討論決定用過核子燃料及標的護箱類型後，研究中與幾何相關之所有參數即已決定，且未來在本計畫所建立的技術完備後，可另行導入擬分析之燃料及護箱模型後應用於其它案例分析，故研究已無需再針對幾何形狀不同所帶來之參數差異進行研析。

在利用上述的燃料與護箱選定流程並排除可能間接影響分析結果的幾何參數資訊後，預期影響輻射分解與水化學之參數將僅剩下溫度與流速、輻射強度與

含水量等參數，以下將逐一進行探討其影響並作下一階段文獻檢索與案例規劃之依據。

- A. 輻射強度：在特定護箱中各燃料束區域之輻射強度(包含中子及加馬)將決定於所裝載燃料之運轉歷史與退出爐心後之冷卻時間。由於本研究之輻射強度已直接由本年度計畫之子項一進行評估，且不致與本研究下述之各項熱流特性產生交互作用，因此本子項中不再進行初步探討，僅需於評估結果中擇其保守進行輻射分解效應評估即可。
- B. 殘餘水量與附著位置：本項參數主要因裝載作業傳送護箱之熱特性之影響，最終將影響護箱內殘餘含水量，需進一步透過研析以瞭解其可能現象，並確認後續分析時所使用量值之合適性與保守性。此外，由於熱源項量值的增加將使殘餘水量減少，故可預期本項參數將與衰變熱源項之量值呈負相關。
- C. 溫度與流速：溫度與流速於乾貯護箱內將因為自然對流機制而呈現具有明顯交互影響之參數，兩者亦同時受貯存期間之熱源項影響。不同於前項主要決定殘餘水總量，護箱內之溫度與流速將因為熱源的強弱而改變。其中，溫度的高低將直接影響輻射分解後產物於再結合時之反應速率。另一方面，溫度差亦同時誘發護箱內流場的產生，而影響受分解與再結合機制所產生(或消耗)之化學物質在護箱內之分布趨勢。也由於兩項參數間的交互影響，研究期間將進一步探討其影響，以作為保守評估護箱各處分解或再結合產物反應速率之基礎。

為能進一步瞭解國際間對於此議題之研究進展，以及其所採用之作法是否有可供借鏡或進一步改善之處；本研究透過國際期刊、管制機關技術文件或研究報告之蒐集，獲得對應之技術資訊將於第三章中進行分類討論。

## 第二章、研究方法

主管機關為回應國人對乾式貯存設施安全性疑慮而規劃本案，期能利用科學知識與技術，提出相關事證以說明護套於長期貯存之可靠性。故雖非任一乾式貯存設施之安全分析或是審查校驗，但仍應嚴謹守主管機關對於安全與資訊可靠度之要求。為能確保各項科學研析流程之嚴謹性，研究執行過程之各項工作仍將依循我國最新乾貯設施“用過核子燃料乾式貯存設施安全分析報告審查導則”(以下簡稱：審查導則)所載之各項熱傳評估要求，並使用最新版計算流體力學(Computational Fluid Dynamics, CFD)分析工具 FLUENT 2022 R1[20, 21]來進行熱流分析模式發展與求解與使用者自定函數之發展(Coding)與編譯(Compile)以作為各項案例計算之基礎。

### 2.1 統御方程式

本研究計畫擬探討之標的護箱(NAC UMS)，在完成用過核子燃料之裝載作業後，即置入混凝土製護箱以被動式散熱(Passive Cooling)機制移除用過核子燃料所產生的衰變熱。此能量對密封鋼筒內氬氣所造成的加熱效果，將促使其密度發生改變而產生內部自然對流，並藉由密封鋼筒外殼的熱傳導對外側空氣流道進行加熱，最終透過空氣的流動而達到熱移除目的。上述熱傳機制所包含之計算域(Calculation Domain)，可自內部燃料束至混凝土護外表面逐一系列如下：

- A· 燃料丸所具有的衰變熱(熱產生率  $W/m^3$ )透過氬氣夾層與燃料護套傳導/輻射以熱通量( $W/m^2$ )之型式至燃料護套內表面；此階段因為熱通量之強度較低且氬氣夾層厚度極薄，故可忽略輻射熱傳之貢獻；
- B· 護套內表面之熱通量透過熱傳導機制傳送至護套外表面；
- C· 護套外表面之熱通量藉由輻射與氬氣之傳導往外圍提籃結構/中子毒素材料甚至外圍燃料傳遞，部分亦藉由內部氬氣受熱後所產生的對

流向燃料束上方移動；此一機制係為形成護箱內流速之主因，亦為過往 NAC-UMS 護箱於安全分析時保守忽略之處；

- D. 不論是藉由對流/傳導或是輻射機制，所有的熱將由密封鋼筒(TSC)之殼體、上蓋、底板以熱傳導機制向外傳遞；
- E. 透過密封鋼筒殼體之對流熱傳，將大部分熱源用於加熱空氣並誘發空氣流道之自然對流；少部分之熱源將以輻射熱傳型式對混凝土護箱內襯進行加熱，最終亦以自然對流形式由內襯表面或混凝土護箱外表面移除。

此外，本研究所擬探討的標的護箱，經研析對同型護箱於天候變異下之學術期刊[4]可知，護箱內部元件將因為系統熱質量龐大而令護箱各處之熱流特性不易受到外界環境溫度之周期性變化影響。故整體而言，後續水化學評估所需之熱流特性相關資訊預期可以排除護箱之外在參數影響，而僅需就護箱之內部參數進行分析。是故，本研究將以一考慮護箱內外部自然對流之穩態共軛熱傳，並包含輻射熱傳機制來模擬分析研究計畫所選定之標的護箱；其統御方程式可以描述如下：

#### 質量守恆方程式

$$\nabla \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (1)$$

其中，

$\rho$ 為流體密度；

而 $\vec{v}$ 為速度向量。

#### 動量守恆方程式

$$\nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot (\bar{\tau}) + \rho \vec{g} + \vec{F} \quad (2)$$

其中， $p$ 為靜壓力， $\rho \vec{g}$ 為體積力項；

$\vec{F}$ 為額外力源，於本研究中主要係為自然對流所生之浮力項； $\bar{\tau}$ 為應力張量，其形式可以寫為：

$$\bar{\tau} = \mu \left[ (\nabla \vec{v} + \nabla \vec{v}^T) - \frac{2}{3} \nabla \cdot \vec{v} I \right], \quad (3)$$

其中，

$\mu$ 為流體黏滯係數；

$I$ 則為單位張量。

**能量守恆方程式**

$$\nabla \cdot [\vec{v}(\rho E + p)] = \nabla \cdot (\kappa_{eff} \nabla T) + S_h \quad (4)$$

其中，

$E$ 為單位質量之總能量；

$p$ 為靜壓力；

$T$ 為溫度(K)；

$\vec{v}$ 為速度向量；

$S_h$ 為熱源項；考量護箱之熱流響應時間遠快於衰變熱的變化速率。

鑑於本研究主要探討長時間之腐蝕特性，故無對衰變熱源隨時間緩慢變化之暫態狀況進行細部研究；研究中採擬穩態概念將不同時間之護箱所具有的熱源項視為具有不同熱源之“穩態”案例。

$\kappa_{eff}$ 則為等效熱導率：

$$k_{eff} = k + k_t \quad (5)$$

其中，

$k$ 為物質本身之分子熱導率；

$k_t$ 則為流場紊流所致之熱導率。

## 2.2 數值模式

在採用計算流體力學分析程式進行分析時，除了需就各項擬分析之熱流機制進行檢視，並以合適之統御方程式加以描述外，亦需就分析案例所具有的熱流特性，導入合適之數值模式(Numerical Model)來加以模擬，雖然此一部分係屬於專業技術之描述且與過往研析工作程序多有相似；但為求本研究報告之可讀性與完整性，本節中仍針對研究所需考量的各項數值模式，例如輻射熱傳與紊流模式等逐一描述。

### 2.2.1 DO 熱輻射模式

前述所提及的對流耦合輻射熱傳機制，已由 2.1 節所列之統御方程式加以表現，而在輻射熱傳部分，本研究選擇具有充份應用實例之 DO 模式(Discrete Ordinates Model)進行熱輻射計算，以確保研究技術的一致性與精確性。DO 模式係求解輻射傳輸方程式(Radiation Transport Equation, RTE)以計算模型中經離散各個網格中，其物質受輻射熱傳機制所造成的熱輻射效應，惟因乾貯設施貯存期間氣體係為透明體，故輻射熱傳於氣體間的散射效應將不予考慮。主要係針對輻射熱通量在一種透明(如流體)、非透明物體(如固體)間的傳播方式；而預期透過此模式之引入，將可使整體乾貯於裝載期間之真空與充氦階段下的輻射熱傳精確掌握。本模式之方程式可以寫為：

$$\nabla \cdot (I_{\lambda}(\vec{r}, \vec{s})\vec{s}) = 0. \quad (6)$$

其中， $I(\vec{r}, \vec{s})$  為  $\vec{r}$  點沿著  $\vec{s}$  方向之總輻射強度：

$$I(\vec{r}, \vec{s}) = \sum_k I_{\lambda_k}(\vec{r}, \vec{s}) \Delta \lambda_k; \quad (7)$$

$\lambda$  則為波長。

此輻射熱傳將透過上述不透明邊界條件的輻射熱傳，與前述能量方程式達成耦合：

$$q'' = \int_{\vec{s} \cdot \vec{n} > 0} I \vec{s} \cdot \vec{n} d\Omega. \quad (8)$$

其中，

$I(\gamma, \Omega)$  為輻射位於 $\vec{r}$ 位置且沿  $\Omega$ 方向之強度；

$S(\gamma, \Omega)$  則為輻射源項；

$I_b(\gamma)$  則為 $\vec{r}$ 位置之黑體輻射強度。

### 2.2.2 紊流模式

依據美國 NRC-NUREG 2152[22]報告中對於乾貯護箱之熱流分析研析可知，各式 k- $\epsilon$  或 k- $\omega$  模式皆可合理掌握乾貯護箱內之紊流特性，並據以求得護箱內燃料及其它元件之正確溫度；研究中可搭配分析需求與考量進行選擇。惟 k- $\epsilon$  模式中往往需要合適的壁面網格高度以配合對應的 Wall Function 而往往令求解工作徒增不必要的計算時間；相反的，採用 k- $\omega$  模式則可無需顧慮壁面網格高度而有助於提升研究進行的順暢度。是故，本研究選擇以具有充足經驗且具應用便利性之 SST (Shear-Stress Transport) k- $\omega$  模式作為本研究之紊流數值模式；其方程式可以表示為：

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho k u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \Gamma_k \frac{\partial k}{\partial x_j} \right) + \tilde{G}_k - Y_k + S_k \quad (9)$$

$$\frac{\partial}{\partial x_i}(\rho \omega u_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \Gamma_\omega \frac{\partial \omega}{\partial x_j} \right) + \tilde{G}_\omega - Y_\omega + S_\omega \quad (10)$$

其中，

$k$  為紊流動能；

$\omega$  則為消散率；

$\tilde{G}_k$  為紊流動能梯度；

$\tilde{G}_\omega$  為消散率梯度；

$Y_k$  與  $Y_\omega$  分別為  $k$  與  $\omega$  因為紊流所造成的消散量；

$S_k$  與  $S_\omega$  分別為  $k$  方程式與  $\omega$  方程式之源項；

$\Gamma_k$  與  $\Gamma_\omega$  則為等效擴散項，且可進一步定義為：

$$\Gamma_k = \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k}; \quad (11)$$

$$\Gamma_\omega = \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\omega}; \quad (12)$$

上二式中， $\mu$ 為流體黏滯係數， $\sigma_k$ 與 $\sigma_\omega$ 為紊流普蘭特常數(turbulent Prandtl number)而， $\mu_t$ 則為：

$$\mu_t = \alpha^* + \frac{\rho k}{\omega}; \quad (13)$$

其中，紊流阻尼 $\alpha^*$ 可以定義為

$$\alpha^* = \alpha_\infty^* + \left( \frac{\alpha_0^* + Re_t / R_k}{1 + Re_t / R_k} \right); \quad (14)$$

而， $\alpha_\infty^*$ 為阻尼；

$$Re_t = \frac{\rho k}{\mu \omega}; \quad (15)$$

$$R_k = 6; \quad (16)$$

$$\alpha_0^* = \frac{\beta_i}{3}; \quad (17)$$

$$\beta_i = 0.072。 \quad (18)$$

### 2.2.3 自然對流模式

在前述之動量守恆方程式中，自然對流乃是因為流體密度差以及重力場之乘積所形成的體積力 $\rho \vec{g}$ ，且其中重力加速度 $\vec{g}$ 為一常數(-9.8m/s<sup>2</sup>)，因此在研究中僅需設定護箱內的氦氣以及護箱空間流道中的空氣性質，使其能表現出流體密度隨溫度變化之特性，即可完成此模式的設定。

在 FLUENT 中，用以設定流體密度變化的設定方法可以分為三種：

1. 理想氣體法；
2. 布希尼克(Boussinesq)近似法；以及，
3. 將材料性質以為溫度函數進行處理。

過往，國際間的研究成果[36]或是國內相關乾貯安全分析方法論的發展驗證[23]抑或近期的管制分析工作[24]，皆採用布希尼克近似法以期改善整體的收斂

性。但由於過往的研究中並無同時考慮密封鋼筒內因同時存在不同流體時所造成的對流狀況，因此研究中不宜再選用布希尼克近似法，僅以程式中設定體積膨脹係數( $\beta$ )與參考溫度之方式來模擬。為此，本研究選擇於流體材料性質表中反應其密度與溫度之特性，以期在不影響收斂性之前提下，同時掌握氮氣與水蒸汽混和於護箱內部流動區域內時之流體特性。相關材料性質之設定將於本報告 4.2 節描述。

## 第三章、乾貯護箱內部殘餘水對熱流與水化學特性及護套

### 腐蝕之資訊研析

#### 3.1 殘餘水量與相對溼度評估技術合適性研析

有鑑於整體研究之最終目的在於建立殘餘水於長期貯存期間對護套影響之分析技術，以作為未來其它護箱評估之用。故整體分析技術間最為關鍵之基礎，即是透過檢視國際間各項可適用於全護箱之殘餘水量預估技術，並於其中選擇合適技術進行應用。

不論是 NRC 於 2013 年所使用的殘餘水預估結果，或是 2020 年於薩凡納河國家實驗室(Savannah River National Laboratory, SRNL)所提出之報告[38]，其研究中所假設的殘餘水量主要係依據部分實驗結果(例如 Bryan[39])所獲得的量值進行假設，以作為該研究中探討護套腐蝕之依據。然而 Bryan[39]研究中所呈現之護箱內存在約 5.5mole 殘餘水量之評估雖具有其可信度，但卻無法將實際擬探討之護箱型式、熱流特徵以及裝載燃料等影響參數納入考慮。而 Bang [5]的或是 Saha[6]的研究結果雖然宣稱可全面性的考慮護箱內各處的元件與殘餘水，在乾燥作業期間因衰變熱與水蒸發所造成的結冰或融解機制。但相較之下，Bang [5]的或是 Saha[6]中選擇以較趨於學術研究之構想，並以簡易幾何所建立之實驗或是模擬來獲得結果，而未能反應實際乾貯護箱與燃料燃耗之影響。

此外，上述 SRNL 的研究報告不僅只針對殘餘水量進行研析，該研究為能充份探討殘餘水於護箱內的各種結果，亦考慮了燃料於護箱內釋放衰變熱所造成的溫度表現。然而該報告為能簡化溫度參數取得之困難度，而參採了 Jensen and Richmond 等人於 2019 所發表之研究報告[40]，將燃料溫度劃分為數個溫度區間以作為後續研析之依據，所獲得各區間之對應燃料體積如表 2 所示。由此可知，

在進行殘餘水分析之同時，若無法導入合適之熱流分析技術，將直接影響所提供之溫度資訊；再者，即使在固定護箱空間與特定殘餘水量下，其內部氣體之相對溼度仍與局部溫度相關，因此若分析技術中未能詳實計算溫度之分布，將使內部氣體於局部或整體之相對溼度預估失準。相較之下，本研究團隊於 110 年藉由熱流分析技術所建立之殘餘水三維評估模式[1]，在經過期刊之同儕審查後，認為能夠透過精確的熱流分析來評估不同燃耗與熱負載所造成的殘餘水及元件熱流表現，除了可以獲得具一定可信度的殘餘水量之外，亦可同步提供各處燃料溫度與整體氣體平均溫度以作為局部反應速率與整體相對溼度計算基礎。

最後，在進一步比對該技術與 SRNL[38]研究中所載之殘餘水量(表 3)相比可知，在相似之護箱與熱負載條件下，該方法所獲得的殘餘水量確實與該研究所載結果相當，且不同護箱型式、熱負載等參數影響所致之水量差異，亦已經同儕審驗確認。基於以上討論，本團隊確認於 110 年物管局研究計畫中所建立之殘餘水分析技術符合評估之需求。

表 2、SRNL[38]報告中採用分區平均法計算各區體積與溫度

Zone Number	Fuel and cladding initial temperature K (°C) with peak temperature of 302 °C	Fuel and cladding initial temperature K (°C) with peak value of 400 °C	Percentage of total volume of fuel basket
1	575 (302)	673 (400.0)	18.95
2	525 (252)	623 (350.0)	33.00
3	475 (202)	573 (300.0)	33.72
4	425 (152)	523 (250.0)	12.38
5	375 (102)	481 (208.0)	1.95

表 3、本研究所建立之分析技術與 SRNL 報告中對殘餘水量結果之比對

殘餘水量(mole)	SRNL	Present Tech.	
		標準負載	低熱負載
一般燃耗	10	10.83	66.67
高燃耗		19.44	121.22

### 3.2 殘餘水輻射分解與再結合對護套之完整性之相關文獻研析

來自用過核燃料衰變的中子與加馬射線，與空氣中的水分子進行反應，使得水分子被游離，中子不會直接將水解離，主要是中子與原子核之間的反應而產生的質子、重粒子與光子是產生游離的原因。在游離的過程，原子與分子損失了電子並且獲得能量，水的輻射分解過程中，沿著介質行進的軌跡而產生不同的放射性物質成分，各式分子、離子和化學基會在介質生成，如圖 5 所示。水經由輻射分解效應產生的化學成分並不會穩定地持續存在，化學成分彼此間或與水分子會發生化學反應而產生其他種類的化學成分。乾貯護箱內部可能因為少量水蒸汽的存在，而用過核燃料衰變產生的中子與加馬射線與護箱內部水產生輻射分解反應，產生各種化學成分，而其中可能會有影響燃料護套表面的氧化劑成分，因此可以透過數值模擬程式，配合輻射劑量與熱流參數的分析與計算，分析乾貯護箱內部的關鍵氧化還原劑(氫、氧、過氧化氫)的濃度分布。

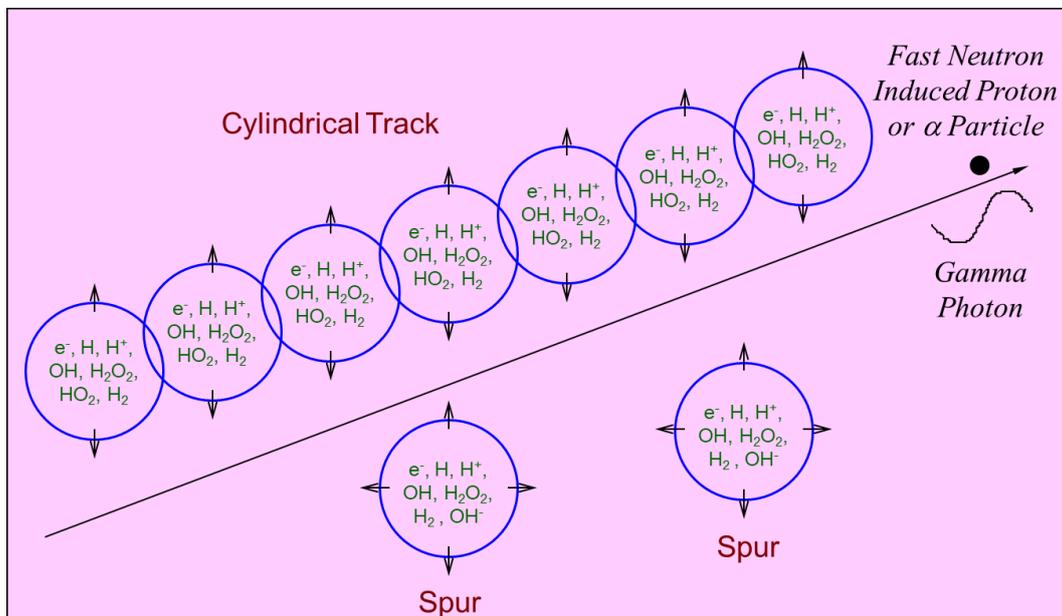
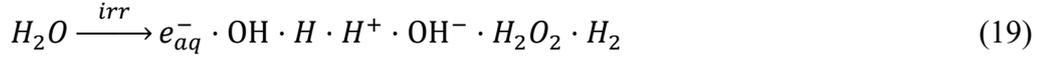


圖 5、水分子經輻射分解過程中產生的各種放射性物質成分

針對乾貯護箱內部的水化學分析，其模擬程式為計算每一種成分的輻射分解產率和來自化學反應而引起的濃度改變，來建立輻射分解程式，透過數值方式以 Fortran 軟體進行建立。水分子和中子及加馬射線間的相互作用而產生不同的分子、離子和化學基，即是輻射分解，可能產生的成分包含下列：



而輻射分解反應主要化學成分產生的速率為：

$$R(T)_i^y = \left( \frac{G_i^y \Gamma^y}{100N_v} + \frac{G_i^n \Gamma^n}{100N_v} \right) \tilde{F} \rho(T) dV \quad (20)$$

此處  $R_i^y$  的單位為 mol/s， $\Gamma^n$  和  $\Gamma^y$  分別為中子及加馬射線的劑量率(Rad/s)， $N_v$  為亞弗加厥(Avogadro)數， $\tilde{F}$  是由單位 Rad/s 變為 eV/g-s 的轉換因子（等於  $6.25 \times 10^{13}$ ）， $\rho$  是水的密度，單位為 g/cm<sup>3</sup>，密度數值會隨溫度變化而改變。 $G$  值即為輻射分解產率(Radiolytic Yield)，表示每單位輻射能量吸收後所產生的化學分子或成分所產生的數目，以每 100 eV 能量所產生的分子數為單位。 $G_i^n$  和  $G_i^y$  分別代表每 100 eV 的中子及加馬射線能量被吸收後，第  $i$  種成分在水中所產生的數目。此次乾貯護箱內部狀態下每種化學成分的輻射分解產率( $G$  值)採用值如表 4 所示[33]；另外，所考慮之乾貯護箱內部溫度的差異則將於第五章第 2 節中進行分析匯整。

再者，考慮經由化學反應而產生的濃度變化，因為由輻射分解效應產生的化學成分並不會穩定地持續存在，這些成分彼此間或與水分子會發生化學反應而產生其他種類的化學成分，此次考慮的成分包含 11 種，這 11 種成分為  $e^-$ 、 $H$ 、 $H^+$ 、 $OH$ 、 $OH^-$ 、 $H_2O_2$ 、 $HO_2$ 、 $HO_2^-$ 、 $O_2$ 、 $O_2^-$ 、 $H_2$ ，主要考慮的氧化還原劑為  $H_2O_2$ 、 $O_2$ 、 $H_2$ 。因此，在一特定位置每一種化學成分的變化速率為：

$$R_i^c = \sum_{s=1}^N \sum_{m=1}^N k_{sm} C_s C_m dV - C_i \sum_{s=1}^N k_{si} C_s dV \quad (21)$$

此處  $k_{sm}$  為成分  $s$  和  $m$  反應的速率常數， $k_{si}$  為成分  $s$  和  $i$  反應的速率常數， $C_i$ 、 $C_m$  和  $C_s$  分別是成分  $i$ 、 $m$  和  $s$  的濃度，本研究所採用的 39 個化學反應式及速率

常數列如表 5[33]。

本研究考慮水經由輻射分解與來自化學反應的化學成分變化率，以數值方法解式，透過數值計算軟體建立輻射分解程式。莫耳數變化總速率可表示如下：

$$R_i^t = R_i^y + R_i^c \quad (22)$$

考慮穩態的結果，其總變化速率為零（即式(23)=0），因此將方程式(21)、(22)帶入式(23)中可得：

$$\left(\frac{G_i^y \Gamma^y}{100N_v} + \frac{G_i^n \Gamma^n}{100N_v}\right) \tilde{F} \rho dV + [\sum_{s=1}^N \sum_{m=1}^N k_{sm} C_s C_m - C_i \sum_{s=1}^N k_{si} C_s] dV = 0 \quad (23)$$

輻射分解係因中子與加馬射線將水分子解離成不同的化學成分，包含 e-, OH, H, H+, OH-, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>，這些成分的產生量與中子與加馬射線的能量相關，再結合效應即是透過表 5 的這些化學反應而使得原先輻射分解產生的這些化學成分各自作用產生新的化學成分或原先的化學成分含量因而減少。透過每種化學成分的生成與減少的行為來進行數學式的建立，其機制包含輻射分解與發生化學反應，其數學式如方程式(4)，考慮 11 種化學成分，共有 11 個方程式，在進一步將上述方程式組予以聯立，並以 FORTRAN 程式所建立之程式進行反矩陣求解後，即可計算乾貯護箱內部水分子經過中子及加馬射線照射的分解產物濃度。

其中還原劑如氫可以降低氧化劑的濃度，以降低腐蝕的程度。由從有效氧化劑的濃度來看，預期因為鋼筒內的含水量程度較低，因此產生的有效氧化劑濃度不高，對於腐蝕劣化的影響明顯降低，與鋼桶內充滿水的模擬條件相比，少了百倍以上。但由於本研究即是求解在特定護箱溫度、輻射與流場下的輻射分解與再結合現象並探討其對護套之影響，因此各項評估結果將於本報告第五章之熱流分析結果之後再行陳述。

表 4、乾貯護箱內部狀態下，每種化學成分的輻射分解產率(Number/100 eV)

Species\G	e <sup>-</sup>	H	OH	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	HO <sub>2</sub>	HO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	O <sub>2</sub>	O <sub>2</sub> <sup>-</sup>	H <sub>2</sub>	OH <sup>-</sup>	H <sup>+</sup>
Temp = 80 °C											
Neutron	1.05	0.43	1.49	0.76	0.03	0.00	0.00	0.00	0.81	0.00	1.05
γ Photon	3.01	0.67	3.37	0.62	0.00	0.00	0.00	0.00	0.46	0.00	3.01
Temp = 156 °C											
Neutron	1.13	0.45	1.97	0.64	0.03	0.00	0.00	0.00	0.88	0.00	1.13
γ Photon	3.33	0.82	4.14	0.50	0.00	0.00	0.00	0.00	0.49	0.00	3.33
Temp = 220 °C											
Neutron	1.20	0.48	2.37	0.53	0.03	0.00	0.00	0.00	0.93	0.00	1.20
γ Photon	3.49	1.02	4.78	0.40	0.00	0.00	0.00	0.00	0.53	0.00	3.49

表 5、乾貯護箱內部狀態下，採用的化學反應式及速率常數(L/Mol-sec)

編號	化學方程式	速率常數 (L/Mol-sec) 80 °C	速率常數 (L/Mol-sec) 156 °C	速率常數 (L/Mol-sec) 220 °C
1	$e^- + H_2O = H + OH^-$	1.25E+02	4.68E+02	8.80E+02
2	$e^- + H^+ = H$	4.26E+10	9.41E+10	1.97E+11
3	$e^- + OH = OH^-$	6.88E+10	1.42E+11	2.30E+11
4	$e^- + H_2O_2 = OH + OH^-$	3.65E+10	9.41E+10	1.67E+11
5	$H + H = H_2$	1.36E+10	3.48E+10	6.12E+10
6	$e^- + HO_2 = HO_2^-$	2.93E+10	6.43E+10	1.03E+11
7	$e^- + O_2 = O_2^-$	4.75E+10	9.61E+10	1.47E+11
8	$2e^- + 2H_2O = 2OH^- + H_2$	5.07E+08	7.27E+10	4.37E+09
9	$OH + OH = H_2O_2$	7.83E+09	1.04E+10	1.08E+10
10	$OH + HO_2 = H_2O + O_2$	1.34E+10	2.00E+10	2.55E+10
11	$OH + O_2^- = OH^- + O_2$	2.17E+10	4.18E+10	6.20E+10
12	$OH^- + H = e^- + H_2O$	2.72E+08	1.58E+09	3.58E+09
13	$e^- + H + H_2O = OH^- + H_2$	7.04E+10	1.73E+11	2.99E+11
14	$e^- + HO_2^- + H_2O = OH + 2OH^-$	9.23E+09	2.34E+10	4.09E+10
15	$H^+ + OH^- = H_2O$	2.66E+11	4.70E+11	6.78E+11
16	$H_2O = H^+ + OH^-$	1.19E-03	1.95E-02	5.93E-02
17	$H + OH = H_2O$	1.93E+10	3.34E+10	4.65E+10
18	$OH + H_2 = H + H_2O$	7.83E+08	1.23E+08	3.89E+08
19	$OH + H_2O_2 = H_2O + HO_2$	6.94E+07	1.60E+08	2.64E+08
20	$H + H_2O_2 = OH + H_2O$	1.37E+08	4.88E+08	1.05E+09
21	$H + O_2 = HO_2$	2.57E+10	4.19E+10	5.21E+10
22	$HO_2 = O_2^- + H^+$	2.09E+06	2.22E+06	1.03E+06
23	$O_2^- + H^+ = HO_2$	1.06E+11	1.95E+11	3.14E+11
24	$2HO_2 = H_2O_2 + O_2$	2.96E+06	9.95E+06	2.07E+07
25	$2O_2^- + 2H_2O = H_2O_2 + O_2 + 2OH^-$	2.88E+06	9.11E+06	1.83E+07
26	$H + HO_2 = H_2O_2$	2.95E+10	1.47E+11	6.19E+10
27	$H + O_2^- = HO_2^-$	2.95E+10	7.36E+10	1.28E+11
28	$e^- + O_2^- + H_2O = HO_2^- + OH^-$	2.93E+10	6.43E+10	1.03E+11
29	$OH^- + H_2O_2 = HO_2^- + H_2O$	3.21E+10	6.24E+10	9.26E+10
30	$2H_2O_2 = 2H_2O + O_2$	2.93E+10	6.43E+10	1.03E+11
31	$H + H_2O = H_2 + OH$	2.27E-02	5.73E+00	1.30E+02
32	$H_2O + HO_2^- = H_2O_2 + OH^-$	9.73E+06	4.99E+07	1.05E+08
33	$HO_2 + O_2^- = O_2 + HO_2^-$	1.30E+08	2.19E+08	2.99E+08
34	$H_2O_2 = 2OH$	5.84E-06	3.53E-04	4.83E-03
35	$H^+ + HO_2^- = H_2O_2$	9.51E+10	1.95E+11	3.31E+11
36	$H_2O_2 = H^+ + HO_2^-$	5.05E-02	6.89E-01	3.58E+00
37	$H = H^+ + e^-$	4.16E+02	1.32E+04	7.03E+04
38	$HO_2 + OH^- = O_2^- + H_2O$	5.34E+00	2.48E+02	3.00E+03
39	$O_2^- + H_2O = HO_2 + OH^-$	1.21E-09	9.04E-07	7.95E-05

除上述殘餘水經輻射分解之評估外，燃料護套亦將因為所處環境而存在其它的腐蝕機制。在 110 年的研究計畫中，所採取的評估策略是引用美國 NRC 於 2013 年所評估的結果[2]，並依據護套單位面積下之環境含水量( $\text{g}/\text{m}^2$ )進行影響之推測，此部份亦值得今年度研究進一步建立評估方法並加以探討之。經文獻檢索與研析後發現，CNWRA(Center for Nuclear Waste Regulatory Analysis)曾於 2013 年的研究[34]中指出對於鋁質護套而言，當燃料溫度高於  $150^\circ\text{C}$  且相對溼度大於 20%時即可測得氧化；研究更進一步指出且由於鋁與鋯在普爾貝(Pourbaix)圖中具有相近之分類特性(Ghali, 2010)，故於研究中亦可將其溼度閾值設定為 20%以作為後續計算之基準。此外，在團隊研析 NUREG/CR-6846[35]等技術報告後得知，在考慮溼度大於閾值之條件下，鋯合金燃料護套之氧化特性可以透過下式來加以表達：

$$\Delta W = At \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$$

其中， $\Delta W$  為每平方公尺之材料重量增加量( $\text{g}/\text{m}^2$ )，A 為指數常數( $\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$ )其值為  $3.25 \times 10^5$ ；Q 為活化能  $1.13 \times 10^5$  (J/mol)；R 為理想氣體常數  $8.314$ (J/mol/K)；T 為溫度(K)，t 則為時間(hr)。依據 NUREG/CR-6846 之資訊，各種材料之計算參數如下表所示。而 Oxide Growth Phase 則代表不同氧化階段之氧化速率；由表可見，氧化物剝離後(Post-breakaway)所具有的氧化速率將比剝離前(Pre-breakaway)更高。

透過以上資訊的研究，後續研究中將進一步導入上述計算方程式至 CFD 熱流分析模式中，並由 CFD 提供所需之資訊(溫度)，以獲得對應之護套氧化特性。

表 6、不同護套材料之氧化速率參數[35]

Material	氧化物剝離況狀	A	Q/R
Zircaloy-4	氧化物剝離前	0.386	16070
	氧化物剝離後	187.3	19245
ZIRLO	氧化物剝離前	0.86	16100
	氧化物剝離後	$1.72 \times 10^4$	22865
M5	氧化物剝離前	$1.0 \times 10^{-3}$	12230
	氧化物剝離後	$1.3 \times 10^5$	25290

### 3.3 護箱內部流場特性與氣體性質之相關性資訊研析

一般而言，廠家進行護箱的設計開發時往往不會著重護箱內對流特性之探討，而僅針對護箱內部對流與其它散熱機制之移熱貢獻進行綜合性的說明。經研究團隊檢視國際間之研究文獻後發現，目前僅有針對護箱內氣體對流特性或監測時方會進行深入的內部流場與影響參數研析；例如日本 CRIEPI (Central Research Institute of Electric Power Industry)曾針對護箱各式事故，例如護箱洩漏、阻塞案例等方有探討內部氣體成分改變所造成的熱流特性影響[41]。相類似的研究亦可在 Tseng 利用 CFD 進行護箱事故的可監測性探討研究[36]中發現。兩者之研究結果顯示，不論採用實驗或是 CFD 分析方式，在護箱實際貯存具熱源之燃料時，只要護箱設計容許內部氣體對流，則其溫度特性必然會與不考慮對流之假設有所不同，且其對流特性將因為護箱設計之不同而隨之改變(圖 6)。此一差異主要是源自於熱對流機制在護箱內僅佔有一定比例之散熱比重，因此在各種幾何、熱源項、氣體成分改變時，必將同時改變自然對流發展所依賴的溫度差，從而造成速度分布的改變。例如，圖 6 顯示當內部氣體之熱傳導性質下降時，將誘使內部對流速度增加；不過整體而言，仍不會改變內部燃料方管內氣體因受熱上升，外側燃料方管較靠近低溫之密封鋼筒而使氣體得以降溫並沉降的特性(圖 7)。

是故，本研究在進行後續的輻射分解與再結合效應分析前，應先針對 3.1 節所載之各種可能殘餘水量所造成的內部流場特性差異進行研析，並從中選擇具代表性或保守性之流場特性進行流路模型的建立，最後作為提取輻射分解與再結合效應計算所需之溫度、速度與溼度等參數之依據。

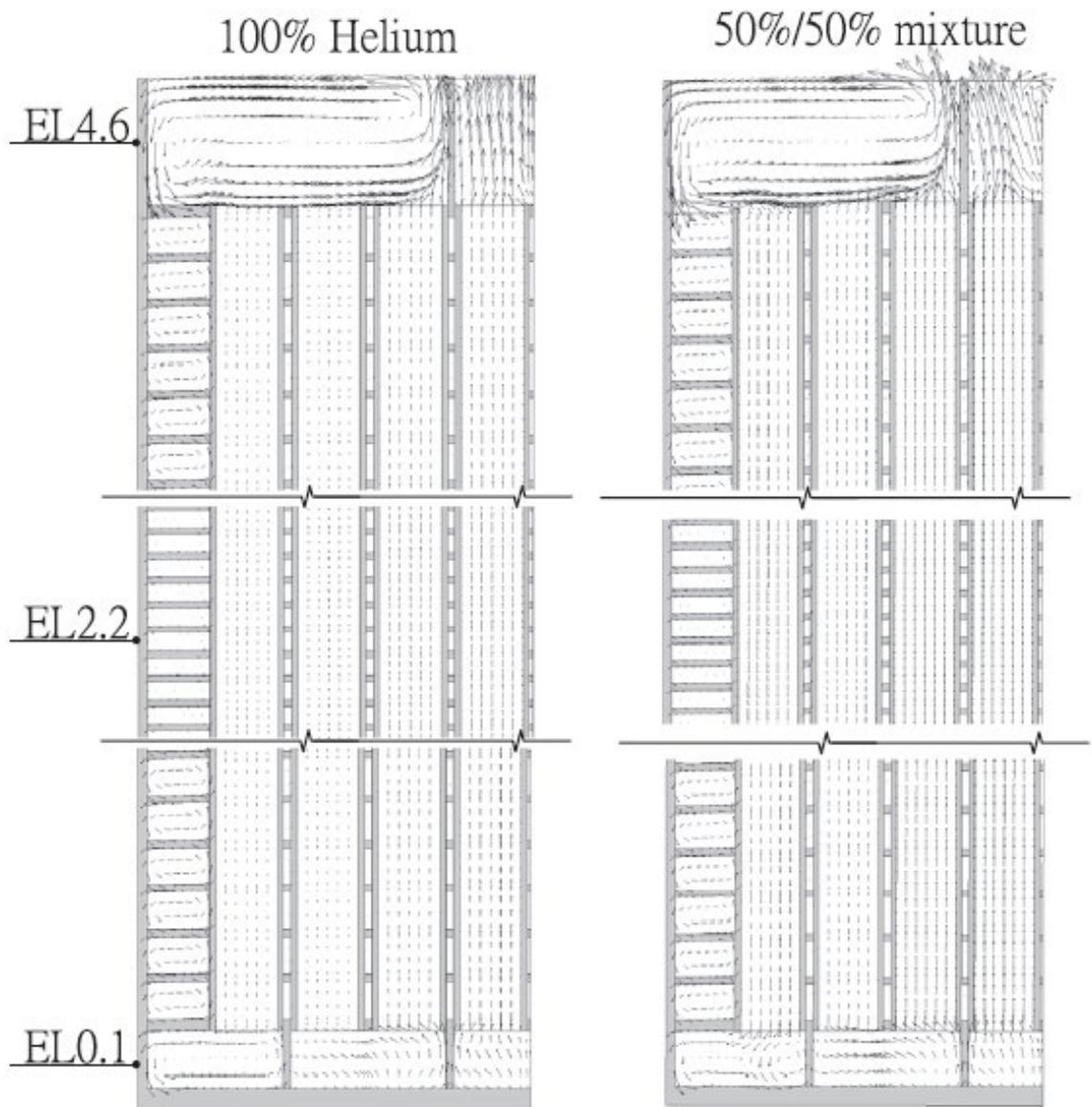


圖 6、 Tseng 等人利用 NAC-UMS 進行氣體成分變化對內部流場影響之研究[36]

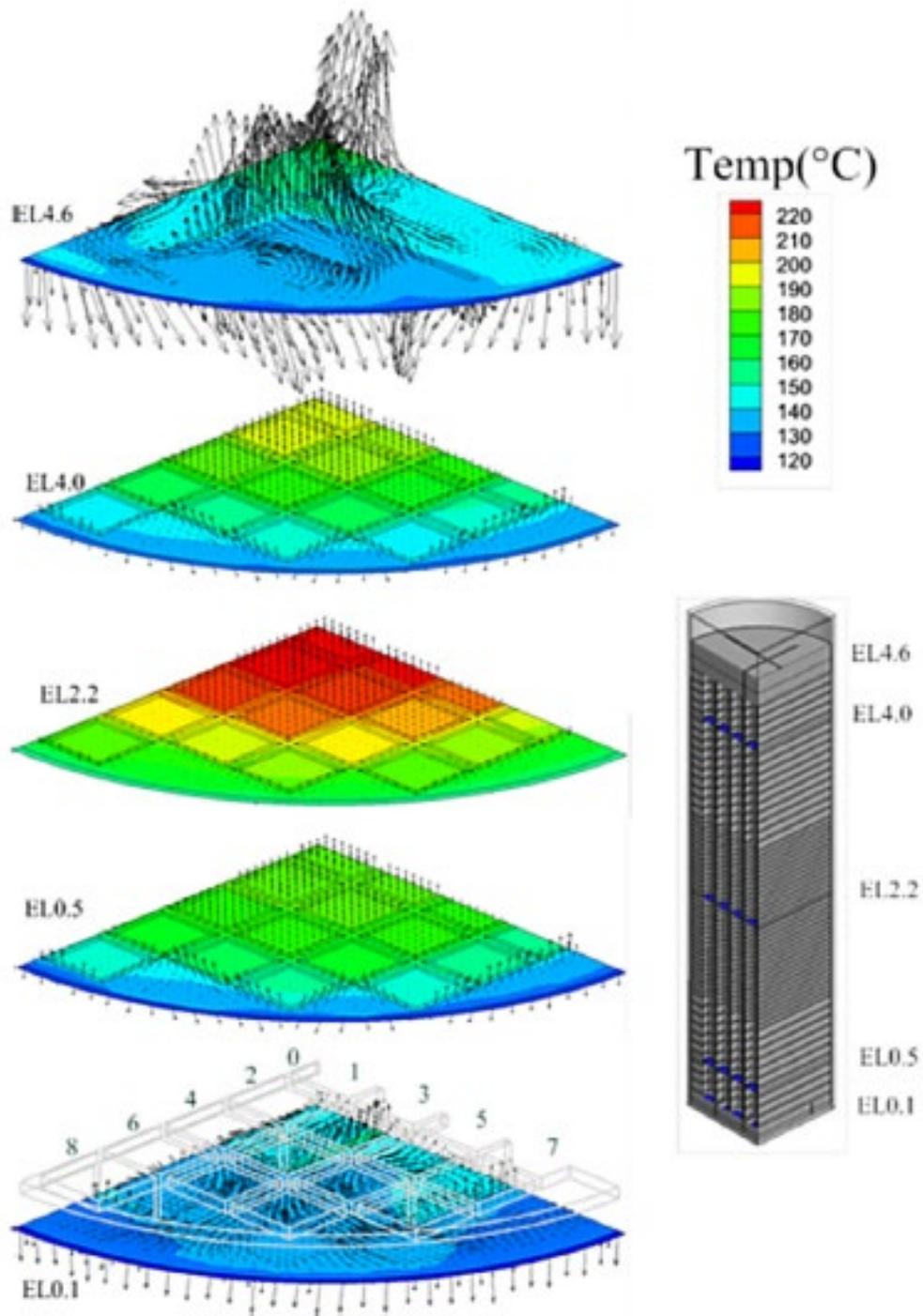


圖 7、NAC-UMS 內部整體對流特性 [36]

## 第四章、護箱熱流場及輻射分解再結合效應分析技術建立

### 4.1 熱流分析幾何模式建立

基於上述對於研究用假想護箱之探討並說明類型選用之緣由後，本研究進一步自選定之護箱安全分析報告[9]中，取得建模所需之幾何參數，以下將逐一就各護箱於模式建立過程中之簡化與假設進行說明以利後續作為殘餘水量研析之基礎模型。

#### 4.1.1 標的護箱幾何模式發展

考量本研究所選擇之標的護箱已多次被國內研究工作以 1/4 對稱之假設進行平行驗證與計算分析。其驗證結果顯示，即使將該護箱內非完全對稱之微小組件，例如中子毒素、螺栓鎖固件加以簡化而使其成為完全 1/4 對稱之條件時，仍不致造成熱流分析之顯著差異。故本研究中仍依循過往研究經驗所採用之假設，進行以下簡化：

1. 中子毒物 BORAL 與其不銹鋼蒙皮以均質化等熱傳係數加以簡化；
2. 底部鉚件與基座不考慮接觸熱阻；
3. 簡化用過核子燃料束底部噴嘴與頂部提把、中央之格板等細部構件；
4. 忽略密封鋼筒之結構固定件(Basket Supports)；
5. 燃料束均質化多孔性介質(Homogeneous Porous Media)模式進行等效熱傳導係數計算；

透過上述處理後所獲得之 NAC-UMS 護箱之正常貯存模式如圖 8 所示，而其網格分布則如圖 9 所示。

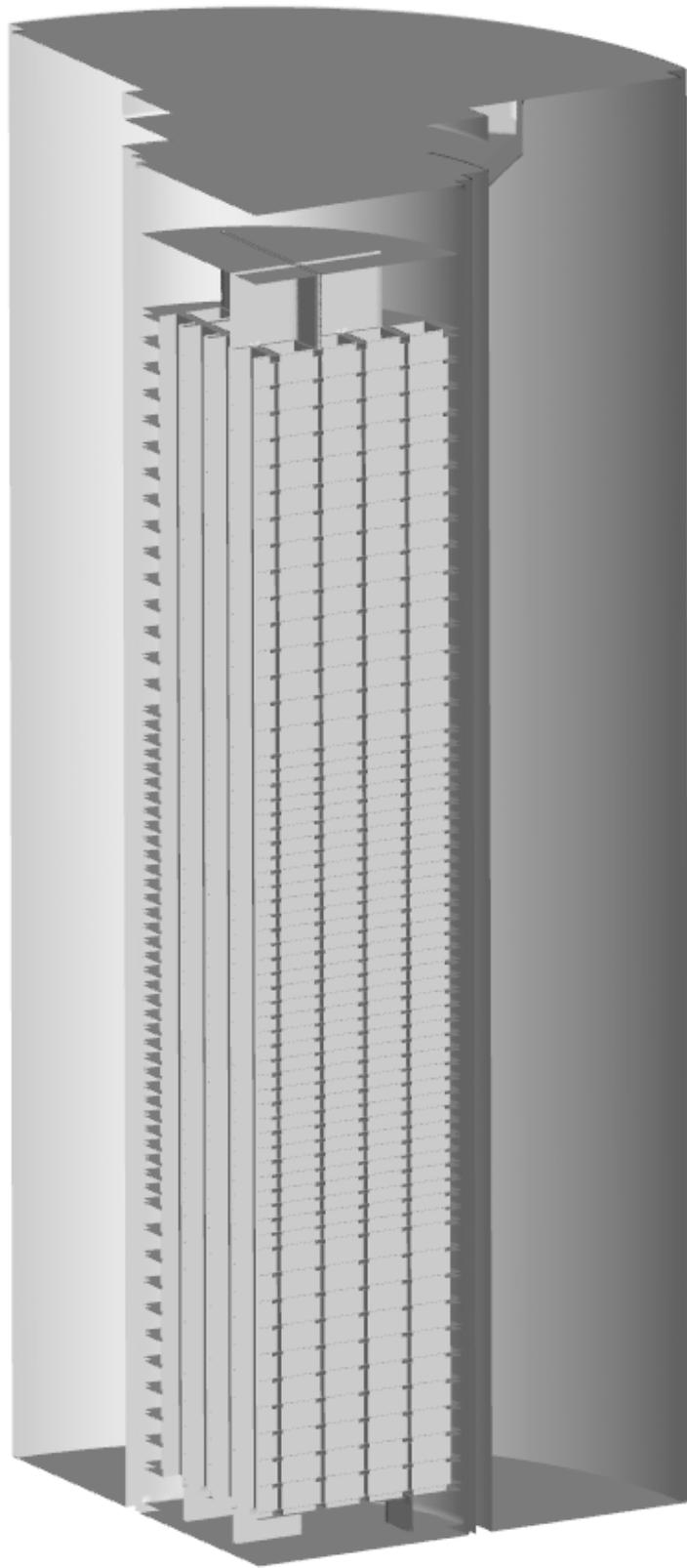


圖 8、標的護箱以 1/4 對稱進行簡化後之模型示意圖

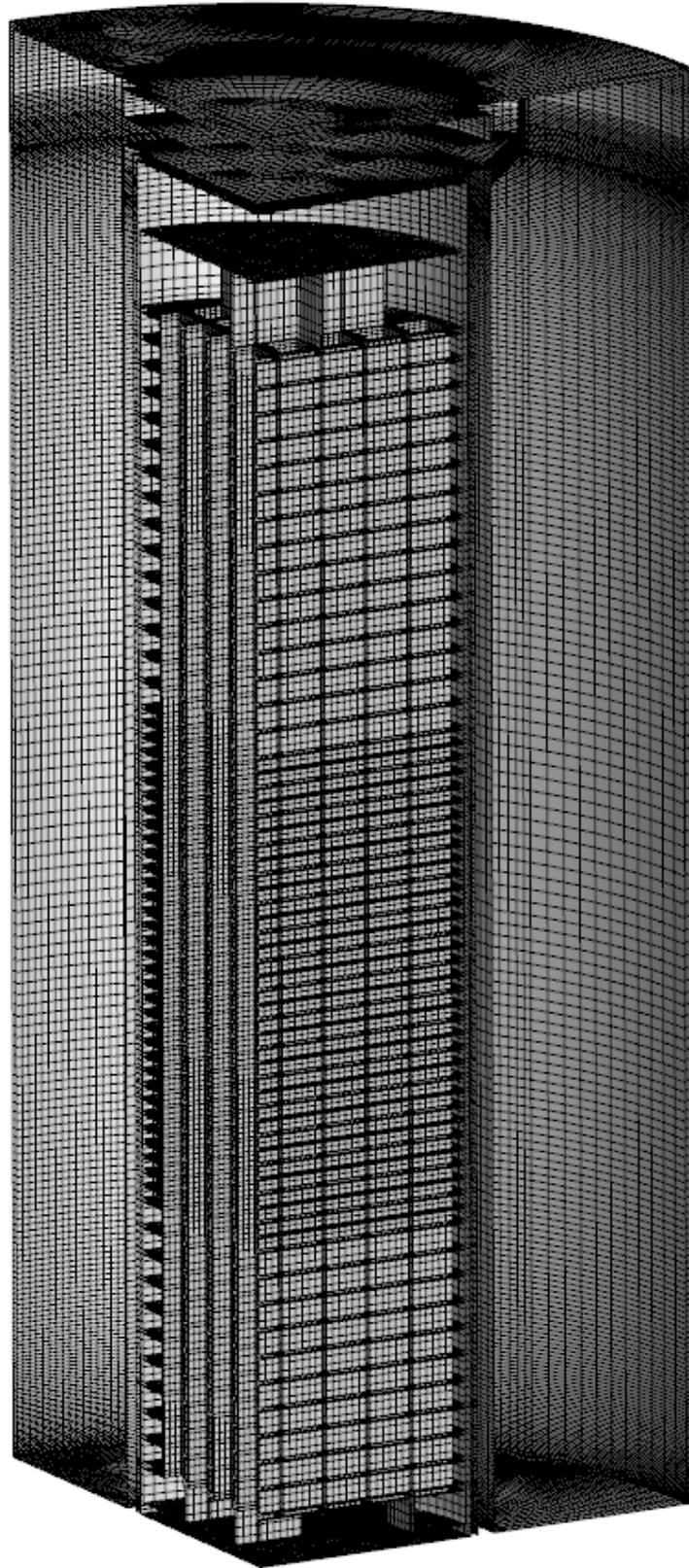


圖 9、標的護箱之網格配置

#### 4.1.2 多孔性材質之表徵速度修正

最後，由於 CFD 分析模式中已將燃料束之實際幾何形狀(圖 10)以多孔性材質進行均質化，雖然透過流阻與等效熱傳導係數之處理可以令全域流場特性與實際狀況一致，但在本研究中則需要進一步將均質化所獲得的速度轉換為表觀速度(Superficial Velocity)，以供後續計算之用。

表觀速度的處理主要係依據流面積比的定義來加以轉換，故透過原本之流面積轉換即可獲得原來的表觀速度：

$$V_{sf} = V_{porosity} \times \frac{A_{porosity}}{A_{sf}}$$

其中，V 與 A 分別代表速度(m/s)與面積(m<sup>2</sup>)，而下標 sf 與 porosity 則分別表示其為表觀模式與多孔模式之條件。而透過詳實模式(圖 11)之建立並以其流面積進行轉換後，所得之  $\frac{A_{porosity}}{A_{sf}}=0.442$ ，未來將此值代入 CFD 後處理模式中進行轉換，即可提供輻射分解與再結合計算所需之速度。

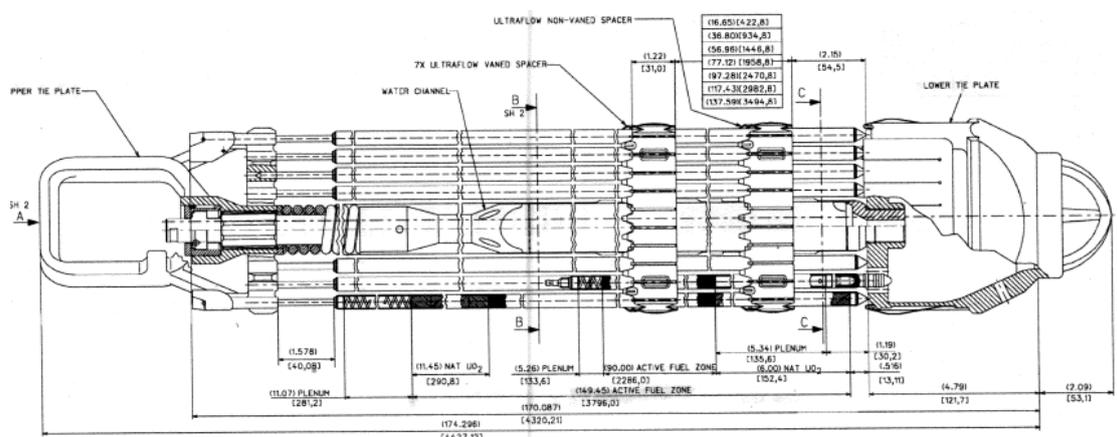


圖 10、 ATRIUM-10 燃料束幾何示意圖

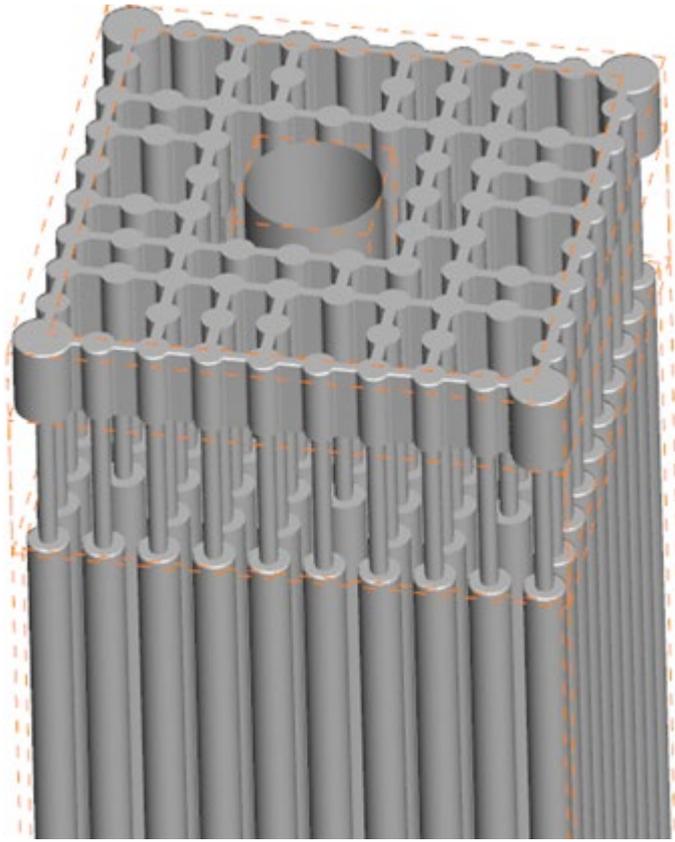


圖 11、ATRIUM-10 燃料束實際流路孔隙比估算模型

## 4.2 材料性質

本研究擬探討之標的護箱於正常貯存期間之熱流分析，所需納入考量之材料熱流特性係依我國核一廠乾式貯存系統安全分析報告所載之各項工業標準[8]進行設定，可依純物質、組件均質熱導特性與流體三類進行說明如下。

### 4.2.1 固體材料

表 7、中子屏蔽熱傳性質[10]

熱 傳 特 性	NS-4
熱 導 率(W/m-K)	0.65
密 度 (Kg/m <sup>3</sup> )	1630.40
定 容 比 熱(J/Kg-K)	1335.55

表 8、不銹鋼(304 及 304L)熱傳特性[8]

熱 傳 特 性	溫 度 (K)				
	296.72	352.27	463.38	546.72	657.83
熱 導 率(W/m-K) [11]	15.05	16.09	18.00	19.21	20.76
密 度 (Kg/m <sup>3</sup> ) [12]	8016.37	7994.22	7949.93	7908.41	7858.59
定 容 比 熱(J/Kg-K) [12]	483.98	503.24	533.38	550.13	567.30
放 射 率 [12]	0.36				

表 9、碳鋼(A-36、A-533 及 SA-588)熱傳特性[8]

熱 傳 特 性	溫 度 (K)					
	296.72	352.27	463.38	518.94	630.05	685.60
熱 導 率(W/m-K)[11]	41.36	41.59	41.88	41.01	38.77	37.54
密 度 (Kg/m <sup>3</sup> )[13]	7861.36					
定 容 比 熱(J/Kg-K)[14]	473.10					
放 射 率 [15]	0.8					

表 10、鋳合金熱傳特性[8]

熱 傳 特 性	溫 度 (K)			
	392	572	752	932
熱導率(W/m-K) [11]	14.33	15.16	16.61	18.06
密度 (Kg/m <sup>3</sup> ) [12]	6560.36			
定容比熱(J/Kg-K) [12]	301.44	309.82	318.19	330.75
放射率[12]	0.75			

表 11、燃料丸(UO<sub>2</sub>)熱傳特性[8]

熱 傳 特 性	溫 度 (K)				
	296.72	383.94	508.94	633.94	758.94
熱導率(W/m-K) [11]	7.89	7.20	5.75	4.90	4.40
密度 (Kg/m <sup>3</sup> ) [12]	1578	1716	1855	1965	2021
定容比熱(J/Kg-K) [12]	1658				
放射率[12]	0.85				

表 12、鋁合金(6061-T651)熱傳特性[8]

熱 傳 特 性	溫 度(K)					
	366.45	422.05	477.55	533.15	588.75	672.05
熱導率(W/m-K)[11]	171.3	174.0	176.3	176.3	176.3	176.3
密度 (Kg/m <sup>3</sup> ) [11]	963					
定容比熱(J/Kg-K)[18]	0.22					

#### 4.2.2 流體材料

考量本研究主要著眼於貯存期間之熱流特性探討，故研究中所需之流體性質僅需考慮填充於護箱內的氬氣(表 13)以及護箱外的空氣(表 14)即可。值得注意的是，由於本年度研究未採用布希尼克近似法進行密度處理，故無需設定各式氣體的熱膨脹係數。

表 13、氬氣熱傳性質[19]

	溫度(K)					
	300	400	500	600	700	800
密度 (Kg/m <sup>3</sup> )	0.1625	0.1219	0.09754	0.0834	0.06969	0.0611
定容比熱 (J/Kg-K)	5193					
黏滯係數 (N-s/ m <sup>2</sup> )	1.99e-5	2.43e-5	2.83e-5	3.20e-5	3.50e-5	3.82e-5
熱導率 (W/m-K)	0.152	0.187	0.220	0.252	0.278	0.304

表 14、空氣熱傳性質[19]

	溫度(K)					
	300	400	500	600	700	800
密度 (Kg/m <sup>3</sup> )	1.1614	0.8711	0.6964	0.5804	0.4975	0.4354
定容比熱 (J/Kg-K)	1007	1014	1030	1051	1075	1099
黏滯係數 (N-s/ m <sup>2</sup> )	1.846e-5	2.301e-5	2.701e-5	3.058e-5	3.388e-5	3.698e-5
熱導率 (W/m-K)	0.0263	0.0338	0.0407	0.0469	0.0524	0.0573

### 4.2.3 燃料束均質化性質

研究中所選定之標的沸水式用過核子燃料，其於正常貯存階段下，經均質化模式求解其等效熱導係數後，其結果如表 15 所示。

表 15、充氬階段燃料束均質化等效熱傳性質[8]

溫度 (K)	熱導率 (W/m-K)		定容比熱 (kJ/kg-K)	密度 (kg/m <sup>3</sup> )
	徑向	軸向		
248.95	0.30904	3.91887	0.2328	4008.05
360.15	0.40084	3.76331	0.2583	4008.05
472.45	0.56595	3.54025	0.2772	4008.05
585.75	0.78485	3.36019	0.2927	4008.05
699.75	1.07126	3.36434	0.3052	4008.05
814.35	1.38840	3.41917	0.3140	4008.05

## 4.3 燃料熱源配置

### 4.3.1 標的護箱之熱源配置

本研究所選用之標的護箱於國內曾以 14kW 之設計熱負載及 7kW 之允諾裝載上限進行分析，其熱源配置可進一步依據安全分析報告[8]所載熱源配置轉換為如圖 12 所示之圖像化分布。研究團隊為考量未來分析技術於其它護箱之適用性，故導入 Wang[37]等人所建立之熱源配置思維，該研究(如圖 13)利用代碼化之技術，將燃料池內之所有燃料束獨立為各別之熱源項，除了增進本研究中各種熱負載之配置能力外，亦可針對未來之審查需求，產生如圖 14 所示之任何熱源配置。

安全分析：250W/束

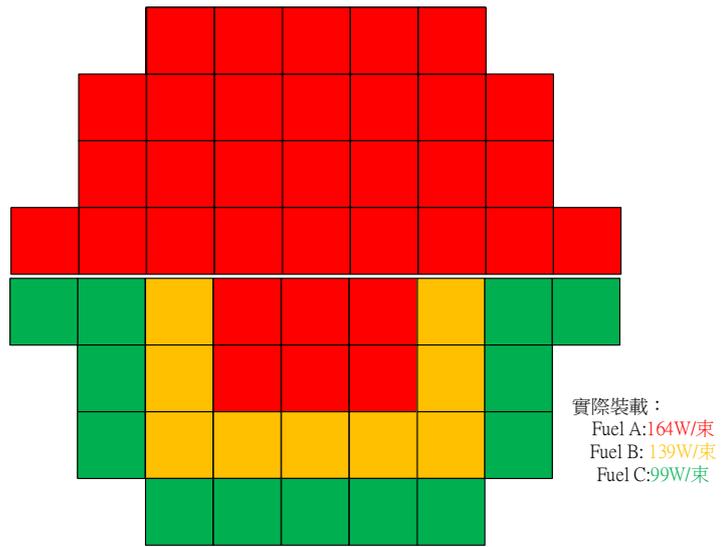


圖 12、標的護箱所使用之基準型熱源配置

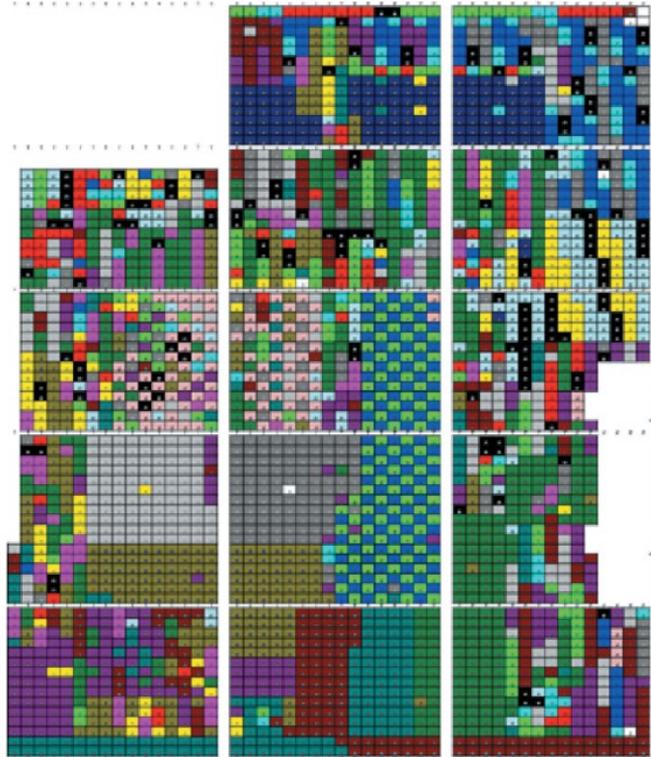


圖 13、本研究團隊使用詳實熱源配置技術 W 之示意圖[37]

51	51	47		
65	63	60	54	
104	101	67	56	
118	115	69	66	47

圖 14、以核一乾貯 CASK 1 配置為例，於調整為 1/4 對稱後利用詳實熱源配置技術所獲之燃料源項(W/Bundle)示意圖

### 4.3.2 軸向源項配置

研究中為能反映用過核子燃料實際因燃耗與冷卻後所呈現之熱源表現，選擇以實際燃料軸向功率分布(如圖 15 所示)作為模擬之依據。該軸向功率分布經曲線適配(Curve-fitting)化後，其功率因子 $f_{axis Y}$ 可寫為：

$$f_{axis Y} = -61.266Y_{active}^6 + 168.83Y_{active}^5 - 187.29Y_{active}^4 + 109.4Y_{active}^3 - 38.146Y_{active}^2 + 8.1456Y_{active} + 0.3738 \quad (24)$$

其中， $Y_{active}$  代表第 4.1.1 節所建構之分析模式中有效發熱段起始點( $Y=0.505m$  處)沿模型軸向(+Y-Direction)移動之距離，故整體軸向功率應進一步修正為：

$$f_{axis Y_{modify}} = -61.266Y_{modify}^6 + 168.83Y_{modify}^5 - 187.29Y_{modify}^4 + 109.4Y_{modify}^3 - 38.146Y_{modify}^2 + 8.1456Y_{modify} + 0.3738 ; \quad (25)$$

$$+109.4Y_{modify}^3 - 38.146Y_{modify}^2 + 8.1456Y_{modify} + 0.3738 ;$$

其中 $Y_{modify} = Y_{active} - 0.505m$ 。

經上述處理作業後，本研究於燃料束沿燃料軸向(+Y-Direction)之源項(Source Term)可以於 FLUENT 程式中以 UDF(User Defined Function)方法定義

$$\text{為：} Q'''(W/m^3) = P_{fuel} \times f_{axis Y_{modify}} \quad (26)$$

其中， $Q'''$  為單位體積熱產生率； $P_{fuel}$  為 4.3.1 節中所載，依據擬探討之燃料列置下，各燃料束所具有之衰變熱功率(W/Bundel)。

最後經由上述各節對於殘餘水量計算、熱源項配置等技術之說明可以得證，本研究為進行輻射分解與再結合效應所建立之熱流分析技術確可考量各種參數所造成的影響，未來僅需依擬分析之各式護箱建構其幾何模型，並導入本研究所建立的計算核心，即可獲得所需之熱流資訊。

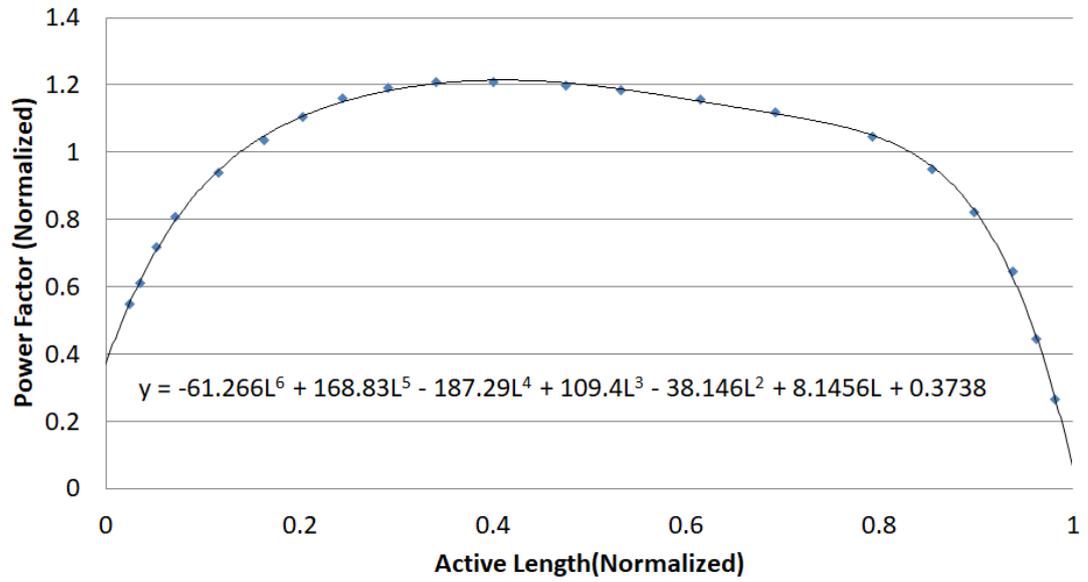


圖 15、本研究選定之 BWR 燃料軸向功率因子分布圖[1]

#### 4.4 輻射分解及再結合效應流路模式建立

透過上述各節模式建立工作所完成的技術主要係用以提供在考慮不同殘餘水量、氣體性質與熱源項等參數下，護箱內的熱流特性。然而，也由於計算流體力學技術在求解前需將計算域(護箱)離散為數以百萬計之網格，使計算量大幅增加。因此求得熱水流資訊要再進一步進行輻射分解與再結合效應計算前，需進一步將上述的熱流模式進行處理，除獨立出與計算目的相關之範圍外，亦需進一步減少計算之節點。

如圖 16 所示，即使僅將整體護箱中可能受到輻射分解與再結合效應影響之範圍納入評估考慮，燃料束(紅色)與密封容器內因提籃結構而分割之空間仍然十分複雜而不便分析。此外，若進一步考量 NAC-UMS 之提籃乃是以碳鋼並加上無電鍍鎳之塗層所組成，與輻射分解後所產生的氫之間具有更高的活性。因此若能將其忽略，除了可以簡化分析之模式外，等同導入了令所有分解與再結合產物僅能與燃料護套反應之保守假設。

此外，由先前 3.2 節對於護箱內流場之探討可以得知，即使是最初設計時即不考慮增加內部對流機制以改善移熱能力的 NAC-UMS 護箱。在正常貯存期間，仍然會與所有護箱般，在內外圈的燃料束間形成循環之流路，故整體之輻射分解與再結合分析所需要的流動路徑可再進一步描繪成圖 17 所示之流路模型；其中紅色代表內具有向上流動現象之燃料束，而淺藍色則代表內部流動向下之燃料束。此一流路之代表性與簡化的合理性將於第五章透過內部流場分布的討論進一步加以說明。

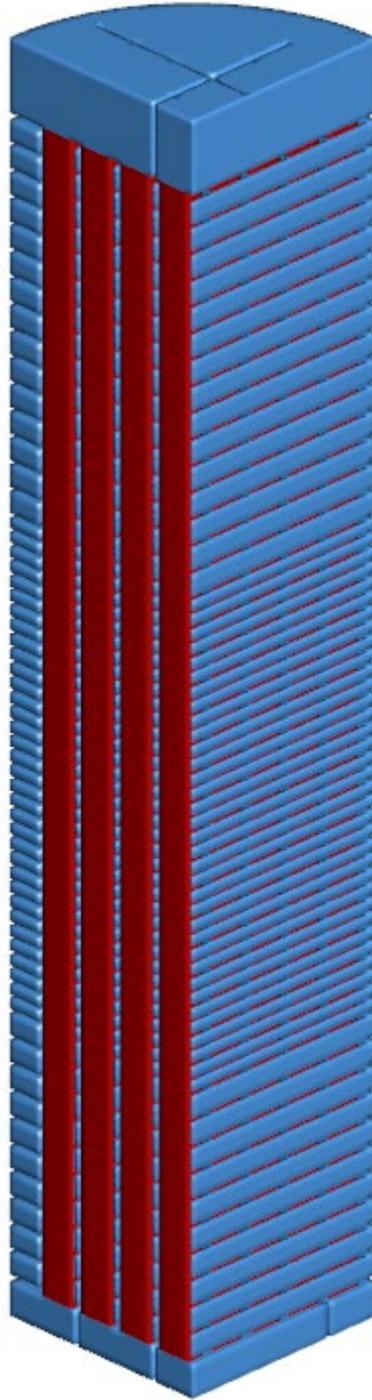


圖 16、標的護箱內之金屬盤間空隙(藍)以及燃料束流路(紅)之示意圖

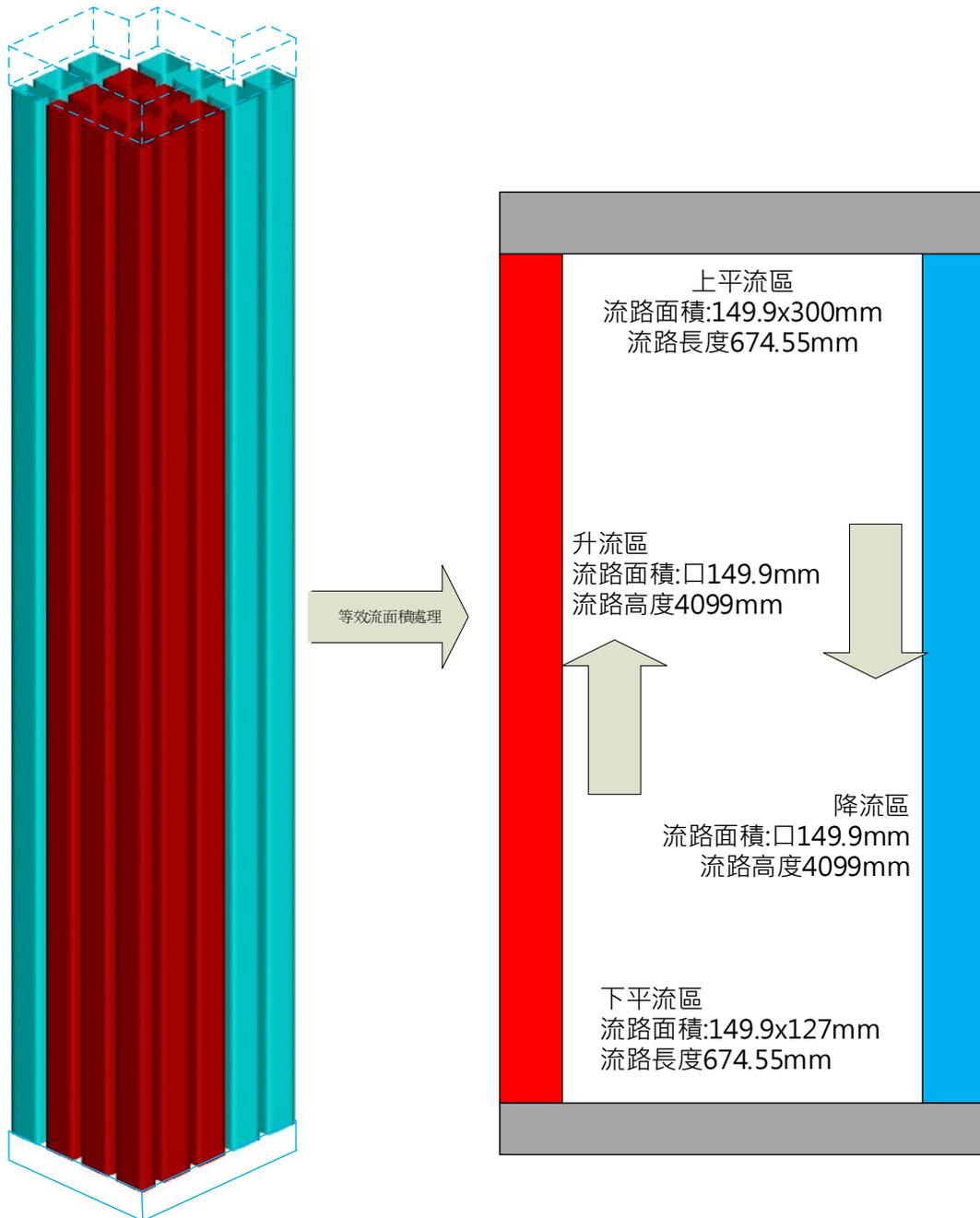


圖 17、由 CFD 模型轉換為輻射分解與再結合分析流路模式之示意圖

## 第五章、乾貯護箱殘餘水分對用過核燃料長期貯存安全之

### 探討

透過上述第三與第四章所述之建模過程可知，整體輻射分解與再結合效應之求解除了需仰賴子項一所提供之輻射場分布之外，尚需逐步進行：

1. 傳送護箱案例所求得之殘餘水量於貯存條件下所造成的相對溼度計算；
2. 不同水汽比重下之流場與溫度場分布，以確立輻射分解與再結合效應之流路模式；
3. 溫度對溼度大於氧化閾值時之護套氧化影響評估；
4. 輻射分解與再結合效應下對護套之腐蝕影響評估。

為能讓後續的輻射分解與再結合效應影響探討更加具體，本研究於期中報告針對上述第 1-2 項進行研析，並在導入對應腐蝕模式後其它兩項腐蝕機制進行評估。預期本章各節所探討之內容，除可作為最終輻射分解與再結合效應之參數外，亦希望藉此將各參數之影響轉化為具參考價值的審查要點，以供主管機關參考。

### 5.1 代表案例中護箱之護套表面殘餘水計算

過往的殘餘水技術係採用暫態分析進行處理，但透過其乾化機制與作業流程可以得知，乾燥時間已經足夠讓護箱溫度趨於穩態；為能進一步縮短 110 年所發展的殘餘水計算技術的求解速度，研究中進一步將其精進為穩態求解技術，方能藉其作為進一步討論殘餘水於本研究標的中之代表性。表 16 為進一步將暫態殘餘水分析模式精進為穩態模式後所進行的比較，其結果顯示採用暫態與穩態分析之殘餘水量差異極微，此差異可溯源於暫態求解與穩態求解時所代表的有效乾化

時間所導致之格點溫度差異所致。此一穩態技術除經上述比對之外，亦已透過國際核能熱水流研討會(NUTHOS-13)的同儕審查檢核。

在進一步將此技術導入 NAC-UMS 的正常貯存模式後，即可求得燃料束組件溫度並計算殘留在燃料護套表面之鍵結水在正常貯存期間是否受到熱而再釋出之狀況。有鑑於不論何種裝載條件，其殘餘水量皆僅存在於燃料束頂部與底部區域，故以下之圖面結果僅針對不同熱負載下之燃料束頭尾(圖 18 與圖 19)兩處殘餘水量進行展示。

圖 18 為 7kW 熱負載條件下所求得之燃料兩端溫度分布；由標於溫度圖標上的鍵結水乾化點(423.15K)可以明顯得知，整體 NAC-UMS 之燃料束最高溫度僅與乾化點相當，可以證實燃料於乾操作業後再進行長期貯存之燃料，其表面鍵結水皆預期不會受溫度影響而再釋出至護箱內並令燃料出現局部溫度變化，故其各處之鍵結水層厚度並無任何變化( $\Delta t=0$ )。圖 19 為 14kW 熱負載條件下計算所得之燃料兩端溫度分布，為求易於判讀故將低於鍵結水乾化點之溫度皆標示為藍色。然而由其溫度與殘餘水之分布亦可得知，即使在設計熱負載之下，NAC-UMS 護箱內之燃料束，仍無法獲得比乾操作業期間更高的護套溫度並驅離鍵結水。故分析所得的鍵結水層差異亦為 0，顯見 NAC-UMS 護箱於正常貯存條件下，並無再次將殘餘鍵結水驅離的熱流條件。

雖然上述熱流之研析可以證實殘餘在護套表面之鍵結水不致因為溫度而再度釋出至護箱內；若為求保守仍可將其所含之水量在不考慮其機制下，作為內部含水量與相對溼度之計算依據。而計算結果則如表 17 所示，其結果顯示因為溫度的增加將使飽和蒸汽壓呈指數趨勢上升，故在低熱負載下燃料溫度較低將直接使內部相對溼度大幅上昇；反之，燃耗所導致之殘餘水則僅因其殘餘量而呈線性倍率差異。無論如何，透過本案例計算所得之相對溼度僅有在低熱負載且高燃耗之條件下滿足 CNWRA 所述之氧化閾值(20%)。

綜合上述各項之討論可以得知，乾貯護箱在採用慣常之真空乾操作業，並經過業者提交給主管機關之允收條件檢核後，可證實護箱內殘餘水量有限；即可護箱內部環境在絕大多數的貯存時間下不致超過氧化閾值(20%)。是故本研究可以將高燃耗結合低初始熱負載所組合出之保守假設條件作為代表性案例，並將其求得之相對溼度作為輸入參數進行後續研析。

表 16、利用暫態與穩態殘餘水模式進行評估之結果比對

熱負載	14 kW <sub>transient</sub>		14 kW <sub>s.s.</sub>		7 kW <sub>s.s.</sub>	
燃耗 (GWD/MTU)	35	45	35	45	35	45
乾燥比(%)	98.47	98.94	98.51	99.01	<u>76.94</u>	<u>77.50</u>
差異比(%)	-	-	0.04	0.11	0.05	0.11

表 17、不同熱負載條件下之護箱內絕對/相對溼度計算結果

	含水量(mole)		絕對溼度(mg/L)		(相對溼度 RH)@T <sub>avg</sub>	
	14kW	7kW	14kW	7kW	14kW	7kW
一般燃耗 (35GWD/MTU)	10.83	66.67	32.7	201.1	0.46	11.5
高燃耗 (45GWD/MTU)	19.44	121.22	58.6	365.7	0.84	20.8*

\*以高燃耗結合低初始熱負載所獲之代表性(保守性)相對溼度。

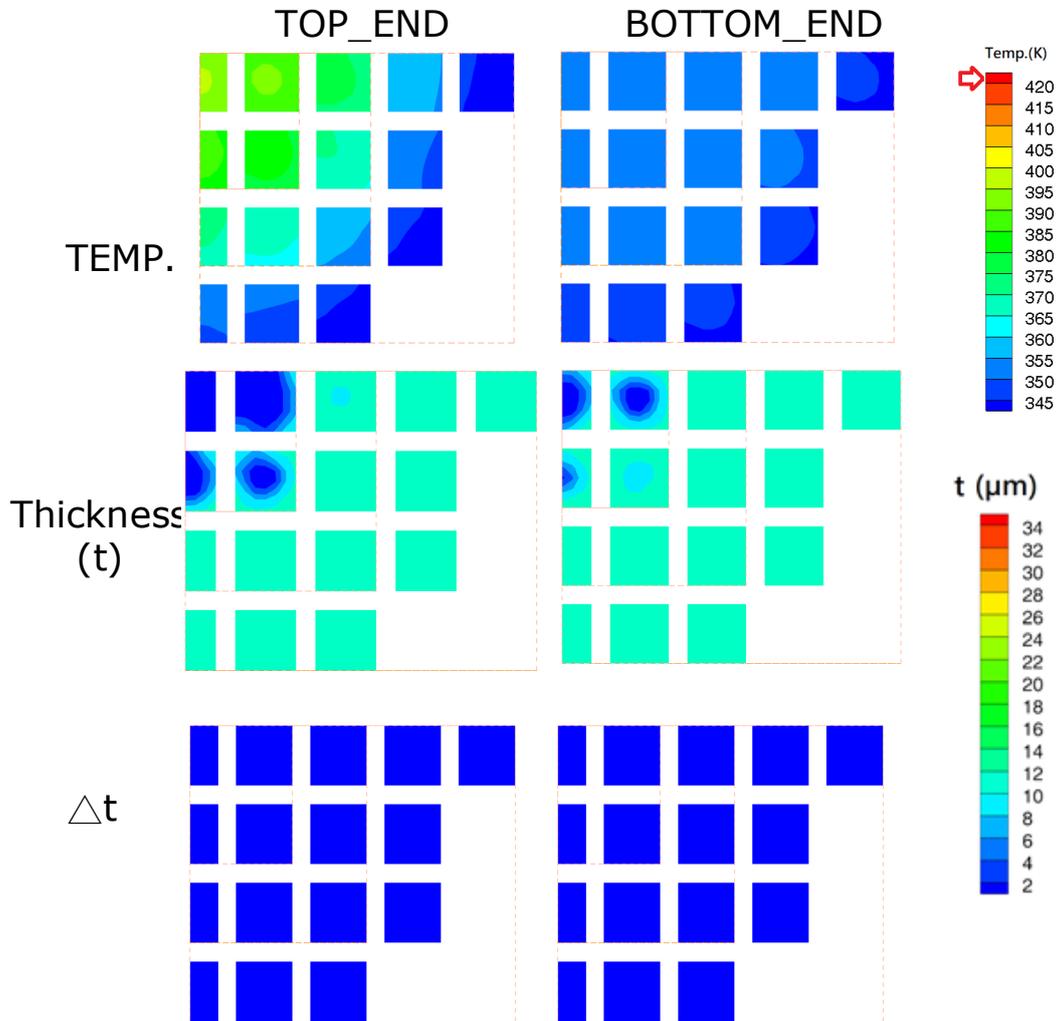


圖 18、正常貯存狀況下 7kW 熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖

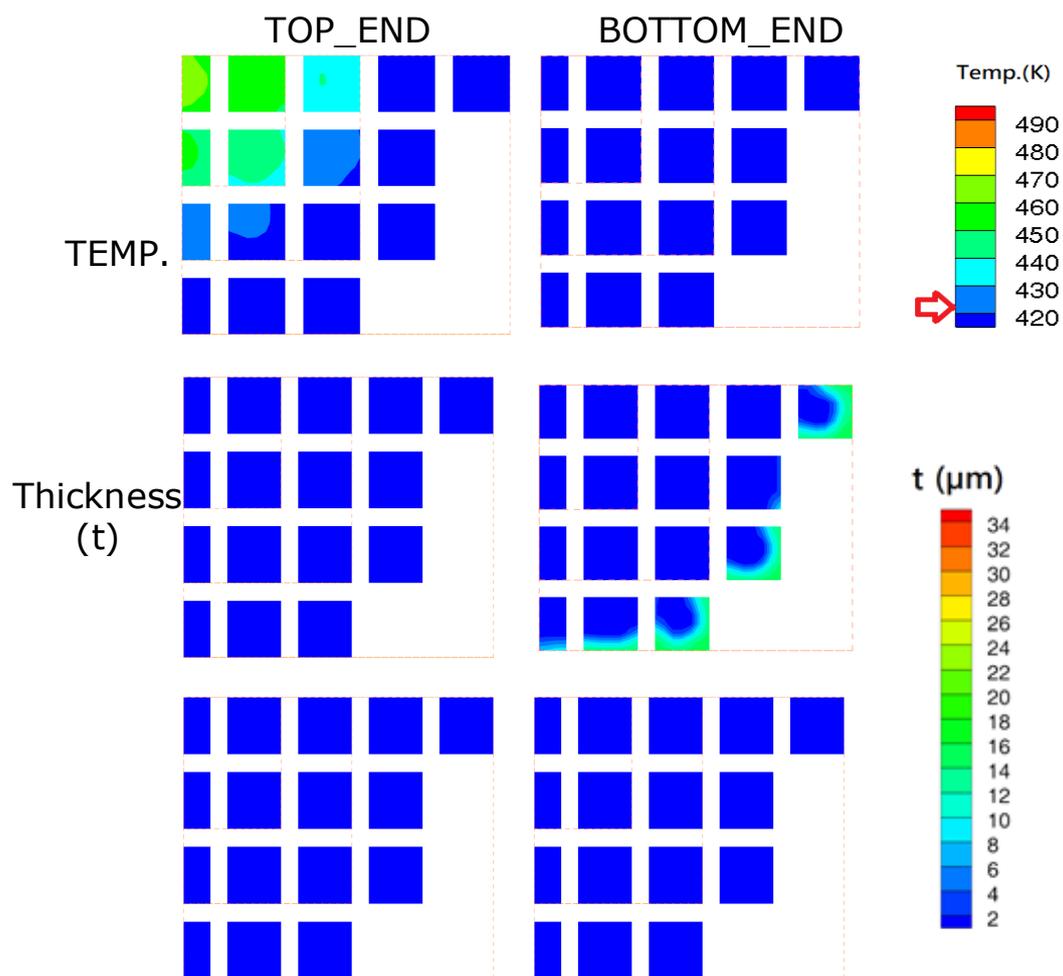


圖 19、正常貯存狀況下 14kW 熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖

## 5.2 代表案例中護箱之熱流場計算

為能在簡化繁瑣的輻射分解與再結合效應計算工作，本研究先行利用熱流分析進行參數影響研析，除探討各參數對流場與溫度場之影響外，亦期望藉由相關比對與討論提出 4.4 節中輻射分解與再結合效應所需之代表流場案例，並作為流路模型簡化之依據。圖 20 即為針對不同熱負載與內部氣體特性進行案例計算後所獲得之燃料束溫度與速度場分布。由溫度分布圖可明顯發現，不同熱負載條件與氣體成分之案例間，整體溫度之特性並無顯著差異，但局部細節仍將因為氣體之成分差異而造成些微變化。舉例來說，相較於圖 20(a)所呈現之純氦氣溫度分布，在混入部分蒸汽後的案例將因為蒸汽本身的比熱與熱傳導能力，而獲得些許的降溫效果。這是因為蒸汽所具有的高比熱效應，有助於在相同的流速下移除更多的熱量，因此在兩案例中雖然燃料束內流動的速度並無顯著差異，但仍使對流效應有所提升。

若更進一步比對圖 20(b)與圖 20(c)之溫度場可以發現，在熱負載較低的案例中，雖然整體溫度量值顯著地下降，但整體而言燃料束內的溫度分布並無太大不同，這意味著即使在不同熱負載下各燃料束間的流動路徑與其伴隨形成的移熱機制幾乎不變。由圖 20(c)右側的速度分布可以得知 7kW 案例整體速度確實僅略低於 14kW 之案例，但整體而言彼此間確實不存在明顯的特性差異。基於上述之討論，後續的輻射分解與再結合之評估時，可以據此將熱負載與氣體成分對於內部流道之影響加以剔除，亦即熱負載不會影響整體流場之分布特性，而氣體成分不致對燃料束內之流速分布造成具有研析價值之速度差異。

此外，在進一步檢視提籃的上下焊件之溫度分布(圖 21)後可以知，鄰近底部焊件的氣體由於才經由密封鋼筒外側的空氣冷卻，故其溫度差異僅約 1-2°C 而可逕行將其視為無差異。相反的，頂部焊件因為燃料束的加熱與累積使得其溫度呈現近似同心圓之分布。上述特性意味著若要考慮最高與最低燃料溫度下不同分解

產物的再結合速率及其影響，確可利用一個相對單純之流路系統來組成代表性案例。因此，研究中可選用圖 21b 所框列之紅色燃料束與黑色燃料束來組成代表性流路模型。其中紅色流路用以模擬向上流動且同時具有高溫、高輻射環境之燃料，而黑色流路用以模擬向下流動且溫度、輻射場強度皆稍弱之燃料束，從而構成 4.2 節中圖 17 所示之流路模型。預期於此簡化模型中，等同將最強輻射場與最熱溫度場之燃料佔比提高至燃料束總數的一半；令後續分析計算中輻射分解與再結合之效應增加，而達到保守分析的目的。

在進一步將 5.1 節之相對溼度以本節熱流分析所獲得之資訊加以處理後，所得之代表性流路模型溫度分布則如圖 22 所示，其各區段流路之溫度趨勢可分別表示如下，後續將再搭配表 18 所示之各項參數組合進行輻射分解與再結合效應即可獲得保守且具代表性之分析結果。

$$\text{Internal Fuel: } T = -2.0017Y^4 + 17.0609Y^3 - 64.4597Y^2 + 141.859Y + 315.143$$

$$\text{External Fuel: } T = 0.537473Y^4 - 4.32638Y^3 - 1.87991Y^2 + 47.526Y + 361.001$$

$$\text{Top Channel: } T = 429.96Y^4 - 61.62 * r / 674.55$$

$$\text{Bottom Channel: } T = 374.62$$

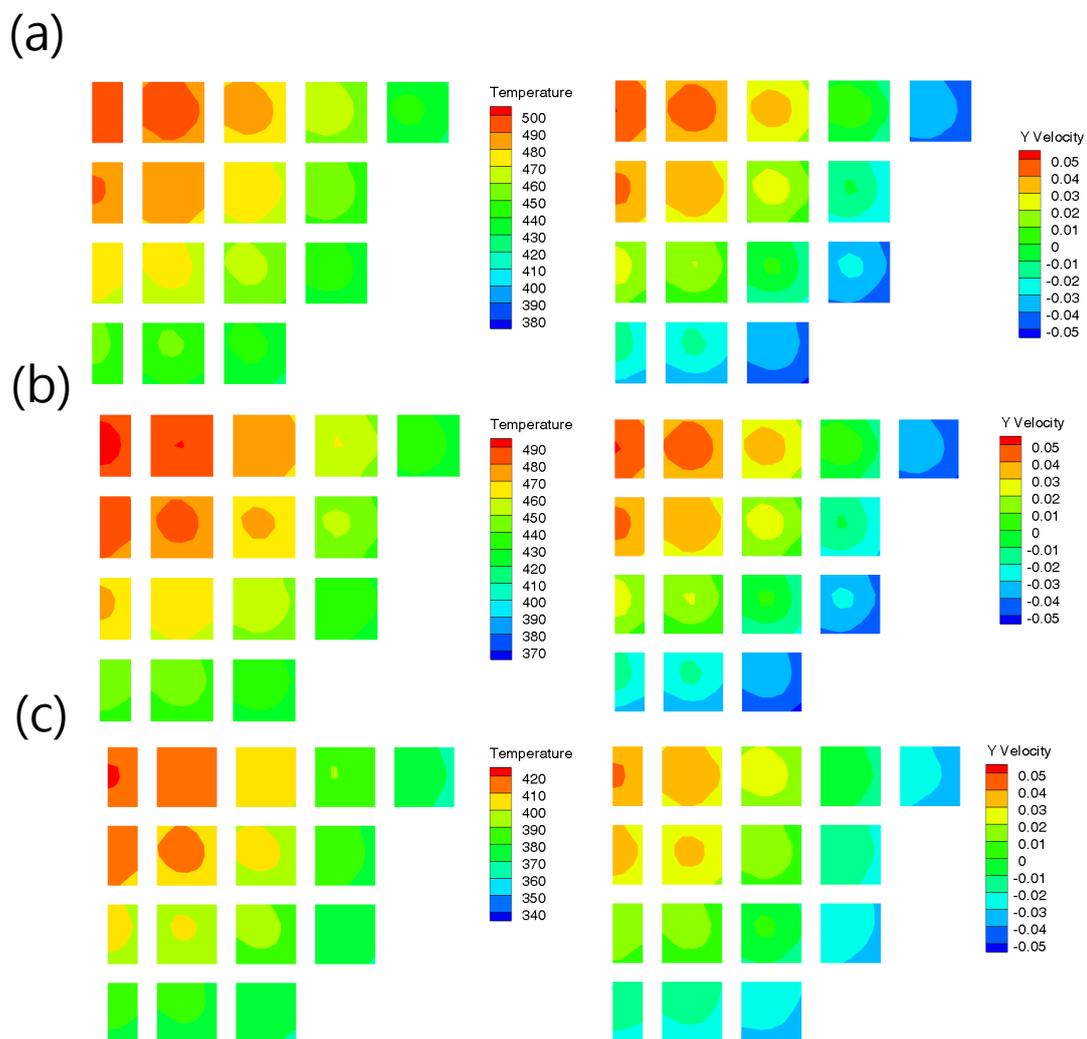
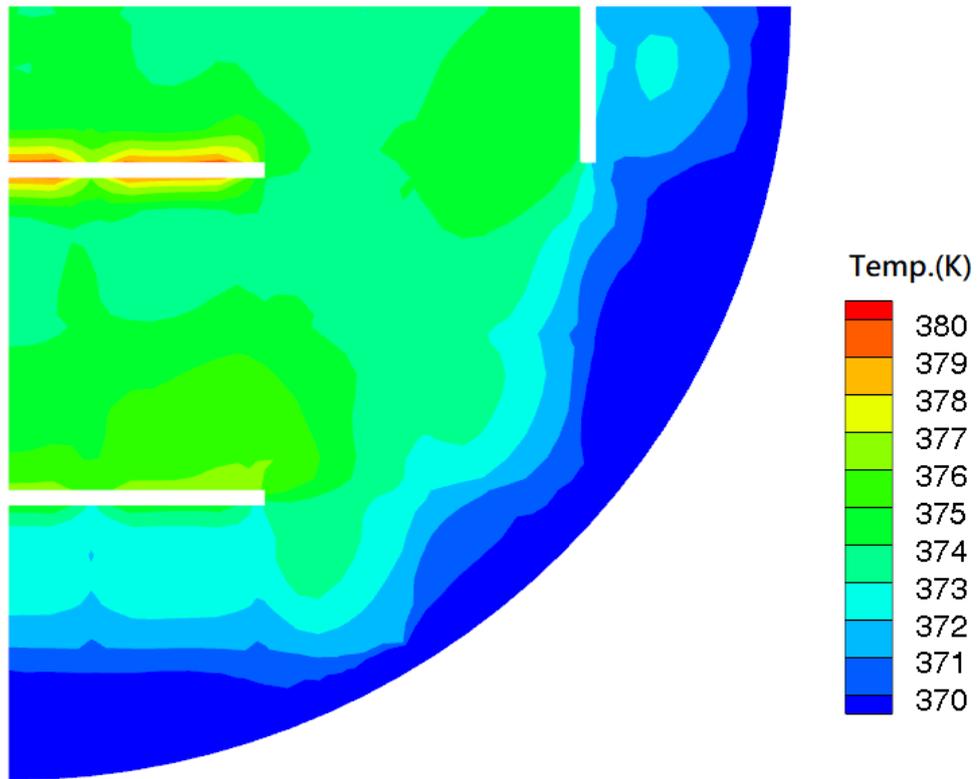


圖 20、正常貯存狀況下 (a)14kW 純氮氣、(b) 14kW 含蒸汽、(c) 7kW 含蒸汽之內部流場與溫度場之影響比較熱負載之溫度、水合物層分布與差異比較圖

(a)



(b)

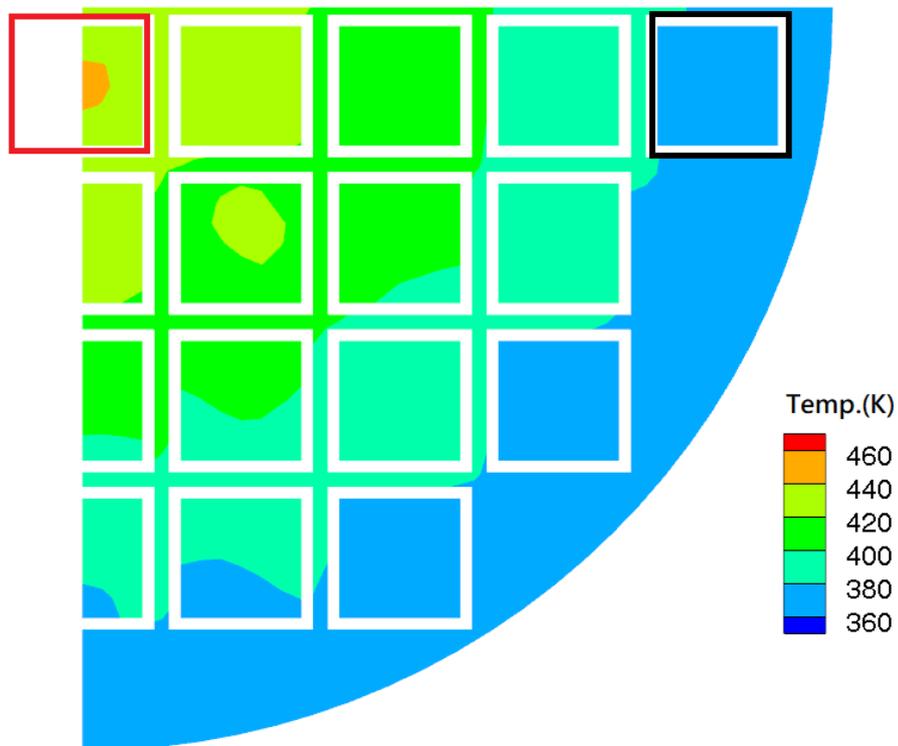


圖 21、護箱底部與頂部焊件之流道溫度(a)底部流道(b)頂部流道

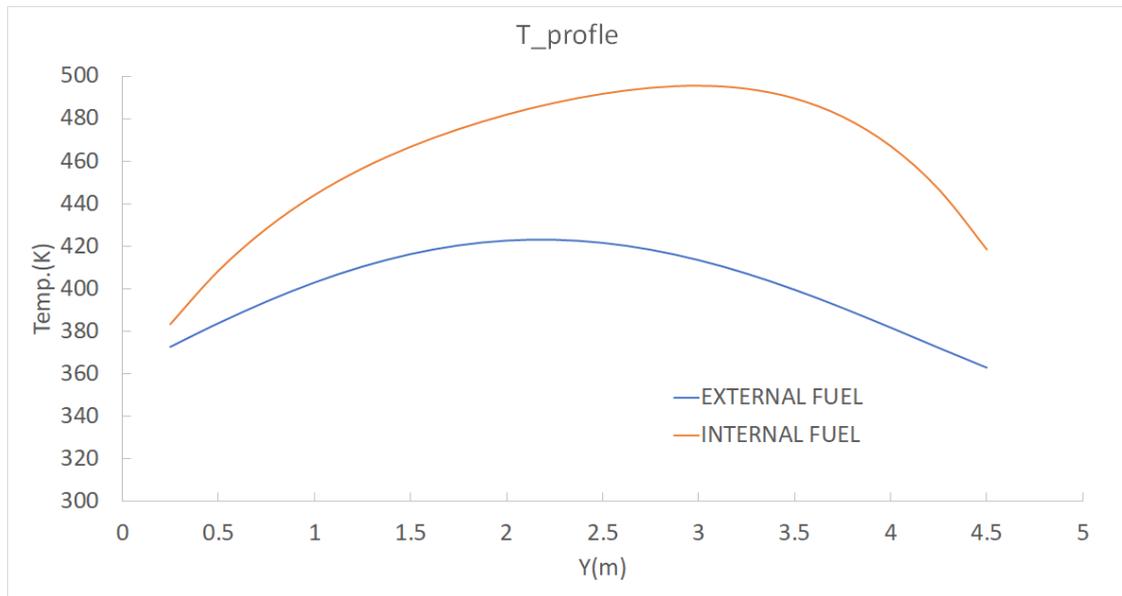


圖 22、內部與外部燃料溫度分布

表 18、不同參數對護箱劣化條件之比對與代表性案例參數選用表

參數列表		相對溼度	溫度	速度
燃耗	高	高	N/A	N/A
	低	低	N/A	
熱負載	高	低	高	
	低	高	低	
最保守組合		高燃耗+低熱負載	選擇高溫以加高氧化速率	速度差異不顯著

### 5.3 護箱內燃料護套氧化趨勢計算

透過以上的案例計算與討論，本研究已依時程完成熱水流分析之案例計算，並在考慮各式影響參數(含水量、熱負載)之前提下完成內部相對溼度與流場之特性研析。所獲得之溫度、速度與溼度場已作為執行之護套氧化及輻射分解與再結合效應之腐蝕機制之案例計算。

本研究團隊依照 NUREG/CR-6846 研究報告所載護套氧化速率模式進行評估技術發展，並考慮最高溫度案例、最大腐蝕速率且逕行假設護箱裝載之初相對溼度已超過閾值之最保守組合，進行貯存 20 年時之護套氧化厚度評估，所得結果如圖 23 所示。其結果顯示，由於氧化速率與溫度直接相關，故其氧化趨勢將在燃料溫度最高區具有最大值，而於燃料兩端溫度較低區存在最小值。此外，若進一步將所建立之技術以 72.2 年之貯存時間進行計算並與 SNRL 之結果相比，結果發現本研究所獲得氧化層厚度略小於原 SNRL 計算之結果，主要差異係因分析時所選用燃料溫度之不同所致。此外，研究中透過貯存 20 年之結果與貯存 72.2 年之結果相比亦可知貯存時間亦將影響其氧化層厚度，惟若要能嚴謹評估其氧化層，則勢必要能掌握貯存期間的燃料熱源變化。

為此本研究在進一步討論氧化層厚度前，先行就燃料源項與溫度分布之特性進行了探討，以瞭解兩者間之相關性並作為未來評估之依據。如圖 24 所示，在相同的乾貯護箱中，燃料所具有之熱源與燃料最高溫度之間係存高度之線性化關係。此一特性意味著任一乾貯護箱內的熱傳特性與機制不致因為燃料熱源項的強弱而有顯著差異，因此燃料束的溫度分布將具有其相似性。如同圖 25 所示，在忽略各熱負載之溫度尺標後可以發現，不同熱源項之燃料束所具有的溫度實際上並無顯著差異。這意味著燃料的溫度分布以最低溫度及最高溫度進行無因次化時，其分布結果將為一致。其中，最低溫度將與護箱設計以及環境溫度相關，而最高

溫度則與前述之燃料熱負載有關。據此，所有燃料之溫度將可以透過不同功率間的比例關係式加以簡化：

$$X = \frac{(T_{fuel,max} - T_{amb})}{(T_{fuel,STD} - T_{amb})}$$

其中， $T_{fuel,STD}$  為計算案例所得之燃料最高溫度，而  $T_{amb}$  為環境溫度； $T_{fuel,max}$  則為擬評估案例在特定負載下之最高燃料溫度：

$$T_{fuel,max} = 11.542 * Q(kW) + 388.74$$

透過上式所得之  $X$  即為溫度比例係數，可搭配同一模型下之標準案例溫度 ( $T_{fuel,STD,local}$ ) 用於任何負載之任一處 ( $T_{fuel,local}$ ) 燃料溫度計算，而無需反覆以 CFD 程式計算所需之熱負載案例：

$$T_{fuel,local} = T_{amb} + X(T_{fuel,STD,local} - T_{amb})。$$

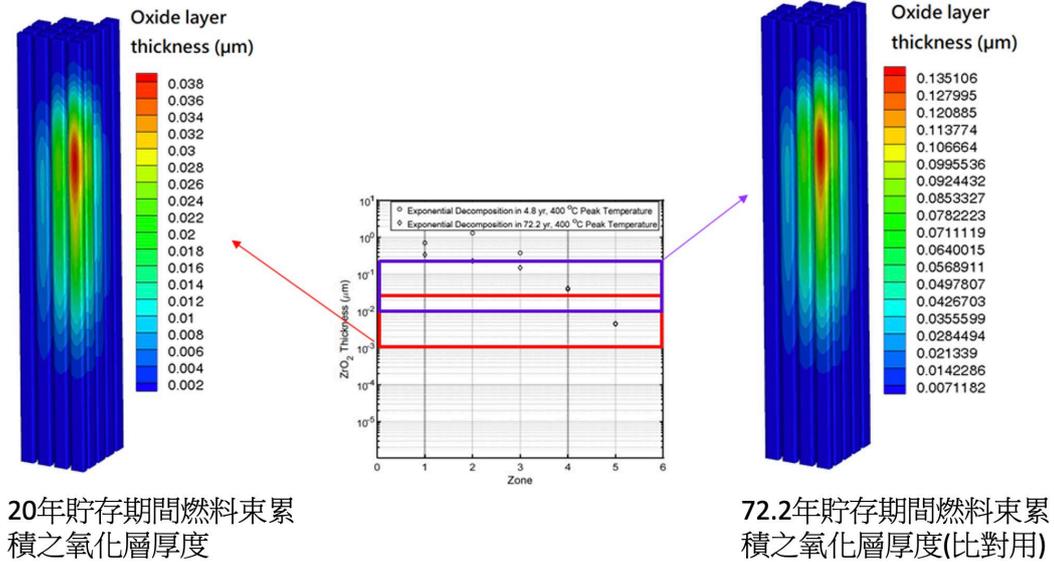


圖 23、利用 CFD 進行護套氧化趨勢分析所獲之初步結果

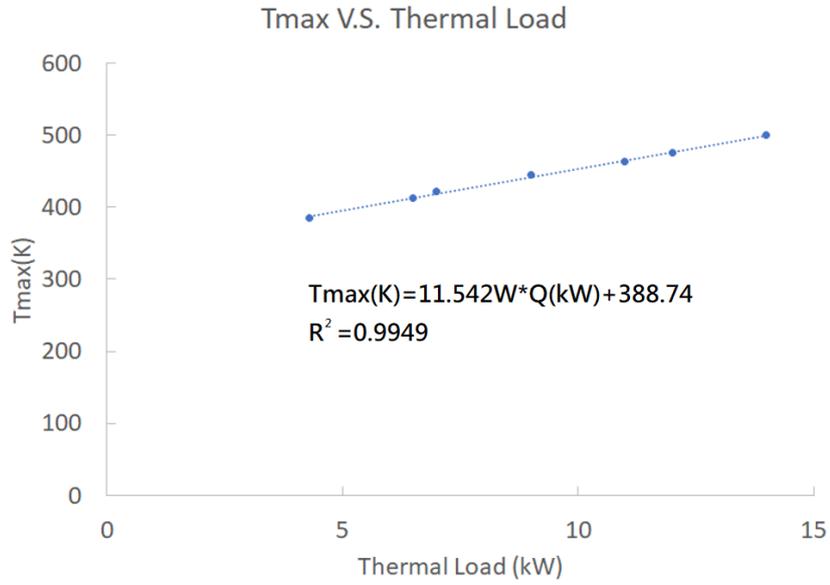


圖 24、燃料最高溫度與熱源項之相關性

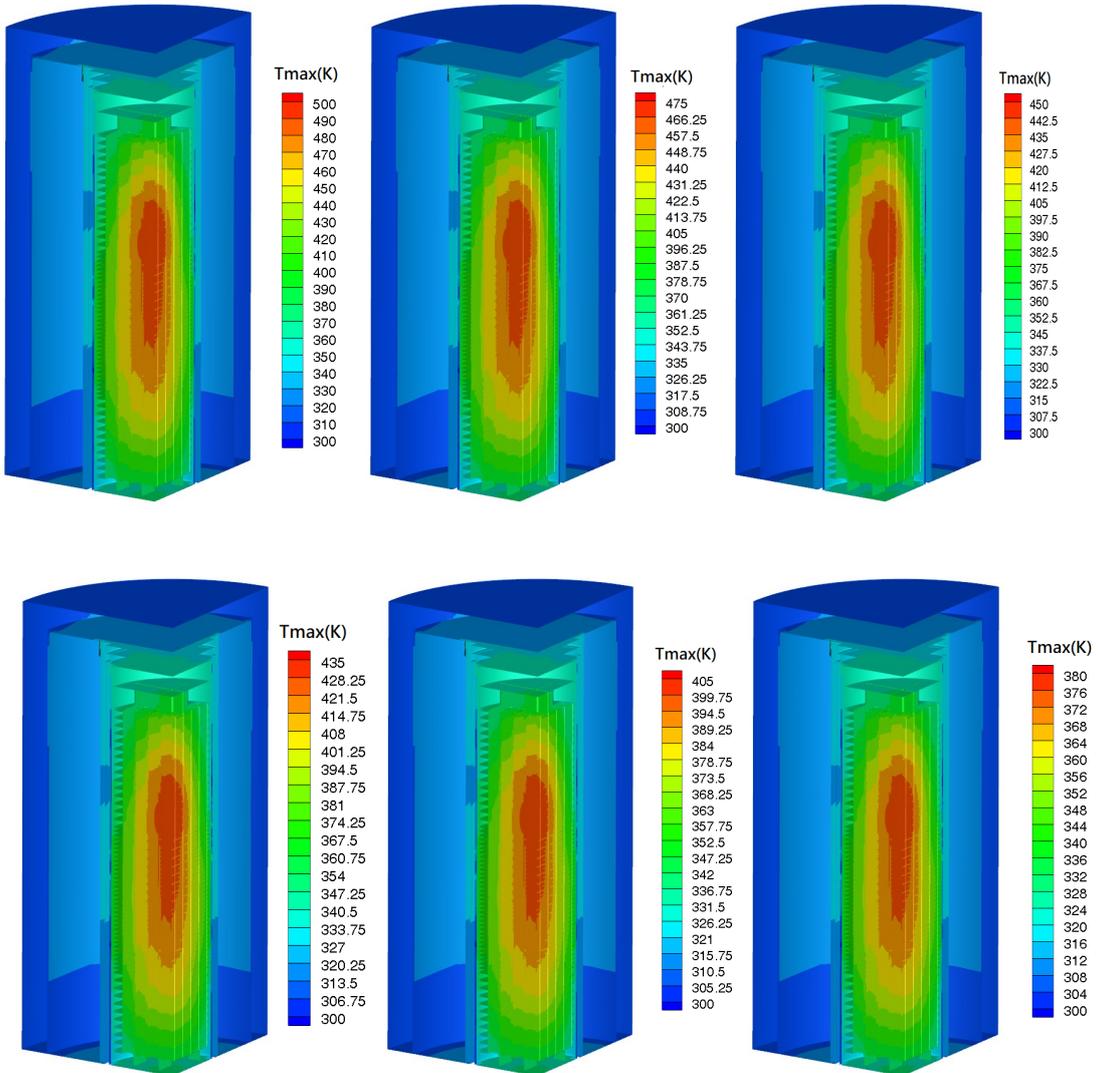


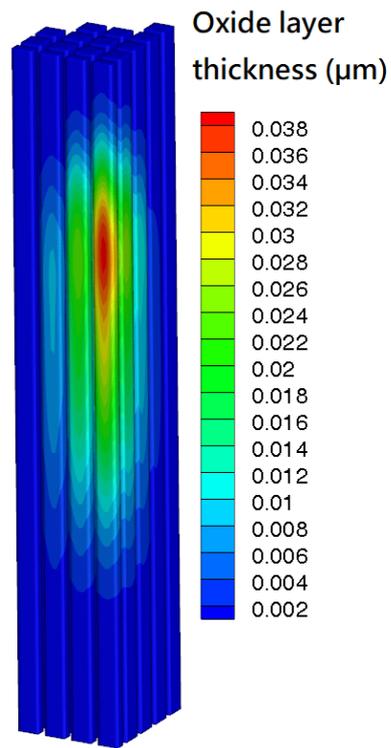
圖 25、不同熱負載下之燃料溫度分布

經上述對於溫度的處理與氧化模式的建立，本研究可選擇以任一時間下燃料所具有的溫度為代表進行氧化評估，或是依據溫度-時間之變化趨勢，逐步計算並加總氧化層之厚度。如圖 26(a)所示，在採用初始貯存之溫度進行氧化層之厚度計算後，可獲得 20 年間之最大氧化層厚度約為  $0.038 \mu\text{m}$ ，也因為所採用之溫度極為保守之故，而使得計算結果遠比依據貯存期間(假定為 20 年)之溫度變化進行計算並加總之  $0.008 \mu\text{m}$ (如圖 26(b)所示)為高。

此一差異可以進一步的由圖 27 所示貯存期間氧化厚度累積值的變化來加以說明，並以每 4 年作為一計量區間加以呈現。如圖所示 0-4 年間的氧化層厚度因為燃料溫度最高，而使得其氧化層厚度遠大於其它時間區間之結果。但隨著溫度的下降，後續的 5-8 年與更久遠的貯存期間，其護套氧化層厚度更遠小於前一計量區間。但無論如何，分析結果顯示，在乾貯作業下燃料所具有的溫度並無法讓其氧化層顯著變厚，最保守估計所得的  $0.038 \mu\text{m}$  氧化厚度仍遠小於燃料於運轉期間已經產生之氧化層( $\sim 60 \mu\text{m}$ )，故不致對燃料特性造成顯著影響；而透過上述的討論可以整理管制要點如下：

1. 燃料護套於乾貯期間受水汽所致之氧化層可忽略不計，此點與 NRC 報告分析所得結果一致；
2. 若有必要針對任一護箱進行護套於貯存期間受溼氣所致之氧化層進行厚度評估，則逕行選擇燃料貯存時之初始溫度為之即可獲得保守結果。

(a)



(b)

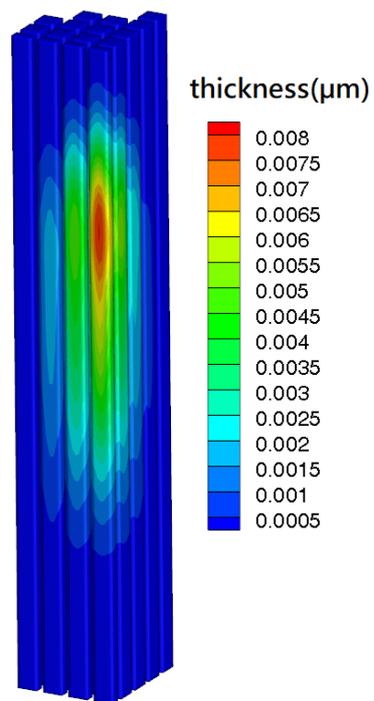


圖 26、以不同溫度條件進行氧化層估算之結果

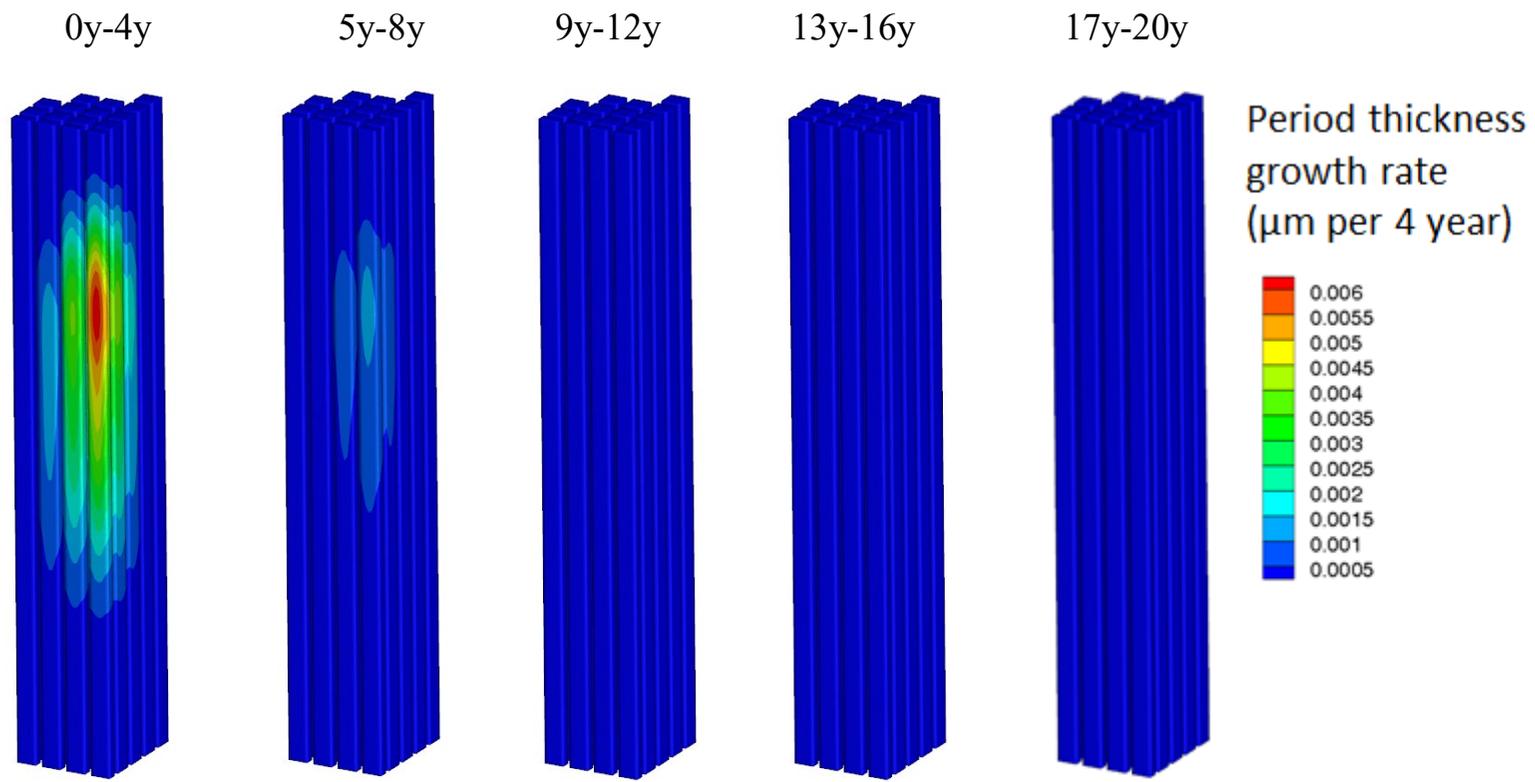


圖 27、以實際溫度估算貯存 20 年間，每 4 年間之累積氧化厚度

## 5.4 護箱內輻射水化學特性計算

進一步將第 5.2 節計算所得之溫度場依流路模型進行處理後，即可獲得如圖 28 紅線所示之溫度分布趨勢，其中第 1 區係代表中央並具有向上流動之燃料束，2 區則是代表提籃頂部焊件之水平流路；3 區則是提籃外圍具有向下流動趨勢之燃料；而 4 區則是代表提籃底部焊件。透過相同的處理方式，本子項計畫將子項計畫 1 利用蒙地卡羅法所求得之案例一光子與中子劑量逐點予以匯出；再依圖 17 所示之流路模式所需，轉換為輻射分解與再結合分析之輸入參數，並以本報告第 3.2 節中方程式 21-23 進行求解即可獲得考慮相對較高輻射劑量、較高溫度與溼度條件下的保守氧化與還原劑分布。

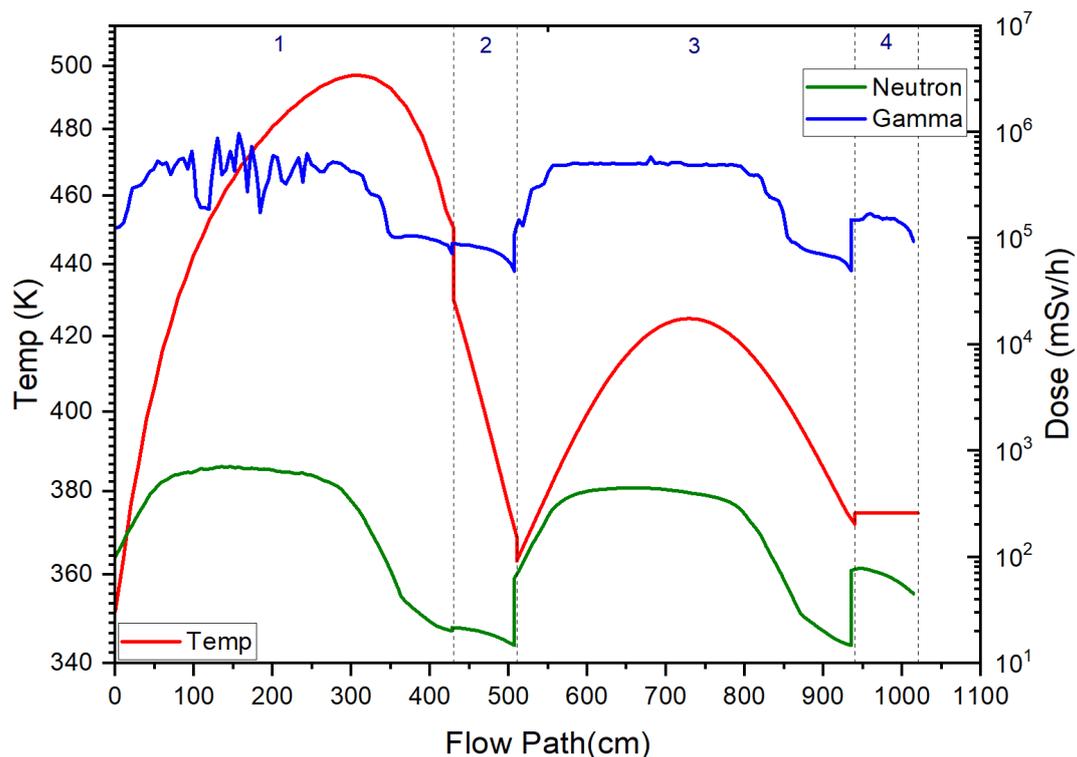


圖 28、轉換後匯入流路模式之乾貯護箱內部四區溫度與中子、光子劑量分布

為能探討所處環境之水量差異，本研究進一步將熱流分析所獲得的結果轉換為三種代表性(流體)介質條件以進行分析，以期能藉由三種不同介質之特性差異，瞭解輻射分解與再結合效應的主要影響參數。此三種介質條件分別是：

1. 乾貯護箱內部含水量為 10.83 mole(表 3)，此條件可以視為一般燃耗燃料經標準乾燥作業後之保守殘餘水量；
2. 二是乾貯護箱內部含水量為 66.67 mole(表 3)；此條件可以視為一般燃耗燃料在低熱負載條件下進行乾燥作業後之殘餘水量，並呈現部分設施往往以低源項強度之燃料(如輻射源、熱源)作為首批裝載之情境；
3. 第三種為假設內部充滿水；用以評估在相同輻射場強度與溫度條件下液態水之影響；其結果足以涵蓋其它可能之含水量條件；例如溼式貯存、高燃耗且低熱負載之情境。

經由程式分析出的乾貯護箱內部氧化還原劑濃度的結果如圖 29 所示(輻射分解產率與化學成分變化率採用 156 °C 的數值)，包含三種主要的氧化還原劑為  $H_2O_2$ 、 $O_2$ 、 $H_2$ 。分析的結果顯示隨著含水量的增加，三種氧化還原劑的濃度隨著增加，而氫氣與氧氣的濃度在四個區域變化不大，過氧化氫為水分子輻射分解的直接產物，後續再分解為氧與水，其分解速率隨著溫度的增加而增加，因此可以發現在升流區的過氧化氫濃度較低，並且因升流區輻射劑量較高，輻射分解與再結合反應互相競爭下，顯現出較低的濃度。有效氧化劑濃度( $1/2*[H_2O_2]+[O_2]$ )在水含量 10.83 mole 時，最高濃度為  $9.27 \times 10^{-10}$  Mole/L，最低濃度為  $9.08 \times 10^{-10}$  Mole/L，在水含量 66.67 mole 時，最高濃度為  $1.97 \times 10^{-9}$  Mole/L，最低濃度為  $1.91 \times 10^{-9}$  Mole/L，在充滿水時，最高濃度為  $4.25 \times 10^{-7}$  Mole/L，最低濃度為  $3.73 \times 10^{-7}$  Mole/L。相比之下，乾貯護箱內部不同熱負載條件下，含水量無論是 10.83 mole 或是 66.67 mole，其產生的有效氧化劑濃度都在  $1.0 \times 10^{-9}$  Mole/L 範圍附近。

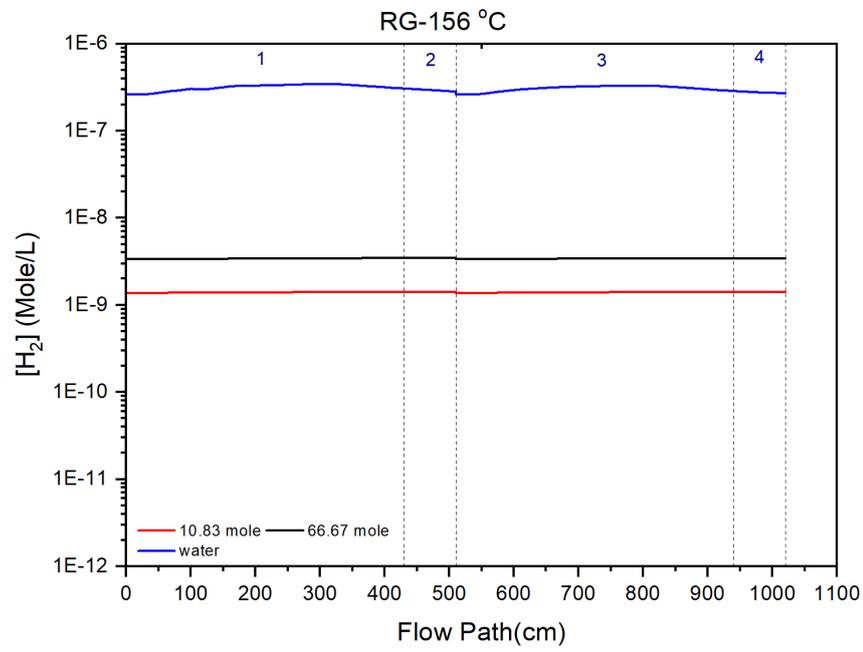
綜合檢視三種含水量之結果可知，其氧化劑產生率與含水量呈正相關，但由於護箱內的輻射強度與溫度皆較功率運轉時為低，故即使是在充滿水之案例中，

氧化劑之產生率及其造成的腐蝕影響勢必亦低於爐心功運轉之條件；由此可知此時因為氧化劑所致之護套腐蝕效應亦無需顧慮。

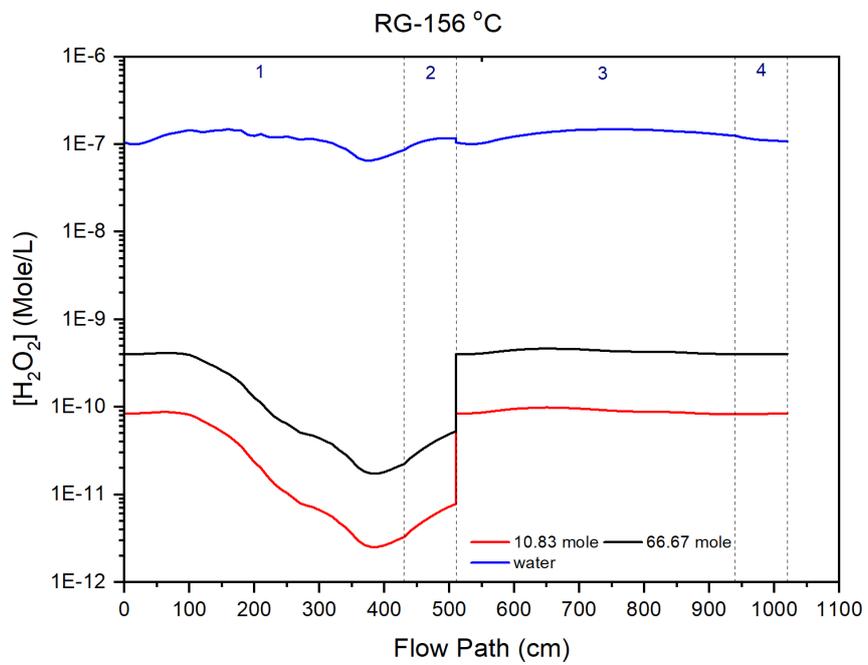
另外，此次在執行輻射分解之計算時，四區採用三組不同溫度的輻射分解產率與化學成分變化率因應乾貯護箱內部最低溫度、中間溫度與最高溫度的變化，針對水含量 10.83 mole 之案例進行評估可以發現，有效氧化劑濃度隨著溫度增加而增加，最高值為  $1.12 \times 10^{-9}$  Mole/L，最低濃度為  $2.71 \times 10^{-10}$  Mole/L，差異在 10 倍以內。

此一參數靈敏度評估結果顯示，在乾貯作業的合理溫度區間內氧化劑的產生率雖隨溫度變化而改變，但由於氫與氧在低於運轉條件下之造成的均勻腐蝕效應幾可忽略，故整體分布可以進一步地透過檢視過氧化氫的分布來探討。這是因為過氧化氫為強氧化/還原劑，且隨著溫度增加將加快其分解速率。而透過圖 29(b) 與圖 30(b) 所示之過氧化氫分布可以明確得知，乾式貯存因為有效減少護箱內含水量之故而抑低過氧化氫之濃度，進而可以證實乾貯作業確有助於減少溼式貯存之潛在腐蝕因子，進而確保護套之完整性。

(a) 氫



(b) 過氧化氫



(c) 氧

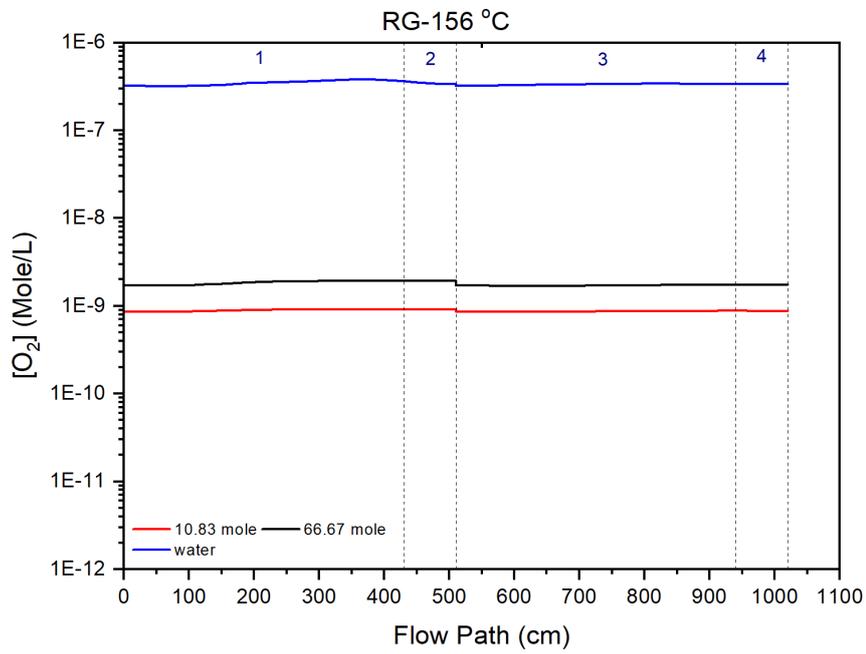
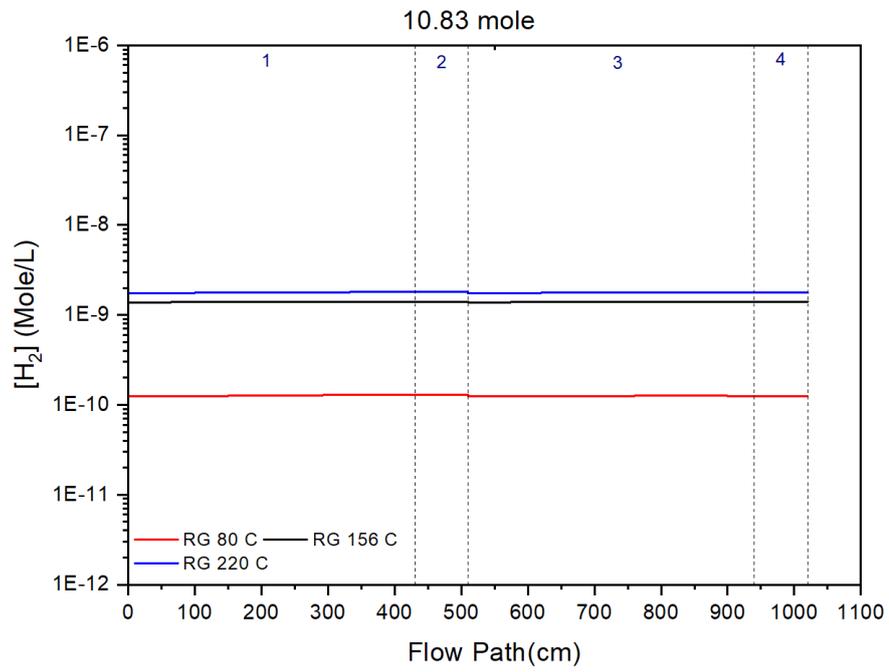


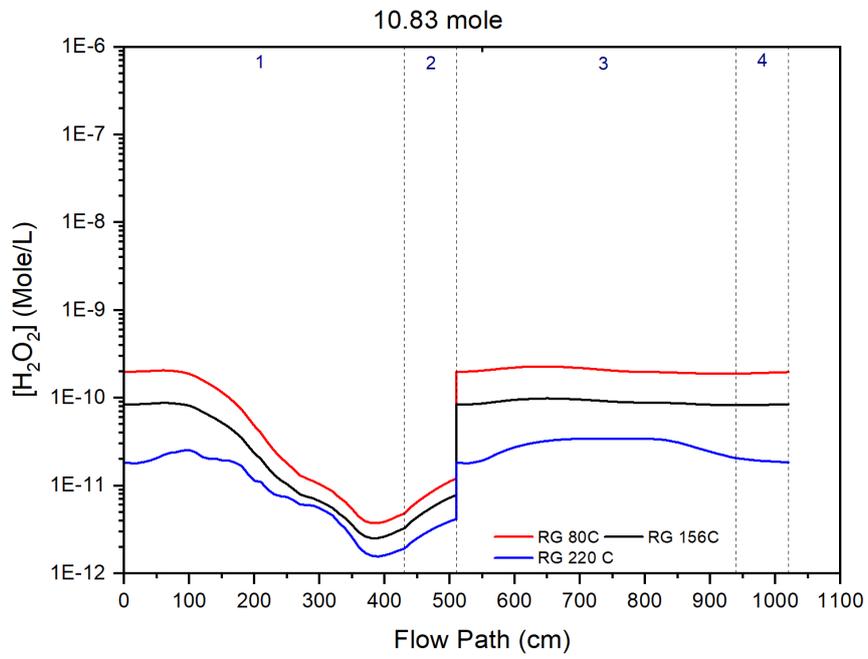
圖 29、乾貯護箱內部，氧化還原劑濃度隨流徑的分布情形。

(1 區：升流區，2 區：上平流區，3 區：降流區，4 區：下平流區)

(a) 氫



(b) 過氧化氫



(c) 氧

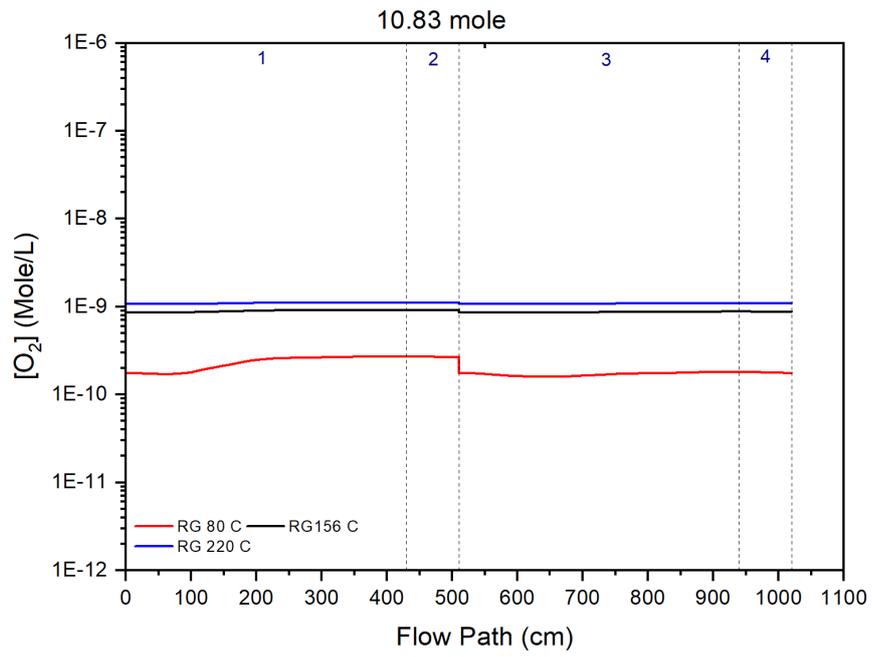


圖 30、乾貯護箱內部，氧化還原劑濃度隨流徑的分布情形。

(1 區：升流區，2 區：上平流區，3 區：降流區，4 區：下平流區)

## 第六章、研提熱傳分析評估審查重點或注意事項

本研究經過一系列檢視護箱內可能殘餘水氧化、輻射分解與再結合機制之國際相關文獻，並據此選定了可以接續前期計畫結果之 NAC-UMS 護箱進行長期貯存期間護箱內流場、溫度場以及相對溼度與護套氧化特性研析。於此計畫之執行期間，除據以完成分析所需之 CFD 模型與水化學流路模型之外，更完成代表性案例之計算。此一具備接續乾燥作業殘餘水量且可由穩態求解不同熱負載之氣體混和狀況之分析模式，其發展過程可參考本報告第 4.1 至 4.3 節。該分析模式計算不同熱負載與氣體混和比後之溫度場及速度場除在本報告第 5.1 與 5.2 節討論外，透過 5.3 節進行了流場相似性與其後之熱源-溫度相似性的探討，順利將溫度轉換為各式輻射分解與再結合效應、氧化機制所需參數並進行計算。

為能令本研究各項成果得以應用於未來管制作業，本報告彙整各項發現與建議事項，以供主管機關參考之用：

1. 護箱內實際殘餘水量應以裝載作業之熱流條件進行評估，若以貯存期間之穩態溫度進行評估，可能存在些許誤差。
2. 研析結果指出，即使裝載的是高燃耗燃料，在經過合適的乾燥作業後，護箱內部之相對溼度將不會因為殘餘水的存在而高過氧化閾值；惟此相對溼度將隨著內部衰變熱的逐漸減少而上升。
3. 護箱內部即使混入些許其它熱傳導效果低於氬氣之氣體，仍不會明顯影響其散熱能力，此部分可以透過審查時的參數或條件加以管制。若廠家在設計之初即於安全分析報告中保守忽略內部對流，則其護箱內部對流受氣體成分之影響可逕行忽略不進行審查。主要係因忽略內部對流所提供之保守性以可涵蓋合理氣體混和所造成的影響。
4. 燃料護套於乾貯期間受水汽所致之氧化層可忽略不計；若有必要進行氧化層厚度評估，可逕行選擇燃料貯存時之初始溫度進行評估，如此即以

可獲得足夠保守之氧化層厚度。

5. 綜合各項發現可知，任一乾貯設施所採用的乾燥作業，若能獲得與目前業界之作業標準或管制單位之法規要求，則其殘餘水經輻射分解與再結合效應所造成之護套劣化應可忽略不計。預期透過乾燥作業之程序與作業期間之品質紀錄查核，即可有效確保乾式貯存作業與長期貯存之安全。

## 第七章、結論與建議

本研究計畫藉由蒐集與研析國際間用過核子燃料乾式貯存期間的護套劣化分析所需之熱流、水化學資訊並整合乾貯技術領先國家對於熱流處理之方法後，以計算流體力學分析技術為基礎，發展了一套可以評估內部溫度、速度場之分析技術。透過今年度所精進之穩態殘餘水評估模式以及內部氣體性質之處理作業，完成了不同裝載條件(含燃耗與熱負載)之相對溼度與溫度評估；其結果顯示只有在綜合考慮極端高燃耗與低燃料熱負載等條件時，才可能令護箱內部出現達到相對溼度閾值之環境，並引發氧化；此一結果證實，目前國際間所採行的乾燥作業條件，實足以確保用過核子燃料之完整性不受內部水汽之影響。量化分析結果指出，即使選擇最保守的護套氧化速率評估模式進行評估，並以極端條件與裝載初始溫度進行評估，則護套受水汽影響並在 20 年貯存期間所形成的氧化厚度仍遠小於  $0.04 \mu\text{m}$ 。

除此之外，研究團隊透過結合輻射-熱流-水化學專業知識所建立之輻射分解與再結合評估技術，探討了輻射分解與再結合效應所造成之可能影響。其分析結果指出，各式經分解與再結合效應所產生關鍵氧化劑-過氧化氫，其濃度將遠低於溼式貯存之條件。上述各項研究結果可知，符合我國現行乾貯法規要求所建置之乾貯設施，其燃料護套所處環境不論是溫度輻射強度乃至於氧化劑濃度，皆將比溼式貯存為低，故燃料護套之完整性不致因為乾貯作業而導致顯著劣化。

## 參考文獻

- 1、曾永信等人，“110年室內乾貯設施輻射特性及乾貯護箱乾燥作業之管制技術研究 子項二：乾貯護箱乾燥作業階段殘餘水分趨勢研究期末報告，108年12月。
- 2、Hundal Jung et.al., “Extended Storage and Transportation: Evaluation of Drying Adequacy,” NRC-02-07-006, June 2013.
- 3、NRC, “Standard Review Plan for Spent Fuel Dry Storage Systems at a General License Facility,” NUREG-1536 Revision 1, 2010.
- 4、Y.S. Tseng, et., al, “Development of 3-D numerical methodology to investigate transient characteristics of fuel temperature and hydrated residual water during drying process of dry storage system,” Annals of Nuclear Energy, Vol, 172, 2022.
- 5、Bang, K.S., Yu, S.H., Shin, K.W., 2021, “Experimental investigation of vacuum drying for removal of residual water in canister,” Ann. Nucl. Energy 156, 108185.
- 6、Saha, S., Khan, J., Knight, T., Farouk, T., 2021, “A Global Model for Predicting Vacuum Drying of Used Nuclear Fuel Assemblies,” Nucl. Technol., DOI:10.1080/00295450.2021.1936863.
- 7、IAEA, “ Optimization Strategies for Cask Design and Container Loading in Long Term Spent Fuel Storage ,” IAEA-TECDOC-1523, Dec. 2006.
- 8、台灣電力股份有限公司，“核一廠用過燃料式貯存設施安全分析報告”， 97年1月。
- 9、台灣電力股份有限公司，“核二廠用過核子燃料乾式貯存設施熱傳安全驗證研究，” 101年12月。
- 10、Genden Engineering Services & Construction Company, “NS-4-FR Fire Resistant Neutron and/or Gamma Shielding Material- Product Technical Data.
- 11、The American Society of Mechanical Engineers, “ASME Boiler and Pressure Vessel Code, Section II, Part D- Properties,” 1995 Edition with 1995 Addenda.
- 12、Hanford Engineering Development Laboratory, “Nuclear Systems Materials Handbook,” TID26666, Volume 1, Design Data, Westinghouse Hanford Company.
- 13、R.B. Ross, “Metallic Specification Handbook,” 4th Edition, Chapman and Hall, London, 1992.
- 14、F. Kreith and M.S. Bohn, “Principles of Heat Transfer,” 5th Edition, West Publishing Company, 1993.
- 15、T. Baumeister and L.S. Mark, “Standard Handbook for Mechanical Engineers,” 7th Edition, McGraw-Hill Book Company, New York, 1967.
- 16、D.L. Hargman and G.A. Reymann, “Matpro- Version 11 A Handbook of Material Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Rod Behavior,” EG&G

- Idaho, Inc., Idaho Falls, ID, 1979.
- 17、J.H. Rust, “Nuclear Power Plant Engineering,” Holland Company, Atlanta, GA, 1979.
  - 18、J.A. Bucholz, “Scoping Design Analyses for Optimized Shipping Casks Containing 1-, 2-, 3-, 5-, 7-, or 10-Year-Old Spent Fuel,” ORNL/CSD/TM-149, Oak Ridge National Library, 1983
  - 19、F. Kreith, “Principles of Heat Transfer,” 3<sup>rd</sup> Edition, Intext Educational Publishers, New York.
  - 20、Ansys, “FLUENT 2022 R1 User Manual,” 2022.
  - 21、Ansys, “FLUENT 2022 R1 User Defined Function Manual,” 2022.
  - 22、NRC., “Computational Fluid Dynamics Best Practice Guidelines for Dry Cask Applications: Final Report ,” NRC-2152, Final Report, 2012.
  - 23、許榮鈞等人, “除役核電廠用過核燃料室內乾式貯存安全管制技術,” 期末報告, 106年12月。
  - 24、許榮鈞等人, “精進用過核燃料室內乾式貯存設施安全審查技術之研究,” 期末報告, 107年12月。
  - 25、Tengfei Xiang et. al, “Effect of current density wettability and corrosion resistance of superhydrophobic nickel coating deposited on low carbon steel,” Materials and Design 2016.
  - 26、J. H. De BORE, “ZIRCONIA,” ISSN:1957-4386, 1971.
  - 27、F. Bohroozi, “Determination of contact angle from the maximum height of enlarged drops on solid surfaces,” American Journal of Physics Vol. 80, pp284, 2012.
  - 28、Mei-Ya Wang & Tsung-Kuang Yeh, “Evaluation of Early Hydrogen Water Chemistry on Corrosion Mitigation in Boiling Water Reactors,” Nuclear Science and Engineering Vol. 186, pp180-189, 2017.
  - 29、S. RITTER, P. V. GRUNDLER, and L. VELEVA, “Pt Deposition Behaviour in Boiling Water Reactors: The NORA Project,” Paul Scherrer Institut (2014); [http://www. psi.ch/lnm/NoraEN/NORA.pdf](http://www.psi.ch/lnm/NoraEN/NORA.pdf) (current as of Aug. 30, 2016).
  - 30、S. E. GARCIA et al., “Effect of Hydrazine, Carbohydrazide and Hydrogen Injection on Noble Metal Treated Stainless Steel ECP and IGSCC Mitigation During BWR Startups,” Proc. 2010 Int. Conf. Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems, Quebec City, Québec, Canada, October 3–7, 2010.
  - 31、A. ABE et al., “Mitigation of SCC Initiation on BWR Core Internals by Means of Hydrogen Water Chemistry During Start-Up,” Nucl. Sci. Eng., 149, 312 (2005); <http://dx.doi.org/10.13182/NSE149-312>.
  - 32、王美雅等人, “108年核能安全管制及安全度評估技術能力建立-核電廠於除役過渡前期的材料劣化評估研究,” 期末報告, 108年12月。
  - 33、A. J. Elliot, The Reaction Set, Rate Constants and g-Values for the Simulation of

- the Radiolysis of Light Water over the Range 20° to 350°C Based on Information Available in 2008, Atomic Energy of Canada Limited, AECL- 153-127160-450-001, August, 2008.
- 34 · CNWRA. Extended Storage and Transportation: Evaluation of Drying Adequacy. Authors: H. Jung, P. Shukla, T. Ahn, L. Tipton, K. Das, X. He, and D. Basu, San Antonio, Texas: Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses. 2013.
  - 35 · NUREG/CR-6846, “Air Oxidation Kinetics for Zr-Based Alloys,” U.S. Nuclear Regulatory Commission,” ML16112A084, Argonne National Laboratory, 2004.
  - 36 · Y.S. Tseng, C.H. Lin, C. Shih, J.R. Wang, “Evaluating the feasibility of new surveillance concept for Dry Storage System through CFD methodology,” Annals of Nuclear Energy, Vol, 304, pp.1-10 ,2016.
  - 37 · W.Y. Wang, “Spent Nuclear Fuel Heatup Calculations Supporting Emergency Planning Exemption Using CFD code,” Nuclear Technology, 2022
  - 38 · Pavan Shukla, et.al., “Consequence Analysis of Residual Water in a Storage Canister,” SRNL-STI-2019-00495, Setp. 2019.
  - 39 · Bryan, C.R., S.G. Durbin, E. Lindgren, A.G. Ilgen, T.J. Montoya, T. Dewers, D. Fascitelli. “SNL Contribution: Consequence Analysis for Moisture Remaining in Dry Storage Canisters After Drying,” Sandia National Laboratory, SAND2019-8532 R, 2019.
  - 40 · Jensen, B.J. and D.J. Richmond. “Thermal Analysis of High Decay Heat Loading Strategies in the MAGNASTOR System,” Pacific Northwest National Laboratory, PNNL-XXXX, 2019.
  - 41 · Hirofumi Takeda, et. al., “Development of the detecting method of helium gas leak from canister,” Nuclear Engineering and Design, Vol, 238, pp.1220-1226 ,2008.