

行政院原子能委員會
委託研究計畫論文報告

計畫名稱：放射性廢料島嶼處置場核種遷移評估審查程
式之建立 (2/2)

Development of assessment computer code for radi-waste
islet disposal site (2/2)

計畫編號：912002FCMA004

執行單位：國立清華大學 工程與系統科學系

計畫主持人：李四海 教授

聯絡電話：03-5742377

E-mail address：shli@ess.nthu.edu.tw

報告日期：

壹、緣起與目的：

我國放射性廢料處置場之候選場址目前已選出小坵島為低放射性廢料處置場之優先調查場址。將進一步執行環境影響評估審查及經濟可行性分析，若皆能通過有關單位審核，則可列為候選場址，而更進一步深入場址相關地質條件及處置概念等之調查及規劃，並完成安全分析報告。行政院原子能委員會放射性物料管理局承擔處置場之安全分析審核工作，有必要針對島嶼處置場之核種遷移評估程式預先建立審查程式。

在上一年度的工作中，我們針對島嶼處置模式所必須考慮的相關工作，諸如核種傳輸模式的建立、相關重要傳輸機制的瞭解、以及國外處置場在分析核種遷移時所使用的一些模式與傳輸機制等，做一通盤性的瞭解與分析，目前這些工作皆已大致完備。為了使本計畫更加完善，本年度則預計完成以下的工作項目：首先，蒐集國外相同處置方式之處置場之核種遷移評估模式，進行瞭解其重要參數的靈敏度與不準度，並在合理的假設下將這些參數帶入上年度所撰寫之程式中，並將結果與目前可蒐集得到的國外模式相互比較，其次，則將計算結果與目前現行法規比對。最後，將針對本計畫所完成之評估程式做一完整的結論與建議。

貳、研究方法與過程：

為了瞭解核種於島嶼處置場中的傳輸情形，在上一年度的工作中，我們針對核種於工程障壁與母岩中的傳輸做研究，並建立相關模式，且將結果撰寫成 Fortran 程式，以及使用手冊，以方便使用。本年度的主要工作為利用上一年度所建立的核種傳輸模式，針對許多重要的傳輸機制作更進一步的分析，並在合理的假設下，與現行之核能設施相關法規作於比較。

一、核種於工程障壁（水泥多孔性介質）中的傳輸

考慮核種在工程障壁中的傳輸情形，假設此處水流方向為垂直向下，欲穿越場內之人工水泥障壁傳輸至外部岩層中，且水流速度固定，而水平方向的延散效應相較於垂直方向可被忽略。考慮核種在通過工程障壁多孔性介質時為一維傳輸（垂直傳輸），而影響核種遷移的傳輸機制包括：(1) 沿著水流方向的流傳作用；(2) 沿著水流方向的水力延散；(3) 核種被工程障壁材質所吸附的作用；(4) 核種本身的衰變作用等。

則傳輸方程式可為¹⁻⁵：

$$\theta \frac{\partial C^L}{\partial t} - \theta D \frac{\partial^2 C^L}{\partial z^2} + \theta V \frac{\partial C^L}{\partial z} + \theta \lambda C^L = 0 \quad (1)$$

$$(1-\theta)\frac{\partial C^s}{\partial t} = -(1-\theta)\lambda C^s \quad (2)$$

輔以適當之初始條件及邊界條件：

$$C^L(z=0, t) = C_0 e^{-\lambda t} \quad (3a)$$

$$C^L(z, t=0) = 0 \quad (3c)$$

$$\left. \frac{\partial C^L(z, t)}{\partial z} \right|_{z=l} = 0 \quad (3d)$$

利用拉普拉司轉換及二項式定理，可解得核種濃度分布之近似解

析解為⁶

$$\begin{aligned} \frac{C^L}{C_0} = & \frac{\exp(-\lambda t)}{2} \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{z\sqrt{R}}{2\sqrt{Dt}} - \frac{V\sqrt{t}}{2\sqrt{DR}} \right) + \exp\left(\frac{Vz}{D}\right) \operatorname{erfc} \left(\frac{z\sqrt{R}}{2\sqrt{Dt}} + \frac{V\sqrt{t}}{2\sqrt{DR}} \right) \right] \\ & + \exp \left[-2\left(\lambda + \frac{V^2}{4DR}\right)t \right] \cdot \int_0^t \left[1 - \frac{V\sqrt{u}}{\sqrt{\pi DR}} + \left(1 - \frac{V^2}{2DR}u\right) \exp\left(\frac{V^2}{4DR}u\right) \left(\operatorname{erf}\left(\frac{V\sqrt{u}}{2\sqrt{DR}}\right) - 1 \right) \right] \\ & \cdot \frac{\sqrt{R}(2l-z) \exp\left(-\frac{R(2l-z)^2}{4D(t-u)}\right)}{2\sqrt{\pi D(t-u)^3}} du \end{aligned} \quad (4)$$

式(4)是針對有限長度多孔性介質所推導出的近似解析解，在求得解析解的過程中，其數學運算非常冗長繁複，且在電腦運跑時所費時間很長，以下，我們針對此一不方便處做一修正。

考慮一極端例子，假設水泥介質具有無限的寬度，亦即 l 趨近於無限大，此時邊界條件(3d)可改寫為

$$C^L(\infty, t) = 0$$

則核種濃度分佈解析解可以使用 Laplace 法求得為⁷，

$$\frac{C^L}{C_0} = \frac{\exp(-\lambda t)}{2} \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{z\sqrt{R}}{2\sqrt{Dt}} - \frac{V\sqrt{t}}{2\sqrt{DR}} \right) + \exp\left(\frac{Vz}{D}\right) \operatorname{erfc} \left(\frac{z\sqrt{R}}{2\sqrt{Dt}} + \frac{V\sqrt{t}}{2\sqrt{DR}} \right) \right] \quad (5)$$

二、核種於母岩中的傳輸

在上一年度的計畫中，我們針對核種於母岩中的傳輸，建立了核種於有限長度單一裂縫的核種傳輸模式，由於假設裂縫介質長度為有限，因此，其數學推導過程非常複雜，在此情況下，求得核種對空間與時間的濃度分佈解析解變得幾乎不可能，因此，在上一年度的工作中，我們利用數值反轉換法，來求得核種的濃度分佈，然而，在上一節中（圖 1），我們證明了介質的延伸長度對於核種的濃度分佈並不顯著，因此，在此節中，我們將先驗證，在圖 1 中的假設，對於裂縫介質是否可行。

考慮一極端例子，假設介質長度為無限長，則核種於無限遠處的邊界條件可為，其餘邊界條件參考第一年度的期末報告所述。

$$C_f(\infty, t) = 0$$

利用 Laplace 法，可求得核種於單一裂縫中的濃度分佈解析解為

$$\frac{C_f}{C_0} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \exp(\alpha x - \lambda t) \int_{\frac{\eta}{2\sqrt{t}}}^{\infty} \exp\left(-\xi^2 - \frac{\alpha^2 x^2}{4\xi^2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{\eta^2}{4A\xi^2} \frac{1}{2\sqrt{t - \eta^2/4\xi^2}}\right) d\xi$$

(7)

其中

$$\alpha = \frac{V_f}{2D_f}$$

$$\eta = \sqrt{\frac{R_f}{D_f}} \cdot x$$

$$A = \frac{bR_f}{\theta(D_p R_p)^{1/2}}$$

ξ 則為積分參數

三、劑量評估

在本節中，將以活度形式表示核種之相對濃度，亦即將前幾節的濃度單位該為居里 (Ci)，再經過適當轉換後，以劑量單位表示。

基於保守的原則，假設儲存場中所有的廢料接外釋至儲存筒外，

其污染的主要核種及一些重要參數列於表一¹¹

表一

核種	活度 (居里)	延遲係數	半衰期(年)
鈷-60	36,000	420	5.62
鋇-90	33,000	10	28.5

銫-137	4,500	90	30
鐳-226	1683	30	1600

表二

距離 (m)	核種活度 (居里) 鈷 -60	核種活度 (居里) 錒 -90	核種活度 (居里) 銫 -137	核種活度 (居 里) 鐳-226
2.01	65.52	15779.5	1863	1615.68
5	2.48E-4	15414.08	697.5	1464.21
6.06	1.46E-7	15281.2	211.5	1353.13
20.044	0	11726.66	0	7.67E-1
29.92	0	4185.72	0	1.14E-7
39.99	0	177.40	0	0
49.88	0	4.7E-1	0	0
60.11	0	4.02E-5	0	0
75.5	0	0	0	0

表二列出在 30 年時，核種於不同距離處的活度（當活度小於 10^{-10} 居里時，則將此活度視為 0），從表中可以看出鈷-60 因半衰期最短，且延遲係數最大，所以傳輸距離相當有限，不過因其起始濃度相當高，所以仍能傳輸至約 6.5 公尺處，錒-90 與銫-137 具有相似的半衰期，然而，因銫-137 的延遲係數較大，且起始濃度較小，故其傳輸距離遠不及錒-90。為了討論半衰期的影響，針對鐳

-226，也做出了活度的計算，由表二可知，雖然鐳-226 的半衰期長達 1600 年，然而計算結果，兩前幾個核種並無太大的差異，其傳輸距離，仍然因岩層的延遲效應而被降低。

表二列出利用本研究所建立之模式所計算在不同距離時，對於不同核種的活度，時間假設為 30 年，事實上，依據目前的工程技術，在沒有外力入侵的狀況下，工程障壁維持完整的時間遠大於 30 年，因此，表二的值是相當保守的假設。

表三¹²：一座典型的壓水式反應器（PWR）預估每年排放的放射性核種與居里數

核種	居里/年
活化及腐蝕產物	
Cr-51	9E-5
Mn-54	1E-3
Fe-55	9E-5
Fe-59	5E-5
Co-58	4.8E-3
Co-60	8.8E-3
Nb-95	2E-3
Np-239	3E-5
分裂產物	
Br-83	3E-5
Rb-86	1E-5

Sr-89	2E-5
Mo-99	2.2E-3
Tc-99	2E-3
Ru-103	1.4E-4
Ru-106	2.4E-3
Ag-110m	4.4E-4
Te-127m	1E-5
Te-127	2E-5
Te-129m	7E-5
Te-129	4E-5
I-130	1.3E-4
I-131	4E-5
Te-131m	9.1E-4
Te-132	2.3E-3
I-132	2.3E-3
I-133	3.7E-2
Cs-134	1.8E-2
I-135	6.6E-3
Cs-136	2.7E-2
Cs-137	2E-3
Ba-137m	3.2E-3
Ca-144	5.2E-3
其他核種	6E-5

表四¹²：一座典型的沸水式反應器（BWR）預估每年排放的放射性

核種與居里數

核種	居里/年	核種	居里/年
腐蝕及活化產物		分裂產物	
Na-24	3.1E-3	Ru-103	1.7E-4
P-32	2.4E-4	Rh-103m	3E-5
Cr-51	6.8E-3	Tc-104	1E-5
Mn-54	1.1E-3	Ru-105m	1.8E-4
Mn-56	2.1E-3	Rh-105	1.5E-4
Fe-55	1.7E-3	Ru-106	2.4E-3
Fe-59	4E-5	Ag-110m	4.4E-4
Co-58	4.3E-3	Te-129	6E-5
Co-60	9.4E-3	Te-131m	6E-5
Cu-64	9E-1	I-131	8.1E-2
Ni-65	1E-5	I-132	1.2E-3
Zn-65	3.3E-4	I-133	4E-2
Zn-69m	6.4E-4	Cs-134	1.3E-2
Zn-69	6.8E-4	I-134	4.2E-4
Zr-95	1.4E-3	I-135	7E-3
Nb-95	2E-3	Cs-137	2.4E-2
W-187	1.5E-4	Ba-137m	3.5E-4
Np-239	5.4E-3	Cs-138	1.6E-4
分裂產物		Ba-139	1.5E-4
Br-83	1.3E-4	Ba-140	4.7E-4
Sr-89	1.5E-4	La-140	2.3E-4
Sr-91	9.2E-4	La-141	6E-4

Y-91m	5.8E-4	Ce-141	5E-5
Y-91	9E-5	La-142	1.1E-4
Sr-92	4.6E-4	Ce-143	2E-5
Y-92	1.1E-3	Pr-143	5E-5
Y-93	9.7E-4	Ce-144	5.2E-3
Zr-95	1E-5	其他核種	7E-5
Nb-95	1E-5		
Nb-98	2E-5		
Mo-99	1.6E-3		
Tc-99m	4E-3		

表三與四列出典型 PWR 與 BWR 每年可排放的核種及居里數，參照表三、四並與表二的結果做比對可以發現，當傳輸距離大於約 60 公尺時，表一中所列的核種，皆低於表三、四中的排放標準。

在本節中，我們挑選代表性的核種，來實際運跑本研究所建立的模式，結果發現，以一般核電廠的排放標準而言，本模式所計算的結果在大於 60 公尺距離處，皆低於表三、四中的排放標準，若距離增加至 80 公尺以上，則所有核種的濃度皆遠低於 10^{-10} 居里。

參、結論與建議

延續上一年度的工作，本年度持續針對島嶼處置場的核種遷移模式進行研究，首先，針對上一年度所建立的平版多孔性介質以及單一裂縫

多孔性介質模式做重要參數靈敏度分析，其次，我們選擇低放射性廢料中具代表性的核種與核設施（本研究中選擇 PWR 與 BWR 兩座典型反應器）之標準排放值做比對，針對研究的結果，我們有以下的結論與建議：

- 1、在參數靈敏度分析過程中發現，不論多孔性介質或裂縫介質，其重要傳輸參數，例如：孔隙度、分佈係數、擴散係數、水流速度等，都會對核種的濃度分佈產生程度不一的影響，如何確定這些參數的值，是作安全度分析時的首要課題。
- 2、在核種傳輸的過程中，岩層體對核種的延遲效應為阻礙核種傳輸之主要機制，越大的延遲係數，越能限制核種的傳輸能力，然而，延遲係數對於不同的核種與不同的介質而言，其變異性極大，如何針對特定的核種與介質，瞭解其傳輸行為，是未來實際實驗時相當重要的工作。
- 3、本研究針對低放射性廢料中具代表性的核種做研究並與核設施之排放標準作比對，結果發現，這些核種無法遷移至較遠的距離，在距離處置場 100 公尺處，其放射性活度已遠低於典型 PWR 與 BWR 的排放標準。

本研究所建立的模式可適用於各種長度半衰期的核種，且計算過程中並無使用數值方法針對傳輸方程式求解，因此，可適用於極大範圍的

參數數值，且無數值發散的問題，因此，本研究所建立之模式將可作為未來處置場的安全度評估比對之用。

肆、參考文獻：

1. Bear, J., "Dynamics of Fluids in Porous Media," *American Elsevier Publishing Company, Inc., New York*, (1972).
2. Bear, J., "Hydraulic of Groundwater," *McGraw-Hill Inc., New York*, (1979).
3. Carnahan, C. L. and J. S. Remer, "Non-equilibrium and Equilibrium Sorption with a Linear Sorption Isotherm During Mass Transport Through an Infinite Porous Medium: Some Analytical Solutions," *J. Hydro.*, **73**, 227(1984).
4. Chapman, N. A., J. H. Mckinley and M. D. Hill, "The Geological Disposal of Nuclear Waste," *John Wiley and Sons Ltd., New York*, (1987).
5. Chen, F. L. and S. H. Li, "Derivation of an Equation for the Transport of Radionuclides in Porous Media," *Nucl. Tech.*, **90**, 215(1990).
6. Leij, F. J. and M. Th. van Genuchten, "Approximate Analytical Solutions for Solute Transport in Two-layer Porous Media," *Transport in Porous Media*, **18**, 65(1995).
7. 李境和，"放射性核種於裂縫岩層傳輸中非平衡吸附反應影響之研究，" 博士論文，清華大學(1993)。
8. Tang, D. H., E. O. Frind, and E. A. Sudicky, "Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solution for a Single Fracture," *Water Resour. Res.*, **17**, 555 (1981).
9. Sudicky E. A. and E. O. Frind, "Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solution for a Two-Member Decay Chain in a Single Fracture," *Water Resour. Res.*, **20**, 1021 (1984).

10. Li, S. H. and C. T. Chen, "Radionuclide Transport in Fractured Porous Media- Analytical Solutions for a System of Parallel Fractures with a Kinetic Solubility-Limited Dissolution Model," *Nucl. Technol.* , **120**, 136(1997).
11. 闕志修，"放射性廢料水途徑傳輸分析與海洋途徑劑量評估，" 碩士論文，清華大學（1995）。
12. 劉東山，蔡昭明，"放射性廢料管理，" 曉園出版社，台北（1993）。