

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

反應器與圍阻體中子活化分析程式之
驗證研究

計畫編號：103FCMA003

執行單位：國立清華大學 原子科學技術發展中心

計畫主持人：裴晉哲

報告作者：裴晉哲、劉千田

報告日期：中華民國 103 年 12 月

(本頁空白)

目 錄

第一章	前言	1
第二章	國際間反應器與圍阻體中子活化分析程式之評估結果	3
2.1	中子活化分析原理的簡介	3
2.1.1	活化反應方程式	4
2.1.2	冷卻與計測時間修正	4
2.2	各國之核種活度分析概況	6
2.2.1	美國	6
2.2.2	日本	8
2.2.3	瑞典	13
2.3	中子活化分析程式之介紹	18
2.3.1	MCNP5v1.51 及 MCNPX 介紹	19
2.3.2	SCALE6 程式介紹	20
2.4	中子活化分析程式之使用情形	25
第三章	反應器與圍阻體中子活化之取樣技術與分析方法	26
3.1	感應耦合電漿質譜分析儀	27
3.2	元素分析儀	28
3.3	分析實驗最佳化條件	28
3.3.1	混凝土材料	29
3.3.2	估算混凝土中微量元素含量	30
3.3.3	核四廠混凝土中各組成元素及含量	31
3.3.4	運轉中核能電廠放射性核種評估	32
3.4	核能電廠除役反應器內部分割及圍阻體拆除的技術概況	33
3.4.1	美國 Connecticut Yankee 除役例行工作的程序	33
3.5	除役除污	52
第四章	國際間圍阻體中子活化分析程式之驗證 (V&V) 情形	55
4.1	瑞典 Ringhals - 3 號機蒸汽產生器	55
4.2	Barsebäck 的 1 號機和 2 號機除污淨化	56
4.2.1	B-1 電廠生物屏蔽和反應爐壓力槽保溫隔熱體的活度	56
4.3	Forsmark 沸水式反應器渦輪汽機組件	57
第五章	圍阻體中子活化評估結果審查技術之結論與建議	59

重要參考文獻.....	64
附錄.....	65

圖目錄

圖 2.1 活度隨時間變化圖.....	6
圖 2.2 T6-DEPL 控制模組流程圖.....	25
圖 3.1 除役前 Connecticut Yankee 電廠的外觀鳥瞰照片.....	37
圖 3.2 除役前 Connecticut Yankee 電廠的外觀近距離照片.....	38
圖 3.3 開始拆除圍阻體 2006 年電廠的外觀照片.....	39
圖 3.4 除役完 2007 年電廠的外觀鳥瞰照片.....	40
圖 3.5 除役完 2007 年至現今的廠址全景圖.....	41
圖 3.6 Grant Machine 的遙控機械手臂.....	42
圖 3.7 反應器壓力槽的移除.....	43
圖 3.8 反應器壓力槽的裝運.....	43
圖 3.9 反應器壓力槽運用駁船沿 Savannah River 運至 Barnwell.....	44
圖 3.10 反應器壓力槽最終運至 Barnwell.....	44
圖 3.11 蒸汽產生器下部組件底端.....	45
圖 3.12 移動蒸汽產生器下部組件出廠房.....	46
圖 3.13 安裝蒸汽產生器下部組件置拖車上.....	46
圖 3.14 移動蒸汽產生器下部組件到駁船.....	47
圖 3.15 蒸汽產生器下部組件從南卡羅萊納海岸鐵路運輸到 Barnwell.....	47
圖 3.16 移動蒸汽產生器下部組件到乾式貯存設施.....	48
圖 3.17 液壓撞擊鎚移除腳支柱.....	49
圖 3.18 使用挖掘機耙除混凝土.....	50
圖 3.19 剪切暴露的鋼筋.....	50
圖 3.20 圍阻體結構下降 10 英尺的距離.....	51
圖 3.21 圍阻體圓頂被拆除.....	51

表 目 錄

表 2.1 經 1000 年衰變期後每克燃料殘渣污物食入和吸入的劑量	18
表 2.2 中子活化分析程式之使用情形整理表.....	25
表 3.1 屏蔽牆混凝土樣品中微量元素含量.....	30
表 3.2 乾井牆混凝土樣品中微量元素含量.....	30
表 3.3 ICP-MS 測定核四廠混凝土主要組成元素及其含量表	31
表 3.4 EA 測定核四廠混凝土樣品中 H、C、O 含量表.....	31
表 4.1 Studsvik 從 R-3 中蒸汽產生器產生的廢棄物所得的活度.....	56
表 4.2 反應爐壓力槽保溫隔熱體和生物屏蔽的活度計算值及測量值 .	57
表 4.3 在 Studsvik 接受處理渦輪汽機組件的重量和活度.....	58

第一章 前言

核能電廠除役時，由國外核能電廠除役經驗顯示，最大宗的產出是廢混凝土與廢金屬，而廢混凝土中 95% 以上為受極低微或根本未受放射性污染，經簡單除污後，絕大多數的廢混凝土均可依一般事業廢棄物處理於一般的垃圾場，或回收作為路基與骨材，約 50% 廢金屬經適當處理或除污後可再回收使用。但在圍阻體中，因電廠運轉而受到中子活化的廢混凝土或廢金屬物質，成為放射性廢棄物，對除役作業與成本影響則甚為關鍵。當電廠開始運轉，一次圍阻體屏蔽混凝土中的微量元素，如 Co、Cs、Eu 等元素便會受到中子活化，而形成放射性核種，使混凝土成為放射性物質；結構金屬材料亦有可能受到活化，而成為放射性物質，因此運轉期間，需對於圍阻體中所產生的放射性核種，進行活度分析評估，以掌握除役時該放射性廢棄物的種類、數量及來源。中子活化分析程式之使用，便是對核能電廠除役時所產生的放射性核種活度進行預先分析評估；能夠判定分析程式的確認與驗證計算 (Verification & Validation) 合理，才能提出分析評估結果具有可信度與可靠度的依據。

核設施除役大體上是相同於其他任何工業廠房，但核設施涉及放射性物質，衍生輻射、污染及廢棄物問題，尤其是動力用核子反應器更存在著中子活化的特殊情形。在核能機組正常運轉期間，多數焦點都集中在如何確保核能安全的研究區域上，而較忽略電廠除役方面的議題。然而，對於除役階段則有許多新的課題需要面對，從國外核能電廠的除役經驗來看，一座核能電廠從確定停止運轉到完全除役可能耗時 20~30 年之久，期間電廠必須提出有關待拆除設施及拆除方法、核燃料物質管理、因核物料產生放射性廢棄物的處理、除役程序、輻射曝露管理、安全評估、應維持功能及性能的系統設備，以及執行組織等資訊及計畫供管制單位審核，以確保整個除役工作能順利且安全地進行。

因應新的能源政策在 100 年 11 月 3 日提出後，決定國內既有核能電廠不延

役，並依規定展開核能電廠除役計畫。第一核能發電廠一號機組，將於 107 年底運轉到期，因此台灣電力公司應於 104 年 12 月底前提出核一廠除役計畫。主管機關原子能委員會基於管制機關角色，為合理與嚴謹審查經營者提出之除役計畫，應掌握各國核子反應器設施之除役法規、實務經驗及關鍵安全問題與評估技術，並建立一套完善之“反應器與圍阻體中子活化分析程式之驗證研究”審查機制及具有學術專長之審查團隊，以期協助審查與檢查各項除役作業計畫，期盼除役工作可依照除役計畫之規劃順利執行，並於預定期程內完成。中子活化分析程式之使用，主要目的是提出分析評估結果，使整個除役工作能避免進行任何不具效益的作業。

核能電廠許多廠房拆除過程中，會迅速產生非常大量的放射性廢棄物，廢棄物包裝和運輸技術需要考慮到這個因素，以避免除役時空間使用的問題。核能電廠除役時，大部分的結構及設備都將被拆除，在整個核能電廠的建築中，使用了數以百噸計的混凝土，當除役工作開始進行，大量的混凝土將成為廢棄物，由於混凝土廢棄物的數量相當龐大，如何處理混凝土廢棄物，是一項值得重視的工作。大部分不具有放射性的混凝土，可以一般廢棄物掩埋處理或回收為路基填料再利用，而在圍阻體內因電廠運轉受到活化的混凝土，則成為放射性廢棄物。實際除役時往往並非備齊所有廢棄物的處理、貯存及可能處置路徑，結果導致更進一步延遲或無限期封存，因此廢棄物處理對除役各方面是一重大關鍵。本研究計畫將協助物管局進行“反應器與圍阻體中子活化分析程式之驗證研究”審查前，擁有健全之審查技術與團隊，以利未來核能電廠除役管制作業之參考，能夠判定分析程式的確認與驗證計算（Verification & Validation）合理，提出分析評估結果可信度與可靠度的依據。

第二章 國際間反應器與圍阻體中子活化

分析程式之評估結果

放射性廢棄物是我們在能源發展的歷史軌跡中必然的產物，妥善規劃處置放射性廢棄物，亦為享用過原子能科技利益的現代化國家無可逃避的責任。國內過去對於放射性廢棄物管理，在法規完備性、精進處理技術及減少廢棄物產量方面，已有具體成效。

目前國際上有幾個國家具有核能電廠的除役經驗，包括美國、英國、法國、德國、義大利、日本及瑞典等地，美國、日本及瑞典具有非常豐富的除役相關經驗，在其除役計畫和除役結果報告中均存有十分寶貴之資料與實作紀錄，可供我國核電廠進行除役作業時之參考。雖然各國電廠之設計與環境條件不同，除役計畫無法一體適用，需針對各電廠進行審慎評估與檢討，才能擬定最適用之除役計畫，但各國經驗仍有非常高度之參考價值，本計畫主要方法便是從已完成除役之核能機組進行深入研究，而以除役核能電廠除役過程之中子活化相關內容為主要範圍，作為未來主管機關審查核能機組除役計畫之參據，若有值得參考的相關經驗也將一併呈現於本報告中。

2.1 中子活化分析原理的簡介

中子係不帶電荷的中性粒子，其質量為 $1.67942 \times 10^{-24} \text{g}$ ，不受原子核或軌道電子庫侖力的影響，因此極易穿透電子雲而與原子核起反應。中子和原子核之反應，可分為吸收（Absorption）與散射（Scattering）兩種；吸收反應又可分為捕獲（Capture）及分裂（Fission）反應，散射反應則可分為彈性散射與非彈性散射。

中子活化分析（Neutron Activation Analysis, NAA）是利用本身穩定的元素

吸收中子後，轉變成放射性核種，由於放射性核種本身不穩定，會以貝他衰變 (β^+ decay or β^- decay)、阿伐衰變 (α decay)、電子捕獲 (Electron Capture, EC)、同素異構過渡 (Isometric Transition, IT) 等方式進行衰變，這些衰變隨著機率單一或組合發生，放出電子、正電子、阿伐粒子、質子、X 射線或是加馬射線，而貝他衰變亦伴隨放出加馬射線。對於測量微量元素的濃度，中子活化分析已是一種眾所皆知的技術。

2.1.1 活化反應方程式

由於每個放射性核種衰變均有其半衰期，且放出特定能量的加馬射線 (或 X 射線)，便能根據這兩個特性進行定性及定量實驗，經由特定能量加馬射線的測定，得知待測樣品的元素組成及其含量。

放射性同位素之衰變率，無法用化學或物理方法來改變，單位時間衰變的原子數與存在原子數成正比，衰變常數 (Decay Constant, λ) 定義為單位時間衰變之原子數與存在總原子數之比，假設某一時間照射靶內有 N 個放射性原子存在，照射靶的衰變活度 A 即為 λN ，中子照射產生反應率為 R ，放射性原子濃度隨時間變化的方程式 dN/dt 為中子照射產生反應率 R -衰變活度 λN 。

$$dN/dt = R - \lambda N$$

N ：時間為 t 時之放射性原子數

R ：中子照射產生反應率

λ ：衰變常數

隨著照射時間的增加，放射性核種的活度會趨近於一個定值，當時間趨近於無限大時，活度等於反應率 $A_{\infty} = R$ 。

$$\text{積分可得 } A = A_{\infty} (1 - e^{-\lambda t}) = R (1 - e^{-\lambda t})$$

2.1.2 冷卻與計測時間修正

照射靶經過一穩定的中子束照射，從時間為 0 開始照射，至時間為 t_0 時照

射結束，冷卻到時間 t_1 開始計數，計數在時間 t_2 結束，因此，在經過時間 t_0 的照射之後，靶的活度為 $A = A_\infty (1 - e^{-\lambda t_0}) = R (1 - e^{-\lambda t_0})$ ，在照射結束後，照射靶因為中子活化所產生的放射性核種，必須經由輻射偵檢器來進行活度的測量，本實驗中利用的是高純鍍偵檢器，作為加馬能譜的測定，通常在照射結束後，不會馬上進行加馬射線的計測。一般來說，為避免其他短半衰期放射性核種對加馬能譜的影響，因此通常會冷卻至少十個半衰期，等待其衰變至原活度千分之一後再行計數；或是當照射結束後活度過高以致於偵檢器的無感時間 (dead time) 太長，將造成加馬射線的訊號收集不完全，損失的計數將影響活度的計算結果，因此等待到至少讓無感時間的損失比低於 2%~3%。

在圖 2.1 中，照射結束後經過 $(t_1 - t_0)$ 的冷卻時間 (cooling time)，因此在開始計數時的活度為 $A_1 = A_0 e^{-\lambda (t_1 - t_0)} = R e^{-\lambda (t_1 - t_0)} (1 - e^{-\lambda t_0})$ ，在計測的同時，活度並不是一個不變的值，將圖 2.1 中的陰影部分積分起來才會是偵檢器所測得的計數值，而不是活度 A_1 與 $(t_2 - t_1)$ 的乘積，必須考慮計測時間 (detecting time) 內的活度衰減，否則將造成活度的低估，尤其是計數時間拉長時或是放射性核種的半衰期很短 (低於數小時) 時，這項修正將更為重要。

將圖 2.1 中陰影部分積分，則對應偵檢器在時間 t_1 到 t_2 的計數，可以下式呈現：

$$R = \frac{(C - B)\lambda}{\epsilon Y e^{-\lambda t_c} (1 - e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_i})}$$

其中：

C：偵檢器在計數時間內該核種的能峰總計數 (peak gross counts)

B：在計數時間內該核種能峰的背景計數 (peak background counts)

ϵ ：偵檢器對於該核種能峰的偵檢效率 (efficiency)

Y：該核種能峰的加馬射線分支比

t_c ：冷卻時間 ($t_c = t_1 - t_0$)

t_d ：計測時間 ($t_d = t_2 - t_1$)

t_i ：照射時間 ($t_i = t_0$)

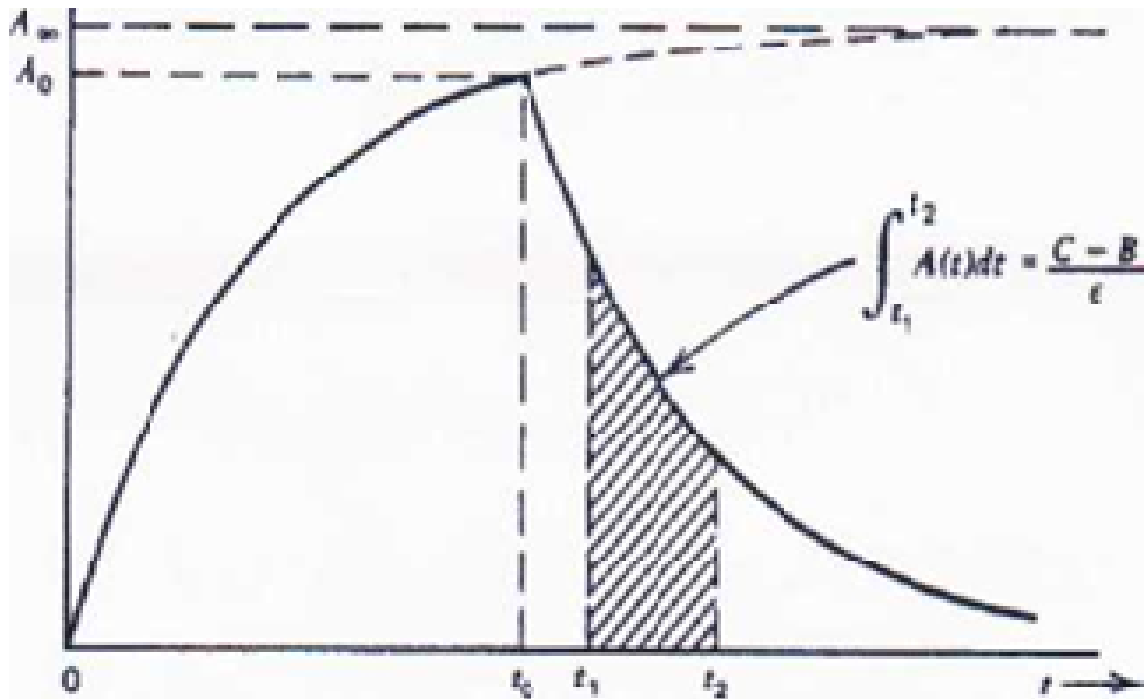


圖 2.1 活度隨時間變化圖

2.2 各國之核種活度分析概況

依計畫時程，將先針對美國、日本及瑞典的已除役核能機組進行資料蒐集並進行研讀，並將研讀結果歸納整理作為審查技術之主體架構，將先篩選環境條件較類似於我國核能電廠之已除役機組進行研讀，提出未載於各國除役計畫與報告書中之創新內容，供未來進行除役計畫審查之參考。

2.2.1 美國

美國早於 1975 年，電力研究所 (Electric Power Research Institute, EPRI) 即委託科學應用國際公司 (Science Applications International Co, SAIC) 核能環境服務部門，進行輕水式核電廠低放射性廢棄物 (Low-Level Radioactive Waste, LLRW) 中核種活度分析。以三年半的時間分析 11 座沸水式反應器 (BWR)、14 座壓水式反應器 (PWR) 核電廠廢棄物，廢棄物樣品包括爐水、爐水淨化殘

渣 (Clean up filters and resin)、冷凝水廢樹脂 (Condensate filter and resin)、濃縮廢液 (Evaporator concentrates or bottoms)、銹垢和擦拭紙 (Crud and smears) 等五種廢棄物源 (Waste streams)，共分析了 322 個樣品，分析 γ -核種及 Pu-238、Pu-239/240、Pu-241、Am-241、Cm-242、Cm-244 等難測核種，開啟了廢棄物內核種活度定量的先驅。

1982 年美國核管會 (NRC) 頒佈 10 CFR 61 法規，鑑於當時核電廠 LLRW 中核種數據庫較法規所列明顯不足，故委請 SAIC 公司依法規建立廢棄物中核種活度數據庫 (Database)，並研究用易測的 γ -核種以比例因數計算需放射分離定量的 α -核種、 β -核種。SAIC 公司在 1982 至 1985 年間自 18 座 BWR、26 座 PWR 核電廠取得 700 餘個廢棄物樣品，進行法規核種活度之分析，同時亦完成先前存檔的 156 個樣品補做法規核種之分析，此項委託計畫共累積了 913 個樣品中核種數據庫，完成分類計算比例因數。

後來 SAIC 公司為符合 NRC 廢棄物分類技術立場要求：每廠每廢棄物源建立比例因數；已將歷年分析的核種資料庫重新安排，以每一電廠之每一廢棄物源，歷年分析的樣品核種活度數據庫為基礎數據，並利用統計法排除偏高或偏低的異常數據，改用加權對數平均值 (Weighted Log-Mean Values) 計算法計算相關核種比例因數。1991 年 Scientech 公司購併 SAIC 公司核能環境服務部門，並將放射化學分析實驗室遷至馬利蘭州蓋茨堡 (Gaithersburg) 市，美國現有約 60 座核電廠之放射性廢棄物為履行 10 CFR 61.55 廢棄物分類法規，送樣至該公司分析，約佔全美 70~80% 市場，其它核電廠則送樣至加州的 TMA/Norcal 或 Teledyne 等公司。Scientech 公司分析之廢棄物核種活度，部份送核電廠 (如 WNP-2、Duke 電力公司) 自行利用 RADMAN、WASTRACK 程式做比例因數計算，部份直接由 Scientech 公司計算，如加上 TMA/Norcal 等公司送來的數據約有 30 座核電廠委託 Scientech 公司計算比例因數。綜觀美國放射性廢棄物的做法：各電廠為履行 NRC 10 CFR 61 廢棄物分類法規，每年取樣送 Scientech 或 TMA/Norcal 公司分析，查驗比例因數、分類、固化包裝再送最終處置場。

2.2.2 日本

日本科技廳核能安全局放射性廢棄物法規室 (Office of Radioactive Waste Regulation, Nuclear Safety Bureau, STA) 於 1992 年 10 月頒發「放射性廢棄物管理與處置安全法規」(Safety Regulations on the Management and Disposal of Radioactive Wastes)。日本核燃料公司 (Japan Nuclear Fuel Industries Co.) 於 1988 年申請低放射性廢棄物最終處置場商業運轉操作執照時，委請日本電力協會 (The Federation of Electric Power Companies, TOKYO, JAPAN) 主持，進行 28 座反應器 (17 BWR/10 PWR/1 GCR) 參與取樣建立比例因數分析，樣品分析由 JGC、東芝、日立等公司擔任，由 15,000 桶均勻固化廢棄物分析約 600 個廢棄物樣品，並建立比例因數，這些數據庫第一階段應用於：將約 20 萬桶均勻固化體送往六個所村廢棄物最終處置場的技术援助，預計自 1992 年開始，分 6 年陸續進行，在 1998 年完成。

廢棄物桶內難測的 α -核種、 β -核種提出 (1) 比例因數法 (Scaling Factor Method) (2) 理論分析法 (Theoretical Analysis Method) 來計算，但以比例因數法為主要依據。日本青森縣六個所村低放射性廢棄物最終處置場於 1992 年開始商業運轉以來，將接收 20 萬桶廢棄物，每桶廢棄物運輸清單均登載詳細核種數據。

濱岡電廠為因應科技廳法規要求，並配合六個所村廢棄物最終處置場於 1992 年底開始接收廢棄物，耗資 50 億日圓興建一座全日本唯一三層樓式「低放射性廢棄物檢查·搬出設備」，全系統由 NGK 公司 (特殊陶業株式會社) 規劃，土木部分約 20 億日圓，儀器設備 30 億日圓，係 JGC 公司 (日暉化工建設株式會社) 設計製作，全自動廢棄物檢查系統，由環境保安課廢棄物處理部門負責運轉，分 8 站具有 8 項功能，即：

1. 條碼 Bar Code 標示。
2. 核種活度濃度計測。

3. 壓縮張力測量。
4. 桶蓋開關機器。
5. 硬度測量。
6. 表面污染劑量率及重量測量。
7. 標示桶號、劑量率色帶及輻射標誌。
8. 目測檢查。

此系統廢棄物之搬運、檢測由控制室盤面螢幕操縱，完全自動化，人員曝露劑量降至最低，符合 ALARA 精神，每日可檢測 30 至 40 桶均勻固化廢棄物。

在廢棄物檢測控制室的「廢棄物體檢查結果數據表」，所有檢查項目及判定結果均列諸表內：

1. 桶號。
2. 統一整理編號。
3. 接受日期。
4. 放射能測定，包括測定日期、固化體重量、廢棄體重量、 α 、 β 、 γ 核種活度（ α -核種、 β -核種以比例因數計算）。
5. 上部空隙測定結果。
6. 強度測定。
7. 桶開拴日期。
8. 硬度測定。
9. 桶閉拴日期。
10. 擦拭及曝露率測定，包括表面污染密度（上面、上側面、下側面、下面）、表面曝露率（上面、上側面、下側面、下面）、1 公尺曝露率。
11. 標示日期。
12. 桶厚測定。
13. 外觀檢查，包括上、側、下面外觀、放射性廢棄物標誌、編號標幟、色帶、輻射標幟。

上述檢查記錄項目及數據為廢棄物送往六個所村必備的資料，類似美國 10 CFR 20.311 廢棄物處置運輸貨單（Transfer for disposal and manifests）法規所列的填報項目需求，可供國內未來設計廢棄物最終處置填報表單的參考。控制中心除濱岡操作人員外，六個所村亦派員核對相關數據及查閱現場作業，實況相當嚴謹，另外檢查記錄也要送科技廳抽三十分之一查閱。

自 1992 年底各核電廠開始運送廢棄物至六個所村，日本科技廳委託日本化學分析中心（JCAC）取樣均勻固化廢棄物進行核種活度分析，以確認整桶計測與比例因數估算的核種活度準確性，JCAC 每年約分析 20 個樣品，樣品來自濱岡、福島、東京電力等 9 個核電公司，並經科技廳安排借得日本原子力研究所實驗室進行該項工作。

JCAC 針對水泥、柏油、塑膠的濃縮廢液與廢樹脂均勻固化廢棄物樣品進行核種分析，核種分析分 4 類分別進行：

1 H-3、C-14。

2 Ni-59、Ni-63、Co-60、Sr-90、Nb-94、Cs-137。

3 Tc-99、I-129。

4 Pu-238、Pu-239/240、Am-241、Cm-243/244。

民國 87 年 11 月 3 日，日本東京電力環境工程公司（Tokyo Electric Power, Environmental Engineering Co., INC.）原子力技術部經理片山義樹（YOSHIKI KATAYAMA）在第 19 屆中日工程技術研討會，發表與研討「日本核電廠低放射性廢棄物之處理狀況」中提到：日本福島核電廠在 1992 年貯存 20 萬桶廢棄物，至目前已處置 10 萬桶，廢棄物內核種由電廠採日光公司出品純鍺偵檢器將整桶廢棄物直接量測和比例因數法獲得，所須報告核種為：H-3、C-14、Co-60、Ni-59、Ni-63、Sr-90、Nb-94、Tc-99、I-129、Cs-137 及 Gross α 等 11 種核種。另外尚有表面劑量率、重量等。

有關固化體廢棄物建立比例因數，福島核電廠有 6 座機組，要依反應器型態 PWR、BWR，新舊廠，低 Co 材料廠等分別取樣，自 1970 至 1988 年代，每

年每批次取一個樣品保存之。取樣的代表性與個數是較困難的問題，需向政府說明，獲得認同。福島核電廠亦設計了一套取樣機 (Sampling Machine)，更換取樣蓋為二孔設計，一個孔供取樣機鑽鑿之用，另一孔供抽氣防空浮之用。鑽鑿產生的水泥粉體經一組空氣冷卻粉體回收裝置 (Cement Dust Collector) 過濾。每次取樣品約 50 公克，鑽鑿的洞，加固化劑膠泥 (Mortar) 填補之。

依日本法令之規定，應在除役計畫認可申請書的附件內，檢附「核燃料物質的污染分佈及其評估方法相關之說明書」。於解體時應考慮到的放射性物質總量，可區分為兩大類：(一) 因中子照射所導致的反應器內部建物結構活化及周邊設備內含的放射性活化物質的總量、(二) 由管線及機器內部附著的輻射腐蝕生成物或核分裂產物(FP)所導致的表面污染總量。

以下將舉例，對放射性物質總量的評估方法進行概述。

(1) 放射性活化物質的總量

核子反應器在運轉時，會因爐心的中子照射而導致反應器本體、周圍的結構材料及屏蔽設備的活化。該評估方法包括實際取樣法、測量法及分析法。

實際取樣法，是在反應器停機後，對結構材料進行取樣，再送到實驗室作輻射劑量的檢測。必要時，可進行放射化學分析，藉以詳細掌握放射性核種的種類及劑量。

測量法，是在反應器運轉時，利用中子量測儀器及活化箔等方式，進行中子束及能量分佈的測定。

不過一般而言，因直接測量及取樣會耗費過多人力，且難以充分掌握輻射的分佈，故通常是配合分析法一起使用，將前者得出數據驗證之。

因此，從核子反應器到生物屏蔽為止的所有構造，有必要因應等級，予以標準模式化，並輸入各區域的組成物質，及運轉時由爐心計算結果得出的中子數據。根據此模式，例如，利用 1 次元傳輸計算碼 ANISN 程式計算中子的分佈、ORIGEN 程式進行核計算等，即可獲得整體的放射性物質質量。

建物結構的物質密度很重要，應利用實際取樣法或從同樣材料進行推算，

確保準確性。尤其需特別注意鋼筋內的微量元素 Co、Nb，以及混凝土中的微量元素 Eu、Co、Cs 等，因有可能受到活化關係，而對放射性物質量產生重大影響。同時，混凝土當中的水份含量，因有助於中子減速，故也有一定的重要性。

此外，由於核子反應器的構造或 Streaming 效果(串流效應)，可能導致中子束的分佈發生變化，故計算模式時，應加以注意。

要完成一整個大型核子反應器的精準評估，是件非常困難的事。因此，如同前述，先比較取樣及直接測量之結果，再來作最後的決定才較為務實。

另外，如有必要，解體過程中亦可進行放射性物質量的測定等，除了反饋以作為除役計畫的參考資料外，亦有需要反映廢棄物處置上之數據。

(2) 表面污染總量

關於附著在管線或設備上的放射性核種，若是核子反應器的話，是經由結構材料的腐蝕生成物的活化或隨著核分裂產物的液態化被搬運而出的。核燃料循環設施的話，則是直接受到處理物質的輻射影響。

核子反應器，其放射性核種的種類、附著量及分佈等，是依據核能電廠的型式、大小、構造材質、運轉歷史及燃料狀態等，而有不同。與放射性活化物質量相比，測量方式較為容易執行，故以測量為主，再配合分析法來進行整體系統分佈之評估。

通常，是經由污染泥土等的樣本或直接測量，來整理核種的組成、確定與輻射劑量率之間的關係，並在電廠各處，從輻射劑量率去反推放射性物質的總量。在規劃核子反應器冷卻系統的拆除計畫時，有這些準備就足夠了。

此外，可根據核種的組成，去鑑定附著在管線或設備內部等的元素組成。關於運轉時的附帶機器及裝置，雖已有建立相關之物理性及化學性行為模式的評估方法，但還是有必要再加以驗證之。

核燃料循環設施，也大致相同。不過由於其阿伐核種數量多，且再處理設施又存在著各式各樣的污染物質，與輻射劑量率之間的關係也較為複雜之故，須十分注意。

此外，在運轉或保養維修過程中，也有可能因系統洩漏而造成混凝土等的污染。因此，像過去曾發生之事故狀況等歷史紀錄也變得重要。不過，此種污染有必要在解體或確認運轉結束時，就經由測量去加以鑑定。

(3) 以輕水式反應器的放射性物質總量為例

舉例一座擁有 40 年運轉經歷的大型(100 萬 kWe 級)發電用反應器，在其核子反應器停機後，推測輻射強度約為 10^{17} 貝克(Bq)；放射性物質總量也將集中於核子反應器，推測壓力容器及生物屏蔽等約佔有超過 99.9% 以上的放射性物質；而附著於其它設備或管線上的腐蝕生成物則為 0.1% 左右。

另外，關於核種組成，會隨著停機後的時間而發生變化。在反應器停機後 10 年，核種是 Fe-55，接著由核種 Co-60 主導，而後是核種 Ni-63。從輻射劑量率來看，雖然是由半衰期約 5 年的核種 Co-60 佔主導地位，但反應器停機 40 年過後，將剩 1/100。

2.2.3 瑞典

根據瑞典的法律，擁有核能電廠的公司要自己負責核廢料的管理及最終處置，因此 1970 年代這些核能公司已形成一個聯合公司，即瑞典核燃料及廢料管理公司 (Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co., SKB) 以符合律法要求。目前尚未興建用過核燃料的貯存場所，核能工業希望能在 2008 年開始興建用過核燃料的貯存場所。經 20 餘年調查於 2009 年選出 Forsmark 的 Osthrammar 處置場址，位於地下 500 公尺深之地層，可處置 6000 只銅製密封罐；預計 2010 年提出設置申請，2015 年建造，2020 年開始營運。

Studsвик 公司在 "Validation of activity determination codes and nuclide vectors by using results from processing of retired components and operational waste (使用處理除役組件和運轉廢棄物的結果，驗證核種活度測定程式和放射性核種變遷過程相互關係)" 技術報告中開宗明義指出：核能電廠產生的低放射性廢棄物可分為運轉廢棄物及除役拆廠廢棄物，其中除役拆廠廢棄物，特定指明為被中子

活化的核反應器組件及受污染之廠房。除役核能電廠進行中子活化研究分析，是為了評估廢棄物總量和除役費用，並且提供數據，以利放射性廢棄物處理、貯存的設施場所許可證申請及其施工。資深的經驗和精益求精的取樣技術與分析方法，可提高中子活化研究分析計算的精確度。

Studsвик 公司技術報告中有發展潛力的研究分析範圍分為下列 5 項：

1. 難測核種計算模型的驗證。
2. 活度評估計算的驗證。
3. 在處理後核種成分分析（例如 C-14 和 Cl-36）。
4. 核設施的特徵描述模型。
5. 即將被處置廢棄物的核種篩選模型。

2.2.3.1 驗證過程的關鍵參數

對於任何類型的驗證程序，最基要的關鍵參數是熟知條件及品質保證；對理論模型，可進行材料的採樣和研究分析兩種對照方式，定義及確保可追蹤回溯性和可比對性，這項作法是非常重要的，能避免得到不正確的驗證結論。

下列是實際除役時高重要性的流程參數：

1. 材料、系統和建築物如何被污染。
2. 運轉的操作變化，以及它如何影響了活度產生情形。
3. 廢棄物處理影響放射性核種總量庫存，以及此處理如何簡化驗證過程。

不同核種需要不同的方式和方法，來估計放射性物質材料的活度。

以與鐵金屬相關的物質，舉幾個例子：

1. Co-60、Fe-55、Ni-59/63 和其他可活化產物，將存在於除污的廢棄物中，如金屬錠、爐渣和灰塵；單只有加馬發射體的放射性核種 Co-60 沒有太大問題，但多考量到低能 β 發射體，則使活度測定更加複雜。

2. 某些揮發性核種具有相當高的沸點，例如 Cs-134/137 於熔化過程中將蒸發掉，但幾乎 100 % 會在熔池和灰塵過濾器被捕獲到；這意味著，Cs 會顯著出

現在熔化殘留物所有的金屬錠中。

3. 重原子核 α 發射體，如鈾同位素和超鈾元素將被轉移至爐渣，使活度測定更容易進行。

4. 在一定程度上 H-3、C-14 和碘同位素，熱加工階段是一個複雜的估算過程，因此若是可行，這些核種在通過熔化之前就應採樣而測定活度。

2.2.3.2 驗證成功的關鍵問題

為達成驗證成功的關鍵問題：

1. 回顧核種變遷過程發展的文件，包括邊界條件。
2. 定義目標和驗證的目的。
3. 分析不同核種的分佈和行為，即利用核種變遷過程探索確認任何不確定因素，確保所有流程參數獲得充分了解。
4. 識別並專注於關鍵核種，即進行仔細篩選審查。
5. 可靠的可比對性和可追蹤回溯性，即精心策劃和選擇驗證對象。
6. 製作和評估不同的對比檢測方法作為驗證工具。

對於大多數傳統典型的斯堪地納維亞（Scandinavian）核能電廠，共涵蓋了 15 個核能電廠，Studsvik ALARA 工程公司一直負責確認其除役時的活度清單數據庫；大多數核能電廠持續更新活度清單數據庫時，其中一些額外的放射性核種將被包括在內。

2.2.3.3 先決條件

進行研究的先決條件，總結為以下方式：

1. 每個反應器的總運轉時間是根據其電廠規格，這意味著對 Barsebäck 反應器而言，實際運轉時間為現階段的時數，但也需預計 40、50 或 60 年後，反應器屆時仍在運轉。
2. 衰變週期至少一年的推定，這意味著放射性核種半衰期短於一年者可被

忽視。

3. 運轉廢棄物如用過燃料、離子交換樹脂和過濾器等介質，假定介質在除役之前已被刪除退出使用；然而，少量的廢棄物被假定為仍留在廢棄物處理系統中。

4. 不需要考慮除役之前大型主要的除污淨化行動。

5. 只有電廠材料活度清單數據庫其內容有可能超出豁免水平者，才需納入評估。

2.2.3.4 活度評估行動的輸入值

活度評估主要輸入值是：

1. 描述活度清單數據庫內容的安全分析報告 (SAR)，這些電廠許多最近的更新安全分析報告都與功率提昇和現代化項目相關，即是反映最實際的運轉條件。

2. 測量電廠設備的數據，如大修期間的條件下、反應器冷卻水的資料和蒸汽濕度含量測量，並依據燃料洩漏的歷史數據，所獲得的劑量率和 γ 掃描測量值。

3. 組件活化過程中的重量和表面積，這些重量和區域表面積可被分解成系統的各部分。

4. 未來的操作情況，如總運轉時間，有計劃修改 (如功率提昇)，除役參考時間等。

2.2.3.5 考慮劑量來源項目

下列劑量來源項目被認為在評估中需要考慮：

1. 反應器內中子活化構件，反應爐壓力槽 (RPV)，反應爐壓力槽保溫隔熱體、生物屏蔽混凝土和反應爐壓力槽周圍的鋼筋。在這些組件內的中子通量通過 MCNP 三維中子模擬程式計算確定，不同材料的組合物中包括微量元素，如

Co，是基於材料規格、材質證書以及有關的材料組成。一般而言中子通量、材料組成、中子活化截面和運轉歷史相結合，再使用不同的電腦程式（如 IndAct, FISPACT），便可計算活度清單數據庫。

2. 在系統表面的中子活化腐蝕產物，即所謂的“殘渣污物”（Crud），主要目的在確定一次側迴路表面的污染層情形。

3. 燃料破裂洩漏出的分裂產物和鈾系元素，反應器冷卻水與故障的破裂燃料直接接觸，相當於燃料材料開放溶解，這種燃料破裂釋放形成顯著的記憶效應，以鈾污染的形式形成在爐心上（所謂的漂流鈾），和鈾系元素摻入系統表面的氧化層。漂流鈾產生短半衰期的惰性氣體，結果使惰性氣體的子核種累積，如 Sr-90、Cs-135 和 Cs-137 等，關閉在氣體排氣延遲系統中。

4. 系統洩漏造成部分活度積累的結果，影響電廠在混凝土的建築區域，這污染反映在反應器冷卻水中的核種組合物。

2.2.3.6 需考慮之核種

最初進行審查，確定在除役報告中涵蓋了下列 28 種核種清單：

•H-3，C-14，Cl-36，Ca-41，Fe-55，Ni-59，Co-60，Ni-63，Sr-90，Nb-94，Tc-99，Ag-108m，Cd-113M，Sb-125，I-129，Cs-134，Cs-135，Cs-137，Sm-151，Eu-152，Eu-154，Eu-155，Pu-238，Pu-239，Pu-240，Pu-241，Am-241，Cm-244

後來認為有必要添加一些額外的核種，使運轉廢棄物及除役拆廠廢棄物能統籌規劃；出於這個原因，2012 年正在進行更新的瑞典電廠，下列其他 20 種核種都包含在表單中：

•Be-10，Se-79，Mo-93，Zr-93，Nb-93m，Ru-106，Pd-107，Sn-126，Ba-133，Pm-147，Ho-166m，U-232，U-236，Np-237，Pu-242，Am-242m，Am-243，Cm-243，Cm-245，Cm-246

一些其他的核種也已討論過，例如核種 Fe-60（半衰期=1.5 百萬年），這主要是通過鐵和中子反應產生的；Fe-60 經衰變的子核種 Co-60，會貢獻為高劑量

的因素，主要是通過食入和吸入，此重要性示於下表中，其中計算 1000 年衰變後，以每克燃料殘渣污物食入和吸入的劑量，得出典型 BWR 殘渣污物的比活度。核種 Fe-60 原先被認為是不可能列在表上，但事實證明列表上 Top10 就有 Fe-60，這指出在環境中不同的核種傳輸特性是需要評估中考慮，這當然相當可能會改變核種不同的重要性。總體結論是，引入額外的核種意味著需要更進一步改進的評估和驗證過程。(詳細內容請見附錄)

表 2.1 經 1000 年衰變期後每克燃料殘渣污物食入和吸入的劑量

Nuclide	Ingestion mSv/g	Nuclide	Inhalation mSv/g
Ni-59	1.3E-01	Nb-94	3.4E+00
Nb-94	1.2E-01	Ni-59	9.0E-01
Ni-63	4.2E-02	Ni-63	3.6E-01
Mo-93	1.9E-02	Ag-108m	3.3E-02
Ag-108m	2.0E-03	Zr-93	1.8E-02
Zr-93	7.8E-04	Mo-93	1.4E-02
Nb-93m	7.2E-04	Nb-93m	1.1E-02
Tc-99	2.5E-04	Tc-99	5.2E-03
Fe-60	1.4E-04	Fe-60	3.7E-04
Re-186m	6.8E-06	Nb-91	7.1E-05
Total	3.1E-01	Total	4.7E+00

2.3 中子活化分析程式之介紹

下列介紹的 MCNP 程式系統及 SCALE 程式系統，均為美國核管會 (NRC) 認可之臨界分析執照申請程式，分析程式的確認與驗證計算 (Verification & Validation) 關乎分析評估結果的可信度與可靠度。

2.3.1 MCNP5v1.51 及 MCNPX 介紹

MCNP (Monte Carlo N Particle) 為美國洛斯阿拉莫斯國家實驗室 (Los Alamos National Laboratory) 所開發之蒙地卡羅中子遷移計算程式，可以用來計算的粒子種類有中子、光子、電子及一些帶電粒子。MCNP 發展最初，只是用來當作屏蔽計算的程式，從開發出 KCODE 程式後才開始有處理臨界計算 (criticality calculation) 的功能。本文中臨界計算的部分使用版本為 MCNP5v1.51，而燃耗計算的部分則是由 MCNPX (MCNP eXtended) 負責處理，MCNPX 是 MCNP 的高能延伸版本，其幾乎可模擬追蹤所有的輻射粒子，並包含所有的能量範圍，更重要的是加入了核種燃耗的計算。

2.3.1.1 截面資料庫

中子截面資料庫可分為主截面資料庫 (master library) 及工作截面資料庫 (working library)，處理截面資料庫時須將主截面資料庫，經過問題相依 (problem dependent)、溫度相依 (temperature dependent) 的過程轉換成工作截面資料庫才有辦法讓 MCNP 讀取，MCNP 所使用的工作截面資料庫所使用的格式為 ACE (A Compact ENDF)。

2.3.1.2 臨界計算

在 MCNP5 中臨界計算的部分是由 KCODE 所負責，基本上以蒙地卡羅計算方法處理中子增殖因數時，都是以數學方法追蹤每個中子由產生至吸收或洩漏 (leakage) 的所有碰撞歷史，紀錄後再以統計方法算出增殖因數、中子通率等有興趣的參數。在 MCNP5 中計算增殖因數會分別根據中子遷移歷史中的碰撞 (collision)、吸收 (absorption)、軌跡長度 (track-length) 三種不同的加權概念計算出對應的中子增殖因數，再用統計概念計算出最後的增殖因數。

2.3.1.3 燃耗計算

MCNPX 包含了 CINDER-90 程式，可用來分析核種組成隨時間的變化。在此先說明 MCNPX 與 CINDER-90 之間執行燃耗計算時截面資料的處理，接著再解釋分析核種組成時的數學運算。

MCNPX 會先使用主截面庫進行臨界計算後，將結果轉換成 63 群中子分群能譜作為加權因數，計算出加權後的截面，進而給 CINDER-90 來進行燃耗計算。另一方面，由於 MCNPX 內僅有 390 個核種的截面資料庫，所以不足的部分即會使用前面提到的 63 群中子能譜對 CINDER-90 資料庫的截面資料，求出加權後的截面來使用。有關分析核種組成的運算，為了準確分析燃料中各核種的反應速率隨時間的變化，MCNPX 亦採用了預測-修正 (predictor-corrector) 的遞迴計算來近似燃耗過程。

2.3.2 SCALE6 程式介紹

SCALE (Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluating) 為一個模組化程式系統的總稱，此模擬程式是由美國核能管制委員會 NRC (Nuclear Regulatory Commission) 以及能源部 DOE (Department of Energy) 要求旗下之橡樹嶺國家實驗室 ORNL (Oak Ridge National Laboratory) 研發與後續的維護。SCALE6 是一個具有處理多種有關粒子遷移問題的模組，包括截面資料庫的處理、輻射屏蔽、臨界安全分析、燃耗計算、反應器物理與用過燃料處理之分析。

SCALE6 中具有多種子程式，依照功能分類大致上可以分成控制模組、計算程式、圖形介面程式三種。其中的控制模組又可以依照不同的計算目的分為以下三類：

1. 臨界分析：CSAS5、CSAS6、STARBUCS、TSUNAMI
2. 爐心物理：TRITON
3. 屏蔽計算：MAVRIC、QADS、SAS1

計算程式的種類包含了 BONAMI、NITAWL、CENTRM、PMC、ICE、WORKER、NEWT、KENOV.a、KENO-VI、ORIGEN-S、COUPLE、MONACO、XSDOSE 與 QAD-CGGP。最後圖形介面程式則包括了 Geewiz、Keno3d、OrigenARP、Chartplot、ExSITE、JavaPeno、MeshView 與 PlotOPUS。本節將會針對中子截面的處理、臨界計算、燃耗計算所使用到的模組以及程式做介紹。

2.3.2.1 截面資料庫

中子截面資料庫依照格式分類可分作 AMPX 格式的主截面資料庫 (master library) 以及工作截面資料庫 (working library)，SCALE6 中的主截面資料庫包含了兩組逐點連續資料庫 (pointwise continues library) 以及七組多群截面資料庫。逐點連續資料庫包含了 CE_V6_ENDF、CE_V7_ENDF，多群截面資料庫包含了 V5-44、V5-238、V6-238、V7-238、V6-200N47G、V7-200N47G、V7-27N19G。而不同的多群截面資料庫會因為所使用的計算程式而有所限制，例如 V5-44 以及 V5-238 這兩種截面資料庫可以給 NITAWL 使用，而 V6-238 和 V7-238 只能選用 CENTRM/PMC。

2.3.2.2 臨界計算

在使用 SCALE6 臨界計算時，需使用 CSAS (Criticality Safety Analysis Sequence) 控制模組進行分析。CSAS 控制模組的最大特點就在於能在進行臨界計算前處理共振區域的精細結構，所以若是使用的資料庫為逐點連續資料庫時，CSAS 模組將會直接進行臨界計算。反之所使用的資料庫若為多群截面資料庫時，將會根據讀取檔 (input file) 中的核種選擇，進行自我屏蔽 (Resonance Self-Shielding) 和通量權重 (Flux Weighting) 的處理，修正截面資料庫再進行臨界計算。

CSAS 以自動方式串接各需要之計算程式，同時 CSAS 依照使用者不同的需求分為各個子系列，其中包含了 CSAI、CSASIX、CSASN、CSAS1X、CSAS25、

CSAS2X、CSAS4、CSAS4X、CSAS5、CSAS6 等等。各個子系列的差別在於所串連的計算程式不同，例如 CSASN 只包含了 BONAMI 以及 NITAWL 此兩個計算程式，所以僅能得到經過共振修正後的微觀截面，而 CSAS6 除了共振截面的處理之外，最後串連了 KENO-VI 進行最後三維蒙地卡羅的臨界計算。

2.3.2.3 燃耗計算

在 SCALE6 中若要進行燃耗計算時，必須使用 TRITON (Transport Rigor Implemented with Time-dependence Operation for Neutronic depletion) 此一控制模組。TRITON 內燃耗計算之發展是為了解決過去所公布的另一種燃耗計算模組的一些缺點，並提出日益複雜的燃料組件與非晶格排列狀的爐心配置之計算需求。由於核能材料的燃耗結果預測，是與爐心的中子通率分佈和其他物理參數成高度空間相關，故 TRITON 的發展即是為了提供更嚴謹更精確的遷移模型。TRITON 內 T6-DEPL 序列的流程圖如圖 3.2 所示，首先先大略解釋流程圖內所使用到的計算程式，而後再解釋流程圖的運行概念。

首先，KMART 的功能為將 KENO-VI 所計算出的中子截面限縮成三群，供 COUPLE 使用。COUPLE 的功能則是將 KMART 的結果算出中子通率加權因子，並將截面資料庫格式轉換成二進位供 ORIGEN-S 使用。ORIGEN-S 的功能即是將 COUPLE 算出的結果求出單群截面資料庫，並計算因為燃耗而導致的核種變化。

接著是解釋 T6-DEPL 的運行概念，除了主截面資料庫不允許連續能量截面資料庫的使用外，從輸入檔到 KENO-VI 之間的概念與 CSAS6 相同，接著 KENO-VI 的結果會依個別材料逐項進入 KMART、COUPLE、ORIGEN-S 做處理，直到所有材料都處理完畢才會進入下一個時間周期 (time-step) 做計算，而下一個時間周期計算又會從 BONAMI 處理截面做為開端。重複以上的步驟直到所有時間周期都處理完畢，計算結果即會經過 OPUS 的處理寫入輸出檔，在這裡要特別提及的是，由於爐心內部各核種的含量、中子通率、混合物的截面資

料基本上都會因為所針對之燃耗的時間點而有所改變，所以 TRITON 模組中使用了預測-修正 (predictor-corrector) 此一較為嚴格的疊代過程作為燃耗計算結果的修正，目的是為了更新中子通率和截面資料。主要概念為利用前一周期的中子通率和截面資料執行燃耗計算，並預測出目前週期中時間點可能的燃料組成，再利用該組成在執行一次遷移計算，並計算出該週期中時間點的中子通率，然後利用最新的中子通率來更新截面資料，最後利用本周期起始點的組成和新截面資料去執行燃耗計算，作為該週期的修正，這就是所謂預測-修正之邏輯架構。

接下來詳細解釋 T6-TEPL 中所使用到的計算程式，因為大部分的計算程式前已提及，所以在此只介紹 KMART、COUPLE、ORIGEN-S 三種。

1. KMART (Keno Module for Activity-Reactor rate Tabulation) :

可將 KENO-VI 計算程式執行後所得到的再啟動檔案 (restart file)，對應工作截面做處理，得到核種的反應活度表，並從 KENO-VI 所得到的中子通率，用計算程式把各種核種的截面都限縮成三群。

2. COUPLE :

主要含有的功能有兩項：其一是利用 KMART 計算出的三群截面資料庫，計算出問題相依的中子通率加權因子，以供 ORIGEN-S 使用；其二是將其截面資料庫轉換成二進位的形式，同樣供給 ORIGEN-S 使用。

3. ORIGEN-S (Oak Ridge Isotope GENERation) :

ORIGEN-S 為 SCALE6 系統中，進行燃耗以及衰變分析的控制模組。目前已廣泛被使用在核能反應器之用過核燃料的燃耗、衰變熱、輻射安全度分析、儲置運輸設備和許多環境評估方面的研究。大致上可以分作兩大部分解釋 ORIGEN-S 的運算內容：第一部分 ORIGEN-S 在計算時只能使用單群的截面資料庫，所以會利用從 COUPLE 得到的中子通率加權因子，用其資料產生單群的截面資料庫作計算。第二部分為使用的 ORIGEN-S 可以根據使用者定義的燃料束設計資料，材料組成，反應器運轉條件，同時利用上述所算出的單群截面資

料庫，考慮各核種的產生及消失，可以算出隨時間變化的鈾系元素組成與含量、分裂產物的產生和衰變、衰變熱情形、以及輻射源能譜及強度等等。

ORIGEN-S 的資料庫中包含衰變資料、截面、光子及中子源資料，共有 1697 種核種資料（129 種燃料中的鈾系元素、879 種分裂產物和 689 種輕元素），以及包含了高溫氣冷反應器（HTGR）、輕水式反應器（LWR）、液金快滋生反應器（LMFBR）、熔鹽滋生反應器（MSBR）等四種反應器的截面資料。

ORIGEN-S 資料庫中所包含的截面資料分為三個中子能量範圍：其中熱中子能量範圍小於 0.5 eV，共振能量範圍在 0.5 eV~1 MeV 之間，快中子區域分布於大於 1 MeV 以上的能量範圍。每個能量範圍有個別有加權因子，熱中子區域為 THERM、共振區域為 RES、快中子區域為 FAST，這三個不同能量群加權因子亦可經由 SAS2H 控制模組中的 COUPLE 程式做修正，這三個加權因子會分別與三個能量範圍的截面組成一個有效截面。

ORIGEN-S 提供超過 160 不同類型表格的資料輸出，包括衰變、照射、非照射時間下的核種濃度及無限介質中的中子增殖因數，以及每個核種在接受中子活化期間，所產生的放射性核種及經過衰變期間後的量，其輸出單位為 gram 或是 Ci。

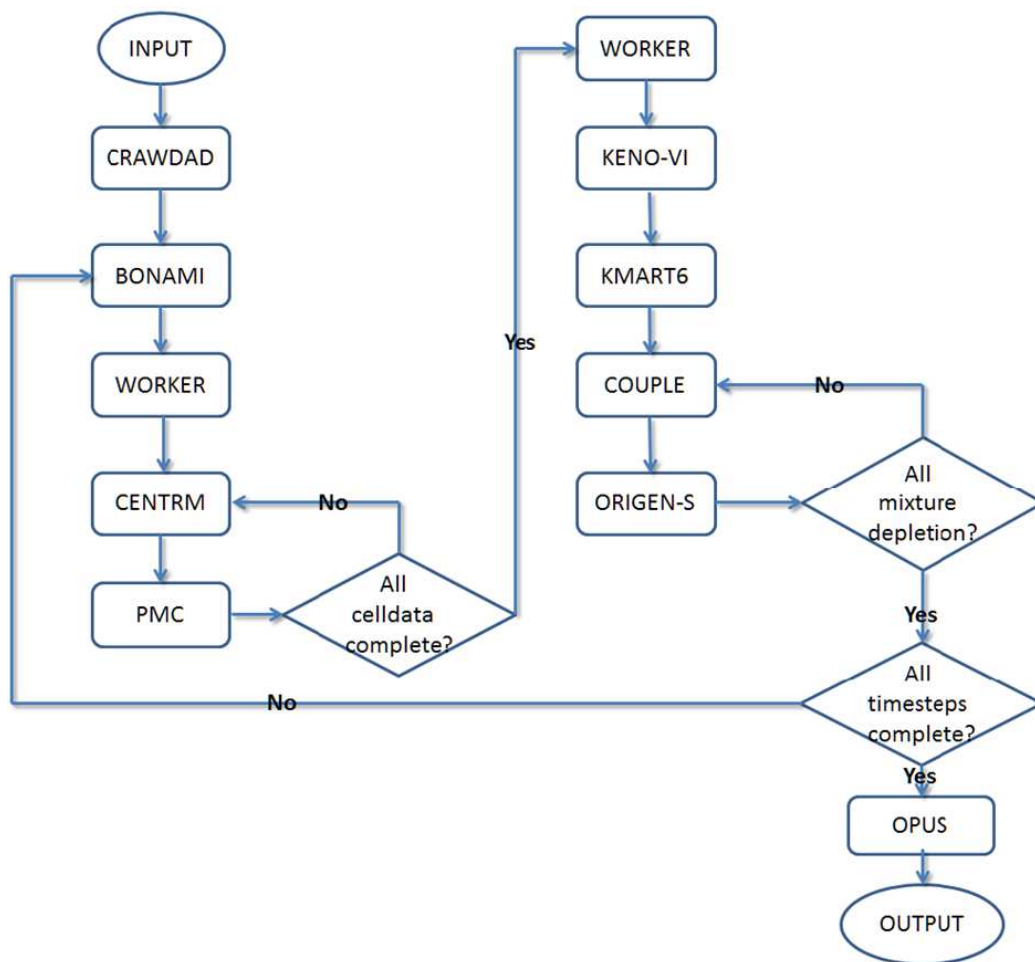


圖 2.2 T6-DEPL 控制模組流程圖

2.4 中子活化分析程式之使用情形

本計畫初步蒐集國內外相關核電廠除役圍阻體中子活化分析程式之使用情形，就所蒐集國內外相關中子活化分析程式之使用情形整理如表 2.2。

表 2.2 中子活化分析程式之使用情形整理表

	國內	美國	瑞典	日本
使用之中子活化分析程式	MCNP 系列 SCALE 系列	MCNP 系列 SCALE 系列	IndAct, FISPACT MCNP 系列	SCALE 系列 (ORIGEN)

第三章 反應器與圍阻體中子活化之取樣

技術與分析方法

中子活化廢料是指爐心周圍受中子照射過的組件，包含反應器壓力槽、爐心內組件、結構鋼及反應器壓力槽周圍的混凝土，由於這些組件及材料被中子輻射穿透過，整個體積內均被活化，而無法利用表面除污來降低其活性。如果根據美國核管會 10 CFR 61.56 之低放射性廢料分類方式，則 PWR 及 BWR 電廠若採取立即拆除之除役方式，其各種中子活化廢料之分類，可知不管是 PWR 或 BWR，大部份的中子活化廢料均可歸類為 A 或 B 類。但對於 PWR 電廠而言，頂部爐心格板及底部支柱由於含有高濃度的 Ni-63 及 Nb-94 而歸類為 C 類，底部爐心筒，熱屏蔽，底部格板，及爐心側板所含的 Ni-59、Ni-63 及 Nb-94 之濃度超出 C 類之限值而被歸類為超 C 類。並且對於 BWR 電廠而言，其控制棒及爐內儀器、噴射泵以及頂部燃料導架所含的 Ni-63 及 Nb-94，其活性在 C 類範圍內而被歸類為 C 類，爐心側板所含的 Ni-59、Ni-63 及 Nb-94 之活性則超過 C 類之最大限值，因此被歸類為超 C 類。由於這些核種之半衰期很長，即使封存 100 年後再進行拆廠，其所含的活性仍不可能顯著衰減，仍可能維持在大於 C 類或 C 類之狀態。

核能電廠另外之污染源尚有兩種：第一種是腐蝕性產物，細微的金屬粒子從反應器冷卻、冷凝、及飼水系統的管路內壁剝落，然後流經爐心受中子照射後變成具有放射性，這些活化後的腐蝕產物將散布到和反應器冷卻系統連接的所有系統，腐蝕產物在管路中積存的數量視冷卻系統液體的流速、溫度及系統的幾何形狀等因素而定，如果這些系統有滲漏的話，則污染可能散布到地板、洩水坑及泥土等。第二種可能的污染源為燃料破損而造成少量的分裂產物外釋到反應器冷卻系統，然後再流到其他相關系統，並可能由於管路滲漏而污染地

板、牆面、洩水坑及土壤等。核能電廠除役其污染性廢料幾乎包括圍阻體、燃料廠房、輔助廠房、廢料廠房及控制廠房之所有管件及設備，以及這些建築物表面，據美國核管會之估計，爲了除污，這些建築物表面必須敲掉約 50 厘米深。

除役拆廠廢棄物，特定指明為被中子活化的反應器組件及受污染之廠房，除役核能電廠進行中子活化研究分析，是為了評估中子活化廢料總量和除役費用；並且提供數據，以利放射性廢棄物處理、貯存的設施場所許可證申請及其施工。資深的經驗和精益求精的取樣技術與分析方法，可提高中子活化研究分析計算的精確度，最後介紹除役例行工作的程序，若是中子活化研究分析計算的精確度夠高，取樣技術與分析方法亦有絕佳的靈敏度，則除役例行工作的廢料總量和費用將可大幅度降低。

3.1 感應耦合電漿質譜分析儀

在元素分析的領域裡，感應耦合電漿質譜分析儀（inductively coupled plasma-mass spectrometer, ICP-MS）是較常使用的方法之一，它結合了 ICP 將樣品原子化與游離化的特性，與質譜儀的高靈敏度和分析同位素比的能力，是一種分析能力相當強的元素及同位素分析技術。對於金屬元素和一些非金屬元素的含量測定上，具有很高的靈敏度和能力，偵測極限可低達 0.01ppb。其過程為溶液樣品通入 ICP-MS，經過溫度高達 9000-10000K 的電漿，被氣化、原子化而致游離形成離子，再經由質譜分析儀來分析，在進行樣品分析時，必須先把固態的混凝土樣品溶解成液態試樣。溶解步驟如下：

把 100mg 的混凝土樣品加入由 2ml 硝酸、2ml 鹽酸及 1ml 氫氟酸混合而成的溶液中，充分攪拌後放入溫度為 180°C 的微波爐中 1 小時，便可得到量測所需的液態試樣，此時再將試液導入 ICP-MS，經由儀器分析而得到結果。

雖然 ICP-MS 具有絕佳的靈敏度，在分析樣品時可以達到相當低的偵測極限，而且可以迅速地由溶液樣品中測得同位素比，不過在使用上，還是受到質量重疊干擾（或稱光譜干擾）的限制。質量重疊干擾是因為分析樣品的同位素

和儀器本身中的共存元素之同位素，具有相同的質荷比，相互重疊而造成的。

在 ICP-MS 中，造成分析上困擾的同質量光譜干擾之背景離子，主要來自 ICP-MS 本身的 Ar 離子，以及溶解時所用的無機酸在電漿中生成的離子，因其量多且難以除去，必須以其他質量數的同位素來進行元素含量的測定（如 O_2^+ 和 $^{32}S^+$ 重疊，必須測 $^{34}S^+$ ），以致於對於 S、P 等元素的偵測，造成很大的限制。

3.2 元素分析儀

元素分析儀 (elemental analyzer, EA) 主要是提供來做有機化合物中 C、H、N、S、O 含量的定量分析。對於 C、H、N 的測定，此儀器分析方法是利用垂直式燃燒管，將欲分析之物質盛於錫金屬容器內，置於樣品自動供給器上，利用重力原理，定期投入 1150°C 左右高溫燃燒管中，在錫之助燃下使樣品燃燒溫度高達 1800°C ，促使樣品完全燃燒，再經過銅還原處理，生成之 CO_2 、 H_2O 、 N_2 混合物經過特殊之分離管分離後，可利用熱傳導偵檢器 (TCD) 分別測定其含量，再經資料處理機運算，即可自動列計 C、H、N 之重量百分比。

至於 O、S 之定量分析則利用石墨與待測物混合，在 1100°C 左右將氧完全轉換生成 CO、S 或 SO_2 ，再利用熱傳導偵檢器 (TCD) 測定 CO、S 或 SO_2 之濃度，以測量 O 及 S 之重量百分比。

3.3 分析實驗最佳化條件

一般來說，進行加馬能譜測量，最適當的活度為 $1\mu\text{Ci}$ 左右，活度過高可能會使 HPGe 無感時間過長，活度過低則需要較長時間的計數。在使用中子活化分析來做混凝土屏蔽微量元素測量時，對於未知組成元素及含量的混凝土樣品，到底要照射多長的時間才能使微量元素活化後有足夠的活度而能被偵測到，冷卻時間要多久才不會造成測量時的無感時間過長，若以嘗試錯誤 (try and error) 的方式來進行實驗，將會耗費很久的時間，甚至不一定能達到預期的效果，這樣只會是個事倍功半的作法。

ORIGEN-S 程式剛好可以幫忙解決這個令人困擾的問題，給定混凝土樣品的組成元素及含量、照射時的中子通率及各元素的作用截面，接下來只要輸入照射時間及冷卻時間，便可以計算出混凝土樣品經中子束照射後會產生哪些放射性核種，以及這些放射性核種個別活度隨冷卻時間之變化。因此，在進行中子活化分析實驗前，可以先利用 ORIGEN-S 程式算出合適的照射時間及冷卻時間，以利協助安排實驗最佳化條件，並以實驗最佳化條件進行中子活化分析測量，這樣安排就可以省卻嘗試錯誤的時間。

3.3.1 混凝土材料

由於微量元素是決定混凝土是否成為放射性廢棄物的重要因素，測量核能電廠混凝土中的微量元素便成為關鍵技術，本報告從目前仍在建設中的核四廠，取得用於反應器屏蔽牆和乾井牆之未活化過的混凝土，分析其初始微量元素之含量，以作為將來使用中子活化分析進行混凝土測量實驗的參考對象。

由文獻得知典型混凝土的組成，分成 (NBS03) 與 (NBS04) 兩種一般型混凝土，主要差別在於矽與鈣的含量，(NBS03) 是以鈣為主的混凝土，而 (NBS04) 則是以矽為主的混凝土。

混凝土是國內營建工程中最主要的施工材料，新建的建築物幾乎都採用鋼筋混凝土作為施工的主要方法，混凝土可說是國內最常見的建築材料之一，普通的混凝土，是以水泥、水和骨材三種原材料，依照不同的比例混合所成，而特殊的混凝土則會在此三種原材料之外，另外添加化學摻料或礦物摻料。

依據建築物不同位置所採用的混凝土，其抗壓強度與耐久性的要求皆不同，而針對不同的抗壓強度與耐久性，各種混凝土也有不同的配比。本實驗中使用的混凝土樣品為普通混凝土，係僅由水泥、水和骨材三種原材料所構成，其中骨材即為細沙或碎石。所取得的混凝土樣品，分為反應器屏蔽牆 (Reactor Shielding wall) 及乾井牆 (Drywell wall) 兩種類型，由於建築位置的不同，所需的物理標準 (抗壓、抗震、持久度...等等) 也不相同，為了達到此一標準，

這兩類混凝土中的水泥、水和骨材的混合比例也不相同。

3.3.2 估算混凝土中微量元素含量

在輸入混凝土重量為 1g，微量元素 Co、Cs 和 Eu 各為 10ppm，THOR 照射功率為 1.2MW，垂直照射管（VT-5）的熱中子通率為 $2.032 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ，照射時間為 5 小時，反應器屏蔽牆混凝土及乾井牆混凝土的冷卻時間分別為 69 天與 70 天，量測時間各為 1 天，以及 SCALE5.1 程式集中的作用截面資料庫，由 ORIGEN-S 程式計算出反應器屏蔽牆混凝土及乾井牆混凝土進行活化實驗時，微量元素受到活化後的活度，結果列於表 3.1、表 3.2，表中亦列出中子活化分析的測量結果。

表 3.1 屏蔽牆混凝土樣品中微量元素含量

放射性核種	母核	母核初始濃度 (ppm)	比活度 (Ci/g)		修正後之母核濃度 (ppm)
			計算值	測量值	
Co-60	Co-59	10	1.21E-08	7.09E-09	5.879
Cs-134	Cs-133	10	1.26E-08	4.25E-09	3.38
Eu-152	Eu-151	10	1.13E-07	8.06E-09	0.713

表 3.2 乾井牆混凝土樣品中微量元素含量

放射性核種	母核	母核初始濃度 (ppm)	比活度 (Ci/g)		修正後之母核濃度 (ppm)
			計算值	測量值	
Co-60	Co-59	10	1.21E-08	6.59E-09	5.463
Cs-134	Cs-133	10	1.26E-08	4.17E-09	3.32
Eu-152	Eu-151	10	1.16E-07	8.38E-09	0.721

其中 Co-60 的比活度是取 1332.72keV 和 1173.36keV 兩個能峰活度的平均值，減去 Co-60 的背景平均值得到的結果，Cs-134 的活度是取 604.28keV 和 795.28keV 兩個能峰活度的平均值，而 Eu-152 的活度則是取 344keV、1408.38keV 及 778.9keV 三個能峰活度的平均值。

3.3.3 核四廠混凝土中各組成元素及含量

核四廠混凝土樣品中微量元素的含量，已經由中子活化分析配合 ORIGIN-S 模擬計算得到，但混凝土樣品裡的主要組成元素，經過中子束照射後所產生的活化產物，其半衰期大都很短，很難用中子活化分析的方法來決定這些元素的含量。因此利用 ICP-MS 測量核四廠混凝土樣品中微量元素的含量，不過測量時必須加酸來溶解混凝土樣品，因為多了這些添加物，所以很難去測定混凝土樣品中 H、C 和 O 的含量。然而，對於中子屏蔽的貢獻來說，混凝土中 H 的含量扮演著一個重要的角色，因此，委託中興大學貴重儀器中心使用 EA 測量核四廠混凝土樣品中 H、C 和 O 的含量，利用 ICP-MS、EA 測量的到的結果如表 3.3、表 3.4。

表 3.3 ICP-MS 測定核四廠混凝土主要組成元素及其含量表

元素	反應器屏蔽牆		乾井牆	
	重量百分比	誤差 (%)	重量百分比	誤差 (%)
Na	0.41	1.25	0.46	0.88
Mg	0.42	1.39	0.37	1.11
Al	3.43	1.63	3.46	1.12
Si	22.06	0.79	29.65	0.66
S	0.08	1.58	0.15	1.62
K	0.92	1.24	1.27	0.77
Ca	8.83	1.28	4.63	3.18
Mn	0.03	1.43	0.04	1.31
Fe	2.1	1.29	1.89	1.29

表 3.4 EA 測定核四廠混凝土樣品中 H、C、O 含量表

元素	反應器屏蔽牆		乾井牆	
	重量百分比	誤差 (%)	重量百分比	誤差 (%)
H	1.08	0.1488	0.65	0.149
C	2.8	0.0703	1.18	0.0703
O	10.34	0.2679	4.72	0.2672

3.3.4 運轉中核能電廠放射性核種評估

核一廠、核三廠的混凝土屏蔽牆，在電廠的運轉下受到活化產生放射性核種，本實驗利用偵檢器測量受到活化之核一廠、核三廠混凝土屏蔽牆中含有的放射性核種及個別活度，除互相比較外，也可與核四廠未受活化之混凝土進行中子照射後的測量結果比對。核一廠混凝土樣品，其取樣位置為生物屏蔽牆層內牆；核三廠混凝土樣品，其取樣位置為生物屏蔽牆層外牆。

核一廠、核三廠混凝土樣品測量的結果，都有量到微量元素，其中核一廠生物屏蔽牆混凝土中之殘餘活度主要來自 Co-60，而核三廠生物屏蔽牆混凝土中之殘餘活度主要來自 Co-60、Cs-134 及 Eu-152。核一廠混凝土中 Co-60 的比活度，約為核三廠混凝土中 Co-60 比活度的 1.6 倍，但在核一廠混凝土樣品的測量結果中沒有看到 Cs-134 和 Eu-152，可能是核一廠混凝土中 Cs 和 Eu 含量較少之故。此外，也可從測量結果得知，在核能電廠的混凝土屏蔽牆中，其殘餘活度的貢獻幾乎來自於 Co、Cs 和 Eu 這些長半衰期的微量元素。

根據行政院原子能委員會放射性物料管理局發布實施之「一定活度或比活度以下放射性廢棄物管理辦法」，其中 Co-60、Cs-134 及 Eu-152 的外釋比活度限值均為 0.1Bq/g。由測量的結果得知，核一廠、核三廠生物屏蔽牆混凝土中之殘餘活度均大於外釋比活度限值，必須歸作放射性廢棄物處理。

將核一廠、核三廠混凝土樣品的測量結果，與核四廠未受活化之混凝土樣品進行中子活化分析的測量結果比較，核四廠混凝土活化樣品測量出的 Fe-59（半衰期 $T_{1/2}=45.104d$ ），在核一廠、核三廠混凝土樣品的測量結果中沒有出現，這是因為 Fe-59 半衰期短，核一廠和核三廠混凝土雖已照射超過 20 年，每年照射產生的 Fe-59 活度很小，而一年以前照射產生的 Fe-59 活度均已衰變殆盡，因此並未量到。

而核四廠混凝土活化樣品測量結果中出現的 Mn-54（半衰期 $T_{1/2}=312.153d$ ），是混凝土樣品在 THOR 的垂直照射管中照射時，受到快中子活

化所造成，在核一廠、核三廠混凝土樣品的測量結果中沒有看到，是因為反應器屏蔽牆距離爐心的位置較遠，大部分的快中子經過水中的 H 減速，快中子的量變得很小，所以幾乎測量不到。

3.4 核能電廠除役反應器內部分割及圍阻體拆除的技術概況

核能電廠除役反應器壓力槽內部組件的分割是非常具有挑戰性的，從人員的風險、成本和進度等各方面，都需要精心策劃和準備。蒸汽產生器和壓力槽那樣大組件的運輸，由於有限的處置和運輸選項，會出現獨特的挑戰。

核能電廠許多廠房拆除過程中，會迅速產生非常大量的放射性廢棄物，廢棄物包裝和運輸技術需要考慮到這個因素，以避免除役時空間使用的問題。核能電廠除役時，大部分的結構及設備都將被拆除，在整個核能電廠的建築中，使用了數以百噸計的混凝土，當除役工作開始進行，大量的混凝土將成為廢棄物，由於混凝土廢棄物的數量相當龐大，如何處理混凝土廢棄物，是一項值得重視的工作，大部分不具有放射性的混凝土，可以一般廢棄物掩埋處理或回收。

低放廢棄物核種活度庫存清單的精進資訊將減少不確定性，不確定性降低可以簡化安全分析報告，以及簡化處置場所的設計和認證申照。優化篩選，將不重要的核種整理出來，是電廠成本顯著的價值，可節省浪費。下列介紹除役例行工作的程序，若是中子活化研究分析計算的精確度夠高，取樣技術與分析方法有絕佳的靈敏度，則除役例行工作的廢料總量和費用將可大幅度降低。

3.4.1 美國 Connecticut Yankee 除役例行工作的程序

Connecticut Yankee (CY) 除役經驗報告指出：反應器壓力槽的內部組件屬於超 C 類廢棄物(Greater-than-Class-C, GTCC)，由於乾式貯存設施(Interim Spent Fuel Storage Installation, ISFSI) 要求，每個包件的輻射量不得超過 50,000Ci，導

致需要切割大約 750,000Ci 的反應器壓力槽內部組件，切割過程使用磨料水刀 (abrasive water jet)，將超 C 類廢棄物部分切割成適合尺寸，放入燃料組件尺寸的金屬密封鋼筒中，金屬密封鋼筒裝配成混凝土護箱後送到乾式貯存設施。圖 3.1 至圖 3.5 分別顯示了 Connecticut Yankee 電廠除役前至除役完廠址外觀鳥瞰照片。

切割操作的執行期間，採取許多減少暴露的措施包括：

- 一. 在駕駛台上增加屏蔽。
- 二. 頻繁地使用高壓清洗。
- 三. 增加組件的屏蔽。
- 四. 建立低劑量的等候區。

另一方面，整體過程包括：

一. 大部份的切割是使用磨料水刀，以石榴石 (garnet) 作為研磨介質，金屬解體加工是用來移除較低的爐心支撐板的螺栓，以及較高內部組件的螺栓。

二. 多數的切割工作是在特別設計的切割台上進行，唯一的例外是切割爐心支撐筒上半部，需建構一個特別設計的支撐架，使爐心筒從反應器壓力槽的法蘭支撐，如此可使整個爐心筒保持在水下進行水平切割，然後將切下來的部分移往切割台做進一步切割。

三. 碎片收集和過濾系統用來捕捉切割碎片和保持水質透明度，水下過濾系統包括：旋流分離器、可逆洗過濾器、離子交換容器及碎片收集容器。

四. 壓力槽內部組件的切割設備在現場部署前的測試，是一種有限的整合測試，這是因為只有一個相對較小的淺池可供使用，因此所有的切割設備無法同時進行測試。

五. 壓力槽內部組件的切割被證明是一個極具挑戰性的工程，整個專案大約 29 個月完成，總輻射暴露約 205person-rem (2.05person-Sv)，時間和劑量皆超過原先的估計。

六. 最嚴重的問題發生在切割組件的磨料水刀設備及過濾設備。

七. 切割計畫的主要統計量：

1. 800 英尺（549 米）的金屬切割。
2. 產生的 600 塊切割件，裝到 64 個金屬密封鋼筒。
3. 燃料組件尺寸的金屬密封鋼筒，裝入垂直的混凝土護箱，並送到乾式貯存設施。
4. 產生約 650 立方英尺（18.4 立方米）的切割碎片。
5. 產生約 600 立方英尺（17 立方米）過濾器 and 樹脂廢棄物。

八. 磨料水刀這項切削技術 CY 的應用並未完全成熟，造成故障及延誤的原因有：

1. 磨損和切斷的碎屑堵塞輸送軟管。
2. 金屬塊切割尺寸失敗而須重新切割。
3. 最初選用的磨料並非最佳的尺寸。
4. 切割噴嘴更換頻繁。

上述種種因素導致切割花費更長的時間，及產生大量的碎片（磨料和金屬屑片）需要處理及清除。

九. 過濾系統用於收集切割生成的碎片，並保持水質透明度。所遇到的問題包括：

1. 捕捉速度和擺放位置不適當，過濾速度跟不上碎片的產生速度。
2. 過濾器套件管路的堵塞，將導致進一步減少過濾和降低運作效率。
3. 過濾器套件放置在水下，可減少人員劑量，但維護和設備更換非常困難。部分組件不允許遠端更換（例如泵），需要將過濾器套件升高至池面上進行維護修理，將會造成人員的高暴露。
4. 上述狀況使得流率降低，造成軟管阻塞，將進一步使計畫延宕，且無數軟管被遺棄在水池中，切割後的清理時間隨之延長。
5. 無效的過濾系統導致反應器壓力槽內水質清晰度不佳，且材料沈積在切割遮幕和反應器壓力槽牆面上，使得輻射劑量增加。

十. 當原本的過濾設備無法有效的運作時，需加入額外的可移動式模組化的過濾設備，以收集爐穴內外的切割碎片及維護池水清晰。

十一. 因為切割費時及產生二次廢料，切割策略將是盡可能得減少切割。CY 切割超 C 類廢棄物材料，將它們放入比較小的金屬密封鋼筒，並將金屬密封鋼筒裝配成混凝土護箱。但 MaineYankee 電廠是將超 C 類廢棄物材料切成較大的切片，直接放入儲存容器中，使用這種方法的切割次數較少，產生的切割碎片也較少，使得成本降低，搬運問題也會減少。

十二. 評估設備可靠性及維護便利性，這些評估應包含碎片收集系統和切割系統。

十三. 在設備被運送到現場之前進行一次整合性試驗，確保操作可令人滿意，這全尺度實體模型可測試對設備的“錯誤” (bugs)，在現場設備被污染之前發現的“錯誤”是比較容易處理的。

十四. 要切割準確，則切割主軸的剛度和穩定性是非常重要的。

十五. 將核廢料部門和復原計畫納入整個計劃中。

十六. 在切割操作期間保持反應器壓力槽清潔。

反應器壓力槽另外有整體移除處置的方式，美國波特蘭通用電力公司 Trojan 核能電廠在完全未分割反應器壓力槽內部組件情況下，於 1999 年 8 月將反應器壓力槽連同內部組件經哥倫比亞河運至 Richland 低放射性廢棄物處置場處置。此作法使 Trojan 核能電廠避免須將超 C 類廢棄物貯存於乾式貯存設施問題，同時亦節省經費 2,500 萬美元；Big Rock Point 核能電廠亦採用相同方法。超 C 類廢棄物屬於低放射性廢棄物，可貯存在低放射性廢棄物貯存場，為增加超 C 類廢棄物貯存選擇性，10 CFR 72 允許超 C 類廢棄物貯存於乾式貯存系統中。



圖 3.1 除役前 Connecticut Yankee 電廠的外觀鳥瞰照片



圖 3.2 除役前 Connecticut Yankee 電廠的外觀近距離照片



圖 3.3 開始拆除圍阻體 2006 年電廠的外觀照片



圖 3.4 除役完 2007 年電廠的外觀鳥瞰照片



圖 3.5 除役完 2007 年至現今的廠址全景圖



Grant Machine Structural Assembly

圖 3.6 Grant Machine 的遙控機械手臂

圖 3.6 顯示切割操作的執行期間，使用了一台稱為 Grant Machine 的遙控機械手臂，此裝置原本打算用於處理包圍反應器的絕緣物，該機械手臂從反應器壓力槽中取出設備、軟管和吸取切割碎片被證明是非常有用。圖 3.7 至圖 3.10 分別顯示了反應器壓力槽的移除直到最終運至 Barnwell 的照片，圖 3.11 至圖 3.16 分別顯示了蒸汽產生器下部組件移動到乾式貯存設施的照片。



圖 3.7 反應器壓力槽的移除



圖 3.8 反應器壓力槽的裝運



圖 3.9 反應器壓力槽運用駁船沿 Savannah River 運至 Barnwell



圖 3.10 反應器壓力槽最終運至 Barnwell



圖 3.11 蒸汽產生器下部組件底端



圖 3.12 移動蒸汽產生器下部組件出廠房



圖 3.13 安裝蒸汽產生器下部組件置拖車上



圖 3.14 移動蒸汽產生器下部組件到駁船



圖 3.15 蒸汽產生器下部組件從南卡羅萊納海岸鐵路運輸到 Barnwell



圖 3.16 移動蒸汽產生器下部組件到乾式貯存設施

CY 圍阻體的尺寸：

高 170 英尺 (51.8 米)，直徑 140 英尺 (42.7 米)，壁厚 4.5 英尺 (1.4 米)，圓頂厚度 2.5 英尺 (0.8 米)。

CY 圍阻體拆除使用專門的挖掘機裝有撞擊鎚和剪切器。順序如下：

1. 從內部內襯被錘鬆，從結構上剝離。
2. 移除下降 10 英尺 (3 米) 的混凝土圓柱，混凝土是使用挖掘機耙除，暴露的鋼筋被剪切，3 個大約 6 英尺 (1.8 米) 寬的腳支柱被留下。
3. 使用裝有撞擊鎚的挖掘機，剩下的腳支柱在 2006 年 4 月 19 日被從結構外邊除去，結構下降 10 英尺的距離。
4. 在第一次下降之後碎裂的材料被移除，並重複此過程。
5. 一旦建築物的圓頂部分降低到一個水平，所有結構都可被裝有撞擊鎚的挖掘機觸及時，圓頂被拆除。(圍阻體拆除花費大約 3 個月完成，2-10 個小時制工作班次)。圖 3.17 至圖 3.21 分別顯示了拆除圍阻體各種過程的照片。



圖 3.17 液壓撞擊鉗移除腳支柱



圖 3.18 使用挖掘機耙除混凝土



圖 3.19 剪切暴露的鋼筋



圖 3.20 圍阻體結構下降 10 英尺的距離



圖 3.21 圍阻體圓頂被拆除

除役工程約產生 1.59 億公斤 (159million Kg) 廢棄物，導致其包裝、運輸和處理的數量，是佔總除役成本很大百分比的一項工作。

1. 用於廢棄物裝運的包件大小會影響除役的效率，CY 利用將廠房拆除的碎片搬到大型運輸業的暫存區，並將材料包裝成實際的最大包件 (40000 磅/件)。

2. 低階廢棄物的運輸經過轉運 (主要是來自圍阻體內襯外側的混凝土，只含有微量的放射性)：

最初 CY→卡車運輸→Alaron facility (賓州) →鐵路運輸→Energy Solutions (4170 公里)

替代 CY→卡車運輸→Worcester (馬薩諸塞) →鐵路運輸→Energy Solutions

3. 從圍阻體混凝土分離的鋼筋被轉運經過 New Haven。

4. 由於混凝土碎片的數量很多，大多數廢棄物的放射性的濃度非常低，選擇有處理資格的設施，例如靠近 Memphis 和 Oak Ridge 田納西州的控制填埋地 (landfill)。選擇這個處置方案，透過縮短運輸距離降低處置成本。

5. 廢棄物的物理形式，極大地影響處置成本，某些處置設施降低成本，出售可以用於回填的廢棄物材料，CY 混凝土的碎片減小尺寸和鋼筋免費，以便獲得較低的處置成本。

3.5 除役除污

除污是利用清洗、加熱、化學或電化學作用、機械清洗或其他方法自設施或設備區域或表面將污染移除。於除役計畫，除污的目的如下所示：

1. 降低輻射曝露；
2. 挽救設備與物質；
3. 減少需貯存與在有執照處置場處置的物質體積；
4. 恢復廠址與設施部分使用或者至無條件使用狀況；
5. 移除鬆散污染物與固定殘留污染於準備保護貯存或永久處置的地方；
6. 降低殘留放射性的源項大小於保護貯存模式以確保民眾健康與安全，

減少保護貯存期間或最小化長期監測與監管要求。

在選擇除污技術之前，必須進行其有效性及減少總曝露可能性評估，安全相關系統及結構必須評估其與除污溶液相容性，所採用除污程序必須確保不會變成無效性，評估時所包括項目如下所示：

1. 可能包含輻射劑量。
2. 欲達到除污因素。
3. 在期望費用下執行除污之輻射效益與廢棄物管理效益比較之成本與效益分析。
4. 對有興趣組件達到目標除污因素現有技術可能性。
5. 目標除污因素達到之量測能力示範。
6. 對工作人員與環境可能衝擊評估。
7. 除污產生一次與二次廢棄物評估，包括其處理體積、天然性及活度。

維護除污操作與除役除污操作不能混為一談，除役除污可採用更具破壞性技術，對組件破壞不是很重要，然而維護除污則不能採用會造成組件損壞的技術。選擇除污技術時須考量因素包括安全性、效率、成本效益、廢棄物處理及應用可行性。

除役除污技術可分為解體前除污、解體後除污及建物除污。解體前除污之目的是降低職業曝露。解體後除污之目的為污染金屬循環及減少放射性廢棄物體積。建物混凝土除污之目的為無條件釋出及減少放射性混凝土廢棄物體積，主要是針對混凝土表面。

美國 Yankee Rowe 核能電廠除役規劃在 1995 年費用預估時，假設蒸汽容器混凝土表面污染只有 25% 且其深度只有 1/4 吋，其他表面可用擦拭清潔。由於混凝土輻射污染比預期嚴重，蒸汽容器混凝土表面 100% 污染且深度為 1/4 吋，25% 混凝土表面污染深度達 4 吋，此範圍改變估算影響約為 2,310 萬美元。

在解體工程準備期間，以再循環系統、反應器冷卻淨化系統、餘熱移除系統及反應器壓力槽為對象，實施系統除污。在系統除污相關的安全確保對策方

面，應採取設施內外放射性物質的洩漏與擴散防止對策、曝露降低對策等，除污方法應有效運用在反應器運轉中的定期檢查，作為曝露降低對策的經驗與實際成果，並應用化學性除污法或符合需要的機械性除污法。

解體工程準備期間所產生的放射性廢棄物（氣體、液體及固體）與運轉中相同，應視廢棄物的種類、性質等，進行適當的處理。反應器區域設備解體拆除期間之後所產生的放射性廢棄物（氣體、液體及固體），應在反應器區域設備著手解體拆除之前，制定處理的方法。放射性固體廢棄物應依輻射等級及性質區分及處理，並在除役結束前進行廢棄，且應於反應器區域設備著手進行解體拆除之前確定棄置場所。不需以放射性物質處理的物質應盡可能再生利用，非放射性的廢棄物應盡可能再生利用，或以產業廢棄物進行適當的廢棄處理。

第四章 國際間圍阻體中子活化分析程式 之驗證 (V&V) 情形

前列章節中提到國內核一廠、核三廠的混凝土屏蔽牆，因在電廠的運轉下受到中子活化產生放射性核種，利用偵檢器可量測混凝土中含有的放射性核種及個別活度，除互相比較外，也與核四廠未受活化之混凝土進行中子照射後的測量結果比對。核四廠未受活化之混凝土，使用中子活化分析程式，計算出反應器屏蔽牆混凝土及乾井牆混凝土的放射性核種及個別比活度，同時進行活化實驗，比對微量元素受到活化後的活度測量結果，可初步驗證此中子活化分析程式，將來可進一步在核一廠運轉結束除役時，繼續使用此中子活化分析程式執行放射性核種活度預先分析評估的任務。下列再舉出國際間已經或計劃將在除役活度清單數據庫的評估中，中子活化項目驗證的一些例子。

4.1 瑞典 Ringhals - 3 號機蒸汽產生器

從 Ringhals 壓水式反應器移除的蒸汽產生器已運到 Studsvik 處理，從 R-3 蒸汽產生器中產生的廢棄物和金屬錠所得的活度，總結在下面的表格中。一些特殊的測量方式是在 Studsvik 進行，如量測核種 Ni-63；三個廢料樣品為分析 C-14 被送往隆德大學，所使用的相同方法用於測定離子交換樹脂的 C-14。

在廢棄物中的 Co-60，其活度相對於從廠內伽瑪掃描評估活度清單數據庫更高，這種差異很可能是由於伽瑪掃描時，評估的幾何形狀複雜，特別在當蒸汽產生器是從外部的鉻鎳鐵合金管中測量的活度。

實測 Ni-63/Co-60 比值約 0.1，是與早期評估成線性相關；然而，所檢測到 C-14 的活度，則沒有在先前早期的評估中考慮到，C-14 檢測的量對應於一年反應器中冷卻水的產量，大約 0.24% 左右，這些量測值目前正在進一步評估中。

表 4.1 Studsvik 從 R-3 中蒸汽產生器產生的廢棄物所得的活度

	Bq, 1995-06-01			
Nuclide	Blasting	Melt	Other	Total
Co-60	2.27E+12	2.20E+11	1.07E+12	3.56E+12
Ni-63	2.23E+11	2.16E+10	1.05E+11	3.50E+11
Ni-63/Co-60				9.83E-02
C-14	5.68E+08	5.51 E+07	2.77E+08	9.00E+08
C-14/Co-60				2.53E-04

4.2 Barsebäck 的 1 號機和 2 號機除污淨化

執行完三個大型一次側迴路表面的除污淨化行動，被移除的活度等除役的重要數據已經仔細研究記錄，難測核種如 Ni-59，也已經確定其活度，這對用於計算模型的驗證非常有價值。此外，從系統表面中移除銅系元素的測量，該是和電廠燃料故障破裂的歷史相關：B-1 幾乎從無故障破裂的燃料，而 B-2 在 1992 年有故障破裂的燃料，造成約釋放 10 克鈾。對應於約 1 克鈾經過約 10 年運轉，在系統表面易被發現存在銅系元素，意即併入在系統中的銅系元素氧化物，是需考慮有一個漫長的記憶效應。

4.2.1 B-1 電廠生物屏蔽和反應爐壓力槽保溫隔熱體的活度

另一個進行驗證的例子是在 B-1 電廠的生物屏蔽和反應爐壓力槽保溫隔熱體，執行採樣和活度的測量，其相比於下表測得的數據。表 4.2 量測值顯示出：早期評估時計算出的值具有略高的水平，即在早期評估時保持一定程度的保守度，這些測量值將用在反應器內部組件、壓力容器和生物屏蔽的中子活化程式精進模式的驗證。

表 4.2 反應爐壓力槽保溫隔熱體和生物屏蔽的活度計算值及測量值

<i>Nuclide</i>	<i>Caposil[Bq/kg]</i>		<i>Al sheet [Bq/kg]</i>	
	<i>Calculated</i>	<i>Measured</i>	<i>Calculated</i>	<i>Measured</i>
Co-60	3.3E5	2.4E5	8.4E4	6.3E4
Cs-134	1.4E5	4.2E4		
Mn-54	5.6E5	5.2E5	3.2E4	2.0E4
Zn-65			1.6E5	6.3E4

<i>Nuclide</i>	<i>Concrete[Bq/kg]</i>		<i>Reinforcement[Bq/kg]</i>	
	<i>Calculated</i>	<i>Measured</i>	<i>Calculated</i>	<i>Measured</i>
Co-60	7.6E5	3.0E5	2.7E7	6.2E6
Mn-54			1.3E7	5.3E6
Cs-134	9.0E4	5.5E4		
Eu-152	1.8E6	1.3E6		
Eu-154	1.6E5	1.2E5		

4.3 Forsmark 沸水式反應器渦輪汽機組件

在 2004~2006 年，Forsmark 沸水式反應器（F-1、F-2 和 F-3）除去總計約 1300 噸的渦輪汽機組件，然後發送到 Studsvik 處理，Co-60 和 Cs-137 不同類別的重量和活度摘要顯示在下面的表中。該材料約 95% 是可歸類為清潔廢棄物的，其中 71% 直接歸類為清潔廢棄物，另外剩餘的 24% 需要經過一些額外的衰變過程，最後剩餘的 5% 廢棄物則需要被妥善安排處置。

總 Co-60 的活度 16 億貝克，是與電廠評估數據成線性相關，然而，所測得總 Cs-137 活度 0.7 億貝克，是比評估數據較高。在這種情況下，Cs-137 的來源預計是從短半衰期 Xe-137（半衰期= 3.8 分鐘），這主要是來自於核心漂流鈾衰變而來。

表 4.3 在 Studsvik 接受處理渦輪汽機組件的重量和活度

	Weight, kg	Activity, Bq		Bq/kg
		Co-60	Cs-137	Co-60
Exempted¹	940234	4.3E+08		4.6E+02
Ingots²	315745	8.6E+08		2.7E+03
Waste³	64290	3.0E+08	9.3E+07	4.7E+03
Total	1320269	1.6E+09	9.3E+07	1.2E+03

1 豁免金屬錠（限 Co-60<1000 貝克/千克）Exempted ingots（limit Co-60<1000 Bq/kg）

2 金屬錠經過一些衰變過程後獲豁免 Ingots to be exempted after some decay

3 廢棄物處理 Process waste

第五章 圍阻體中子活化評估結果審查技

術之結論與建議

本計畫之性質較偏重在圍阻體中子活化評估的項目，主要藉以回饋為「核子反應器設施除役計畫審查導則」第四章內的審查重點，建立及累積除役技術與實務經驗，有利於後續核設施除役規劃與執行，傳承在除污/除役工作上的技術能力，增進除役作業與後端營運之安全性。相關之資訊可提供老舊不適用核設施拆除重整，及拆除廢棄物處理計畫，未來也可作為其他類似設施拆除或建造工程參考。中子活化分析程式之使用，主要目的是提出分析評估結果，使整個除役工作能避免進行任何不具效益的作業。輻射特性調查、中子活化評估、輻射劑量推估、除役電廠污染或活化之程度及範圍的評估，皆是中子活化分析程式可貢獻之處。在進行驗證的過程中，明瞭對於任何類型的驗證程序，最基要的關鍵參數是熟知條件及品質保證；對理論模型，可進行材料的採樣和研究分析兩種對照方式，定義及確保可追蹤回溯性和可比對性，這項作法是非常重要的，能避免得到不正確的驗證結論。經彙整及內部討論後，初步針對未來國內管制單位進行核能電廠除役計畫在審查圍阻體中子活化評估方面的六項初步建議，包括：

(一) 中子活化分析程式 MCNP 之軟體驗證方式：用過核子燃料乾式貯存設施安全分析報告之審查研究中指出，中子活化分析程式 MCNP 之軟體驗證可經由下列步驟完成。

第(1)類之軟體驗證，核研所在 Linux 系統下，針對 42 個測試問題，所得之結果與手冊所附之標準結果相同，顯示核研所 MCNP 5 執行檔正確可用。

第(2)類之臨界實驗驗證，核研所模擬之 138 個臨界實驗，其所涵蓋之燃

料濃縮度 (2.35 至 4.31 wt%)，燃料棒間距 (1.64 至 2.54 公分)，水鈾比 (1.6 至 3.8)，均與常用之輕水式反應器核燃料相似。此外，核研所的計算也涵蓋了中子吸收隔板之有無及密度效應，因此作為基準點 (Benchmark) 之臨界實驗在數量及相關聯上均十分充足。核研所驗證報告中，將 MCNP 5 (核研所) 及 KENO-Va (NAC) 模擬之臨界實驗計算結果，列表相互比較，均十分接近，顯示程式使用者，對於所分析系統之模擬能力非常紮實。同時在彙整各國反應器與圍阻體中子活化分析程式之使用情形時，不會去針對程式使用者的背景、學經歷、認證文件等資料作程式驗證的考慮因素，可單純就程式的撰寫過程是否合理，最終結果是否可信可靠，作程式驗證的考慮重要因素。

第 (3) 類之數值驗證，核研所使用 MCNP 5 執行實際用過燃料護箱系統之臨界分析，並與 NRC 審核通過之 NAC 公司 KENO-Va 分析結果相互比對，以驗證使用者與 MCNP 5 程式執行護箱臨界分析之能力比對結果顯示，在最嚴重事故情況下，MCNP 5 與 KENO-Va 之計算結果只有 3~4 mk 差距，證明核研所使用 MCNP 5 進行護箱之臨界分析，已具適當的執行分析能力。

歸納而言，中子活化分析程式 MCNP 之軟體驗證可經由第 (1) 類之軟體驗證 (Verification 確認合理)、第 (2) 類之臨界實驗驗證 (Validation 驗證合理) 與第 (3) 類之數值驗證計算，得到具有可信度與可靠度的分析評估結果。

下列是為達成驗證成功的關鍵問題：

- 1 回顧核種變遷過程發展的文件，包括邊界條件。
- 2 定義目標和驗證的目的。
- 3 分析不同核種的分佈和行為，即利用核種變遷過程探索確認任何不確定因素，確保所有流程參數獲得充分了解。
- 4 識別並專注於關鍵核種，即進行仔細篩選審查。
- 5 可靠的可比對性和可追蹤回溯性，即精心策劃和選擇驗證對象。
- 6 製作和評估不同的對比檢測方法作為驗證工具。

下列是為達成驗證成功的活度評估主要輸入值：

1 描述活度清單數據庫內容的安全分析報告 (SAR)，這些電廠許多最近的更新報告都與功率提昇和現代化項目相關，即是反映最實際的運轉條件。

2 測量電廠設備的數據，如大修期間的條件下、反應器冷卻水的資料和蒸汽濕度含量測量，並依據燃料洩漏的歷史數據，所獲得的劑量率和 γ 掃描測量值。

3 組件活化過程中的重量和表面積，這些重量和區域表面積可被分解成系統的各部分。

4 未來的操作情況，如總運轉時間，有計劃修改 (如功率提昇)，除役參考時間等。

為達成驗證成功，不同核種需要不同的方式和方法，來估計放射性物質材料的活度，以與鐵金屬相關的物質，舉幾個例子：

1. Co-60、Fe-55、Ni-59/63 和其他可活化產物，將存在於除污的廢棄物中，如金屬錠、爐渣和灰塵；單只有加馬發射體的放射性核種 Co-60 沒有太大問題，但多考量到低能 β 發射體，則使活度測定更加複雜。

2. 某些揮發性核種具有相當高的沸點，例如 Cs-134/137 於熔化過程中將蒸發掉，但幾乎 100 % 會在熔池和灰塵過濾器被捕獲到；這意味著，Cs 會顯著出現在熔化殘留物所有的金屬錠中。

3. 重原子核 α 發射體，如鈾同位素和超鈾元素將被轉移至爐渣，使活度測定更容易進行。

4. 在一定程度上 H-3、C-14 和碘同位素，熱加工階段是一個複雜的估算過程，因此若是可行，這些核種在通過熔化之前就應採樣而測定活度。

(二) 本報告中列舉國內中子活化分析程式應用的結果：核一廠、核三廠的混凝土屏蔽牆，因在電廠的運轉下受到中子活化產生放射性核種，利用偵檢器可量測混凝土中含有的放射性核種及個別活度，除互相比較外，也與核四廠未受活化之混凝土進行中子照射後的測量結果比對。核四廠未受活化之混凝土，使用中子活化分析程式，計算出反應器屏蔽牆混凝土及乾井牆混凝土的放

射性核種及個別比活度，同時進行活化實驗，比對微量元素受到活化後的活度測量結果，可初步驗證此中子活化分析程式，將來可進一步在核一廠運轉結束除役時，繼續使用此中子活化分析程式執行放射性核種活度預先分析評估的任務。

(三) 再舉出國際間已經或計劃將在除役活度清單數據庫的評估中，驗證項目的一些例子：Ringsboms 壓水式反應器移除的蒸汽產生器、Barsebäck 的 1 號機和 2 號機除污淨化行動，以及 Barsebäck 1 號機的生物屏蔽和反應爐壓力槽保溫隔熱體等等，便是為了實驗驗證 (Validation) 需越多實驗資料，越能夠驗證中子活化分析程式的可信度與可靠度。檢討比較各圍阻體中子活化分析程式之驗證 (V&V) 情形，發現量測值多數顯示出與分析評估時計算的值具有一定程度的等比例關係，若有偏高或偏低的情形，即可推知在早期評估時，忽略了一些需考慮的重要因素；將歷年分析的核種資料庫重新安排，加上年復一年資深的經驗和精益求精的取樣技術與分析方法，可確實提高中子活化研究分析計算的精確度。

(四) 此外在彙整各國之核種活度分析概況時，也發現了一些值得國內借鏡的思考方向，例如：法國為確保最終處置場的資訊代代相傳，透過將備份資料存放在國家檔案局，並邀請在地民眾化身監督的一份子，讓記憶不只在官方，也在每一位老百姓的心底。另外，2006 年通過「放射性廢棄物永續管理計畫法案」，將「可逆性」的處置原則入法，要求現階段用過核子燃料在經過掩埋後，仍可順利取出，不會有輻射外洩疑慮，以便後代子孫可重新做決定。類似目前核四封存的出發點，為了使後代子孫可重新做決定，要求現階段用過核子燃料在經過掩埋後，日後仍可順利取出，不會有輻射外洩疑慮，在在以民眾想法出發，法國核能電廠能一座座地蓋，並非完全沒有遭遇反核聲浪的抗拒，而是法國政府深諳溝通之道。法國將核電廠大門完全敞開，隨時歡迎民眾進廠『查閱』電廠運作情形和安全防護措施，核電廠甚至沒有圍牆，有效消除民眾與電廠的距離。法國核電廠三十年從未發生嚴重核子事故的良好安全紀錄，不僅輕易取

得民眾的信任，也使得法國的核能工業能順利成長。法國能在今天成為核能工業強國，乃是經過三十餘年努力所得，其成功因素除了深厚的工業及科技基礎之外，決策的堅定不移、面對事實的正確決定取捨、密切有效的高層協調、各界對研發工作的重視、執行階層的相互支援合作、完善的教育、訓練與公眾溝通等系統都是不可或缺的。

(五) 2000 年之前德國民眾曾經強烈地支持核能發電：1997 年一份民意調查顯示 81% 的德國民眾希望現有的核電廠能持續運轉下去，絕大多數的德國民眾預期在可見的未來能廣泛地使用核能。此外，1998 年十一月德國發表一份聯合聲明，指出要達到避免溫室效應的影響，不靠核能是不可能的。德國經驗則是凸顯：即使決定走上非核家園，核廢料的難題並非一勞永逸，德國核廢料最終處置地點歷年來爭議不斷，目前核廢料暫時貯存在下薩克森邦的哥爾雷本 (Gorleben)，但自 1980 年代以來，反核運動人士抗議將核廢料運送至該地，因此經常進行示威遊行，與警方爆發衝突。儘管德國政府打算重新尋找新的最終處置地點，卻仍把 Gorleben 列入選項，顯示政府即便願蓋鄰避設施 (Not In My Back Yard)，其實地點選擇仍相當有限。值得國內借鏡的思考方向是，我國如同德國民眾曾經強烈地支持核能發電，但需認知尋找選擇最終處置的地點本身就是件不易的挑戰，即使現階段決定走上非核家園，核廢料的難題並非一勞永逸，需更進一步解決不斷的爭議，尋找選擇出最適合的地方處置核廢料。

(六) 反應器壓力槽另外有整體移除處置的方式：美國波特蘭通用電力公司 Trojan 核能電廠在完全未分割反應器壓力槽內部組件情況下，於 1999 年 8 月將反應器壓力槽連同內部組件經哥倫比亞河運至 Richland 低放射性廢棄物處置場處置。此作法使 Trojan 核能電廠避免須將超 C 類廢棄物貯存於乾式貯存設施問題，同時亦節省經費 2,500 萬美元；Big Rock Point 核能電廠亦採用相同方法。超 C 類廢棄物屬於低放射性廢棄物，可貯存在低放射性廢棄物貯存場，為增加超 C 類廢棄物貯存選擇性，10 CFR 72 允許超 C 類廢棄物貯存於乾式貯存系統中。

重要參考文獻

1. EPRI (Electric Power Research Institute) (2008). Power Reactor Decommissioning Experience. Technical Report ID 1023456. Palo Alto, California, USA. <http://my.epri.com>
2. Klas Lundgren, Arne Larsson, “Validation of activity determination codes and nuclide vectors by using results from processing of retired components and operational waste,” Workshop on Radiological Characterisation for Decommissioning, Nyköping, Sweden, April 17-19, 2012.
3. Christopher Hope, “Characterisation of metal in support of decommissioning a reactor site”, Workshop on Radiological Characterisation for Decommissioning, Nyköping, Sweden, April 17-19, 2012.
4. Kristina Kristofova, Tibor Rapant, Jaroslav Svitek, “Radiological characterisation of V1 NPP technological systems and buildings – Activation,” Workshop on Radiological Characterisation for Decommissioning, Nyköping, Sweden, April 17-19, 2012.
5. Ralf Oberhaeuser, “Sampling of reactor pressure vessel and core internals”, Workshop on Radiological Characterisation for Decommissioning, Nyköping, Sweden, April 17-19, 2012.
6. TRS-389, “Radiological Characterization of Shut Down Nuclear Reactors for Decommissioning Purposes”, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA, 1998. http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TRS389_scr.pdf
7. 林彥光，核能電廠混凝土屏蔽微量元素測量與除役放射性核種評估，清華大學碩士論文，中華民國 97 年 7 月。

附錄

1. Klas Lundgren, Arne Larsson, “Validation of activity determination codes and nuclide vectors by using results from processing of retired components and operational waste,” Workshop on Radiological Characterisation for Decommissioning, Nyköping, Sweden, April 17-19, 2012.

Studsvik

Arne Larsson
Klas Lundgren

Validation of activity determination codes and nuclide vectors

1 (16)

Validation of activity determination codes and nuclide vectors by using results from processing of retired components and operational waste

**Klas Lundgren
Arne Larsson**

Paper for Workshop on “Radiological characterisation for Decommissioning” Studsvik, Sweden 17-19 April 2012

Abstract

Decommissioning studies for nuclear power reactors are performed in order to assess the decommissioning costs and the waste volumes as well as to provide data for the licensing and construction of the LILW repositories. An important part of this work is to estimate the amount of radioactivity in the different types of decommissioning waste.

Studsvik ALARA Engineering has performed such assessments for LWRs and other nuclear facilities in Sweden. These assessments are to a large content depending on calculations, senior experience and sampling on the facilities. The precision in the calculations have been found to be relatively high close to the reactor core. Of natural reasons the precision will decline with the distance. Even if the activity values are lower the content of hard to measure nuclides can cause problems in the long term safety demonstration of LLW repositories.

At the same time Studsvik is processing significant volumes of metallic and combustible waste from power stations in operation and in decommissioning phase as well as from other nuclear facilities such as research and waste treatment facilities.

Combining the unique knowledge in assessment of radioactivity inventory and the large data bank the waste processing represents the activity determination codes can be validated and the waste processing analysis supported with additional data.

The intention with this presentation is to highlight how the European nuclear industry jointly could use the waste processing data for validation of activity determination codes.

Table of content

Abstract	2
Introduction	4
Short about Studsvik	4
Overview – initial facts	4
Key parameters for validation	6
Determination of activity inventories	8
Prerequisites	8
Input to activity assessment	9
Source terms considered	9
Nuclides considered	10
Examples of validation projects	12
Ringhals-3 Steam Generator	12
Barsebäck 1 and 2 decontamination campaign	13
Barsebäck 1 – Activity in bioshield and RPV insulation	13
Forsmark BWRs – Turbine components being treated in Studsvik	14
Conclusions	15
A way forward	16

Introduction

Short about Studsvik

Studsvik, previously named AB Atomenergi, was founded in 1947 as a state own company with the mission to develop and operate nuclear power stations in Sweden. Today Studsvik is a commercial company focused on providing services to the international nuclear industry.

A key knowledge which has remained over the years in the company is the deep knowledge in characterisation of materials and radioactive waste (even though radioactive waste management not was in spot as much in the 1950s as it is today). The competence in radiological characterisation was further strengthened when ALARA Engineering AB joined the Studsvik Group.

Studsvik has built several theoretical and practical references in the area of radiological characterisation of materials, systems and buildings for decommissioning.

Furthermore Studsvik has processed radioactive waste for a few decades focusing on volume reduction of organic waste and aiming for clearance of metals after treatment.

Overview – initial facts

A known fact is that all radioactive objects need to be characterised and managed. Depending of the properties and the radioactive content the material can be subject to clearance directly or after treatment, put into a form suitable for disposal and disposed.

Critical parameters for characterisation differ between routes. This has to be considered already in the validation planning.

Quality assurance of activity assessment calculations and nuclide vectors requires validation require physical measurements.

Normally characterisation for clearance is easier than characterisation for disposal as hard to measure nuclides are of less importance for clearance.

For clearance based on European Commission recommendations RP 89, RP 113 and RP 122 part 1 several low emitting beta nuclides can be screen out as they have high clearance levels.

For waste to be disposed several nuclides which is of concern in terms of clearance can be screened out in the long term safety calculations as they

will decay to almost nothing in a relatively short period of time. They may however be of concern from an operational safety point of view.

Good understanding, validated and documented nuclide vectors and assessment calculations supports graded approach – saves money and time

Well developed areas

- Activity assessment for easy to measure nuclides (gamma) inside and close to the reactor pressure vessel of NPPs.
- Characterisation of contaminated metals subject to free release (clearance) either directly or after treatment.
- Screening of nuclides in the clearance process i.e. nuclides without importance for clearance

Areas with development potentials

- Validation of calculation models for hard to measure nuclides.
- Validation of activity assessment calculations for systems with low contamination levels far from the reactor grid.
- Nuclide composition after treatment for in a repository perspective critical hard to measure nuclides (such as C-14 and Cl-36).
- Characterisation models for nuclear facilities other than NPPs and where nuclide vectors have varied by time.
- Nuclide screening models for waste to be disposed

Key parameters for validation

Essential for any type of validation program is good knowledge of the conditions and quality assurance. For validation of theoretical models by sampling and analysis either of the material to be processed or usage of the processing residues it is very important to secure the traceability and to define the comparability to avoid that incorrect conclusions are drawn.

It is of high importance with good understanding of process parameters such as:

- How the materials, systems and buildings have been contaminated
- Variations in operations and how it has affected the activity build up
- The way waste treatment affects the nuclide inventory and how treatment effects can simplify the validation process

The properties of the different nuclides require different approaches and methods to estimate the radioactivity in the physical material.

A few examples related to iron based metals:

- Co-60, Fe-55, Ni-59/63 and other activation products will even though just occurring as contamination to a large percentage alloy with the steel. This means that these nuclides will be present in decontamination waste, in the metal ingots as well as in the slag and dust from the melting process. This is no problem for gamma-emitting nuclides as Co-60 but makes the activity determination a lot more complex for the low energy beta emitters.
- Some volatile nuclides with a fairly high boiling point such as Cs-134/137 will boil off during melting but will be captured to almost 100% in the slag cover on the melting bath (if any) and in the dust filters. This means that Cs will be present in all but the metal ingots. The activity will then be significantly concentrated in the melting residues which is good for determination of the inventory.
- Heavy alpha emitters such as the uranium isotopes and the transuranium element will be transferred to the slag which means that they will be significantly concentrated in the slag i.e. makes the determination of the activity easier.
- C-14 and to certain extent H-3 and the Iodine isotopes are a lot more complex to estimate in the thermal processing stage. Most likely these nuclides should be determined by sampling prior to melting. Either by sampling prior to start of treatment or by analysis of the decontamination residues.

Key issues for a successful validation

- Review documentation of the nuclide vector development including boundary conditions.
- Define objectives and purpose of validation.
- Analyse the distribution and behaviour of the different nuclides i.e. identify uncertainties in using nuclide vectors. Make sure all process parameters are understood.
- Identify and focus on key nuclides – perform a careful screening.
- Secure comparability and traceability - careful planning and selection of validation objects.
- Form and evaluate different fail test methods as tools for validation.

Determination of activity inventories

Studsvik ALARA Engineering has been responsible for the determination of activity inventories at decommissioning for most Scandinavian nuclear reactors. The reference list covers totally 15 reactors:

- Olkiluoto 1 and 2 (BWR)
Process systems, database modification and update (2008)
- Barsebäck 1 and 2 (BWR)
Project “RivAkt”, Total activity assessment (2007), evaluation of performed system decontaminations (2008), improved assessment of activity in reactor internals (2012)
- Ringhals 1, 2, 3 and 4 (BWR + 3x PWR)
Total activity assessment (2007), updates (2010, 2012)
- Forsmark 1, 2 and 3 (BWR)
Total activity assessment (2010), update (2012)
- Oskarshamn 1, 2 and 3 (BWR)
Total activity assessment (2010), update (2012)
- Ägesta (PHWR, closed in 1974)
Total activity assessment (2010)

Updates are on-going for most reactors where some additional radionuclides will be included.

Prerequisites

The prerequisites for the performed studies are summarized in the following way:

- The total operation time for each reactor is based on plant specifications. This means actual operation times for the Barsebäck reactors, and predicted times, 40, 50 or 60 years, for the reactors still in operation.
- A decay period of at least one year is presumed. It means that nuclides with half-lives shorter than one year have been disregarded.
- Operational waste such as spent fuel, ion exchange resins and filter media is assumed to have been removed prior to the decommissioning. However, small amounts of waste are assumed to remain in the waste handling systems.

- No major decontamination campaigns are considered prior to decommissioning, except for the Barsebäck plants where performed decontaminations campaigns are considered.
- Only plant materials with activity contents expected to exceed the exemption levels are included in the assessment.

Input to activity assessment

The main inputs to the activity assessments are:

- Safety Analysis Report (SAR) data describing activity inventories in the plants. Many of these SAR reports have recently been updated in connection to power uprate and modernization projects, i.e. are reflecting most actual operating conditions for the plants.
- Measured plant data such as dose rate and gamma scan measurements during outage conditions, reactor water data, moisture content in steam, and data describing the fuel leakage history.
- Components weights and surface areas in contact with active process media. These weights and areas are broken down into system “idents” describing system or part of system with certain activity conditions. These assessments of component data have been performed by other organizations.
- Future operation conditions such as total operation time, planned modifications (e.g. power uprates), reference time for decommissioning, etc..

Source terms considered

The following types of source terms are considered in the assessments:

- Neutron induced activity in reactor internals, reactor pressure vessel (RPV), RPV insulation and biological shield of concrete and reinforcement surrounding the RPV. Neutron fluxes in the components are determined by calculations with the 3D neutron transport code MCNP. Compositions of the different materials, including trace elements such as Co, are based on materials specifications, materials certificates, and general information about materials compositions. Neutron fluxes, materials compositions, neutron activation cross sections and operation history are combined to calculated activity inventories with the use of different computer models (IndAct, FISPACT).
- Activated corrosion products on system surfaces, so called “crud”. The determination of contamination level on surfaces in the primary

circuit, i.e. surfaces in contact with hot reactor water, is based on developed calculation models, CrudAct, for BWRs and PWRs, which are well benchmarked against measured reactor data. The resulting nuclide vectors are distributed between different reactor system idents in relation to measured relative contamination levels of different parts of systems, the primary circuit acting as reference.

- Fission products and actinides from leaking fuel. SAR leakage models are combined with measured activity data from the plants. Of special interest are the cases with fuel dissolution from rather open fuel failures, where the reactor coolant is in direct contact with the fuel material. Such fuel release turns out to have a significant memory effect in form of uranium contamination on core (so called tramp U), and actinide incorporation in the oxide layers formed on system surfaces. The tramp U causes production of short-lived noble gases that results in noble gas daughter accumulation, Sr-90, Cs-135, Cs-137, etc., in the off-gas delay systems.
- System leakage results in some accumulation of activity in affected building areas of concrete in the plant. This contamination reflects the nuclide composition in the reactor coolant.

Nuclides considered

A review was initially performed, identifying 28 nuclides that were covered in the reported decommissioning inventories:

- H3, C14, Cl36, Ca41, Fe55, Ni59, Co60, Ni63, Sr90, Nb94, Te99, Ag108m, Cd113m, Sb125, I129, Cs134, Cs135, Cs137, Sm151, Eu152, Eu154, Eu155, Pu238, Pu239, Pu240, Pu241, Am241, Cm244

It has later been identified a need to add some extra nuclides in order to coordinate the nuclide list for decommissioning waste with the list used for operational waste. For that reason another 20 nuclides are included in the ongoing 2012 update for the Swedish plants:

- Be10, Se79, Mo93, Zr93, Nb93m, Ru106, Pd107, Sn126, Ba133, Pm147, Ho166m, U232, U236, Np237, Pu242, Am242m, Am243, Cm243, Cm245, Cm246

Some other nuclides have also been discussed, e.g. the nuclide Fe60 ($T_{1/2} = 1.5 \text{ My}$), which is mainly produced via neutron reactions in iron, mainly:

- Fe58 (n, γ) Fe59 (n, γ) **Fe60** (β^-) Co60m (IT) **Co60**

The daughter nuclide Co60 contributes to a high dose factor for Fe60 both for ingestion and inhalation. This is illustrated in the below table where the specific activity in typical BWR crud has been calculated with the computer code FISPACT-2007. A decay period of 1000 years has been considered, and the activity has been recalculated to ingestion and inhalation doses per gram fuel crud. The nuclide Fe60 is far from dominating, but ends up on the Top10 list. It shall be noted that different nuclides transport properties in the environment is not considered in the assessment, which of course may change different nuclides importance considerably.

An overall conclusion is that the introduction of additional nuclides will imply a need for improved evaluation and validation processes.

Calculated radio toxicity in typical BWR fuel crud after decay 1000 years (FISPACT-2007)

Decay: 1000 y			
Nuclide	Ingestion mSv/g	Nuclide	Inhalation mSv/g
Ni 59	1.3E-01	Nb 94	3.4E+00
Nb 94	1.2E-01	Ni 59	9.0E-01
Ni 63	4.2E-02	Ni 63	3.6E-01
Mo 93	1.9E-02	Ag108m	3.3E-02
Ag108m	2.0E-03	Zr 93	1.8E-02
Zr 93	7.8E-04	Mo 93	1.4E-02
Nb 93m	7.2E-04	Nb 93m	1.1E-02
Tc 99	2.5E-04	Tc 99	5.2E-03
Fe 60	1.4E-04	Fe 60	3.7E-04
Re186m	6.8E-06	Nb 91	7.1E-05
Total	3.1E-01	Total	4.7E+00

Examples of validation projects

Below are presented some examples of validation projects that have been or are planned to be used in the assessments of decommissioning activity inventories.

Ringhals-3 Steam Generator

Removed steam generators (SGs) from the Ringhals PWRs have been transported to Studsvik for treatment. The resulting activities from one of the R3 SGs in produced waste and ingots are summarized in the below table. Some special measurements were made in Studsvik, e.g. for the nuclide Ni63. Three samples of the waste from the blasting were sent to the University of Lund for analysis of C14 with the same method that is used for determination of C14 in ion exchange resins.

The Co60 activity in the waste is compared to the activity inventory estimated from in-plant gamma scans. It is noted that the waste activity is higher than the activity based on the gamma scans. This difference is likely due to the complicated geometry for the evaluation of the gamma scans, especially when measuring activity in the Inconel tubes from the outside of the SG.

The measured Ni63/Co60 ratio, about 0.1, is in line with earlier assessments. The detected C14 activity is, however, not considered in the earlier assessments. The detected amount of C14 corresponds to about 0.24% of the production in the reactor coolant during a year. These measurements are presently being further evaluated.

R3 SG – Waste activity from treatment in Studsvik compared to Co60 activity inventory based on in-plant gamma scanning

Waste activity from processing in Studsvik				
Bq, 1995-06-01				
Nuclide	Blasting	Melt	Other	Total
Co60	2.27E+12	2.20E+11	1.07E+12	3.56E+12
Ni63	2.23E+11	2.16E+10	1.05E+11	3.50E+11
Ni63/Co60				9.83E-02
C14	5.68E+08	5.51E+07	2.77E+08	9.00E+08
C14/Co60				2.53E-04
In-plant gamma scanning on SS and Inc				
Bq, 1995-06-01				
Nuclide	Inc600	SS	Total	
Co60	8.83E+11	9.20E+10	9.75E+11	

Barsebäck 1 and 2 decontamination campaign

An example of important field data that have been used in the decommissioning studies is shown in the below table. Three large decontamination campaigns of the primary circuit have been performed in Barsebäck BWRs (B1 and B2), and the removed activity has been carefully recorded. Hard-to-measure nuclides such as Ni59 have been determined. This is valuable for validation of the calculation models. Furthermore, the measurement of actinides removed from the system surfaces can be correlated to the plants fuel failure history. B1 has been practically free from failures, while B2 had a fuel failure in 1992 resulting in a release of about 10 g of uranium. Actinides corresponding to about 1 g of uranium are found on system surfaces after about 10 years of operation, i.e. the incorporation of actinides in the system oxides has a long memory effect that has to be considered.

Measured activity removed in three decontamination campaigns in B1 and B2

ref.date	2007-11-01	2007-11-01	2007-11-01	2007-11-01
	B1/2008 [Bq]	B2/2007 [Bq]	B2/2002 [Bq]	TOTAL [Bq]
Co-60	1.33E+12	2.13E+12	7.55E+11	4.21E+12
Fe-55	6.72E+11	1.28E+12	6.69E+11	2.42E+12
Mn-54	8.01E+08	3.98E+10	7.91E+08	4.14E+10
Ni-59	1.68E+09	1.18E+09	1.63E+09	4.50E+09
Ni-63	2.13E+11	1.59E+11	2.13E+11	5.86E+11
Sb-125	2.30E+10	6.60E+10	2.44E+10	1.13E+11
Tc-99	8.44E+05	3.25E+05	4.48E+05	1.62E+06
Pu-238	3.41E+06	4.69E+06	1.52E+07	2.33E+07
Pu-239	4.13E+05	5.44E+05	1.76E+06	2.72E+06
Pu-240	6.75E+05	8.89E+05	2.87E+06	4.44E+06
Pu-241	1.07E+08	1.83E+08	5.93E+08	8.83E+08
Am-241	1.57E+06	4.03E+05	1.30E+06	3.28E+06
Cm-244	3.56E+06	5.79E+06	1.87E+07	2.81E+07

Memory effect of fuel dissolution in B2 in 1992 (totally about 10 g U)

Barsebäck 1 – Activity in bioshield and RPV insulation

Another example of a performed validation is the sampling and activity measurements on the biological shield and RPV insulation performed in the B1 plant, which is compared to measured data in the below table. The calculated values show slightly higher level than calculated, i.e. a certain degree of conservatism is maintained in the earlier assessment. These measurements will be used in the validation of ongoing refined modeling of the neutron activation in reactor internals, pressure vessel and bioshield.

B1 – Comparison between measured and calculated activity in RPV insulation and biological shield

Nuclide	Caposil [Bq/kg]		Al sheet [Bq/kg]	
	Calculated	Measured	Calculated	Measured
Co-60	3.3E5	2.4E5	8.4E4	6.3E4
Cs-134	1.4E5	4.2E4		
Mn-54	5.6E5	5.2E5	3.2E4	2.0E4
Zn-65			1.6E5	6.3E4

Nuclide	Concrete [Bq/kg]		Reinforcement [Bq/kg]	
	Calculated	Measured	Calculated	Measured
Co-60	7.6E5	3.0E5	2.7E7	6.2E6
Mn-54			1.3E7	5.3E6
Cs-134	9.0E4	5.5E4		
Eu-152	1.8E6	1.3E6		
Eu-154	1.6E5	1.2E5		

Forsmark BWRs – Turbine components being treated in Studsvik

Totally about 1300 tonnes of turbine components were removed from the Forsmark BWRs (F1, F2 and F3) during the period 2004 – 2006 and sent to Studsvik for treatment. A summary of the weights and Co60 and Cs137 activities in different categories is shown in the below table. About 95% of the material was subject to clearance, 71% for direct clearance and the remaining 24% after some additional decay. The remaining 5%, process waste, is to be disposed.

The total Co60 activity, 1.6 GBq, is in line with performed assessments based on plant data. However, the measured Cs137 activity, 0.07 GBq, is higher than performed assessments. The source of Cs137 in this case is expected to be from decay of short-lived Xe137 ($T_{1/2} = 3.8$ minutes) which is predominantly from tramp uranium on the core. Cs137 activity from decay of Xe137 is considered in the off-gas systems, but has not earlier been considered on the turbine components.

F1, F2 and F3 – Turbine components - Weights and activity in different categories after treatment in Studsvik

	Weight, kg	Activity, Bq		Bq/kg
		Co60	Cs137	Co60
Exempted ¹	940234	4.3E+08		4.6E+02
Ingots ²	315745	8.6E+08		2.7E+03
Waste ³	64290	3.0E+08	9.3E+07	4.7E+03
Total	1320269	1.6E+09	9.3E+07	1.2E+03
1 - Exempted ingots (limit Co60 <1000 Bq/kg)				
2 - Ingots to be exempted after some decay				
3 - Process waste				

Conclusions

A number of conclusions could be drawn based on the current situation.

There is a driving force for validation of the activity determination codes. An improved knowledge of the nuclide inventory in both ILW and LLW will reduce uncertainties. Reduced uncertainties may simplify the safety analysis reports as well as the qualification/ licensing and the design of the disposal sites.

Current status:

- Good calculation models exists
- Validations of calculated activity assessments have been performed in certain areas, mainly for easy to measure nuclides – good results and deep understanding.
- The clearance route is in general well validated.
- The most important validations, in a repository long term perspective, are often weak if started up. Significant differences between countries.
- Optimised screening, to sort out nuclides of no importance, is of significant value. Which nuclides that can be sorted out depends on the actual disposal and repository situation.

A way forward

Validation of activity determination codes could be costly especially if a project should cover a wide range of material from reactor internals to LLW far from the reactor core.

Validations can be of value for more than the actual facility as the target is to validate the codes. This means that other organisations than the specific facility owner may be interested in the results from a validation program.

Of these reasons we do propose that the following proposal is evaluated:

Form an international project for building up industry knowledge regarding activity assessment in metals from decommissioning to support validation and optimisation of radioactivity assessment codes.

Such a projects could be built on the principles of :

- Open books inside project
- joint financing
- common learning

Most likely there are material samples, used retired components sent for treatment and operational waste available that can be used as objects for the validations in combination with sampling and measurement in-situ.

Special areas of interest could be

- long lived beta-emitting nuclides
- nuclide distribution, behavior and effects of treatment
- optimisation of sampling and evaluation