

行政院原子能委員會 ATOMIC ENERGY COUNCIL, EXECUTIVE YUAN

# 111年度 成果發表會論文集

原子能科技學術合作研究計畫

目	錄

核能與除役安全科技	.1
01-沃斯田鐵系不銹鋼冷卻飼水密封閥件於核電廠除役過渡階段之間隙腐蝕行為研究	.3
02-智慧機器人技術在核能除役產業發展之技術地圖研擬	.7
03-近斷層複合地盤破裂引致振動及速度脈衝的初步物理模型模擬	12
04-核能電廠核子保安應變計畫精進研究	17
05-NTI 核子保安國際評比之評估研究	22
06-核一廠除役期間火災意外對現場設備及人員安全影響	28
07-鉛引發壓水式反應器二次側結構組件發生應力腐蝕龜裂行為的研究	33
08-研究用反應器石墨緩和劑除役表面碳十四分離之研究	36
放射性物料安全科技4	1
01-低污染放射性廢棄物表面劑量率與核種活度之特性研究	43
02-以 PFC 模擬處置孔間裂隙受開挖力學-熱力耦合作用之行為	47
03-放射性廢棄物最終處置重要核種遷移試驗與數學驗證模式建立之研析(III)	51
04-發展數值模擬工具探討膠體加速放射性核種衰變鏈多成員核種遷移與放射性廢棄物:	地
質處置安全評估應用	54
05-放射性廢棄物最終處置場址之機率式斷層位移危害度參數敏感度分析	50
06-用過核燃料室內貯存護箱之熱移除與通風特性研究(1/2)	54
07-用過核子燃料最終處置母岩具裂縫時對熱分佈影響與緩衝材料修正策略	59
輻射防護與放射醫學科技(I)7	15
01-人工智慧深度學習輔助診斷脊椎壓迫性骨折	77
02-優化卵巢癌特異性抗體 CHI3L1 作為診療示蹤劑的應用性	31
03-利用影像生物指標區辨路易氏體失智症前驅期與老年重度憂鬱症症(第二年)	34
04-標靶 α-突觸核蛋白的正子斷層造影藥物開發	39
05-核電廠部份廠址外釋之劑量評估及輻射偵檢相關規範與案例研析	94
06-專一性放射標誌 <sup>89</sup> Zr-DFO*-ImmunoPET 造影劑於腫瘤 PD-L1 表現之偵測	<del>)</del> 9
07-利用新穎鎵68標定纖維母細胞活化蛋白抑制劑正子掃描來評估已知或疑似肺癌之病人	:
與標準氟18葡萄糖正子掃描之比較10	)3
08-蒐集國際大腦解剖標準化軟體之技術、版權、與專利資訊暨評估核醫影像學檢查之最	佳
使用時機(II)10	)5
09-分析 F-18 α-syn-3 於神經毒劑誘發之 PD 動物腦中之分佈1	11
10-放射治療與 CRISPR 基因編輯活化免疫並應用於腫瘤核醫造影研究1	14
輻射防護與放射醫學科技(II)11	9

01-發展三氮雜環壬烷螯合放射性氟化鋁之成纖細胞活化蛋白正子造影劑......121 02-建立Zr-89專一性位置標誌抗體影像平台以動態觀測人類神經母細胞瘤經Temozolomide

	治療後程式死亡配體-1 之表現量	125
	03-職業、民眾及環境輻射防護管制措施精進研析(II)	128
	04-運用物聯網技術及大數據分析於輻射源安全管制之研究	133
	05-建置「輻射作業正當性之審查機制」研究	137
	06-國內不同地區醫院地下室工作場所氣氣之量測及人員劑量評估	142
	07-飛航劑量評估程式的認證與飛航劑量測量實驗設計(2/2)	146
	08-既存曝露情境之工業及民生應用調查與輻防管制措施精進研析	151
	09-診斷 X 光與核子醫學成像系統的基本輻射安全規範和設備必要測試之研究	156
跨	域合作與風險溝通(I)	161
	01-開發遠端麥卡納姆輪自主機器人與軌跡控制器以輔助核電廠輻射作業	163
	02-應用於低軌道衛星之抗輻射類比/數位混合晶片電子設計自動化開發(III)	168
	03-地下屏蔽環境無人飛船與地面機器人通訊與遠端遙控技術研究(II)	173
	04-微電漿輔助發光特性可調控量子點合成技術(1/3)	177
	05-使用太空環境下之半導體元件及相關電路輻射驗證平台培育前瞻原子科學人才	181
	06-以電漿濺鍍製程進行透明氧化物薄膜太陽能電池之研製	184
	07-X 光、電子等量子束於氧化亞銅異質奈米結構光電化學產氫膜層之材料分析研究	與人才
	08-以電漿輔助製程與磊晶鍺層提升鐵電記憶體之多位元操作可靠度與抗輻射能力	195
	09-高溫離子佈植及氮電漿製程應用於氮化鎵功率元件特性改善研究	200
	10-應用於衛星之積體電路與記憶體元件的輻射效應與製程研究	205
跨	域合作與風險溝通(II)	211
	01-知「輻」習「輻」-環境輻射科普教案研發與活動推廣	213
	02-原子能輻射防護科普內容製作與社群媒體推播之研究	217
	03-化學遊樂趣-放射永恆	220
	04-科展用核能與輻射知識之互動電玩遊戲	224
	05-X 光分析技術應用於東方書畫之研究(II)	227
	06-「原」來可以這樣「教」:後核電議題的跨域教學	232
	07-能源轉型下原子議題之人才培育與教育推廣	237
跨	域合作與風險溝通(III)	241
	01-輻射照射在農產品與農業資材消毒的應用研究	243
	02-應用輻射照射於台灣外銷鳳梨之檢疫處理技術開發	248
	03-當代原子能法重要法律議題及訴訟案例研析	252
	04-追尋與地方共存的低放射廢棄物處置之道:以德日低放射廢棄物處置管制法制與	實踐為
	考察	256
	05-輻射誘變選育耐逆境高蛋白質及機能性大豆與根圈益生菌與高加值機能性產品	開發(2)
		261
	U6- 輻照對紅龍果果乾品質提升與保鮮之研究	266

# 111年「原子能科技學術合作研究計畫」成果發表會議程時間:112年06月09日(星期五) 地點:國立臺灣師範大學進修推廣學院(台北市大安區和平東路一段129號)

各領域場地

領域	場地:地點	時間
報到	3F	09:30~10:00
核能與除役安全科技(N1)	場地1:308 室	10:00~14:20
放射性物料安全科技(N2)	場地2:309室	10:00~14:00
輻射防護與放射醫學科技 I (N3)	場地3:1101 室	10:00~15:20
輻射防護與放射醫學科技 II (N3)	場地4:1102室	10:00~15:00
跨域合作與風險溝通 I (N4)	場地5:301 室	10:00~15:20
跨域合作與風險溝通 II (N4)	場地 6:305 室	10:00~14:00
跨域合作與風險溝通III(N4)	場地7:306室	10:00~14:00

場 地	易 地 1:核能與除役安全科技								
會場:	地點:308 室								
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱				
	10:00~10:20		王朝正	國立臺灣科技大學 機械工程系	沃斯田鐵系不銹鋼冷卻飼水密封 閥件於核電廠除役過渡階段之間 隙腐蝕行為研究				
	10:20~10:40		丁鯤	龍華科技大學化工 與材料工程系	智慧機器人技術在核能除役產業 發展之技術地圖研擬				
分組發	10:40~11:00	*高斌、廖俐毅、吴文方、單秋成	11:00	洪汶宜	國立中央大學土木 工程學系	近斷層複合地盤破裂引致振動及 速度脈衝的初步物理模型模擬			
表 I	11:00~11:20		汪毓瑋	中央警察大學國境 警察學系	核能電廠核子保安應變計畫精進 研究				
	11:20~11:40 吴文		宋大崙	龍華科技大學化工 與材料工程系	NTI 核子保安國際評比之評估研 究				
	11:40~12:00		方、單秋成	万、單秋成	万、單秋成	<b>万、單秋成</b>	刀、單秋成	許文勝	國立清華大學原子 科學技術發展中心
	12:00~13:00	//		午餐	及意見交換				
分組	13:00~13:20					葉宗洸	國立清華大學工程 與系統科學系	鉛引發壓水式反應器二次側結構 組件發生應力腐蝕龜裂行為的研 究	
發 表 Ⅱ	13:20~13:40		李志浩	國立清華大學工程 與系統科學系	研究用反應器石墨緩和劑除役表 面碳十四分離之研究				
	13:40~14:20			綜合討論	<b>备及計畫頒獎</b>				

場 地	場 地 2:放射性物料安全科技																															
會場:	地點:309 室																															
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱																											
	10:00~10:20	*陳文泉、徐源鴻、鄭武昆、魏聰揚	吳杰	國立陽明交通大學生 物醫學影像暨放射科 學系	低污染放射性廢棄物表面劑量 率與核種活度之特性研究																											
	10:20~10:40		*陳文泉、徐源鴻、鄭武昆、魏聰揚	*陳文泉、徐源鴻、鄭武昆、魏聰揚						楊長義	淡江大學學校財團法 人淡江大學土木工程 學系	以 PFC 模擬處置孔間裂隙受開 挖力學-熱力耦合作用之行為																				
分組	10:40~11:00				田能全	國立清華大學原子科 學技術發展中心	放射性廢棄物最終處置重要核 種遷移試驗與數學驗證模式建 立之研析(III)																									
殺 表 I	11:00~11:20				陳瑞昇	國立中央大學應用地 質研究所	發展數值模擬工具探討膠體加 速放射性核種衰變鏈多成員核 種遷移與放射性廢棄物地質處 置安全評估應用																									
	11:20~11:40				鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏立	鄭武昆、魏立	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏立	<b>黔武昆、魏</b> 昭	<b>黔武昆、魏</b> 晦	<b>鄭武昆、魏</b> 昭	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏立	鄭武昆、魏四	鄭武昆、魏立	鄭武昆、魏	鄭武昆、魏	李錫堤	國立中央大學應用地 質研究所	放射性廢棄物最終處置場址之 機率式斷層位移危害度參數敏 感度分析
	11:40~12:00				張惠雲	國立中興大學土木工 程學系(所)	用過核燃料室內貯存護箱之熱 移除與通風特性研究																									
	12:00~13:00			午餐及	意見交換																											
分 組 發	13:00~13:20		林大偉	國立臺南大學機電系 統工程研究所	用過核子燃料最終處置母岩具 裂縫時對熱分佈影響與緩衝材 料修正策略																											
表 II	13:20~14:00			综合討論	及計畫頒獎																											

<del>場</del> 地	場 地 3:輻射防護與放射醫學科技 (I)							
會場	地點:1101 室							
場次	時間	評審 委員	計 <b>畫</b> 主持人	執行機關	計畫名稱			
	10:00~10:20		陳宣佑	國立臺灣大學醫學 院骨科	人工智慧深度學習輔助診斷脊 椎壓迫性骨折			
	10:20~10:40		江盈澄	國立臺灣大學醫學 院婦產科	優化卵巢癌特異性抗體 CHI3L1 作為診療示蹤劑的應用性			
分組	10:40~11:00			周元華	臺北榮民總醫院品 質管理中心	利用影像生物指標區辨路易氏 體失智症前驅期與老年重度憂 鬱症(第二年)		
發 表	11:00~11:20		馬國興	國防醫學院生物及 解剖學研究所	標靶 α-突觸核蛋白的正子斷層 造影藥物開發			
I	11:20~11:40	*林武智、林	* 林	趙得勝	國立清華大學原子 科學技術發展中心	核電廠部份廠址外釋之劑量評 估及輻射偵檢相關規範與案例 研析		
	11:40~12:00		黄蜂運	中臺科技大學醫學 影像暨放射科學系	專一性放射標誌 89Zr-DFO*- ImmunoPET 造影劑於腫瘤 PD- L1表現之偵測			
	12:00~13:00	延	午餐及意見交換					
	13:00~13:20	、王昱豐、王雲銘	、王昱豐、王雲銘	、王昱豐、王雲銘	、王昱豐、王雲銘	何恭之	長庚醫療財團法人 核子醫學科	利用新穎鎵 68 標定纖維母細胞 活化蛋白抑制劑正子掃描來評 估已知或疑似肺癌之病人:與標 準氟 18 葡萄糖正子掃描之比較
分組改	13:20~13:40					蕭穎聰	長庚大學醫學影像 暨放射科學系	蒐集國際大腦解剖標準化軟體 之技術、版權、與專利資訊暨評 估核醫影像學檢查之最佳使用 時機(II)
殺 表 II	13:40~14:00		翁啓昌	長庚大學醫學影像 暨放射科學系	分析 F-18 α-syn-3 於神經毒劑誘 發之 PD 動物腦中之分佈			
	14:00~14:20			中場休息	(供應點心)			
	14:20~14:40		蕭永晉	長庚大學生物醫學 研究所	放射治療與CRISPR 基因編輯活 化免疫並應用於腫瘤核醫造影 研究			
	14:40~15:20			綜合討論	及計畫頒獎			

場 地	場 地 4:輻射防護與放射醫學科技(Ⅱ)																									
會場	地點:1102 室	•																								
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱																					
	10:00~10:20	*蔡親賢、王信二、施建	陳傳霖	國立陽明交通大學 生物醫學影像暨放 射科學系	發展三氮雜環壬烷螯合放射性氟化 鋁之成纖細胞活化蛋白正子造影劑																					
分如	10:20~10:40																							吴駿一	國立陽明交通大學 生物醫學影像暨放 射科學系	建立 Zr-89 專一性位置標誌抗體影 像平台以動態觀測人類神經母細胞 瘤經 Temozolomide 治療後程式死 亡配體-1 之表現量
祖 發 主	10:40~11:00		趙自強	長庚大學醫學影像 暨放射科學系	職業、民眾及環境輻射防護管制措 施精進研析(Ⅱ)																					
衣 I	11:00~11:20		簡儀欣	逢甲大學材料科學 與工程學系	運用物聯網技術及大數據分析於輻 射源安全管制之研究																					
	11:20~11:40		(、王信二、施建)	、王信二	陳拓榮	中山醫學大學醫學 影像暨放射科學系 (所)	建置「輻射作業正當性之審查機制」 研究																			
	11:40~12:00			林群智	南華大學自然生物 科技學系	國內不同地區醫院地下室工作場所 氦氣之量測及人員劑量評估																				
	11:40~13:00	森 、 邱		午餐	<b>经意見交换</b>																					
	13:00~13:20	- 小志宏	<b>파志宏</b>	<b>파志宏</b>	<b>파志宏</b>	叶志宏	山志 宏	山志 宏	叶志宏	叶志宏	山志 宏	叶志宏	千志宏	志宏	千志宏	叶志宏	叶志宏	志宏	志宏	許榮鈞	國立清華大學核子 工程與科學研究所	飛航劑量評估程式的認證與飛航劑 量測量實驗設計(II)				
分	13:20~13:40		許芳裕	國立清華大學原子 科學技術發展中心	既存曝露情境之工業及民生應用調 查與輻防管制措施精進研析																					
祖發表	13:40~14:00				蔡惠予	國立清華大學核子 工程與科學研究所	診斷X光與核子醫學成像系統的基 本輻射安全規範和設備必要測試之 研究																			
	14:00~14:20			中場休	息(供應點心)																					
	14:20~15:00			綜合討	論及計畫頒獎																					

場 地	25:跨域合化	作與風	險溝通(I)			
會場:	地點:301 室					
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱	
	10:00~10:20			陳湘鳳	國立臺灣大學機械 工程學系暨研究所	開發遠端麥卡納姆輪自主機器 人與軌跡控制器以輔助核電廠 輻射作業
	10:20~10:40		陳信樹	國立臺灣大學電子 工程學研究所	應用於低軌道衛星之抗輻射類 比/數位混合晶片電子設計自動 化開發(III)	
分組發生	10:40~11:00		王學誠	國立陽明交通大學 電機工程學系	地下屏蔽環境無人飛船與地面 機器人通訊與遠端遙控技術研 究(II)	
衣 I	11:00~11:20		江偉宏	國立臺灣科技大學 化學工程系	微電漿輔助發光特性可調控量 子點合成技術(1/3)	
	11:20~11:40	*陳志平、蘇炎坤	李佳翰	國立臺灣大學工程 科學及海洋工程學 系暨研究所	使用太空環境下之半導體元件 及相關電路輻射驗證平台培育 前瞻原子科學人才	
	11:40~12:00		劉維昇	元智大學電機工程 學系 (所)	以電漿濺鍍製程進行透明氧化 物薄膜太陽能電池之研製	
	12:00~13:00	、張之		午餐及	意見交換	
	13:00~13:20	水華、鍾錦翰	水華、鍾錦翰	劉文仁	義守大學材料科學 與工程學系	X 光、電子等量子束於氧化亞銅 異質奈米結構光電化學產氫膜 層之材料分析研究與人才培育
分,	13:20~13:40		巫勇賢	國立清華大學工程 與系統科學系	以電漿輔助製程與磊晶鍺層提 升鐵電記憶體之多位元操作可 靠度與抗輻射能力	
組發表	13:40~14:00		梁正宏	國立清華大學核子 工程與科學研究所	高溫離子佈植及氮電漿製程應 用於氮化鎵功率元件特性改善 研究	
	14:00~14:20			中場休息	(供應點心)	
	14:20~14:40		張廖貴術	國立清華大學工程 與系統科學系	應用於衛星之積體電路與記憶 體元件的輻射效應與製程研究	
	14:40~15:20			综合討論	及計畫頒獎	

場地	場 地 6:跨域合作與風險溝通(II)												
會場:	地點:305 室												
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱								
	10:00~10:20		潘愷	國立臺北護理健康大 學嬰幼兒保育系(所)	知「輻」習「輻」-環境輻射科普 教案研發與活動推廣								
	10:20~10:40		單文婷	國立臺灣藝術大學廣 播電視學系 (所)	原子能輻射防護科普內容製作 與社群媒體推播之研究								
分 組 孫	10:40~11:00	*杜若婷、饒大衛、張自立	*杜若婷、饒大衛、張自立、	*杜若婷、饒大衛、張自立、	* 杜 若	* 杜 若	陳曜鴻	淡江大學學校財團法 人淡江大學化學系	化學遊樂趣-放射永恆				
表工	11:00~11:20				陳彥均	龙華科技大學多媒體 與遊戲發展科學系	科展用核能與輻射知識之互動 電玩遊戲						
	11:20~11:40				大衛、張自立、	大衛、張自立、	大衛、張自立、	入衛、張自立、	入衛、張自立、	大衛、張自立、	陳東和	國立故宮博物院登錄 保存處	X 光分析技術應用於東方書畫 之研究(II)
	11:40~12:00										<b>依自立</b> 、	<b>依自立</b> 、	<b>依自立</b> 、
	12:00~13:00	、 傅 昭	午餐及意見交換										
分 組	13:00~13:20	銘	古建國	臺北市立大學應用物 理暨化學系	能源轉型下原子議題之人才培 育與教育推廣								
發 表 Ⅱ	13:20~14:00			綜合討論	及計畫頒獎								

場 地	昜 地 7:跨域合作與風險溝通(Ⅲ)											
會場:	會場地點:306 室											
場次	時間	評審 委員	計 畫 主持人	執行機關	計畫名稱							
	10:00~10:20		謝廷芳	行政院農業委員會農業 試驗所植物病理組	輻射照射在農產品與農業資 材消毒的應用研究							
	10:20~10:40		杜武俊	國立中興大學昆蟲學系 (所)	應用輻射照射於台灣外銷鳳 梨之檢疫處理技術開發							
分组	10:40~11:00	* 言	翁曉玲	國立清華大學通識教育 中心	當代原子能法重要法律議題 及訴訟案例研析							
· 發表 I	11:00~11:20	同莉芳、林瑞珠、林育萱、林	向莉芳、林瑞珠、林育萱、林	同莉芳、林瑞珠、林育萱、林	陳信安	國立中興大學法律學系	追尋與地方共存的低放射廢 棄物處置之道:以德日低放射 廢棄物處置管制法制與實踐 為考察					
	11:20~11:40				、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林	、林育萱、林
	11:40~13:00	貞信	午餐及意見交換									
分 組	13:00~13:20		劉冠汝	國立澎湖科技大學食品 科學學系	輻照對紅龍果果乾品質提升 與保鮮之研究							
發 表 Ⅱ	13:20~14:00			綜合討論及	計畫頒獎							

## 【位置及交通資訊】

地點:國立臺灣師範大學進修推廣學院(台北市大安區和平東路一段129號)

捷運	•捷運古亭站
	中和新蘆線〈橘線〉、松山新店線〈綠線〉於『古亭站』五號出口直行約
	八分鐘即可到達。
	•捷運台電大樓站
	松山新店線〈綠線〉於『台電大樓站』三號出口,師大路直行約十分鐘即
	可到達。
	•捷運東門站
	淡水信義線〈紅線〉、中和新蘆線〈橘線〉於『東門站』五號出口,麗水
	街直行約十四分鐘即可到達。
公車	•和平幹線(原 15)、18、復興幹線(原 74)、235、237、254、278、295、662、
	663、672、907、0 南在「師大站」或「師大綜合大樓」下車。
	•0 東、0 南、20、22、38、204、1503、信義幹線在「信義永康街口(捷運東
	門站)」下車,麗水街直行約十四分鐘即可到達。

【平面圖】



# 核能與除役安全科技

## 沃斯田鐵系不銹鋼冷卻飼水密封閥件於核電廠除役過渡階段之間隙腐蝕行為研究 Crevice Corrosion Behavior of Stainless Steel Cooling Feed Water Sealing Valve during the Transition Stage of Nuclear Power Plant Decommissioning

計畫編號:111-NU-E-011-002-NU 計畫主持人:王朝正 e-mail:cjwang@mail.ntust.edu.tw 計畫參與人員:林宏任、陳彥愷 執行單位:國立臺灣科技大學機械系

#### 摘要

本研究使用氧化鋁螺絲件設定 304L 不銹鋼試片之 間距離,於不同溶氧量、鋅離子水溶液中進行6個月的 浸泡試驗及電化學動電位與依 ASTM-G5-14 規範之恆 電位法試驗,評估 304L 不銹鋼於核電廠除役冷卻飼水 之間隙腐蝕特性。研究結果顯示,低氧環境由於間隙內 無法及時提供氧氣,氧濃度差形成一濃差電池。溫度越 高及環境中含有硫、氯離子,均會提高間隙腐蝕之反應 速率。添加鋅離子抑制劑,或維持環境的氧濃度,均可 降低發生間隙腐蝕機會。

**關鍵詞:**間隙腐蝕、除役、304L 不銹鋼、溶氧量、鋅離 子抑制劑。

#### Abstract

In this study, aluminum oxide screws were used to set the crevice width between 304L stainless steel test pieces. and the immersion test and electrochemical and electrochemical constant potential method were carried out in accordance with the ASTM-G5-14 specification in different dissolved oxygen and zinc ion aqueous solutions. Test to evaluate the crevice corrosion characteristics of 304L stainless steel in decommissioning cooling feed water of nuclear power plants. The results showed that in the hypoxic environment, due to the inability to provide oxygen in time in the gap, the oxygen concentration difference forms a concentration cell. The higher the temperature and the sulfur and chloride ions in the environment will increase the reaction rate of crevice corrosion. Adding zinc ion inhibitors or maintaining the oxygen concentration of the environment can reduce the chance of crevice corrosion.

**Keywords** : Crevice corrosion, Decommissioning, 304L stainless steel, Oxygen concentration, Zinc ion inhibitor.

#### I. 前言

核能是乾淨的能源之一,但在日本 311 地震後,核 污染的影響下,使得在環太平洋地震帶上的我們也開始 擔憂。我國目前政策已定於 2025 年實行全面廢核,目 前已除役為核一廠和核二廠一號機。沃斯田鐵不銹鋼在 水溶液中有良好的耐腐蝕性,於常溫和高溫中具備優良 機械強度[1-2],因此核電廠之管路多為沃斯田鐵系不銹 鋼。其中,304L 在核電廠也被應用於各式長期運轉之 結構組件。例如冷卻飼水循環系統中,304L 不銹鋼作 為壓力邊界管路材料,具有良好抗均勻腐蝕能力 (General Corrosion)[3],但在特定環境下仍可能發生局 部性的間隙腐蝕(Crevice Corrosion)[4-6]。間隙腐蝕為兩 金屬間微小狹縫於水溶液中,因內外氧濃度差不同陰極 反應的驅動力,而使狹縫中的金屬成為陽極持續離子化 並溶失。間隙內是否維持適量的氧濃度,是為影響間隙 腐蝕的重要因素。

水溶液中含有的離子,也會影響間隙腐蝕的特性。 氫、硫、氯離子,在間隙中會主動溶解鈍化底材的氧化 膜使金屬底材受損。相對地,在封閉系統中添加抑制劑 則是成本低且不需長期養護定的防蝕技巧。例如添加醋 酸鋅,鋅離子可與溶氧陰離子反應,在陰極表面上形成 ZnO 阻斷陰極的還原反應;吸附金屬於醋酸離子,也可 以影響氧的擴散及電子的傳導。

核能電廠於停機後拆除前之除役階段,冷卻飼水不 銹鋼關件常處於靜滯的狀態,因此面對各零組件組合之 間隙,如何運用簡單的方式避免間隙造成之加速腐蝕, 實有探討之必要。為此在本研究針對 304L 不銹鋼的間 隙腐蝕特性、添加不同濃度醋酸鋅離子抑制劑以及冷卻 水中溶氧量,並以電化學和長時間之浸泡試驗對間隙腐 蝕之作用進行研究,並提出除役初期腐蝕風險及管理之 建議。

#### II. 主要內容

本研究使用 304L 不銹鋼為底材,於 30 ℃及 50 ℃ 之溶液進行電化學及/或浸泡試驗。試驗溶液包含:

A:去離子水(DI Water),(正常組);

B:去離子水通 4N9 氮氣將水溶液中溶氧量降至 0.80~1.10 ppm;

C: 打入空氣使溶氧量約為 7.8 ppm 之去離子水;

- D:添加醋酸鋅 10 ppb 之水溶液;
- E:添加醋酸鋅1ppm之水溶液;
- F:添加1 wt.% NaCl 之水溶液;

G:添加1 wt.% NaCl 及加醋酸鋅 10 ppb 之水溶液;

- H:添加1wt.% NaCl 及加醋酸鋅1ppm之水溶液;
- I:添加 3.0 wt.% Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>之水溶液;
- J:添加 3.5 wt.% NaCl 之水溶液;

K:試驗液 B 再添加 3.5 wt.% NaCl 之水溶液。

電化學試驗使用利用恆電位儀,依ASTMG5-14規範,以甘汞電極(Saturated Calomel Electrode, SCE)做為參考電極進行動電位極化試驗及、恆電位法試驗。動電位

浸泡試驗依 ASTM G31 進行,設計加速腐蝕浸泡模 組,以評估 304L 在去離子水和含鋅離子之水溶液中,耐 腐蝕能力及金屬腐蝕程度。試片模組,如圖 1 所示。將 試片以放電切割成 S1 (直徑 11 mm、高 3 mm)、S2 (直徑 13 mm、高 4 mm)、S3 (直徑 15 mm、高 5 mm)三種環形 試片,再以氧化鋁製螺栓將 S1、S2、S3 依圖 1(b)之方式 固定。氧化鋁螺栓尺度為國際公規 M6,旋轉試片 S3 即 可控制 S2 和 S3 之距離,角度換可調整間隙距離,本研 究浸泡試驗之試片間隙設定為 0.1 mm。浸泡模組試片浸 泡於密封之反應槽中,試驗 1~6 個月。試驗水溶液為 A、B、D、E、I、J、K,以探討 304L 在不同氧及離子濃 度水溶液中的間隙腐蝕行為。浸泡試驗後樣品取出風乾, 以光學顯微鏡及掃描式電子顯微鏡紀錄表面微觀結構。



圖 1 304L 浸泡試驗樣品模組 (a) 設計圖, (b) 外觀圖。

#### III. 結果與討論

#### 3.1 電化學試驗

圖 2 為試片於 3 種醋酸鋅濃度試驗液靜止、吹氮除 溶氧及吹空氣高溶氧之動電位極化曲線。醋酸鋅的緩蝕 機制為 Zn<sup>2+</sup>與溶氧生成 ZnO, 醋酸根離子則附著金屬 表面避免水與金屬的反應。因此如圖 2(b)所見, 在低氧 濃度且水溶液為吹氣擾動的情況很難發揮緩蝕作用, 再 加上水溶液中較多的離子濃度, 1 ppm 的添加量反而更 容易腐蝕。相對地, 如果有較足量的溶氧, 即使有吹氣 擾動, 如圖 2(c)所見, 雖亦有惡化, 但不嚴重。

相對於動電位極化會將試片過度氧化到失效,恆電 位法則採用較低的腐蝕驅動力,探討較長時間試片表面 的反應作用,試驗結果如圖 3 所示。比較圖 2(a)與圖 3(a),在添加 1 wt.% NaCl 的加速作用之後,不論環境, 相對於正常組,腐蝕電位均下降約 0.6 V,腐蝕電位則 均加 1 個級次。但在有攪拌略富氧的環境,添加 1 ppm 的醋酸鋅腐蝕電位幾乎沒有改變,腐蝕電位則增加約 5 倍。顯示足量的醋酸鋅,在富氧時可以發揮緩蝕之作用。

圖 4 為不同溶氧量中恆定位法試驗之結果,在未添 加任何處醋酸鋅緩蝕劑的情況,在最低氧的環境,304L 的鈍化膜最早發生失效。但在添加 1 ppm 的醋酸鋅之 後,如圖 4(b)所見,在 30000 秒的試驗中,試片的鈍化 膜均能穩定維持。顯示醋酸鋅緩蝕劑在較弱腐蝕驅動力 的情況下,有很明顯抑制腐蝕的作用。

#### 3.2 浸泡試驗

浸泡試驗模組於去離子水密封反應槽後靜置於 30 ℃及 50 ℃ 循環恆溫水浴槽中,前 5 個月樣品表面皆 無銹蝕,試片仍為金屬色澤。浸泡滿 6 個月,各如圖 5 及圖 6(a)及(b)所見,開始出現細小的白色顆粒產物,腐 蝕程度隨溫度之昇高而加劇,經 EDS 分析含有 Fe、O、 Cr。而在低氧的試驗溶液 B,至滿 4 個月表面乾淨沒有 沉積物,滿 6 個月時才觀察到了試片表面產生腐蝕,如 圖 6(c)及(d)。比較圖 6(a)及(b)正常組之腐蝕形態,在低 氧濃度溶液間隙內之腐蝕明顯嚴重。由於本試驗時均未 施予擾動,因此差異性僅由於溶液中的溶氧量。氧濃電 池的發生是因為氧、水的陰極反應,在不同氧濃度時產 生的電位差異所致。而電位的評估可由 Nerst equation 來計算,計算時將濃度取對數。對數運算會將數值小的 差異性放大,因此當濃度很低時,電位會被加大地降低。 也就是說,間隙內的溶氧量如果很低,相較於間隙外氧 濃度的電位,其電位差會被放大,即,腐蝕加劇。

在添加 Zn<sup>2+</sup>水溶液的浸泡試驗,4 個月之前亦仍未 見腐蝕。10 ppb 試驗液,滿6 個月後,如圖 6(e)及(f), 表面生成均勻但不深的腐蝕;添加 1 ppm Zn<sup>2+</sup>的試驗液, 如圖 6(g)及(h),即使是在滿6 個月,經 XRD 分析,表 面僅有少量氧化鉻,底材沒有觀察到可確認的蝕坑或是 破裂。比較圖 6(a)及(b)離子水正常組,顯示如 3.1 節所 討論醋酸鋅的緩蝕機制,在溫和的間隙腐蝕環境,添加 醋酸鋅對於防制 304L 的間隙腐蝕有很好的效果。

然而如果在含有硫酸根離子的試驗溶液 I,於浸泡 滿4個月即可觀察到腐蝕的現象,滿6個月的試驗結果 如圖 6(i)及(j)所見,相對於單純去離子水試驗溶液 A 的 正常組,腐蝕量明顯嚴重很多,在腐蝕深度方面尤其嚴 重。在試驗溶液 J (含 3.5 wt.% NaCl)試驗滿2個月後就 可以觀察到表面腐蝕,圖 6(k)及(l)為滿6個月之後的腐 蝕形貌,比起硫酸鈉環境,在含 NaCl 環境,除了更大 量的腐蝕之外,腐蝕產物更明顯增加。圖 6(m)及(n)為 試驗溶液 K (低氧之 3.5 wt.% NaCl 溶液)浸泡滿6個月 之形貌。明顯地,因為溶氧量低,所以除了氯化鈉的加 速作用外,如第 3.1 節所推論,低氧環境造就了更為激 烈的間隙腐蝕。

#### IV. 結論

- (一) 低氧的溶液環境,間隙腐蝕愈為激烈。
- (二)足量的醋酸鋅,在富氧及較弱腐蝕驅動力的情況下,可以發揮緩蝕之作用。
- (三)愈高的温度及硫、氯離子,均會加速間隙腐蝕。

#### 參考文獻

- Suo, Y., Fan, S., Du, L., & Zheng, J. (2021). Experimental study on the mechanical properties of high-strength stainless steel at room and elevated temperatures. Thin-Walled Structures, 165, 107973.
- Nip, K. H., Gardner, L., Davies, C. M., & Elghazouli, A. Y. (2010). Extremely low cycle fatigue tests on structural carbon steel and stainless steel. *Journal of constructional steel research*, 66(1), 96 ~ 110.
- [3] Karki, V., & Singh, M. (2017). Investigation of corrosion mechanism in Type 304 stainless steel under different corrosive environments: A SIMS study. International Journal of Mass Spectrometry, 421, 51 ~ 60.
- [4] Zhu, L. Y., Cui, Z. Y., Cui, H. Z., Wang, X., & Li, Y. Z. (2022). The effect of applied stress on the crevice

corrosion of 304 stainless steel in 3.5 wt% NaCl solution. *Corrosion Science*, *196*, 110039.

- [5] Wu, X., Liu, Y., Sun, Y., Dai, N., Li, J., & Jiang, Y. (2021). A discussion on evaluation criteria for crevice corrosion of various stainless steels. Journal of Materials Science & Technology, 64, 29 ~ 37.
- [6] Li, Y. Z., Wang, X., & Zhang, G. A. (2020). Corrosion behaviour of 13Cr stainless steel under stress and crevice in 3.5 wt.% NaCl solution. *Corrosion Science*, 163, 108290.







圖 3 304L 於 1 wt.% NaCl 水溶液及再添加不同濃度鋅離 子之動電位極化曲線 (a) 正常組(不攪拌), (b) 攪拌。



圖 4 304L 於 1 wt.% NaCl 水溶液之恆電位曲線: (a) 未添加醋酸鋅, (b) 添加 1 ppm 醋酸鋅。





 (a) 1000 x
 (b) 5000
 圖 5 304L 於 30 ℃試驗溶液 A(去離子水)浸泡6個月間 隙之腐蝕形貌。



(a) 試驗溶液 A (去離子水) 1000 x, (b) 5000 x



(c) 試驗溶液 B (低氧去離子水) 1000 x, (d) 5000 x



(e) 試驗溶液 D (10 ppb Zn<sup>2+</sup>) 1000 x, (f) 5000 x



(g) 試驗溶液 E (1 ppm Zn<sup>2+</sup>) 1000 x, (h) 5000 x



(i) 試驗溶液 I (3 wt.% Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) 1000 x, (j) 5000 x



(k) 試驗溶液 J (3.5 wt.% NaCl) 1000 x, (l) 5000 x



(m) 試驗溶液 K (低氧 3.5 wt.% NaCl) 1000 x, (n) 5000 x

圖 6 304L 於 50 ℃不同試驗溶液浸泡 6 個月間隙之腐 蝕形貌。

## 智慧機器人技術在核能除役產業發展之技術地圖研擬 The proposed technology roadmap of robotics in nuclear decommissioning

計畫編號:MOST 111-NU-E-262-003-NU 計畫主持人:丁鯤 e-mail:kuenting2012@gmail.com 計畫共同主持人:蔡璞、沈志陽 計畫參與人員:王信宗、蘇展弘、謝昀達、曾浩軒、林欣穎、 張宸愷、周禹廷、魯孟廉 執行單位:龍華科技大學化工與材料工程系

#### 摘要

2020-2024 核能除役服務市場在預測期內的複合年 增長率 CAGR 接近 13%。近年來工業 4,0 的推動,加上 物聯網、大數據、人工智慧與 5G 的迅速發展帶動機器 人的成長。核能除役雖面臨嚴苛的輻射環境,如何將這 前瞻性的智慧機器人技術推到核能除役這一領域,英國 人看到了,已投資大量經費推動智慧機器人於核能除役 的應用。

我國核能電廠有4部機組已進入除役階段,我國的 機器人在製造業、物流業等產業已經大力發展,為何不 借助除役的機會,將先進機器人技術投入除役,未來20 年可進入國際除役的市場中,具有競爭力的產業。有鑑 於此,本計畫將規劃智慧機器人於核能除役的技術地圖, 以使進入核能除役產業能清楚的掌握未來幾年內預計 要開發的產品與技術,以及所需的關鍵技術,領先競爭 者進行產品與技術的佈局,得以立於優勢的競爭地位。 **關鍵詞:**核能除役、自主性機器人、技術地圖、商業現 貨、改裝現貨、輻射硬度保證程式

#### Abstract

The compound annual growth rate (CAGR) of the nuclear decommissioning services market from 2020 to 2024 is expected to be close to 13%. In recent years, the promotion of Industry 4.0, along with the rapid development of the Internet of Things, big data, artificial intelligence, and 5G, has driven the growth of robots. The UK has invested a large amount of funds to promote the application of intelligent robots in this area.

Four units of nuclear power plants have entered the decommissioning stage in Taiwan. Taiwan's robot development has already made great strides in industries such as manufacturing and logistics. Why not take advantage of the opportunity to introduce robotics into decommissioning? This would enable us to enter the international decommissioning market over the next 20 years and create a competitive industry. Thus, this project will plan a technology roadmap for intelligent robots in nuclear decommissioning. Then we may take a leading position in the competition by deploying products and technologies ahead of our competitors.

Keywords : Nuclear decommissioning, autonomous

robotics, technology map, commercial off the shelf (COTS), modified off the shelf (MOTS), radiation hardness assurance (RHA)

#### I. 前言

截至 2023 年 1 月,全球已有 201 座反應爐被永久 關閉[1],預計到 2040 年可能有 200 至 400 座反應爐需 要除役[2]。這種預計已經為除役市場帶來了巨大的需 求。兩家商業預測公司預測,全球核能除役服務市場的 複合年增長率(CAGR)從 2022 年到 2027 年,分別為 13.2 %[6]和 13.8%[3]。此外,美國除役市場預計從 2022 年 到 2030 年的 CAGR 為 6.0%[4]。英國的檢測和維修機 器人(the Robotics for Inspection and Maintenance, RIMA) 計畫預測,在 2023 年到 2025 年市核除役操作的高峰期 間,機器人將是應對潛在勞動力短缺的必要手段[5]。

近年來,物聯網[6]、大數據雲計算/邊緣計算[7]和 人工智慧[8]與機器人和 5G 的發展相結合,使得工業 4.0 在智慧製造方面[9]巨大進步並實現先進智慧目標 (圖1)。



圖 1 智慧工廠的工業 4.0 數位發展

自 1979 年三浬島事故以來,國際原子能機構 (IAEA)強烈支援在核電廠中使用機器人[10]來遠程操 作機器並處理受污染區域中的高風險操作。清理核廢料 一直是機器人技術發展的主要驅動力,自動化機器人目 的在立即進行測試、檢查和停用任務,以及維護任務和 災難應對,例如放射性洩漏或搜救行動[11-15]。

自主性機器人被定義為機器人和人工智慧的結合, 使得在核除役環境中發展機器人成為可能[16]。隨著科 學技術的進步,自主性機器人已經結合了物聯網、大數 據、雲/邊緣計算、5G和其他工業 4.0 技術。國際原子

能機構(IAEA)和核除役局(Nuclear Decommissioning Authority, NDA)積極推薦在核環境中使用機器人[17]。

核能產業推動機器人技術發展的主要驅動因素是 避免人類接觸危險環境、提高效率和安全性,以及降低 執行檢查、維護、除汙、廢物處理和事故後活動等任務 的成本。特別是福島事故後的情況有關[18]。因此,在 核能產業中,越來越需要自主型機器人系統,以提高核 能設施的安全性和效率,透過監測異常,並保護在放射 性環境中工作的人員[19]。

目前,核能產業利用遠端機器人技術處理危險環境 下的任務進行核能廢棄處理,可以進入以前的受限空間, 減少操作員接觸輻射的時間,並避免進入受污染的環境 [20]。然而,在福島事故後,許多機器人系統的開發, 但不完全適用於核能環境中[21-22]。本計畫在提供有關 機器人技術發展的當前狀態的資訊,並提出機器人在核 廢棄處理中的技術地圖,以彌合創新技術和核廢棄處理 行業中應用之間的差距。

#### II. 主要內容

2.1 商用現貨 (Commercial off-the shelf, COTS) 和改 裝現貨 (Modified off the shelf, MOTS) 的機器人策略

在核能產業中通常為特定目標來開發機器人,這有 助於以精確的方式執行指定的任務。然而,這種方法的 缺點是製作機器人成本較高。另一種策略是採用商品現 貨(COTS)解決方案,這涉及使用現有的機器人而不 進行修改。雖然單個 COTS 機器人的成本可能很高,但 減少開發成本有助於抵消這種費用。許多應用需要一定 程度的改裝,這被稱為改裝現貨(MOTS)解決方案。 例如 KUKA 機器人[23]、Flyability 無人機[24]、四足機 器狗[25]都很成功應用在 Chernobyl 事故中。

## 2.2 機器人輻射硬化保證 (Radiation Hardness Assurance, RHA)

核除役是複雜的過程,OECD 在強調了技術創新的 重要性[26-27]。在核除役和核災害管理過程中,檢查輻 射密集區域和對核廢料進行分類是重要面向。許多工作 者要在高度受污染的區域操作,如果這些區域無法進入, 就要由機器人進行處理。為了推進這個領域,需要開發 與在輻射惡劣環境中部署機器人平台相關的創新技術。

傳統上,用於輻射惡劣環境中的設備被認為適用於 太空和軍事等應用。歐洲核子研究組織(Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire, CERN)和航太工 業一直在惡劣輻射條件下使用許多電子設備[28]。因此, 必須遵循特定的 RHA 方法論以應對其獨特的環境,考 慮到總離子化劑量(Total Ionized Dose, TID),以提供對 COTS 設備的可靠驗證[29]。RHA 指的是與在輻射惡劣 環境中可靠運行電子系統相關的所有任務。這些任務包 括定義部署的輻射環境、對系統組成的電子設備進行資 格認證,以及估算部署系統運行期間的壽命和可靠性。

在三浬島和 Chernobyl 事故中運行在輻射惡劣條件 下的機器人平臺,其中一些因電子控制器受到電離輻射 影響而失敗[30]。設計用於進入福島事故後的第一核反 應爐的機器人,目的在執行無法到達的區域的輻射測量 [31],以驗證機器人可靠運行的低限制性行程至少為 100Gy [32]。法國開發的機器人 RICA 的 RHA 約為 200Gy [33]。日立的 SCORPION 機器人設計可承受 100krad (1kGy),但在 650Gy 處意外失效[34]。

#### 2.3 核能環境中自主性機器人的發展

自主機器人屬於機器人與自主系統(Robotics and Autonomous Systems, RAS)的範疇,是結合相互關聯、 互動和認知能力的重要工具,能夠感知環境、推理、識 別或修正計劃並控制其操作。 RAS 技術使得以小型低 成本方式處理各種移動物體成為可能。隨著先進的數位 處理和機器學習軟件的發展,機器人硬體能力也變得更 強大。此外,人工智慧被應用於賦予機器人感知並建立 環境描述的能力,規劃並修改其操作、控制其配件、進 行導航,以及通過運動和接觸進行通訊。 此外,RAS 技術提高了生產力,降低了風險,並能夠在 3D 環境中 操作(單調、骯髒和危險)。RAS 的互動使得機器人能 夠自我監測環境,對長期工作環境中的意外事件和干擾 進行自我適應。機器人可以從執行任務中學習和恢復錯 誤,分享自主權並與操作者進行緊密合作,實現人機協 作。這使得操作者能夠完全參與並留在事件中。

英國核能工業工程與物理科學研究委員會 (Engineering & Physical Research Council, EPSRC),與 Surrey Technology for Autonomous System and Robotics, STAR)實驗室進行一個為期四年計畫,探討自主性機器 人在核能除役環境中的適用性[35]。該實驗室正與 Sellafield與國家核能實驗室合作,研究在核能除役中使 用自主性機器人拆除與清理核能電廠的除役作業。該實 驗室原是以發展太空技術為主,但核能除役的特性有兩 方面與太空相似,遠端遙控與輻射環境,因此該實驗室 在既有的能量下,開發核能除役自主性機器人的應用。

英國為了處理核廢料的除役計畫,伯明翰大學獲得 4200 萬英鎊啟動國家核能機器人中心(National Centre for Nuclear Robotics, NCNR),發展智慧機器人先進技術, 融合人工智慧、傳感器、輻射與彈性嵌入式系統,解決 除役與核廢料的複雜問題,以及培養下一代核能機器人 專家[36]。

#### 2.4 5G 專網智慧製造輔助系統

5G 專網透過智慧眼鏡的 MR 混合實境輔助,以 AI 人工智慧技術判斷作業進度、品質檢查以及遠端遙控。 5G 專網的寬頻可高速傳輸高解析影像,並以極低延遲 特性回傳影像的 MR 虛擬實境以及 AI 辨識,透過智慧 眼鏡回饋給現場作業人員,協助掌握加工要點,且在設 備故障時,可進行遠端遙控維修。

英國的歐洲太空應用與電信中心(European Center for Space Applications and Telecommunications, ECSAT) 開發波士頓動力公司的犬類機器人(canine-like robot)配 備多個不同的傳感器,並由人來操作遠程控制,並可以 完成自主導航等任務,將可推動到核能除役的高危險區 域[37]。

#### 2.5 AI、MR、遠程操作在核能除役的應用

人工智慧(AI)、混合實境(MR)和遠程操作 (teleoperation)目前已成為提升機器人在工業應用中的 效率的強大工具。所有這些都支持工作者和機器人之間 的強大協作能力。MR 使工作人員有可能在危險的地方 和區域"遠程留在現場(stay on-site remotely)"。遠程操作 通常是指透過與機器人及其環境進行某種視覺接觸來

遠程控制機器人。當 MR 與遠程操作實務相結合時,這 種結合為在危險場所工作的運作提供了相當大的可能 性。

#### 2.6 數位雙生整合機器人改變核能除役的策略

英國為核能除役正在轉向 BIM(Building Information Modelling)[38-39],來整合數位雙生、機器 人和無人機。核部門協定將開創新投資轉化為技術提升 的回報。這包括到2030年將新建專案的成本降低30%, 到2030年與目前的估計相比,將除役成本節省20%。 數位化也被用來幫助實施一個全新的除役策略。正在推 出的數位技術最先進的用途之一是拆除 Magnox 核電廠, Magnox 規劃在2021年進入市場,尋找合作夥伴來開 發這些工具。

#### III. 結果與討論

#### 3.1 機器人除役技術地圖研擬

技術地圖為產業技術規劃的重要工具,已成為企業 界提高市場競爭力的有效利器[40]。

根據上述策略規劃,機器人技術於核能除役規劃之 技術地圖如圖 2 所示。機器人技術的推動可根據除役拆 除目的所需,規劃採用 COTS、MOTS 或自主性機器人。 但 5G 專網可以將除役的作業活絡起來,結合更容易於 5G 網路中推動的 AI、MR、BIM、遠端遙控等作業,得 到更多的效益。這些創新的技術與應用,替代傳統的拆 除方式,使得除役進步為智慧型除役。

#### 3.2 機器人應用於核能除役的管制法規

#### 3.2.1 自主機器人系統的安全與保安法規之發展

自主機器人系統本質上對安全相當重要,並且需要 考慮複雜的安全問題。在部署之前,這些系統必須證明 它們遵守管制機構所定義的安全(safety)和保安(security) 規則[41]。



圖 2 機器人技術應用於核能除役之技術地圖

專門針對自主系統的法規仍在制定中,但在試圖證 明自主系統是安全的,從人類操作員的安全規則來約束 是一個很好的起點。對於無人駕駛汽車和無人駕駛飛機 等自主系統的應用,人類操作員有明確的規則,這些規 則已被制式化,並用於證明自主系統遵守部分或全部的 規則 [42-43]。目前已制定了一套通用安全原則,可用 來評估新的應用的安全性,但難以制式化。

在英國,對核工業機器人的管制更為明確。核能管 制辦公室 (Office for Nuclear Regulation, ONR) 是負責 檢查在"核能產業"上運轉的任何系統安全性的政府機 構。雖然 ONR 為確保系統安全提供了導則,但他們尚 未制定任何針對自主系統的導則。他們的導則也更具描 述性而不是強制性,這使得它們難以制式化並可使用作 為系統的規範。

為了應對這一挑戰,RAIN 研究計畫(Robotics and Artificial Intelligence in Nuclear Hub)[44]與 ONR 一起 舉辦了一系列研討會[45]。這些研討會目的對要成為核 能運營商和供應鏈、ONR 和學術界之間討論的開放論 壇。他們探索核工業機器人系統的安全評估過程,並研 究引入自主性可能會發生什麼變化。研討會的主要重點 是澄清圍繞自主機器人驗證的問題。

為了改善這種情況,英國的研究計劃正在與核能的 管制單位合作,為能夠進行穩健(正式)驗證的自主和 機器人系統制定導則方針[46]。

#### 3.2.2 輻射硬度政系統測試設施

輻射硬度保證對於系統在高輻射水平的環境中確 保能安全可靠地運作,例如在核除役活動中遇到的環境。 系統級測試是評估此類系統輻射硬度的重要工具。因此, 需要專門的設施來模擬系統預期遇到的輻射環境。該設 施應具有高能輻射源,如伽馬或中子源,並應進行屏蔽, 以盡量減少對人員和周圍環境的輻射劑量。該設施還應 該有儀器來測量輻射劑量和劑量率,以及被測系統的性 能。設施的設計應適應被測系統的大小和配置。

用於輻射硬度保證的系統級測試的測試方法,應根 據被測試的特定系統及其預期遇到的輻射環境進行調 整。測試應包括功能和非功能測試,例如輻射引起的單 一事件效應 (SEE) 和總電離劑量 (TID) 測試。功能測 試應驗證系統是否可以在存在輻射的情況下按預期運 作,而非功能測試應驗證系統是否可以承受輻射暴露而 不會劣化或發生失效。測試方法應基於既定標準和指南, 例如 MIL-STD-883[47]。

#### IV. 結論

機器人在核能除役技術上的開發,結合了台灣在人 工智慧、工業4.0等前瞻智慧製造科技的發展,是具有 開拓市場的空間。且台灣面臨核一廠與核二廠四部機組 全面開始除役的時機,若能結合國外的前瞻技術,不但 可以解決國內除役人力的不足,亦可將除役技術提升, 建立台灣國家隊,朝國際核能除役前進,前途是樂觀的。

機器人在核能除役的發展,首先要先有機器人系統 與電子組件通過輻射硬度保證的測試認證。國內在核能 除役相關的輻射硬度測試方面的實驗室除同步輻射中 心、核研所迴旋加速器外,尚有加強的空間。雖然太空 中心在推動電子組件的抗輻射認證,但在核能除役方面 的中子照射效應是不足的。這部分將是未來國家結合航 太與核能共同推動的一項重要設施。

自主機器人核能除役是一項新開發的技術,機器人、 人工智慧與核能相關的法規仍有強化與開始擬議的需要,這也要與其他行業管制單位相互動,參考國外資訊, 以因應未來機器人在核能除役的管制應用。

#### 參考文獻

- [1] *IAEA PRIS, Power Reactor Information System* https://pris.iaea.org/PRIS/WorldStatistics/Operation alByAge.aspx\_ (accessed on 14 January 2023).
- Denis Iurchak, 200-400 Nuclear reactors to be decommissioned by 2040, energypost.edu, THE BEST THINKERS ON ENERGY, February 11, 2020. https://energypost.eu/200-400-nuclear-reactors-tobe-decommissioned-by-2040/ (accessed on 14 January 2023).
- Mordor Intelligence, Nuclear power reactor decommissioning market: growth, trends, covid-19 impact, and forecasts (2022-2027) https://www.mordorintelligence.com/industryreports/nuclear-decommissioning-market (accessed on 14 January 2023).
- [4] Grand View Research, Nuclear decommissioning services market worth \$9.42 Billion by 2023, May 2022. https://www.grandviewresearch.com/pressrelease/global-nuclear-decommissioning-servicesmarket (accessed on 14 January 2023).
- [5] Reuters Events, Robots face nuclear challenge in European project, April 28, 2020. Robots face nuclear challenge in European project | Reuters Events | Nuclear (accessed on 14 January 2023).
- [6] Ben-Daya M, Hassini E and Bahroun Z, Internet of things and supply chain management: A literature review, International Journal of Production Research, Vol. 57, no. 15-16, pp. 4719-4742, 2019.
- [7] Abbasi AA, Shamshirband S, Chronopoulos AT, Persico V, Pescape A, Software-defined cloud computing: A systematic review on latest trends and developments, IEEE Access, Vol.7, pp.93294-93314, 2019.
- [8] Yang T, Zhao L and Wang C, Review on application of artificial intelligence in power system and an integrated energy system, Automation of Electric Power Systems, Vol.43, no. 1, pp.2-14, 2019.
- [9] Yang S, Kaminski MRJ, Pepin H, Opportunities for industry 4.0 to support remanufacturing, Applied Sciences, Vol.8, no.7 pp.1177, 2018.
- [10] Moore T, Robots for nuclear power plants, IAEA Bulletin, Autumn, 1985.
- [11] Tochilin AV, Voronkov IE, Alabin AV, Experience and prospects of using robotics in nuclear power industry, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, Vol. 1047, 2021.
- [12] Omelchenko EV, Stepanova MR and Bibik AA, The danger of industrial radiation, Journal of Ecology and life safety, pp.114-119,2017.
- [13] Dotdueva Z S and Beslaneeva D A, Nuclear power engineering in solving problem of power consumption: safety and value, Modern problems of national economic development, pp.79-86,2015
- Fitkullin R Z, The global aspect of nuclear energy security (on the example of Japan after the accident at the Fukushima-1 nuclear power plant), Age of Globalization Vol.2, No. 30, pp. 86-97, 2019
- [15] Lakutin N A and Oganesyan V S, The line of

robotic means for decommissioning nuclear power plants, Politechnical student journal, Vol. 3, No. 32, 2019.

- [16] Smith R, Cucco E, Fairbrairn C, Robotic development for the nuclear environment: challenges and strategy, Robotics, Vol. 9, No. 94, 2020.
- [17] IAEA Technical Report. Nuclear Power Plant Outage Optmisation Strategy; Report no. IAEA-TECDOC-1315, Nuclear Power Engineering Section, IAEA: Vienna, Austria, 2002.
- [18] Iqbal J, Tahir AM, ul Islam R, Robotics for nuclear power plants-challenges and future perspectives, Proceedings of the 2nd International Conference on Applied Robotics for the Power Industry, ETH Zurich, Zurich, Switzerland, 11-13 September, 2012.
- [19] Kim, S.; Jung, S.H.; Lee, S.U.; Kim, C.H.; Shin, H.C.; Seo, Y.C.; Lee, N.H.; Jung, K.M. Application of robotics for the nuclear power plants in Korea. In Proceedings of the 2010 1st International Conference on Applied Robotics for the Power Industry (CARPI 2010), Montreal, QC, Canada, 5–7 October 2010; IEEE: Piscataway, NJ, USA, 2010; pp. 1–5.
- [20] Bogue, R. Robots in the nuclear industry: A review of technologies and applications, Industrial Robot: An International Journal, Vol. 38, pp.113–118,2011.
- [21] Tsitsimpelis, I.; Taylor, C.J.; Lennox, B.; Joyce, M.J., A review of ground-based robotic systems for the characterization of nuclear environments,. Progress in Nuclear Energy, 111, .109–124,2019.
- [22] Marinceu, D.; Murchison, A.; Hatton, C., Use of Robotic Equipment in a Canadian Used Nuclear Fuel Packing Plant, In Proceedings of the 2nd International Conference on Applied Robotics for the Power Industry (CARPI), ETH Zurich, Zurich, Switzerland, 11–13 September 2012; IEEE: Piscataway, NJ, USA, 2012; pp. 139–144.
- [23] KUKA https://www.kuka.com/ense/industries/other-industries/nucleardecomissioning (accessed on 14 January 2023).
- [24] FLYABILITY, ELIOS 2, Intuitive indoor inspection, Elios 2 - Indoor drone for confined space inspections (flyability.com), (accessed on 14 January 2023)
- [25] Boston Dynamics, Spot: Automate sensing and inspection, capture limitless data, and explore without boundaries. Spot® - The Agile Mobile Robot | Boston Dynamics, (accessed on 14 January 2023)
- [26] OCDE, R&D and Innovation Needs for Decommissioning Nuclear Facilities, Radioactive Waste Management, Editions OCDE, 2014.
- [27] Volk R, Hübner F, Hünlich T, Schultmann F, The future of nuclear decommissioning A worldwide market potential study, Energy Policy, 124, 226-261, 2019.
- [28] Uznanski S, Todd B, Dinius A, King Q and Brugger M, Radiation hardness assurance methodology of radiation tolerant power converter

controls for large Hadron Collider, in IEEE Transactions on Nuclear Science, 61(6), 3694-3700, 2014.

- [29] Tsiligiannis G, Touboul A, Bricas G, Maraine T, Boch J, Wrobel F, Michez A, Saigne F, Godot A, Etile A, Durand T, Sueur R, Farigoule D, Girones P, Evaluation and analysis of technologies for robotic platforms for the nuclear decommissioning, 2020 15<sup>th</sup> Design & Technology of Integrated Systems in Nanoscale Era (DTIS), Marrakech, Morocco, 01-03 April 2020.
- [30] Tsitsimpelis I, Taylor CJ, Lennox B and Joyce M, A review of ground-based robotic systems for the characterization of nuclear environments, Progress in Nuclear Energy, pp. 111109-124, 2019.
- [31] Nagatani K, Kiribayashi Sl, Okada Y, Tadokoro S, Nishimura T, Yoshida T, Koyanagi E, Hada Y, Redesign of rescue mobile robot Quince," 2011
   IEEE International Symposium on Safety, Security, and Rescue Robotics, Kyoto Japan, 01-05, 2011.
- [32] Nagataniet K, Kiribayashi S, Okada Y, Otake K, Yoshida K, Tadokoro S, Nishimura T, Yoshida T, Kyyanagi E, Fukushima M, Kawasuma S, Emergency response to the nuclear accident at the Fukushima Daiichi nuclear power plants using mobile rescue robots, Jorunal of Field Robotics, 30(1), 44–63, 2013.
- [33] Ducros C, Hauser Gerard, Mahjoubi N, Girones P, Boisset L, Sorin A, Jonquet E, Falcila M, Benhamou A, RICA: A tracked robot for sampling and radiological characterization in the nuclear field, Journal of Field Robotics, 34(3), 583-599, 2017.
- [34] Wong C, Yang E, Yan XT, Gu D, An overview of robotics and autonomous systems for harsh environments, 23<sup>rd</sup> International Conference on Automation and Computing (ICAC), Huddersfield UK, 07-08 September, 2017.
- [35] https://www.research.ed.ac.uk/en/projects/nationa l-centre-for-nuclear-robotics-ncnr (accessed on 14 January 2023).
- [36] Nuclear Decommissioning Authority, Guide to technology readiness levels for the NDA estate and its supply chain, 2014.
- [37] The European Space Agency, Space-enabled 5G to help reach remote and dangerous places, June 24, 2022. https://www.esa.int/Space\_in\_Member\_States/Un ited\_Kingdom/Spaceenabled\_5G\_to\_help\_reach\_remote\_and\_dangero us\_places (accessed on January 25, 2023)
- [38] https://www.bimplus.co.uk/digital-twinsrevolutionise-nuclear-decommissionin/ (accessed on January 25, 2023)
- [39] Oti, H. A., Farrell, P., Abanda, H. F., McMahon, P., Mahamadu, A-M., Mzyece, D., Akintola, A. A. & Prinja, N, 2020, A BIM-driven framework for integrating rules and regulations in the decommissioning of nuclear power plants, Construction Innovation: Information, Process, Management, Emerald, DOI: 10.1108/CI-11-

2020-0186.

- [40] Tsai P, Technology resources planning technology roadmap theory and practice, Tingmao Publisher, 2007.
- [41] Luckcuck M and Farrel M, Regulating safety and security in autonomous robotic systems, Department of Computer Science, University of Liverpool, UK, 2020. https://www.researchgate.net/publication/343005
   919\_Regulating\_Safety\_and\_Security\_in\_Autono mous\_Robotic\_Systems
- [42] Rizaldi A, Keinholz J, Huber M, Feldle J, Immler F, Althoff M, Hilgendorf E and Nipkow T, Formalising and Monitoring Traffic Rules for Autonomous Vehicles in Isabelle/HOL. In Integrated Formal Methods, 10510, 50–66, 2017.
- [43] Webster M, Cameron N, Fisher M and Jump M, Generating certification evidence for autonomous unmanned aircraft using model checking and simulation, Journal of Aerospace Computing, Information and Communication, 11, 258-279, 2014.
- [44] RAIN, Principles for the development and assurance of autonomous systems for safe use in hazardous environments, White Paper, 14 June, 2021.
- [45] Farrell M, Bradbury M, Fisher M and Maple C, Workshop Report: Space Security Scoping, Technical Report, FAIR-SPACE Hub, 2019.
- [46] RAIN, Principles for the development and assurance of autonomous systems for safe use in hazardous environments, White Paper, 14 June, 2021.
- [47] MIL-STD-883, Test method standard for microcircuits

## 近斷層複合地盤破裂引致振動及速度脈衝的初步物理模型模擬 Preliminary physical modeling of the motion and pulse-like velocity induced by the fault slip of composite ground deposit

計畫編號:NSTC 111-NU-E-008-001-NU 計畫主持人:洪汶宜 e-mail:wyhung@ncu.edu.tw 計畫參與人員:江富誠、黃俊學、王怡琇 執行單位:國立中央大學

#### 摘要

台灣位於歐亞板塊交界處,因此存在多條活動斷層。 當斷層錯動時不僅會造成地層破裂及地表變形,亦有強 烈的加速度伴隨而來。在鄰近斷層的地區,因斷層破裂 之方向性,受近斷層效應帶來的速度脈衝往往會造成結 構物嚴重之受損。目前國內外研究逆斷層錯動主要分成 兩大部分,一是分析逆斷層錯動時產生的速度脈衝對結 構物的影響以及模擬速度脈衝歷時的方法,二是以靜剪 動模型模擬逆斷層錯動時,地中剪裂帶發展及地表變形 行為。僅有少數的研究係以數值模型或物理模型模擬斷 層錯動引發速度脈衝歷時。本研究之目標為建立模擬斷 層錯動的物理模型,同時觀察地表及地盤的變形行為以 及量測速度脈衝歷時。既有的斷層模擬試驗箱多為以慢 速靜剪動模擬斷層錯動, 慢速的剪動無法產生速度脈衝。 因此本研究將設計一全新的斷層模擬試驗箱,能夠在短 時間內完成斷層錯動之模擬,以激發速度脈衝的產生。 期盼最終的研究成果能提供一嶄新的物理模型工具,對 近斷層效應能有更進一步的研究。

**關鍵詞:**速度脈衝、近斷層效應、地表變形行為、逆斷 層、物理模型試驗

#### Abstract

Taiwan is located at the convergent plate boundary, so there are many active faults. The fault activation will not only cause ground fracture and surface deformation, but also induce a strong motion. The near-fault effect will happen at the area adjacent to the fault due to the directionality of the fault rupture. It would cause a pulselike velocity, and the pulse-like velocity would cause severe damage to the structure. The current researches on reverse fault are mainly divided into two parts. One is to analyze the influence of the pulse-like velocity on the structure and the mathematical models to simulate the pulse-like velocity. The other part is using static shearing physical model to simulate fault slip and observing the deformation behavior of ground. Only a few studies have used numerical or physical models to simulate the pulse-like velocity induced by fault slip. This research aims to establish a physical model that simulates fault slipping while observing the deformation behavior of the ground and detecting the pulselike velocity. The existing fault simulation container cannot generate pulse-like velocity during fault slipping because of the low speed of fault slipping. Therefore, this research will design and make a new fault simulation container, which can complete the simulation of fault dislocation in a short time to stimulate the generation of pulse-like velocity. This project will provide a new physical modelling tool for further research on near-fault effects.

**Keywords**: Pulse-like velocity, Near-fault effect, Ground surface deformation, Reverse fault, Physical modeling test

#### I. 前言

台灣位於歐亞板塊交界處,因此存在多條活動斷層, 根據中央地質調查所的定義,活動斷層被定義為在過去 10萬年內曾經活動過,未來可能再次活動的斷層。斷層 錯動不僅會造成地層破裂及地表變形以外,往往伴隨而 來的是強烈的加速度。過去的研究分析地震歷時發現, 靠近斷層錯動區域的地震歷時受斷層破裂的方向性影 響,垂直斷層方向的水平加速度明顯地大於平行斷層方 向的水平加速度,且速度歷時中可能會帶有高峰值的速 度脈衝,此現象被稱為近斷層效應。

然而,僅有少數的研究係以物理模型模擬斷層錯動 引致速度脈衝對地盤或結構物的影響。既有的斷層模擬 試驗箱多為以慢速靜剪動模擬斷層錯動,慢速的剪動無 法產生速度脈衝。因此本研究將設計一全新的斷層模擬 試驗箱,能夠在短時間內完成斷層錯動之模擬,以激發 速度脈衝的產生。

#### II. 主要內容

本研究設計一全新的斷層模擬試驗箱,能夠在短時 間內完成斷層錯動之模擬,以模擬近斷層效應而激發速 度脈衝之行為。以下將說明斷層脈衝試驗箱、土層模型 與速度規配置等。

#### 2.1 中央大學斷層脈衝試驗箱

本研究使用中央大學斷層脈衝試驗箱,設計圖如圖 2-1 所示,係由韋銓自動化公司製造,箱壁材料為鐵, 試驗箱正面採鏤空並崁入一塊透明壓克力板作為觀測 視窗,試驗時可藉由相機記錄土層錯動時剪裂帶發展的 過程。試驗箱總外徑為 1665mm(L) × 700mm(W) × 1570mm(H),試驗箱模擬逆斷層錯動時,內徑尺寸為 1570mm(L) × 300mm(W) × 850(H),斷層錯動係以油壓 缸驅動,搭配油壓動力組合提供試驗箱模擬斷層錯動的 驅動力,試驗箱與油壓動組合外觀如圖 2-2 與圖 2-3 所

示,油壓缸之行程為200mm、最大走速為110m/s、最大出力為2400kgf。



圖 2-1 試驗箱設計圖



圖 2-2 國立中央大學斷層脈衝試驗箱



圖 2-3 油壓動力組合

#### 2.2 加速規方向

加速規於土層中之方向定義,如圖 2-4 所示,本研 究中各量測點共有兩種加速規配置,分別為 1-D(僅 X 方向)與 3-D(XYZ 三方向)。加速規配置如圖 2-5 所示, 本研究中於試驗區分斷層錯動面上盤(hanging wall)並 包含與座標原點相同與地表面下 1 公分兩種深度,斷層 錯動面下盤(foot wall)地表面下 1 公分之單一深度。藉 由加速規可量測土層錯動後是否產生震動,加速度歷時 以及將其積分後得到擬速度 (pseudo velocity) 歷時,用 於探討速度脈衝的傳遞。



圖 2-4 加速規方向



圖 2-5 加速規配置

#### 2.3 試驗配置

本研究試驗以模型模擬方式進行,模擬不同單位重 之單一土層(15 與 35 kN/m3)於逆斷層錯動過程時三方 向土層之脈衝加速度反應,土層總厚度為 590mm,斷 層尖端傾角皆為 60 度,並記錄錯動過程中剪裂帶之發 展、斷層錯動高度與地表影響範圍。

本研究包含四組物理模型試驗,試驗代號與試驗條 件整理於表 2-1 中,試驗代號 R 代表逆斷層(Reverse fault, R),為區分不同試驗材料之英文代號為 G及 I,分 別代表礫石(Gravel, G)及鐵砂(Iron sand, I),為區分不同 色砂材料之英文代號為 G 及 I 及 S,分別代表礫石 (Gravel, G)、鐵砂(Iron sand, I)及石英砂(Sand, S),區分 加速度計量測方向之英文代號為 1D 及 3D,分別代表 1D(僅有 X 方向)及 3D(X, Y, Z 方向)。第一組試驗為逆 斷層礫石(RG)先導試驗、第二組試驗為逆斷層礫石 (RGS-1D)試驗、第三組試驗為逆斷層礫石(RGI-3D)試 驗及第四組試驗為逆斷層鐵砂(RIG-3D)試驗,當斷層錯 動直至最大垂直錯動量(200 mm)即試驗終止。

表3-2 地表影響範圍

試驗名稱	土層單 位重 (kN/m <sup>3</sup> )	座標原 點之覆 土應力 (kN/m <sup>3</sup> )	土層 材料	色砂 材料	加速度計
RG	15.26	8.85	礫石	-	-
RGS-1D	15.26	9.01	礫石	石英砂	1-D
RGI-3D	15.63	8.94	礫石	鐵砂	3-D
RIG-3D	34.99	20.65	鐵砂	礫石	3-D

#### 表2-1 試驗代號與試驗條件

#### III. 結果與討論

#### 3.1 地表影響範圍

本研究中地表影響範圍係指斷層錯動導致地表面 變形之區域,且定義為座標原點投影至地表面之點位水 平延伸至地表面變形最遠處之水平距離,並對土層厚度 進行正規化。

側向相機拍攝的斷層錯動前與斷層錯動後之試體 變化詳列於表 3-1,且地表影響範圍詳列於表 3-2。結果 顯示,當垂直錯動量達最大值時,隨各試驗之土層單位 重上升而地表影響範圍下降。

試驗 名稱	斷層錯動前	斷層錯動後
RG		
RGS- 1D		
RGI- 3D		
RIG- 3D		

表3-1 斷層錯動前後之試體變化

試驗名 稱	地表影響區 域(mm)	土層 厚度 (mm)	地表影響 範圍 (%)	土層單 位重 (kN/m <sup>3</sup> )
RG	577	580	99.5	15.26
RGS-1D	584	590	99.0	15.26
RGI-3D	550	572	96.2	15.63
RIG-3D	440	590	74.6	34.99

#### 3.2 加速度與速度歷時

本研究雖進行4組試驗,惟因篇幅有限,無法完整 描述。以下以第四組試驗 RIG-3D 結果進行說明與討論。

加速規可量測土層錯動後是否產生震動,加速度歷 時以及將其積分後得到擬速度 (pseudo velocity) 歷時, 圖 3-1 為試驗 RIG-3D 上盤於座標原點相同深度之加速 度與速度歷時,圖 3-2 為試驗 RIG-3D 上盤於地表面下 1 公分深度之加速度與速度歷時,圖 3-3 為試驗 RIG-3D 下盤於地表面下 1 公分深度之加速度與速度歷時。結果 顯示,上盤兩深度之加速度與速度歷時之反應皆大於下 盤之加速度與速度歷時之反應,各量測點之加速度與速 度歷時反應皆為 Z 方向最大; X 方向次之且 Y 方向最 小。

將速度歷時經由哈爾小波轉換後可求得該位置之 速度脈衝歷時,圖 3-4 為試驗 RIG-3D 上盤於座標原點 相同深度之速度脈衝歷時,圖 3-5 為試驗 RIG-3D 上盤 於地表面下1公分深度之速度脈衝歷時,圖 3-6 為試驗 RIG-3D 下盤於地表面下1公分深度之速度脈衝歷時。 結果顯示,各量測點產生明顯的之速度脈衝反應,且皆 為乙方向最大;X方向次之且Y方向最小。



圖 3-1 試驗 RIG-3D Hanging wall bottom 之加速度與 速度歷時



圖 3-2 試驗 RIG-3D Hanging wall top 之加速度與速度 歷時



圖 3-3 試驗 RIG-3D Foot wall top 之加速度與速度歷時



時



圖 3-5 試驗 RIG-3D Hanging wall top 之速度脈衝歷時

Mm



圖 3-6 試驗 RIG-3D Foot wall top 之速度脈衝歷時

#### IV. 結論

- 本研究完成的斷層脈衝試驗箱可以在一秒內完成20 公分的垂直錯動,並於斷層上下盤量測到加速度歷時、速度歷時與速度脈衝。
- 在逆斷層錯動下,且垂直錯動量達最大值時,隨試 驗之土層單位重上升而導致地表影響範圍下降。
- 3. 在逆斷層錯動下,上盤加速度與速度反應會大於下盤加速度與速度反應,說明近斷層效應影響,導致總體土層平行斷層方向之加速度與速度反應皆小於 垂直斷層方向之加速度與速度反應。
- 本研究設計之斷層脈衝試驗箱目前可量測到速度脈 衝壓時,因此未來可以於斷層脈動試驗箱中放置結 構物,探討近斷層效應的土壤結構互制行為;或於 正逆斷層錯動下,配置不同土層因近斷層效應而產 生的速度脈衝現象。

#### 参考文獻

- Baker, J. W., "Quantitative classification of nearfault ground motions using wavelet analysis," Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 97, No. 5, pp. 1486–1501, October 2007, doi: 10.1785/0120060255
- [2] Baker, J. W., "An Empirically Calibrated Framework for Including the Effects of Near-Fault Directivity in Probabilistic Seismic Hazard Analysis," Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 101, No. 2, pp. 742–755, April 2011, doi: 10.1785/0120100090

- [3] Chen, C.C., Huang, C.T., Cherng, R.H., and Jeng, V., "Preliminary investigation of damage to near fault buildings of the 1999 Chi-Chi earthquake," Earthquake Engineering and Engineering Seismology, Vol.2, No. 1, pp. 79-92 (2000).
- [4] Dabaghi, M.N., Stochastic modeling and simulation of near-fault ground motions for performance-based earthquake engineering, Doctoral dissertation (2014).
- [5] Dabaghi, M., and Kiureghian, A.D., "Simulation of orthogonal horizontal components of near-fault ground motion for specified earthquake source and site characteristics," Earthquake Engineering and Structural Dynamics, Vol. 47, No. 6, pp. 1369-1393 (2018).
- [6] Day, S,M., Gonzalez, S.H., Anooshehpoor, R., and Brune, J.N., "Scale-model and numerical simulations of near-fault seismic directivity," Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 98, No. 3., pp. 1186-1206 (2008).
- [7] Kelson, K.I., Kang, K.H., Page, W.D., Lee, C.T., Cluff, L.S., "Representative styles of deformation long the Chelungpu fault from the 1999 Chi-Chi (Taiwan) earthquake: Geomorphic characteristics and responses of man-made structures," Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 91, No. 5: pp. 30-952 (2001).
- [8] Vaez S.R.H., Sharbatdar, M.K., Amiri, G.G., Naderpour, H., and Kheyroddin, A., "Dominant pulse simulation near fault ground motions," Earthquake Engineering and Engineering Vibration, Vol. 12, pp. 267-278 (2013)

## 核能電廠核子保安應變計畫精進研究 Advanced Research on a Nuclear Security Contingency Plan for Nuclear Facilities

計畫編號: MOST 111-2623-E-015-001-NU 計畫主持人: 汪毓瑋 e-mail: yuhwoei.wang@msa.hinet.net 計畫共同主持人: 王智盛 計畫參與人員: 楊昭儀 執行單位:中央警察大學國境警察學系

#### 摘要

應變計畫是為應對未授權行為而預先定義的一套 行動,這些行為表明有人試圖進行未授權的轉移或破壞, 包括威脅進行轉移或破壞。所以應制定應變計畫,有效 打擊惡意行為,並由警衛或反應部隊做出適當反應。此 類計畫還應規定對設施人員的行動進行培訓。

應變計畫目標是確保各級及時有效地應對任何核 子保安事件,包括涉及或針對核設施的惡意行為,並在 其他事件期間維持實體防護,如涉及輻射性核物質釋放 的事故、醫療緊急情況或自然災害。需要在正確的時間 採取正確的行動和決策,以充分應對事件並解決問題。

完整的防護必須進行風險分析,研判設計基準威脅, 擬定各種威脅的應變計畫,包含適足的保安設施與應變 武力量能,才能維護設施與物料安全。當制定應變計畫 以滿足這些目標時,營運者應確保應急變計畫為以下各 項提供明確的指導:鑑定已發生的核保安事件類型;採 取一系列行動以應對核子保安事件;實施核子保安事件 反應所需的資源;負責實施應變計畫不同部分的各方機 構與人員;通知參與應變的各方機構與人員已發生核子 保安事件的程序。

**闌鍵詞:**全危害、設計基準威脅、風險管理、保安事件 應變計畫、演習

#### Abstract

Contingency plans are predefined sets of actions for response to unauthorized acts indicative of attempted unauthorized removal or sabotage, including threats thereof, designed to effectively counter such acts. Therefore, contingency plans should be prepared to counter malicious acts effectively and to provide for appropriate response by guards or response forces. Such plans should also provide for the training of facility personnel in their actions.

The goals of contingency planning are to ensure a timely and effective response at all levels to any nuclear security event comprising a malicious act that involves or is directed at a nuclear facility and to maintain physical protection during other events, such as an accident involving a release of radionuclides, a medical emergency or a natural disaster. The correct actions need to be taken and decisions made at the right time to adequately respond to the event and resolve the situation.

Complete protection must carry out risk analysis,

study and judge design basis threats, and draw up contingency plans for various threats, including adequate security facilities and response force capabilities, in order to maintain the security of facilities and materials. When developing a contingency plan to meet these goals, the operator should ensure that the contingency plan provides clear guidance for the following: Identification of the type of nuclear security event that has occurred; The sequence of actions that would be taken in response to the nuclear security event; The resources (including number of staff) needed to implement the response to the nuclear security event; Responsible parties for the implementation of different parts of the contingency plan; The procedure for informing parties involved in the response that a nuclear security event has occurred.

**Keywords** : All Hazard, Design Basis Threat, Risk Management, Security Contingency Plan, Exercise

#### I. 前言

保安事件應變計畫是總體核子保安計劃(Nuclear Security Plan)的一部分,涉及實體保護人員對涉及惡 意行為的核子保安事件的反應。在國際原子能總署安全 標準系列(Safety Standards Series)第7部分,《核子 或輻射緊急情況的準備和應變》(Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency)中, 「保安事件應變計畫」涉及了對核子或輻射緊急情況的 應變,無論該緊急情況是由事外事故還是惡意行為引起 的。然而,「保安事件應變計畫」和「緊急計劃」的實 施將需要實體防護、核子材料衡算和控制,以及安全人 員(safety personnel)的共同協調反應。

#### II. 主要內容

國際原子能總署強調要建立一種強有力的核子「保 安文化」(security culture),才能為整個核子保安系統 因應來自無人機、海上攻擊等多樣類型威脅之有效實現 關於「預防」、「偵測」(detecting)、「延遲」(delaying) 和「回應」等涉及輻射性物質及相關設施和運輸的盜竊、 破壞(sabotage)、擅自接觸(unauthorized access)、 非法轉移、攻擊或其他惡意行為的保安功能,提供最大 的保證。

針對前述等威脅而聚焦於核能電廠之基於保安的

應變計畫 (contingency plan)應與基於安全的緊急應變計畫 (emergency plan)的要求必須適當的協調,以確保 計畫整合,並提供有效的應變。亦即是作為安全計畫與 保安計畫的中介 (interfaces)

當偵測與評估一個惡意行為後,保安事件應變計畫 就應該啟動。保安事件的案例,包括:未經授權的轉移 核物料;破壞重要設備;可能的內部知情者威脅;核電 廠的抗議活動;核電廠的犯罪活動;人質情況等。

保安事件應變計畫為以下各事項提供明確的指導: 1. 識別已發生的核子保安事件類型;

2. 採取一系列行動以應變核子保安事件;

實施核核子保安事件應變所需的資源,包括工作人 員數量;

- 1. 負責實施應變計畫不同部分的各方人馬;
- 通知參與應變的各方人馬已發生核子保安事件的程 序。

#### III. 結果與討論

依據 2012 年《核物料和核設施實體防護之核子保 安建議第五版》(INFCIRC/225/Revision 5)的規範,所有 執照持有者和有關當局應制訂並適當執行應對擅自轉 移核物料或蓄意破壞核設施或核物料或者此類企圖的 應變(緊急情況)計畫。國家主管部門應當確保營運者 制訂應變計畫,以有效應變威脅評定或設計基準威脅, 同時考慮到應變回應部隊。營運者的應變計畫應作為保 安計畫的一部分並經國家主管部門批准。且要求在核保 安計畫的一部分並經國家主管部門批准。且要求在核保 安計畫的一部分並經國家主管部門批准。此要求在核保 安事件期間,警衛與應變部隊之間的協調工作應當定期 進行。此外,其他設施人員還應當接受培訓,並準備好 在與警衛、應變部隊和執行計畫的其他應變團隊充分協 調的情況下開展工作。強調應當制訂安排,以確保在應 變情況和行動期間維持實體防護系統的有效性。營運者 應當在對任何惡意行為進行偵查和評定之後啟動應變 計畫。

對核子保安的威脅,涉及了罪犯或恐怖分子為惡意 目的之獲取和使用:

- 1. 核武器;
- 用於製造臨時拼凑(improvised)的核爆炸裝置的核 物料;
- 可對個人或環境造成傷害的輻射性物質,包括製造 輻射擴散裝置(radiological dispersal devices, RDDs) 和輻射曝露裝置(radiological exposure devices, REDs)。此種威脅還可以包括:
- 通過破壞存有輻射性物質的設施,或破壞運輸中的 輻射性物質來散佈放射性物質。這些威脅可以是外 部/內部威脅。

為了應對核子保安威脅所制定之保安事件應變計 畫的要素,包括了:目標;核子設施的實體佈局、現場 環境和潛在鎖定目標;實體防護系統概述;設計基準威 脅或威脅評估的應用;核子保安事件應變期間的角色和 責任描述;啟動應變計畫的標準;交戰守則;回應規劃; 廠內應變武力;廠外應變協議;核物料回收和恢復;指 揮、控制和通訊;運作概念;維護電訊靭性;在現場控 制媒體訪問;圖、表及附件;制定補充應變計畫的程序; 應變計畫的評估等十八項。

保安事件應變計畫擬定後必須有效的維護與實踐, 其中涉及了保安事件應變計劃演習,包括桌上推演、實 兵對抗、有限範圍測試、課堂講座、現地勘查等,以使 人員熟悉設施和部隊演習或其他活動等。其次,要確保 保安事件應變計畫的可持續性,亦即在設施生命週期的 每一個階段都應考慮應變計畫。每一個階段都有與之相 關的行動,需要在應變計畫中解決。相關工作包括對應 變計畫進行定期和獨立的檢討、評估、審計;在人員、 程序、設備或設施發生可能影響應變計畫的任何變化後, 應盡快合理地更新應變計劃;定期審查與應變計畫以及 執行組織所遵循的任何程序的相互操作性;定期或在必 要時審查與應變計畫相關的協議,以確保符合性能要求; 以及保留與應變計畫審查相關的所有記錄等。第三、要 注意資訊安全,亦即只應提供給那些需要該資訊的人員; 使用加密或其他安全手段,將與應變計畫相關或從應變 計畫中提取的敏感資訊傳達給外部方;與應變計畫相關 或從應變計畫提取的敏感資訊應存儲在安全(出入控制) 系統;以適當程序確保對核保安事件至關重要的任何資 訊的完整性和可用性,包括:資訊系統,如偵測和評估 系統;和通訊系統。

此外,亦必須注意保安事件應變計畫和緊急應變計 畫的銜接。因為「保安事件應變計畫」是總體核子保安 計畫的一部分,涉及實體保護人員對涉及惡意行為的核 子保安事件的反應。「緊急應變計畫」涉及對核子或輻 射緊急情況的反應,無論該緊急情況是由意外事件還是 惡意行為引起的。「保安事件應變計畫」和「緊急應變 計畫」的實施將需要實體保護、核物料料帳管控,以及 安全人員的協調應變。兩項計畫仍有重疊的地方,包括 了:廠房設計;計劃和程序;組織結構(含角色與責任 及統一的指揮控制系統);執行應變(與計畫有關的事 件評估、行動協作);通訊;恢復;訓練和演習等。

#### IV. 結論

緊急計畫與應變計畫不同,應變計畫是在緊急計畫 的基礎上再強化保安領域之系列應變作為所擬定的計 畫,兩者之間是互補的性質,而保安計畫的目的是要使 應變武力能夠更聚焦的應變破壞與盜竊核物料等異常 事件,並與緊急應變人員能有更好的協作。在擬定應變 計畫时,必須從核子保安文化、核子保安制度之範疇去 進行瞭解。而就保安文化言,包括了人的因素和管理工 作的領導,明確的角色和責任,確定工作人員的可信賴 度,與監管者和執法機構的相互關係,與廠外組織的協 調內容等。而從核子保安制度言,關注的是立法和監管 框架,對核子保安事件計畫的制訂、準備和回應,預防、 偵測和回應核保安事件的核保安系統和核保安措施等 之制度化發展。

設計基準威脅是核電廠安全維護的基礎,應用於設 計保防系統,以防止輻射性破壞行為和防止特殊核物料 的盜竊或轉用,有三種不同的監管途徑,並且涉及到核 子保安威脅評估、和代表性威脅聲明的結合運用。在實 踐上,國際原子能總署、美國聯邦緊急事務管理總署、 英國及我國等均有緊急計畫等之設計,內容大概涉及應 變與復原等諸多工作,所有諸要素與要求例如不同類別 的回應者之功能發揮等。此外,在進行應變計畫之擬定

前,也必須關注核或輻射緊急情況與其他異常事件或緊 急情況結合的準備和回應,亦即不能只思考單一事件, 而必須從複合的角度去檢視,而日本福島核災就是一個 值得持續探討的例子。

計畫擬的再好,但沒有實踐去測試可能仍不能證明 其功效及應該持續改進之處。因此,要關注比較新的攻 擊情節,例如無人機與海上攻擊,要探討這些攻擊者之 戰術與能量,以此作為設計基礎威脅必須涵蓋的內容。 而經由前述的這些資料之分析與思考,可以提出我國應 變計畫應有的要素內容,要能夠有效的維護應變計畫, 以及應變計劃和緊急計劃的銜接。而計畫維護的最重要 工作之一就演習,除了桌上推演與實兵對抗檢查外,紅 藍桌上對抗演練之持續優化也是必須持續努力的方向。

#### 參考文獻

中文書籍

- [1] 汪毓瑋。國土安全。下冊。台北:元照出版社。
   2021年3月。
- 〔2〕汪毓瑋。恐怖主義威脅及反恐政策與作為。下冊。 台北:元照出版社。2016年5月。

政策報告

- 〔1〕行政院原子能委員會。原能會公告修正「核子事故緊急應變基本計畫」。2014年9月26日。
- [2] 行政院原子能委員會。核能一廠緊急應變計畫。 110年7月。

英文書籍

- Flynn, Steve. The Edge of Disaster: Rebuilding a Resilient Nation. American: Random House. February 20, 2007.
- [2] Perdikaris, John. Physical Security and Environmental Protection. New York: CRC Press. 2014.

- [1] Carlisle, Tamsin. "Bin Laden's Oil Tanker Terror Plan". May 22, 2011.
- [2] Chalk, Peter. The Maritime Dimension of International Security-Terrorism, Piracy, and Challenges for the United States. RAND. 2008.
- [3] Chang-won, Lim. Government project launched to develop drone cops for safety of nuke power plants. April 19, 2021.
- [4] DHS. National Response Framework. Fourth Edition. October 28, 2019
- [5] EGOZI, ARIE. Iranian Nuke Centrifuge Plant Badly Damaged By Drones. June 25, 2021.
- [6] Frittelli, John F.. Port and Maritime Security: Background and Issues for Congress. Congressional Research Service. May 27, 2005.
- [7] Gordon, Ian. "Piracy and Terrorism", Background Asia Risk Solutions. September, 2003.
- [8] Holt, Mark & Anthony Andrews. Nuclear Power Plant Security and Vulnerabilities. Congressional Research Service, RL34331. January 3, 2014.
- [9] Homeland Security Department. "Remarks by Under Secretary Charles Allen at the Maritime Security Council". Oct. 7, 2008.
- [10] Larson, Aaron. Terrorist Drones Could Pose

Threat to Nuclear Plants., Jan 12, 2016.

- [11] Lochbaum, David. Drones at nuclear power plants: enemies or helpers?. March 23, 2015.
- [12] Maritime Security: Federal Efforts Needed to Address Challenges in Preventing and Responding to Terrorist Attacks on Energy Commodity Tankers. Government Accountability Office. Dec. 2007.
- [13] Parfomak, Paul W. and John Frittelli. Maritime Security: Potential Terrorist Attacks and Protection Priorities. Congressional Research Service. Jan. 9, 2007.
- Patteson, Callie. DESERT DRONE PUZZLE
   'Drone swarms' that flew over Arizona nuclear reactor remain MYSTERY as federal probe ends with no answers. July 30, 2020.
- [15] Pelkofski, James. "Defeating Terrorists on the Waterfront ". Military.com. June 2004.
- [16] "Piracy takes higher toll of seamen's lives". ICC Commercial Crime Services. January 28, 2004.
- [17] POLICE ORGANIZATION–INTERPOL, UNITED NATIONS INTERREGIONAL CRIME AND JUSTICE RESEARCH INSTITUTE. Radiological Crime Scene Management. IAEA Nuclear Security Series No. 22-G. 2014.
- [18] Ranson, André. HE 2014 UAV THREAT TO FRENCH NUCLEAR POWER PLANTS. NDSGD report. October 2015.
- [19] "Security in Maritime Transport: Risk Factors and Economic Impact" (Executive Summary).
   Maritime Transport Committee of OECD. July 2003.
- [20] The radar platform Company. Protecting Critical Infrastructure from Drones. 2020.
- [21] U.S. Department of Homeland Security. Cybersecurity and Infrastructure Security Agency, National Critical Functions Status Update to the Critical Infrastructure Community. July 2020.
- [22] U.S. NRC. Frequently Asked Questions About Force-on-Force Security Exercises at Nuclear Power Plants.
- [23] WHEELER, CAROLINE. TERROR THREAT ALERT: UK's nuclear plants are at SERIOUS risk of terrorist drone strikes. Feb 23, 2015.
- [24] Yaacoub, Jean-Paul. Hassan Noura, Ola Salman, and Ali Chehab. Security analysis of drones systems: Attacks, limitations, and recommendations. May 8, 2020.
- 國際原子能總署文件
- [25] IAEA. Developing a Nuclear Security Contingency Plan for Nuclear Facilities. IAEA Nuclear Security Series No. 39-T. 2019.
- [26] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, INTERNATIONAL CRIMINAL POLICE ORGANIZATION–INTERPOL. Risk Informed Approach for Nuclear Security Measures for Nuclear and Other Radioactive Material out of Regulatory Control. IAEA Nuclear Security Series No. 24-G. 2015.
- [27] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, INTERNATIONAL CRIMINAL

政策報告

POLICE ORGANIZATION–INTERPOL, UNITED NATIONS INTERREGIONAL CRIME AND JUSTICE RESEARCH INSTITUTE, Radiological Crime Scene Management, IAEA Nuclear Security Series No. 22-G. 2014.

- [28] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, Planning and Organizing Nuclear Security Systems and Measures for Nuclear and Other Radioactive Material out of Regulatory Control, IAEA Nuclear Security Series No. 34-T, IAEA, 2019.
- [29] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Amendment to the Convention on the Physical Protection of Nuclear Material, GOV/INF/2005/10-GC(49)/INF/6. 2005.
- [30] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Application of the Management System for Facilities and Activities. IAEA Safety Standards Series No. GS-G-3.1. 2006.
- [31] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Building Capacity for Nuclear Security: Implementing Guide, IAEA Nuclear Security Series No. 31-G. 2018.
- [32] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Communication with the Public in a Nuclear or Radiological Emergency. EPR-Public Communications 2012. 2012.
- [33] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Computer Security at Nuclear Facilities. IAEA Nuclear Security Series No. 17. 2011.
- [34] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Developing a National Framework for Managing the Response to Nuclear Security Events: IMPLEMENTING GUIDE. IAEA Nuclear Security Series No. 37-G. 2019.
- [35] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Developing a Nuclear Security Contingency Plan for Nuclear Facilities, IAEA Nuclear Security Series No. 39-T. 2019.
- [36] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Development, Use and Maintenance of the Design Basis Threat. IAEA Nuclear Security Series No. 10. 2009.
- [37] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Method for Developing Arrangements for Response to a Nuclear or Radiological Emergency. EPR-METHOD 2003. 2003.
- **INTERNATIONAL** [38] ATOMIC ENERGY AGENCY. National Nuclear Security Threat Assessment, Design Basis Threats and Representative Threat Statements. IAEA NUCLEAR SECURITY SERIES No. 10-G (Rev. 1). 2021.
- [39] International Atomic Energy Agency. Nuclear Security Culture: Implementing Guide. IAEA Nuclear Security Series No. 7. 2008.
- [40] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear Security Recommendations on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (INFCIRC/225/ Revision 5). IAEA Nuclear Security Series No. 13. 2011.

- [41] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear Security Recommendations on Radioactive Material and Associated Facilities. IAEA Nuclear Security Series No. 14. 2011.
- [42] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear Security Systems and Measures for the Detection of Nuclear and Other Radioactive Material out of Regulatory Control. IAEA Nuclear Security Series No. 21. 2013.
- [43] International Atomic Energy Agency. Nuclear Security: Global Directions for the Future (Proc. Int. Conf. London, 2005). 2005.
- [44] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Objective and Essential Elements of a State's Nuclear Security Regime. IAEA Nuclear Security Series No. 20. 2013.
- [45] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities (Implementation of INFCIRC/225/Revision 5). IAEA Nuclear Security Series No. 27-G. 2018.
- [46] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency: General Safety Requirements. No. GSR Part 7. 2015.
- [47] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Preparedness and Response for a Nuclear or Radiological Emergency Combined with Other Incidents or Emergencies. 2020.
- [48] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Preventive and Protective Measures against Insider Threats. IAEA Nuclear Security Series No. 8-G (Rev. 1). 2020.
- [49] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Security of Nuclear Material in Transport. IAEA Nuclear Security Series No. 26-G. 2015.
- [50] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. The Management System for Facilities and Activities. IAEA Safety Standards Series No. GS-R-3. 2006.
- 美國聯邦緊急事務管理總署文件
- [51] FEMA. Criteria for Preparation and Evaluation of Radiological Emergency Response Plans and Preparedness in Support of Nuclear Power Plants. December 2019.
- [52] FEMA. Developing and Maintaining Comprehensive Preparedness Guide (CPG) 101 Version 2.0. November 2010.
- [53] FEMA. Developing and Maintaining Emergency Operations Plans Comprehensive Preparedness Guide (CPG) 101 Version 3.0. September 2021.
- [54] FEMA. Developing and Maintaining Emergency Operations Plans: Comprehensive Preparedness Guide. September 2021.
- [55] FEMA. Developing and Maintaining Emergency Operations Plans: Comprehensive Preparedness Guide. Version 2.0. November 2010.
- [56] FEMA. Understanding Your Risks: Identifying Hazards and Estimating Losses, provides a detailed method for conducting hazard and risk

assessments for many hazards. FEMA Publication 386-2.

- [57] FEMA. National Disaster Recovery Framework. Second Edition. June 2016.
- [58] FEMA. National Incident Management System. Third Edition. October 2017.
- [59] FEMA. National Preparedness Goal, Second Edition. September 2015.
- [60] FEMA. National Prevention Framework. Second Edition, June 2016.
- [61] FEMA., Developing and Maintaining Emergency Operations Plans Comprehensive Preparedness Guide (CPG) 101 Version 3.0. September 2021.

## NTI 核子保安國際評比之評估研究 Nuclear Safety Perceptions and the Development of Nuclear Energy Policy

計畫編號:MOST 111-NU-E-262-002-NU 計畫主持人:宋大崙 e-mail:tlsung@gm.lhu.edu.tw 計畫共同主持人:李九龍 計畫參與人員:林中正 執行單位:龍華科技大學化工與材料工程系(所)

#### 摘要

台灣的 2020 年版 NTI (Nuclear Threat Initiative, NTI,核子威脅倡議)指數有兩項排名,(1)Sabotage(防 範破壞) 及(2) Theft without material (防範盜竊-沒有核 武物料)。台灣 2020 年版 NTI(防範破壞)為 53 分較 2016 年增加兩分但與 2018 年持平,台灣 2020 年版 NTI(防 範盜竊-沒有核武物料)為 62 分較 2016 年增加 4 分,較 2018年增加1分,顯示台灣在核子保安方面的努力得 到國際上的肯定。NTI 指數是美國非政府組織「核子威 脅倡議」,委託經濟學人智庫 (Economist Intelligence Unit, EIU) 建構核子保安 NTI 指數(2020年 NTI 指 數),進行175個國家和台灣的核子保安評比。NTI的 評比範圍逐年擴增,包含國家政策、實體防護、適職方 案、內部破壞、資通安全、國際合作及風險環境等。評 比方式以各國公開可取得之資料為主,輔以各國主動提 供之資料。本研究為研究 NTI 核子保安評比結果報告, 聚焦於原能會對核能電廠保安防護的管制範疇,就其方 法論與評比項目分析台灣再精進之空間及困難點,藉此 檢視不足,尋求解決方法,並強化優勢,健全台灣核子 保安量能,與國際規範同步,以提升台灣核子保安國際 評比之成績。

**關鍵詞:**防範破壞、NTI 指數、威脅

#### Abstract

Taiwan's 2020 NTI Index has two NTI indexes. Sabotage: Protecting Facilities and Theft: Support Global Efforts. NTI (Sabotage: Protecting Facilities) NTI is 53 points, two points higher than in 2016 but the same as in 2018. NTI (Theft: Support Global Efforts) is 62 points, 4 points higher than in 2016, and an increase of 1 point from 2018. These NTI indexes show that Taiwan's efforts in nuclear security have been recognized internationally. The NTI Index is a US non-governmental organization "Nuclear Threat Initiative" (NTI), which commissioned the Economist Intelligence Unit (EIU) to develop the NTI Nuclear Security Index (2020 NTI Index) to conduct nuclear security evaluations in 175 countries and Taiwan. The scope of NTI's evaluation has been expanded year by year, including national policies, physical protection, fitness programs, insider, information security, international cooperation, and risk environment. The evaluation method is mainly based on the publicly available information of each country, supplemented by the information provided by the country. This study is to study the NTI nuclear security evaluation results report, focusing on the scope of the security of nuclear power plants, and analyzing the difficulties of Taiwan's further improvement with respect to its methodology and evaluation items. The goals of this study are not only to strengthen the advantages, and to improve the nuclear security capacity, but also to improve the performance of nuclear security international appraisal.

Keywords: Sabotage, NTI, Threat

#### I. 前言

核子保安(nuclear security), IAEA 的定義 [1]為「涉 及核物料、其他放射性物質或其相關設施的盜竊、破壞、 未授權進入、非法轉移或其他惡意行為的防範、偵查及 應變」。避免核物料的盜竊、非法使用及防範核設施被 破壞導致嚴重的放射性物質外洩,而不致威脅人民生命 安全,是核子保安重要的目的。美國非政府組織「核子 威脅倡議」(Nuclear Threat Initiative, NTI),發展核子保 安效能評比的量化方法建立 NTI 指數(NTI Index) [2], 並以此評比追蹤核子保安改善情況,推動國家強化核子 保安,確保國際社會共同提升在人力、技術、法制及執 行面上,保管好核物料安全及防範核設施被人為破壞能 力; 自 2012 年起採用經濟學人智庫(Economist Intelligence Unit, EIU)評比模式,針對目前全球各國家 「防範核物料被偷竊(Theft)」的狀況進行評比,並分成 「擁有核武器級核物料(with materials)」與「非擁有核 武器級核物料(without materials)」國家兩種範疇進行比 較;而自 2016 年起,新增針對各國核設施「防範人為 破壞(Sabotage)」的評比項目,受評對象是已具有核子設 施(含核能電廠)的國家,以及已經計劃在未來興建核能 電廠的國家等共 45 國家;並且每兩年針對以上防範破 壞(Sabotage)及防範盜竊(Theft)兩項核子保安績效,進 行排名(Ranking); 2020 年開始-放射源保安評估 (Radioactive Source Security Assessment) -- dirty bombs- 但目前無排名並非指數評比。台灣自 2012 年開 始參加 NTI 指數保安評比,雖然部分項目因台灣國際 地位及處境關係而難以得分,但核子保安管制成果已受 到國際肯定,本研究分析 NTI 指數 2020 年台灣核子保 安的排名及分數,針對台灣主管機關對核能電廠保安的

管制範疇,提出建議。

#### II. 台灣 2020 年版 NTI 指數

台灣的 2020 年版 NTI 防範破壞及盜竊指數,分別 如表1及表2,及與2018年的NTI指數之比較。總分 與 2018 年相較, 防範破壞活動-保護設施的 NTI 指數並 無改變,較2016年增加兩分;防範盜竊-沒有核武物料 的 NTI 指數則是增加 1 分,較 2012 年增加 10 分。可 以看出台灣在核子保安績效方面的努力。在類別項目上, 成績分數最差的是第三類別 Global Norms 在防範破壞 活動的分數 2020 年由 25 分降至 22 分,原因是台灣的 國際地位無法參加 NTI 指數所列的國際活動,且 2020 年增加相關國際合作指標項目,而台灣皆0分。防範盜 竊的分數則是維持 29 分。第 4 類別 Domestic Commitments and Capacity, 屬於國家承諾與能力, 防範 破壞方面增加了核子保安機關的獨立性,因判定台灣此 項0分,所以第4類別分數為42分;但防範盜竊指數 的第4類別,僅考慮 CPPNM 及 UNSCR1450;因此第 4類別為100分;防範破壞與盜竊指數相同類別中最大 差異的。第5類別是國家政府的環境,國際情勢、貪汙、 民眾抗議示威情形等環境安全風險等指標,分數的資料 來源是 EIU 針對 900 多個國家的 Risk 分析。防範破壞 指數第五類別由 2018 年的 78 降至 76;而防範盜竊指 數的第五類別則是 2012 年的 71 分升高至 2020 年的 77 分。2022 年中美情勢緊張,台灣因地緣政治的影響, 2022 年 8 月中國已經進行台灣海峽的軍事演習,這方 面的分數應該會有影響。

表	1	台灣的	2020	年版	NTI	指數(Sabotage,	防範破壞
				活動	7-保護	[設施]	

類別/年	2020	2018	2016
Number of Sites	60	60	60
Security and Control Measure	68	66	64
Global Norms	22	25	25
Domestic Commitments and	42	42	42
Capacity			
Risk Environment	76	78	73
Overall Score	53	53	51

表 2 台灣的 2020 年版 NTI 指數(Theft without materials, 防範盜竊-沒有核武物料)

NTI 指數/年	2020	2018	2016	2014	2012
Global Norms	29	29	29	23	23
Domestic	100	100	91	91	83
Commitments					
and Capacity					

NTI 指數/年	2020	2018	2016	2014	2012
Risk	77	75	70	73	71
Environment					
Overall Score	62	61	58	56	52

防範盜竊分數為第三至第五類、防範破壞則是第一 至第五類,其中三至五類類別相同,僅部分次指標稍有 差異,因此本研究將以防範破壞類別的一至五類作為討 論。圖 1 為台灣防範破壞活動-保護設施的 NTI 指數五 項類別的雷達圖,由圖可以看出台灣在 security and control measures 及 risk environment 兩項分數超越其 平均值;而其他三項除了第一項 number of sites 無法 改變外, security and control measures 高於平均,顯示台 灣在實質的核子保安的業務上的努力; global norms 及 domestic commitments and capacity 兩項則低於其平 均分數。因為 global norms 著重於國際的互動支持參與 IAEA 的核子保安活動,而 domestic commitments and capacity 多是各國政府對於國際 IAEA 的支持,台灣非 IAEA 會員國較為困難達成 NTI 指數項目需求。





本研究是以管制機關在核能電廠保安的管制範疇 的討論為主,所以第一類(數量和廠址)及第五類(風險環 境)的分數不是目前主管機關對於核子保安的管制範疇, 以下將不討論。第三類(全球規範)及第四類(國內承諾和 能力)有許多國際協議及國際承諾的項目,雖然台灣不 是 IAEA 的會員,無法參加國際會議或相關活動,但主 管機關於國際合作的努力,亦獲得 NTI 的認可。

第二類別 Security and Control Measures(核子保安 及控制措施),針對核子設施的保護進行評比,主要的 指標有:physical protection(實體保護)、control and accounting procedure (核物料的控制及料帳程序)、 Insider threat prevention(防範內部威脅)、response capability(應變能力)、cybersecurity(資安)及 nuclear culture(核子保安文化)。由圖 2 雷達圖可以看出,台灣 有三項 NTI 指標高於平均值,2.2 Control and Accounting Procedures、 2.3 Insider threat prevention 和 2.5 Cyber Security 高於平均,顯示台灣在核物料控制及防範內部 威脅,其努力成果高於平均;此外指標 2.5 Cyber Security 達到 100 分,2020 年僅有台灣與羅馬尼亞獲得 100 分, 歸功於在於台灣實施資通安全法,且對於關鍵設施進行 實地的資安測試;但資安威脅因數位科技發展迅速而快
速成長,管制的腳步也須加速以防止資安造成的威脅, 台灣須持續努力。顯示台灣在資通安全方面的努力。其 餘三項除核子保安文化因台灣實施核安文化將核子保 安文化納入其中,NTI 指數則是需要將核子保安文化獨 立實施,分數低於 60 分;其他兩項實體防護及應變能 力,皆高於 60 分顯示台灣這兩方面的努力成果獲得肯 定。



圖 2 台灣 NTI 防範破壞指數第二類別指標分數的雷 達圖

#### III. 台灣 NTI 分數精進研究

台灣在許多核子保安的指標方面得到很好的成績, 但有些部分可以再加強,部分次指標分數認知可能與 NTI 解讀不同,而未能得到應該的分數。第一類(數量和 廠址)及第五類(風險環境)的分數不是目前主管機關對 於核子保安的管制範疇,刪除第一及第五類的次指標, 其他次指標的總數為53個,分3大類:獲得滿分者, 獲得部分分數者及0分者,分別為24個、8個及21個; 如將其分類為(1)廠內的實體防護(2)核物料控制及料帳 (3)防範內部威脅(4)應變能力(5)資安(6)核子保安文化(7) 國際合作及(8)其他。圖3為各類次指標得分情形,資安 類次指標全部獲得滿分,核物料控制類無零分項目,滿 分項目高達 80%;防範內部威脅及應變能力滿分項目也 高達 60%。而核子保安文化及國際核合作類零分的比例 最高 66%。



#### (一)廠內實體防護

核能電廠依照法規及設計,提出保安計畫[3],且依 其保安要求不同劃分為控制區、保護區、緊要區,對於 可能造成高放射性事故後果之設備、系統或核物料,均 劃分在緊要區內加強保護,緊要區位於保護區之內,保 護區外圍為控制區。

原能會可透過駐廠視察員及 24 小時全年無休之核 安監管中心,隨時掌握核能電廠的保安狀況。保安計畫 的修訂情形,台電公司「保安計畫作業指引」,原則上 參考美國法規 1985 年版 10CFR73.1 設定的設計基礎威 脅(Design Basis Threat, DBT);至少每雨年要審視其實 體防護計畫的要項,包含 DBT。行政院原子能委員會 102 年度施政績效報告 [4]提到,原能會辦理緊急應變 計畫每 5 年修訂之審查與保安計畫指引修訂審查及各 項視察。原能會依據國際最新核子保安規定與原能會管 制要求,2018 年 4 月完成核一、二、三廠保安計畫內 容修訂之審查 [5],強化台灣核能電廠保安設施與作業 程序。此外依據「核能發電廠保安事件應變計畫」,應 變處置核能電廠發生保安威脅事件時,其威脅或危機經 評估,如超出核能電廠駐衛保警的防衛能力,核能電廠 可向鄰近的警察機關及國軍部隊請求支援。

原能會每年定期辦理核子保安訓練(包含國內及國際)[6,7],如國際核子保安實體防護訓練課程(ITC),及 邀請美國能源部核子保安局(DOE/NNSA)及核能管制 委員會(NRC)派遣核子保安專家來台講授訓練課程;並 對於運轉中各核能電廠,每年均按依照「核子事故緊急 應變法施行細則」 [8]規定辦理一次保安反恐演練,依 照真實威脅情況,評估核子保安系統的效能;廠內及廠 外的聯合演習,包含國防軍隊及警察等。

此項目次指標有兩項滿分,分別是實體防護及廠內 核子保安評估審視,有2個NTI次指標未達滿分;一 個零分及一個獲得部分分數;分別是DBT及保安防恐 演練評估的項目;評估後認為或許是NTI的認知不同。

其精進作法:為要求核設施使用 DBT 的觀念,並 公開資料顯示 DBT 的更新情形。如要求核能電廠依法 規每兩年審視實體防護計畫的要項時,註明 DBT 的審 視。原能會網站已經說明了定期辦理保安防恐演練,增 加說明有反映真實威脅情況的評估及依照真實情況武 裝反恐演練。

#### (二)物料控制及料帳

共有5個次指表,僅有1個次指標部分得分,其餘 滿分;未得分原因是台灣物料控制及料帳,法規是否有 國際的導則(guideline)及強制性規定(compliance enforcement requirements); EIU 不認為有國際導則,因 而只給1分

精進作法:因為簽署與IAEA的核子保防合約,因 此就有法律規範,可在網站說明料帳系統是根據(IAEA) 所定的國家核物料料帳系統 (SSAC)所訂定。

說明:放射性物料管理法 [9];"主管機關得依台灣 與其他國或國際原子能組織所簽訂之核子保防相關條 約或協定,督同外國或國際原子能組織所派之檢查員執 行各項檢查及偵測,並要求經營者檢送指定之資料;所 需繳交國際原子能組織之核子保防檢查費由設施經營 者負擔。"; AEC 與 USA 及 IAEA 三方保防協議, IAEA guidelines INFCIRC/153, INFCIRC/158 and INFCIRC/540. 應為國際 Guideline,且應該 include compliance enforcement requirements 。台電公司的料帳 管理計畫中明訂是依據原能會「核子保防作業辨法」

[10],且核物料料帳與控制系統,是依據國際原子能總署 (IAEA) 所定的國家核物料料帳系統 (SSAC) 所訂定,因此其導則(guideline)就是 IAEA 的 SSAC。

#### (三)防範內部威脅

有5個次指標,未滿分的次指標有兩個,1個部分 得分及1個零分;主要是監視及認知的部分:

次指標 2.3.4) Surveillance 此項評估是在緊要區,是 否有兩人監視(two-person surveillance system)及科技監 視(technological surveillance system) 台灣分數是 1; EIU 認知只有一項。

精進做法:目前台電保安計畫已經執行兩人監視執 行重要設備之操作或存取核物料及緊要區進出管制口 裝設警報及監視系統,應嚴格執行,可於網站描述目前 的狀況。或修法更新要求緊要區內需裝監視系統及在緊 要區及進入時須兩人同行的規定。

說明:依據保安作業指引第8.3節,持照者應要求 重要設備之操作或存取核物料時須二人作業。重要設備 之操作包括主控制室運作,而主控制室就位於緊要區。 所以,在緊要區一直執行「兩人規定」。科技監視系統: 「保安作業指引」第3.1.3.6節規定,廠區內緊要設備 區之重要進出管制口、逃生門等應設閉路電視及警報系 統。此外,在緊要區內必須裝置 CCTV 或電子監視系 統。依據「保安作業指引」第3.1.3.4節,緊要區內應規 劃電腦門禁監控系統,以提高保安效果。

次指標 2.3.5) Insider threat awareness program 是否 有內部威脅認知計畫,且定期更新;台灣獲得 0 分,應 該是 EIU 認為無此計畫並定期更新。

精進作法:可以要求台電公司依照法規提出或說明 Insider threat awareness program,訓練課程及廠內防範 內部威脅的倡議(initiative);含有誰參加及倡議的進 行,此外以核子保安文化為主軸,這是很重要的一個項 目。

說明:法規「核子反應器設施運轉執照申請審核辦 法」第8條規定核能電廠保安計畫應載明內容,其第八 章(應為第8項要求)為「保安事件應變及防範內部破壞 措施」。在此章持照者應敘述防範內部威脅的措施,及 為提升內部威脅認知而對所有員工實施的訓練。台電公 司保安計畫作業指引第8.3節「防範內部破壞措施」規 定,電廠各階層主管、工安管理員、檢驗員及駐廠保安 警察隊人員應加強走動管理、巡邏等作為,注意所屬員 工言行,如有異常應即時反映處理,以適時適切防範內 部破壞案件之發生。依據電廠保安計畫第 1.4.2.3 節, 每位員工 (含包商)每年必須接受核子保安訓練,訓練 內容包括「核子保安文化」,要求員工認知內部威脅, 回報可疑的現象而無須擔心受到懲戒。108年1月31 日召開的「108 年核能電廠核子保安議題討論會」,原 能會要求台電公司參考 IAEA 核子保安系列第 8 號文 件 Preventive and Protective Measures against Insider Threats,要求電廠全體員工對於異常行為觀察與通報當 作強制義務。這個要求已經納入電廠保安計畫及作業程 序書,已進行全廠宣導。

#### (四)應變能力

共有5項次指標,有2個次指標0分其餘滿分;主

要是核設施基礎保護計畫及廠內及廠外應變組織的聯合演習。

次指標 2.4.4) Nuclear infrastructure protection plan 是否有針對發生人為或天然災害時之核設施實體防護 計畫?EIU 認為沒有,因此台灣分數為0。

精進作法:台灣有針對發生人為或天然災害時之核 設施實體防護計畫,但 EIU 認為沒有,可以在網站上描 述發生人為或天然災害時如何保護核子設施,作為公開 資料的提供。

說明:「核子反應器設施運轉執照申請審核辦法」 [3] 第 8 條規定核能電廠保安計畫應載明內容,其第八 章(應是第8項要求)「保安事件應變及防範內部破壞措 施」要求制訂保安事件應變計畫及防範內部破壞措施。 當發生人為惡意事件,核能電廠保安人員應採取保護核 設施基礎建設的實體防護措施,都敘述在保安事件應變 計畫中;當發生天然災害,核能電廠被要求必須採取實 體防護措施、這些要求規定於各電廠作業程序書。以核 二廠為例,保安作業程序書 106.1 「與地區兵警治安單 位聯絡及請求支援程序書」規定「重大事故涉及不可抗 拒之天然災害,應依作業程序通報駐(地)區兵警力單 位迅速支援」;作業程序書 106.7「緊急搶修及大修期 間廠房內門禁管制程序書」規定天然災害期間與之後的 門禁管制;作業程序書 106.10「保安偶突發事件或國土 安全事件通報作業程序書 則規定當天然災害導致保安 事件或威脅時的通報程序。每個核能電廠都有相對應的 保安作業程序書,並接受原能會視察員之視察。「國土 安全緊急通報作業規定」[11]國土安全事件通報流程 圖中,明確的將事件分為危安預警情資、人為疏失事件、 重大人為危安事件或恐怖活動、災害事故及資安事件; 因此核能電廠屬於關鍵基礎設施,因此必然有對應於人 為危安事件或天然災害的實體防護計畫。

次指標 2.4.5) Response coordination capabilities 廠 內及廠外的聯合演習 EIU 認為沒有,因此台灣分數為 0。EIU 曾詢問台灣核能電廠至少四年內必須完成一次 的防恐的演習,是否必須包含廠內廠外的聯合演習,緊 急應變程序中是否有要求廠內廠外聯合演習並詢問是 多久一次?台灣的回應如說明,事實上台灣每年都有緊 急應變聯合演習,包含防恐的演習,因此可以將聯合演 習的資訊併入說明。

精進作法:此題目有點鑽牛角尖,或是混淆,(1)目 前規定的4年必須完成所有規定演習項目至少一次,加 入聯合演習的項目,(2)仔細說明緊急應變計畫區,依 核定之緊急應變基本計畫辦理聯合演習,而廠外武力每 年參加一次與廠內應變武力的廠內聯合訓練,(3)網站 中說明聯合演習的情形。

說明:「核子事故緊急應變法」[12]第15條規定, 中央主管機關應定期擇定一緊急應變計畫區,依核定之 緊急應變基本計畫辦理演習。指定之機關、地方主管機 關、核子反應器設施經營者及公、私立學校、機關(構)、 團體、公司、廠場、民眾應配合執行演習。這項演習即 為「核安演習」。依據演習劇本的設計,必要時,廠內 緊急保安隊會參加與廠外應變隊的演練。電廠保安作業 程序書「與地區兵警治安單位聯絡及請求支援程序書」 規定「重大事故涉及聚眾圍廠事件、偷渡走私或不法份 子武力攻擊,超過本廠駐廠警力及保安隊能力所及,應

依作業程序通報地區兵警力單位迅速支援。」。因此, 廠外武力每年參加一次與廠內應變武力的廠內聯合訓 練。依據每年不同的保安演練的劇本,廠外武力會被召 集進廠參加演練,並提供協助。

#### (五)資安

次指標6項皆滿分,實屬不易,可歸功於在於台灣 實施資通安全法,且對於關鍵設施進行實地的資安測試。

#### (六)核子保安文化

NTI 指數 2020 年新增核子保安文化的指標,擬促 請各國政府除核安文化外,需加強核子保安文化。原能 會積極強化核能電廠的核子保安文化意識,2022 年舉 辦核子保安文化的訓練,由美國能源部國家核子保安局 (DOE/NNSA)的專家擔任講師。

目前有核子保安文化未達滿分之次指標 2.6.1Security culture、次指標 2.6.2 Security culture assessment 及核子保安文化次指標 2.6.3 分別是 0 分、0 分及 1 分(最高分 2 分)。

精進做法:實施核子保安文化,並實施評估,要 求台電公司報告核子保安文化的進展,管制機關專區提 及核子保文化實施情形,或建立核子保安文化規範。

說明:核子保安文化原納入核安文化,兩者仍有些 不同,建議建立核子保安文化。

#### (七)國際合作

由於台灣不是 IAEA 的會員國,許多 NTI 指數要 簽署的協議、參與的活動較困難實施,此項目有 13 個 次指標零分及 3 個次指標部分得分,對於台灣 NTI 的 分數影響甚鉅。但是台灣仍然依照與美國簽署的和平用 途的合約、與 IAEA 及美國三邊的核子保防合約,並每 年準備核能安全公約的報告,與美國進行同行審查,並 於網站公開提供參閱。

精進作法:持續了解 NTI 各項協議內容,即使無法 簽署,可以實質準備,並依照相關內容提供 EIU 參考, 以便獲取相關分數。

#### (八)其他

除以上的類別之外,有些雖在第三類別 Global Norms 及第四類別 Domestic Commitments and Capacity 方面,但可以不需要國際合作就能完成的,以下列出

次指標 3.2.6 Centers of Excellence 是否有核子保安 卓越中心或訓練中心?目前沒有

精進做法:成立核子保安卓越中心,核子保安卓越 中心負責的項目有4:(i)促進跨產業的參與教育與訓練 (ii) 關注核子保安,核子保防、核能安全及核能應用(iii) 提供實用的培訓課程(iv)辦理講座及研討會等形式的教 育訓練(v)有政府的支持。

說明:核能研究所核安管制技術支援中心,於2022 年9月進行「核設施核子保安作業精進研討會」,討論 成立國家核子保安支援中心的方式,及台灣核子保安卓 越中心的建置藍圖,開始規劃進行。

次指標 4.3.1 Independent Regulatory Agency 是否 有獨立機關負責核子保安項目?

精進做法:建議原子能委員會將推廣原子能的業務分離,成為完整獨立的法規制定及監督管制機關。

說明:獨立的定義可以很嚴格。目前負責核能安全 及核子保安之法規及督導的獨立單位是原子能委員會, 並依據法規對國內核設施及核物料進行獨立視察,但原 子能委員會除了核能安全、核子保安、輻射安全、核物 料管理業務外,還有推廣核能,因此是否有獨立的核子 保安的監督機關,是會受到質疑。

#### IV. 結論

台灣致力於核子保安及核子保防,將核能應用於和 平安全的用途, 並協助國際防恐及防範核擴散, 2020年 版 NTI 指數,台灣在資通安全的指標方面獲得滿分,全 世界 2020 年版 NTI 指數僅兩個國家在資安項目獲得滿 分,台灣為其中之一,實屬不易。台灣 NTI 的指數分數 除讓國際了解台灣的努力及進步的情形,可自我省思台 灣是否有其他可以精進之處。本研究分析,將 NTI 指數 的第一類(數量及廠址)及第五類(風險環境)與核能電廠 保安的管制範疇無關項目移除討論範圍,將台灣其餘的 次指標 53 個分類成 8 類別:(1)廠內的實體防護(2)核物 料控制及料帳(3)防範內部威脅(4)應變能力(5)資安(6) 核子保安文化(7)國際合作及(8)其他,提供主管機關對 核能電廠保安的管制範疇進行精進討論;研究發現:除 國際合作,必須藉由簽署國際協議、財務支援國際組織 及參與國際活動才能達成,對於不是會員國的台灣,要 達成其要求誠屬不易;但可持續努力,自我完成各項協 議的內容及儘可能參與國際活動,相關的努力及國際活 動之成果公開於網站,來獲得國際的支持與 NTI 的認 同。部分與 NTI 在認知上不同的項目,台灣如果有相關 的作業辦法,可以在不洩漏機敏資料的前提下,於網站 或公開資料上說明,即使 NTI 不認同,但台灣實質的核 子保安成果的意義重於 NTI 指數分數的取得,實質完 成即可。最後主管機關對核能電廠核子保安的管制範疇 內,可針對(1)建立核子保安文化(可涵蓋防範內部威脅)、 (2) 籌辦核子保安卓越中心負責相關的保安教育訓練, 及(3)管制單位的獨立性,三項的內容可以進行探討,以 健全台灣核子保安量能,與國際規範同步,並提升台灣 核子保安國際評比之成績。

## 參考文獻

- [1] IAEA, "Nuclear Security Recommendations on Physical Protection of Nuclear Material and Nuclear Facilities," IAEA NUCLEAR SECURITY SERIES No. 13, 2011.
- [2] NTI, "The NTI Nuclear Security Index: Losing Focus in a Disordered World," 2021.
- [3] 原能會,"核子反應器設施運轉執照申請審核辦法,"2005.
- 〔4〕原能會,"102年施政績效報告,"原能會,2013.
- 〔5〕 原能會, "2018年年報," 原能會, 2018.
- [6] 原能會,"核子保安桌上演練訓練,"原能會新聞 稿,2019.
- [7] 原能會,"第28屆國際核子保安訓練 出國報告," 原能會,2010.
- [8] 原能會,"核子事故緊急應變法施行細則,"原能 會,2017.
- 〔9〕 原能會,"核子保防作業辦法," 原能會, 2019.

- 〔10〕 行政院原子能委員會, "放射性物料管理法," 政院原子能委員會, 2002.
- 〔11〕行政院,"國土安全緊急通報作業規定,"行政 院,2018.
- 〔12〕 原能會,"核子事故緊急應變法," 原能會,2003.

# 核一廠除役期間火災意外對現場設備及人員安全影響

# A study on the impact of fire accidents on equipment and personnel safety during decommissioning at the Chinshan Nuclear Power Plant

計畫編號:111-2623-E-007-002-NU 計畫主持人:許文勝 e-mail:wshsu@ess.nthu.edu.tw 計畫參與人員:陳韶萱、陳雄智、楊雋之、張筠非、陳玄哲 執行單位:國立清華大學原子科學技術發展中心

## 摘要

核一廠已正式邁入除役階段,此時的廠房性質已不 同於運轉階段,人員安全與放射性物質外釋將取代核能 安全成為首要目標,且火災等工安議題與相關規範日益 受到重視。因此本研究擬以汽機廠房為研究對象,針對 其於除役階段發生火災的情況下,各種火災產物如溫度、 輻射熱等可能對人員安全及現場設備造成影響或損害 的情況加以分析探討,以提供管制機關作為除役管制的 參考與建議。

**膈鍵詞:**核能電廠、除役、火災模擬

## Abstract

Chinshan NPP has officially entered the decommissioning phase. During this period, the configuration of the plant and buildings is different from that for the operation phase. It should pay more attention to the impacts of fire induced accidents on personnel safety and resulting radiation protection issues. In this study, the factors of fire hazard that may affect safety of personnel and equipment will be analyzed to provide relevant suggestions to the authority.

**Keywords :** Nuclear Power Plants, Decommissioning, Fire Simulation

## I. 前言

核一廠已於 108 年 7 月 16 日取得除役許可,邁入 為期 25 年的除役階段。核能電廠除役階段的廠房性質 有別於運轉階段,根據核一廠除役計畫,為解決除役期 間低放射性廢棄物的處理需求,汽機廠房內將規劃適當 空間,設置數個低放射性廢棄物處理區域,成為進行切 割、除污、固封等的作業廠房。此時的作業廠房內 將規劃等的作業廠房。此時的作業廠房內 能停放許多大型拆除機具,並起有大量其他廠房拆除下 來的電纜線及低放射廢棄物的包裝容器會臨時存放在 此,使汽機廠房成為類似民間大型且具相當火災危害風 險之場所。近年來,火災等公安議題及相關規範日益受 到重視,無論是在國內建築主管機關,有針對大型或特 殊空間的防火避難安全評估審查已行之有年,亦或消防 主營機關有針對特殊大型用途建築物,要求設計單位及 業主提早規畫整體空間的安全性,以降低火災對人員及 設備的潛在風險。

因此,本研究擬以核一廠汽機廠房為研究對象,針 對其於除役階段發生火災的情況下,可能對人員生命安 全與現場設備造成危害的因素加以分析探討,以提供管 制機關作為除役管制的參考與建議。

#### II. 研究方法

本研究利用美國國家標準技術研究所(NIST)所開發出來的火災模擬軟體 FDS 6.7.9 版,模擬核一廠汽機廠房於除役階段發生火災的情況,並分析探討各種火災危害類型對人員及設備造成的危害。FDS 是國內建築及消防主管機關認可之評估工具,其具有平行運算功能,可透過網路線,將許多台電腦做併聯計算,對於大型空間的評估效能顯得特別重要。PyroSim 是 FDS 軟體的圖形化使用介面,使用者可使用 PyroSim 建立建築模型及設定火災與偵測設備等相關參後,執行 FDS 火災模擬。PyroSim 提供火災模擬結果之數據匯出、圖表繪製,以及動畫呈現等功能,讓使用者可以進行後續之相關分析,並且可以視覺化方式判讀火災結果。此外,PyroSim 亦提供匯入 CAD 圖檔功能,讓使用者可以透過其他繪圖軟體繪製更為精細之 3D 建築圖後匯入 PyroSim 使用。

為提升模擬建築模型之精緻度,本研究先以 Revit 軟體繪製核一廠一號機汽機廠房建築物及其內機具,再 將繪製結果轉出匯入 PyroSim 使用,並使用 Pyrosim 設 定火災參數與各項和火災危害指標相關之偵測點,最後, 透過 PyroSim 介面啟動 FDS 進行火災模擬。

核一廠汽機廠房從低至高分別為地下層、地面層, 以及運轉層。本研究模擬了三種不同的火災情境。由於 假設消防隊應能於一小時內抵達現場並控制火勢,模擬 案例的火災時間皆設為3,600秒。火災模擬及分析的流 程、火災危害類型及危害指標、模擬案例與參數說明和 PyroSim 截圖畫面等資訊如下面圖表。



## 圖1 火災模擬與分析流程圖

表2 火災危害類型及危害指標			
項目	人員可承受指標		
熱對流	$\leq 65 \ ^{\circ}\mathrm{C}$		
一氧化碳濃度	≤ 0.14 %		
二氧化碳濃度	$\leq$ 5 %		
氧氣濃度	≥ 12 %		
能見度	≥ 10 m		
表面輻射熱	$\leq$ 2.5 kW/m <sup>2</sup>		
項目	設備可承受指標		
	熱塑性電纜(核能電廠原有設備)		
表面溫度	$\leq$ 204 °C		
	PVC 電線或 RB 電線 ≤60 ℃		

## 表3 模擬火災情境

火災情境	可燃物	簡述
發電機拆除前 運轉層電纜火 災	核電廠原有證	於運轉層地面中間區 域發生火災。假設火災 期間燃燒表面積持續 擴大。
發電機拆除前 地下層潤滑油 火災 發電機拆除後 地下層潤滑油 火災	潤滑油	於地下層地面中間區 域發生火災。假設熱釋 放率(HRR)達到10,000 kW後,燃燒表面積維 持定值到模擬結束。

#### 表4 理論及模擬參數依據文獻

參考文獻	依據文獻之參數
NUREG/CR-	電纜火災之單位面積熱釋放率
7010 Vol. 1	(HRRPUA)及火焰擴散速率

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

參考文獻	依據文獻之參數
NUREG/CR-	潤滑油之單位面積熱釋放率
6850 Vol. 2	(HRRPUA)
NFPA 手冊	潤滑油火源成長係數
SFPE 手冊	電纜及潤滑油之燃燒反應副產物
FDS 使用者指引	<b>战权</b> 业 ※ 哇 生 田 仏 姻 故 知 长 庇
及 FDS 驗證指引	候擬入火时使用的網絡解析度

#### 表5 量測參數

項目	說明		
	空氣溫度、能見度、輻射熱		
人體危害指標	一氧化碳濃度、二氧化碳濃度		
	氧氣濃度		
設備損壞指標	固體表面溫度		
與火源中心距	$5m \times 10m \times 15m \times 20m \times 25m \times 20m$		
离隹			
距離運轉層地	1.9m , $2m$ , $4m$ , $9m$ , $12m$ , $16m$		
板高度			
距離地下層地	$1.9m \times 2m \times 4m \times 6m$		
板高度	1.011 • 2111 • 4111 • 0111		

#### 表6 電纜火災參數

參數	數值	
模擬時間	3600 秒	
單位面積熱釋放率	$250 \text{ kW/m}^2$	
(HRRPUA)	230 KW/III	
最大熱釋放率(HRR)	8,245 kW	
水平擴散速率	0.0009 m/s	
最大燃烧表面半徑	3.24 m	
最大燃烧表面積	32.98 m <sup>2</sup>	
燃料組成成分	$C_2H_4$	
	輻射熱比率:43%	
燃燒副產物	一氧化碳產率:0.024	
	煙灰產率:0.060	

## 表 7 潤滑油火災參數

參數	數值	
模擬時間	3600 秒	
單位面積熱釋放率	$1.900 \in 1-W/m^2$	
(HRRPUA)	1,809.6 KW/m <sup>2</sup>	
最大熱釋放率(HRR)	10,000 kW	

參數	數值	
火焰成長常數	0.1876 kW/s <sup>2</sup>	
峰值時間	231 s	
火燄水平擴散速率	0.005744 m/s	
最大燃烧表面半徑	1.3 m	
最大燃烧表面積	5.5 m <sup>2</sup>	
燃料組成成分	$C_{14}H_{30}$	
	輻射熱比率:35%	
燃燒副產物	一氧化碳產率:0.012	
	煙灰產率:0.042	



圖2 發電機拆除前電纜火災模擬案例的運轉層2D圖



圖3 發電機拆除前電纜火災模擬案例之FDS網格



圖4 發電機拆除前潤滑油火災模擬案例地下層2D圖



圖5 發電機拆除前潤滑油火災模擬案例之FDS網格



圖6 發電機拆除後潤滑油火災模擬案例地下層2D圖



圖7發電機拆除後潤滑油火災模擬案例之FDS網格

## III. 模擬結果與分析

圖 8 至圖 12 為火災模擬案例的模擬結果趨勢圖, 此處僅列出依據危害指標,模擬結果發現對人員安全或 設備受到危害的類型項目。表 8~表 10 為分析本研究三 個火災模擬案例之各項危害類型對人員安全或設備危 害影響的彙整結果。考量火災時人員有遠避火源的傾向, 故與人員危害相關參數,採用距火源中心 20 m,距地 板高度 1.8 m處的模擬數據;然而設備距離火源愈近損 壞愈嚴重,故與設備損壞相關參數,採用距火源中心 5 m,距地板高度 2 m處的模擬數據。



圖 8 發電機拆除前運轉層電纜火災固體溫度

<u> </u>			
危害類型	五宝副鄉	危害指	開始造成
	厄舌影音	標值	危害時間
空氣溫度		$\geq$ 65 °C	-
一氧化碳濃度		$\geq$ 0.14 %	-
二氧化碳濃度		$\geq$ 5 %	-
氧氣濃度	人員危害	$\leq$ 12 %	-
輻射熱		≥ 2.5	
		kW/m <sup>2</sup>	-
能見度		$\leq 10 \text{ m}$	-
田建省田	一般設備	> 60  °C	205八倍
回脰瘟反	損壞	≥00 °C	50.5 分鲤
固體溫度	電廠原有	$\geq$ 204 °C	-

表8	發電機拆除前運轉層電纜火災模擬案例各項危害
	類型超過危害指標時間彙整

危害類型	危害影響	危害指 標值	開始造成 危害時間
	設備損壞		



圖9發電機拆除前地下層潤滑油火災能見度





表9 發電機拆除前地下層潤滑油火災模擬案例各項危 害類型超過危害指標時間彙整

之中拓刑	<b>上</b> 中 則 鄉	<b>夕</b> 字 北 挿 仕	開始造成
厄吉類型	厄吉於窨	<b>厄吉</b> 拍係值	危害時間
空氣溫度		$\geq$ 65 oC	-
一氧化碳		> 0 14 %	
濃度		≥ 0.14 %	-
二氧化碳		> 5 0/	
濃度	人員危害	≥ 3 %o	-
氧氣濃度		≤ 12 %	-
輻射熱		$\geq 2.5 \; kW/m^2$	-
能見度		$\leq 10 \text{ m}$	25.4 分鐘
田鷓四庄	一般設備	> (0.9C)	10八位
回脰温及	損壞	≥ 60 °C	2.0 分鲤
固體溫度 設備損	電廠原有	> 204  oc	60 八姓
	設備損壞	≥ 204 °C	0.0 分鲤



圖 11 發電機拆除後地下層潤滑油火災能見度



圖 12 發電機拆除後地下層潤滑油火災固體溫度趨勢 圖

在宝粄刑	在宝影鄉	各宝北栖佑	開始造成	
见舌斑尘	厄吉彩音	见苦相保值	危害時間	
空氣溫度		≥ 65 oC	-	
一氧化碳		> 0.14.0/		
濃度		≥ 0.14 %	-	
二氧化碳		> 5.0/		
濃度	人員危害	$\geq$ 5 %	-	
氧氣濃度		≤ 12 %	-	
輻射熱		$\geq 2.5 \ kW/m^2$	-	
能見度		$\leq 10 \text{ m}$	25.1 分鐘	
固體溫度	一般設備	> 60.90	28 八倍	
	損壞	≥ 00 °C	2.0 分鲤	
固體溫度	電廠原有	> 204.00		
	設備損壞	≥ 204 °C	-	

表10 發電機拆除後地下層潤滑油火災模擬案例各項危 害類型超過危害指標時間彙整

## IV. 結論與建議

本研究針對核一廠汽機廠房於除役期間發生火災 時的危害進行分析,結果如下:

- 本計畫評估核能電廠於除役期間發生火災時可能造成的人員及設備危害,所建立的研究方法可推廣至核一廠其他廠房及其他除役電廠,亦可應用於不同除役階段的火災情境。
- 於運轉層發生電纜火災時,於1小時內均未對運轉 層的人員構成傷害;一般設備於30.5分鐘後開始損 壞,電廠原有設備未損壞。
- 3. 發電機拆除前,於地下層發生最大規模為10 MW的 潤滑油火災時,地下層人員於25.4分鐘後遭受避難 障礙;一般設備於2.8分鐘後開始損壞,電廠原有設 備於6.0分鐘後開始損壞。
- 發電機拆除後,於地下層發生最大規模為10MW的 潤滑油火災時,地下層人員於25.1分鐘後遭受避難 障礙;一般設備於2.8分鐘後開始損壞。
- 發電機拆除後,由於自由空間增大,空氣流通較為 順暢,燃燒熱的蓄積較為不易,設備表面溫度並未 上升至電廠原有設備損壞指標溫度。

建議:綜合上述結論,地下層發生潤滑油火災時, 廠內一般設備將於3分鐘內開始損壞,即使廠區消防隊 員迅速抵達火場,亦難以於設備遭受損傷前控制火勢。 建議在易燃物質移出廠房之前仍維持自動滅火設備,以 確保必要設備的可用性。

## 参考文獻

- [1] NUREG/CR-7010, Vol. 1, Cable Heat Release, Ignition, and Spread in Tray Installations During Fire (CHRISTIFIRE), Phase 1: Horizontal Trays, July 2012.
- [2] NUREG/CR-6850 Final Report, EPRI/NRC-RES Fire PRA Methodology for Nuclear Power Facilities, Volume 2: Detailed Methodology. September 2005.
- [3] PyroSim User Manual, Version:2021-4.
- [4] NFPA Handbook of Fire Protection Engineering, Fifth Edition, 2016.
- [5] SFPE Protection Handbook Twentieth Edition, 2008.
- [6] FDS (Fire Dynamics Simulator) User's Guide, Sixth Edition. November 19, 2021.
- [7] FDS (Fire Dynamics Simulator) Technical Reference Guide Volume 3 : Validation, Sixth Edition. November 19, 2021.

# 鉛引發壓水式反應器二次側結構組件發生應力腐蝕龜裂行為的研究 Lead-induced Stress Corrosion Cracking Behavior of Structural Materials in PWR Secondary Cooling System

計畫編號:111-2623-E-007-003-NU 計畫主持人:葉宗洸 e-mail:tkyeh@mx.nthu.edu.tw 計畫共同主持人:王美雅 計畫參與人員:王雅婷 執行單位:國立清華大學工程與系統科學系

#### 摘要

透過 PWR 二次側水循環模擬迴路中針對 600 合金 進行 notched C-ring 應力腐蝕試驗,透過不同濃度的 PbO 注入,水環境控制在低溶氧狀態下(~數個 ppb)的水 化學條件,利用氫氧化銨控制其 pH 值後,在 280°C 溫 度下 600 合金的應力腐蝕龜裂行為分析。探討在 280°C、 8.3MPa 條件下,不同 PbO 濃度與固定 pH 值的水環境 對於 600 合金 SCC 裂縫起始與成長之影響。

**關鍵詞:**應力腐蝕龜裂、鎳基 600 合金、壓水式反應器、 氧化鉛濃度。

#### Abstract

The aim of this study is to investigate the impact of soluble lead concentration on SCC behavior of Alloy 600 in the simulated PWR secondary side water chemistry circuit. The stress corrosion cracking behavior was conducted by notched C-Ring method at the temperature of 280 °C and the pressure of 8.3 MPa. The water chemistry condition was controlled under specific conductivity and pH value by injecting ammonium hydroxide and low dissolved oxygen value(~several ppb) with different PbO concentrations. In addition, the similar test was also conducted to the effect of heat treatment process on SCC behavior of Alloy 600 in the same environments. The SCC tests were followed by a detailed characterization on the microstructure and the distribution and growth of the cracks generated on the surface of Alloy 600 samples.

**Keywords:** Stress Corrosion Cracking, Ni-Based Alloy 600, Pressurized Water Reactor, PbO concentrations.

#### I. 前言

600 合金因其高耐腐蝕性已被用作壓水式反應器 (PWR) 中蒸氣產生器 (SG) 的管材,但在 SG 污泥堆 中發現含有一些氧化性雜質的環境,氧化性雜質會進而 導致多種腐蝕。鉛是蒸氣產生器污泥沈積物常見的雜質 成分之一,它會導致 SG 管在腐蝕性環境中的應力腐 蝕龜裂 (SCC)。二次側採用的蒸氣產生器材料,除了 早期使用的合金 600MA,也有合金 600TT 與 690TT(具 有更高含量的鉻)。對於 PbSCC 影響的其中一個因素 為 pH 值,且不同材料對於發生 PbSCC 的 pH 值範圍也 不同。為了瞭解 PbSCC 可能造成的風險,應該針對其發生機制與影響的關鍵參數進行研究,降低運轉中電廠發生 PbSCC 的風險,進而建立完整的劣化機制與評估模式。

#### II. 主要內容

合金600於壓水式反應器 (PWR) 二次側蒸氣產生 器 (SG) 管經歷了各種類型的腐蝕損壞,例如應力腐蝕 龜裂 (SCC)、沿晶龜裂(IGA)和穿孔腐蝕(孔蝕)[1]。 鉛誘發的應力腐蝕龜裂 (PbSCC) 是一種環境退化,由 於縫隙和封閉區域中存在鉛,它會影響壓水式反應器 (PWR) 中蒸汽產生器管道的二次側。此外,雜質濃度也 會成為造成酸性或鹼性環境的條件之一,這也被公認為 是腐蝕過程的促成因素。環境中的腐蝕因子主要是對材 料組件有害的雜質或是氧化劑,雜質像是鉛、硫酸根離 子、氯離子、氟離子等等,會影響材料組件氧化層的完 整性。溶氧、氧化性的腐蝕產物和某些離子(鐵離子)會 造成電位的上升,進而加速腐蝕的生成。與合金 600 腐 蝕相關的研究主要集中在縫隙中的水化學,如雜質濃度、 pH 值和温度。壓水式反應器二次側冷卻水系統水化學 控制的目標是最大限度地減少所有二次側組件的腐蝕 損壞和性能損失,以及從而最大限度地提高二次側系統 的可靠性和經濟性能,為實現這一目標,主要通過控制 系統周圍的 pH 值、通過最小化或控制系統中氧化劑的 濃度以及通過最小化雜質濃度來實現。

透過 PWR 二次側水循環模擬迴路中針對 600 合金 進行 notched C-ring 應力腐蝕試驗[2-3],透過不同濃度 的 PbO 注入,水環境控制在低溶氧狀態下(~數個 ppb) 的水化學條件,利用氫氧化銨控制 pH 值後,探討在 280 ℃、8.3MPa 條件下 600 合金的應力腐蝕龜裂行為。測 試後的試片則利用掃描式電子顯微鏡(SEM)與能量散 佈式 X 光頻譜(EDX)分析試片產生裂縫的表面分布 情形,探討在 280 ℃ 溫度下,不同 PbO 濃度與固定 pH 值的水環境對於 600 合金 SCC 裂縫起始與成長之趨勢。

#### III. 結果與討論

本研究使用 600 合金作為 C-ring 應力腐蝕實驗的 試棒材料。分析試棒的元素組成,結果如表1所示。實 驗所使用的試片為直徑2吋、厚度1/8吋的管材。在進 行實驗之前,試棒需進行兩種不同的熱處理:固溶熱處 理與軋制退火熱處理。固溶熱處理的條件為在 1100°C 下持温1小時,以消除加工殘留應力,接著以水淬,確 保材料中的析出物固溶在晶粒內。另一種熱處理的條件 為在 700°C 下持温 24 小時,使材料中的析出物在晶粒 與晶界間達到平衡。經過熱處理後,試棒表面以碳化矽 (SiC)砂紙研磨至 P1200 號,以去除其表面氧化層,然 後以乙醇與去離子水進行超音波震盪清洗。最後,使用 掃描式電子顯微鏡觀察實驗前試棒表面。待測試片放入 高溫高壓的壓水式反應器二次側迴路的高壓釜內,水環 境條件為 280°C、1020 psi 和溶氧(DO) 300 ppb。本實驗 選用氫氧化氨來作為氨的來源,水溶液的酸鹼值為9.6。 每300小時取出試片進行表面分析,觀察其表面形貌與 腐蝕情況。

表1 Alloy600試棒的元素組成表(wt%)

元素	Ni	Cr	Fe	Cu	Si	Mn		С
Alloy600	73.49	15.64	9.45	0.07	0.23	0.20	0.01	0.02

本研究模擬了PWR 二次側高溫高壓(280℃ & 1020 psi)水環境循環系統。循環管路包括主循環水迴路和副 循環水迴路。主循環水迴路提供實驗所需的高溫高壓 (280°C、1020 psi)水環境,水從儲水槽流出,通過高壓 幫浦、穩壓器、安全閥和熱交換管進入高壓釜中流經試 棒,然後經由熱交換管和交換器返回儲水槽,完成循環。 副循環水迴路主要用於水質監測。此外,透過氫氧化銨 調節水的 pH 值。實驗中使用的循環水經離子交換濾心 過濾純化,可以獨立實現所需的水化學環境、溫度和壓 力,並且可以在線監測水中的溶氧含量,圖1為水循環 迴路示意圖。



圖1 水循環迴路示意圖

此試驗主要使用 notched C-ring test 方法,將管材 裁切成 C 型,固定於夾具內,施加固定的應變值,並在 外部產生張應力。使用放電加工製作半徑為 0.003 吋, 角度為 60 度的 V-notch,應變約為 25% 左右。該裝置如 圖2所示。將此夾具與試棒放入鎳基合金高壓釜中進行 試驗。使用掃描式電子顯微鏡觀察經過 PWR 水環境後 的試棒,以分析 V-notch 和試棒表面裂縫的分布情況和 深度。



圖2 Notched C-ring示意圖

經固溶熱處理和 700℃ 熱處理後的 600 合金進行 無外加應力試驗,試驗的條件包括純水、添加氫氧化氨 至 pH=9.6 並添加 0.5ppm 的氧化鉛。試棒在進行腐蝕 實驗之前,會先用 SEM 做表面形貌的觀察,在完成實 驗後進行其表面腐蝕變化的觀察,放大倍率為 500 倍, 如圖 3,試驗進行 900 小時後氧化層仍均匀的遍佈表面, 因為緻密的氧化層具有保護基材的作用,沒有更進一步 觀察到其他腐蝕劣化的情形,表示在沒有外加應力的情 形下,600合金一旦形成緻密氧化層,就有不錯的抗腐 蝕能力。









(d) Alloy600SA\_PbO 0.5ppm\_900H↔



(e) Alloy600TT\_PbO 0.5ppm\_0He



(f) Alloy600TT PbO 0.5ppm 300He



(g) Alloy600TT\_PbO 0.5ppm\_600H



(h) Alloy600TT\_PbO 0.5ppm\_900H↔ 圖30.5 ppm PbO環境下C-ring 0-900小時形貌變化

經軋制退火熱處理後 600 合金進行外加應力試驗, 試驗的條件包括純水、添加氫氧化氨至 pH=9.6 並添加 10 ppm 的氧化鉛。試棒在進行腐蝕實驗之前,會先用

SEM 做表面形貌的觀察,在完成實驗後,觀察其表面 腐蝕變化,放大倍率為 500 倍, SEM 分析發現 600TT 在試驗 300 小時後觀察到些許的鉛誘發的應力腐蝕龜 裂 (PbSCC),如圖 4。



(a)Alloy600MA\_PbO 10 ppm\_0H€





(b)Alloy600MA\_PbO 10 ppm\_300He (d) Alloy600TT\_PbO 10 ppm\_300He 圖4 10 ppm PbO環境下C-ring 0-300小時形貌變化

## IV. 結論

由實驗結果發現,在高濃度的 PbO 環境下。確實 在經過 300 小時的實驗測試後可以發現在合金 600TT 的 C-ring 的 V-notch 處,有數條~10 μm 的裂縫生成, 但在 合金 600 MA 並未發現有裂縫存在。後續長時間 的測試應可顯示更為明確的結果。

## 参考文獻

- [1] W.S. LAI, T. K. Yeh, M.Y. Wang, "Study on Corrosion Prevention of Corrosion Degradation on Secondary Side Components of Pressurized Water Reactor," Symposium on Water Chemistry and Corrosion in Nuclear Power Plants in Asia, Seoul, Korea, September 24-27, 2019.
- [2] E. J. Jankowsky," Notched C-RingTes," Hydrogen Embrittlement Testing, ASTM STP 5/+3, American Society for Testing and Materials, 1974, pp. 51-57.
- [3] Standard Practice for Making and Using C-Ring Stress-Corrosion Test Specimens, ASTM G38 – 01(2013).

# 研究用反應器石墨緩和劑除役表面碳十四分離之研究 The Separation of C-14 from the Irradiation Moderator Graphite during the Decommissioning of a Research Nuclear Reactor

計畫編號:MOST-111-2623-E-007-004-NU 計畫主持人:李志浩 e-mail:chlee@mx.nthu.edutw 計畫參與人員:鄭仁傑、莊凱崴、陳家貫 執行單位:國立清華大學工程與系統科學系

#### 摘要

石墨材料在核設施進行除役時,必須特別考量石墨 經中子照射後所產生之核輻射產物以<sup>14</sup>C為主,其半衰 期長達 5730 年,也且十分容易融入生活圈中,必須特別 予以處置。本研究以核能研究所台灣研究用反應器 (TRR)的石墨緩和劑之除役為考量,石墨 材料 <sup>14</sup>C 之主 要來源為塊材<sup>13</sup>C(n.)<sup>14</sup>C以及石墨表面<sup>14</sup>N(n. p)<sup>14</sup>C兩 種。而石墨表面<sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>C為其主要汙染成分。石墨 表面的除汗方式,可以用加温氧化法移除石墨孔隙表面 之碳-14 成為二氧化碳後吸收移除,進行適當的廢棄物 管理。之後塊材之<sup>14</sup>C將相當低,較容易處理。石墨表 面的除汗方式與加溫之溫度,石墨之多孔表面積有關, 本計畫將對於加溫氧化過程,石墨表面積變化及 CO2 移 除量做一個參數上之測量。石墨表面積之變化將以 BET, 配合 X 光顯微術以及 X 光小角度散射觀察之,並以中 子活化法 <sup>40</sup>Ar(n,γ)<sup>41</sup>Ar 量測石墨加熱前後吸附氫氣孔 隙容積之變化以確實了解表面碳移除之數量。另外,實 際除役時,以蓋格偵檢器測量<sup>14</sup>C之量,為其最佳方法。 關鍵詞:照射後石墨,<sup>14</sup>C 移除,熱氧化, SAXS, BET,中子 活化。

#### Abstract

In the research, the decommission of irradiated graphite in the TRR reactor produced significant amount of  $^{14}$ C are considered. The major sources of  $^{14}$ C are the  $^{13}$ C(n,  $\gamma$ )<sup>14</sup>C reaction at bulk material and the <sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>C reaction on the surface of porous graphite. The surface <sup>14</sup>C is the dominate component. The attached <sup>14</sup>C on the graphite surface can be removed by mediate temperature oxidization and converted into CO2 and collected. After removed the surface contamination, the radiation level of bulk material is low and easily disposal. This study is the preliminary evaluation of process of removal of surface <sup>14</sup>C under different temperatures. The removal rate is highly dependent on the porosity of graphite. We will use BET, Xray microscopy small angle X-ray scattering, and the Ar absorption measurement by neutron activation analysis to evaluate the porosity and surface area before and after oxidation process. In addition, in the future decommissioning process, the radioactivity measurement of <sup>14</sup>C using GM counter was tested and evaluated without using liquid scintillation method.

**Keywords**: irradiation graphite, <sup>14</sup>C removal, thermal oxidation, SAXS, BET, neutron activation anlysis.

## I. 前言

石墨材料在核設施進行除役時,必須特別考量石墨 經中子照射後所產生之核輻射產物以<sup>14</sup>C為主,其半衰 期長達 5730年,也且十分容易融入生活圈中,必須特別 予以處置。石墨材料在研究型式的反應器中在進行除役 時,必須特別考量石墨經反應器內中子照射後所產生的 放射性核種產生(如長半衰期核種<sup>14</sup>C等)。這些石墨經 中子照射後的特性會對除役工作的拆解、貯存及廢棄物 管理的決策方式,有決定性的影響。照射過之石墨除役, 在殘餘輻射劑量上面,首先必須瞭解其輻射物質之來源。 根據一般國外報告 [1,2,3],主要之輻射核種為<sup>3</sup>H,<sup>14</sup>C, <sup>36</sup>Cl,<sup>60</sup>Co...等。G. Holt 評估英國 Magnox 石墨式反應 器停機後,隨時間衰變之輻射量之圖[4],如圖 1,圖 1 中,<sup>3</sup>H,<sup>14</sup>C,<sup>41</sup>Ca,<sup>63</sup>Ni 均被視為重要的殘餘核種。



圖1. 氣冷式反應器石墨停機後核種衰變圖[4]。

國際上處理照射過石墨有許多方式, 再利用, 淺層 埋藏,深層掩埋或是直接氧化燃燒釋出於大氣層中[5]。 再利用於石墨反應器最為節省,完全氧化燒成二氧化碳 排入大氣中最為簡單,雖然有些研究認為即使將一部運 轉 20 年的石墨核反應器完全燃燒二氧化碳排入大氣中 所造成大氣中<sup>14</sup>C之增加量,仍遠少於宇宙射線活化地 球大氣層<sup>14</sup>C之產生量[6],但是對民眾之觀感不佳[7]。 本研究以核能研究所台灣研究用反應器(TRR)的石墨 緩和劑之除役為考量,石墨材料<sup>14</sup>C之主要來源為塊材 <sup>13</sup>C(n, γ)<sup>14</sup>C 以及石墨表面 <sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C 兩種。而石墨表 面<sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>C為其主要汙染成分。<sup>14</sup>C產量之評估結果 於表 1。其估算以 TRR 實際運轉時間 8.29 年完全運轉 來計算,以及熱中子通量參考:1x10<sup>13</sup>(n/cm<sup>2</sup>\*s)。 其中, 石墨之形貌將影響吸附氮含量甚巨,表面積為若干,以 及孔洞大小或有無盲洞之比例[8],必須加以瞭解,以便 了解表面經<sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C 核反應後,座落於石墨表面之 <sup>14</sup>C,此一部分較易以熱氧化法移除之。我們以 BET 法 以及X光小角度散射(SAXS)量测其孔隙及表面積大小, 細節則將以同步輻射研究中心之 X-ray Microscopy 以 及 X-ray tomography 三維尺度研究之[9]。了解運轉期間 石墨可能吸附氮氣之量,探討表面積之估計十分重要, 石墨之孔隙率也十分重要,但是因為石墨有盲孔形成, 孔隙率並不代表表面積,因此 BET 以及 SAXS 也是需 要的。14C 之來源為最大宗,也是放射性廢料決定性之 放射源。

₹ 1.1	IRK 石墨緩	和劑可能產生	主"C計异所用	1之評估

核種	原子濃	熱中子吸	<sup>14</sup> C 數目	活度
	度	收截面	(atoms/cm <sup>3</sup>	Bq/cm <sup>3</sup>
	(cm <sup>-3</sup> )	(cm <sup>2</sup> )	)	
<sup>14</sup> N-吸附	3.99*10 <sup>19</sup>	1.8*10 <sup>-24</sup>	$1.87*10^{17}$	7.2*10 <sup>5</sup>
單層				
<sup>14</sup> N-吸附	3.99*10 <sup>18</sup>	1.8*10 <sup>-24</sup>	$1.87*10^{16}$	7.2*10 <sup>4</sup>
單層				
(覆蓋率				
10%)				
<sup>17</sup> 0 吸附	1.37*1016	2.35*10 <sup>-25</sup>	8.37*10 <sup>12</sup>	32
單層				
<sup>13</sup> C 塊材	9.5*10 <sup>20</sup>	1.37*10 <sup>-27</sup>	3.28*10 <sup>12</sup>	1.3*104
<sup>14</sup> N-間隙	8.6*1018	1.8*10 <sup>-24</sup>	$4.0*10^{16}$	1.5*10 <sup>5</sup>
空氣				
<sup>17</sup> O-間隙	8.23*10 <sup>16</sup>	2.35*10-25	5.0*1013	192
空氣				

若假設一層氮原子吸附於石墨塊材之表面,也將超過放射物豁免管制量。若以氮氣體充滿於石墨塊材之間隙間也是超過放射物豁免管制量。其次,若以<sup>13</sup>C於塊材中,計算結果可以低於放射物質豁免管制量之水準。

因此,若能處理僅在石墨表面上<sup>14</sup>C核種,則其餘在石 墨內部之輻射量是不高的,若可以除去表面之<sup>14</sup>C核種, 將可以大量減低核廢棄物。

除役時,必須建立定量測量方法,僅移除石墨表面 之<sup>14</sup>C之步驟,形成 CO<sub>2</sub> 另外加以處置,以減少核廢料, 此一方法與石墨表面之各項吸附物有直接關係[10,11], 以熱氧化去除表面之方法,將濃縮表面之<sup>14</sup>C 形成 B 級 或C級之放射性廢料[12],其餘之部分,尤其是離核心 距離較遠的部分,則可以以 A 級放射廢料或測定後證 實低於豁免管制量而再利用之,以減少大量之放射廢棄 物。石墨表面的除汗方式,可以用加温氧化移除石墨孔 隙表面之碳-14 成為二氧化碳後再吸收移除,進行適當 的廢棄物管理。之後,塊材之<sup>14</sup>C將相當低,較容易處 理。石墨表面的除汗方式與加溫之溫度,石墨之多孔表 面積有關本計畫對於加溫氧化過程,石墨表面積變化及 CO2移除量做一個參數上之測量。石墨表面積之變化將 以繼續以 BET, 配合 X 光小角度散射觀察之, 並以中 子活化法  $^{40}$ Ar(n,  $\gamma$ ) $^{41}$ Ar[13] 量測石墨加熱前後吸附氫氣 孔隙容積之變化以確實了解表面碳移除之數量。

最後有關於<sup>14</sup>C活度之量測,實際除役時,以蓋格 偵檢器測量<sup>14</sup>C之量,為其最佳方法,我們將討論之。

#### II. 研究方法及結果

由核研所提供之 TRR 石墨樣品,測量其體積及重 量密度為 1.76 g/cm<sup>3</sup>。此一密度與 TRR 石墨來源 CANATOM Ltd.製造規格(約有 22%之孔隙度。1.75 g/cm<sup>3</sup>)十分接近。但與石墨之理論密度比較(2.26 g/cm<sup>3</sup>) 實際之孔隙約有 22%(含盲孔)。

除役時將石墨分類後再減量。接近爐心的內圈之石 墨,由於主要的<sup>14</sup>C之來源來自外界<sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C所形成 之碳-14以附著於石墨表面為主,廢料減量之方法可以 採取中溫(約 500°C)氧化照射過後之石墨,讓其表面形 成二氧化碳而釋出,再收集二氧化碳於 NaOH 溶液中, 再加入鋇離子使之形成碳酸鋇沉澱物,形成濾餅而收集 之,如圖 2 所示。高溫氧化氧化反應較快,CO2產率降 低變成 CO 氣體為主因此我們加上氧化銅作為轉化 CO 成為 CO2之催化劑。如此減量後,再考慮長期儲存之方 式。所剩下去除表面的石墨僅來自<sup>13</sup>C(n,γ)<sup>14</sup>C 之貢獻 或許核廢料比較容易處置之。我們將儘量少加溫之溫度, 以實際移除掉數個微米之厚度為目標。數微米之厚度取 決於石墨表面之粗糙度,以及表面之碳原子可能經擴散 至微米之厚度。



圖2. 石墨熱氧化法及CO2吸收方法

由於我們將研究熱氧化法移除石墨之表面數層之

<sup>12</sup>C及<sup>14</sup>C轉化成為CO2而儲存之,最容易之定量方法, 為測量石墨重量減少,或是測定 CO2 產生之總重量,於 不同熱氧化溫度下 CO2 生成率如圖 3, 根據 Arrhenius 定律其活化能約為380kJ/mole。然而,若是石墨之孔隙 大小及其表面積為未知,我們依舊難以了解有多少層數 之碳被移除。表面積大小及孔洞仍可以使用 BET 测法 量為之,其結果如圖4所示。經模型計算可得石墨 BET 表面積區域隨溫度變化可為 1-10 m<sup>2</sup>/g,本樣品之表面 並不大,可能的原因為石墨粉末密度較高。孔徑大小分 布可了解到石墨樣品的平均孔徑約為12nm,而其主要 分布多為中孔大小,大孔及微孔的數量相對來說是比較 少的[9]。BET 之表面積極其孔隙之結果,在學界中也 並非為多孔材料真正的表面積。因為 BET 之分析假設 氣體吸附為層狀吸附,而大小之孔隙造成毛細管效應也 難以模擬。但是必須搭配 X 光顯微鏡可以觀察孔洞於 實空間之變化,而 SAXS 則可以獲知其倒空間孔洞分布 之情況,其結果為開放孔隙與盲孔之統計平均,如圖 5 所示。SAXS 分析之結果石墨之孔徑大小熱氧化後約為 120 nm,氧化温度越高,其內表面積越小。另外,我們 可以運用氫氣吸收數量估計其非盲孔部分之孔隙率,其 方法為將吸附滿氣氣的試樣,經清華原子爐中子照射形 成氯-41, 再運用中子活化之<sup>41</sup>Ar 所放出的 1.264 MeV 加馬射線以純鍺偵檢器量測,如圖 6,以測定氫 41 之 氣體含量,訂出氫氣吸附之總量。經過熱氧化之石墨其 小孔隙將隨時間增加而消失,也將隨溫度上升而成為大 的孔隙,導致內表面積變小,我們也觀察到<sup>41</sup>Ar吸附量 隨著溫度而變少。<sup>14</sup>C 在石墨表面氧化速率可以用重量 測量或可以用表面分析方法以及 X-ray Tomography 等 方法分析及測定,如參考文獻 [9,18,19] 可以參考之。 X-光顯微鏡做參維尺度之觀察,才足以了解多孔材料之 真貌。同步輻射光源斷層掃描(X-ray CT)是較佳之選擇, 然而一般實驗室的 X 光機參維斷層掃描穿透力雖高.但 是其解析度僅為10微米級,只有同步輻射光源斷層掃描 可達 0.05 微米之等級。我國目前具有國家同步輻射研 究中心也具有同步輻射光源斷層掃描之設施,我們也曾 經以國家同步輻射研究中心斷層掃描之設施,量測 TRR 未照射過之石墨之孔隙形貌,經3維樣品影像重組後,可 以看見一條裂縫以及許多奈米級的孔洞,這些奈米級之 孔洞與 BET 之結果相似, 奈米級孔洞有很多皆為盲洞, 這些盲洞將不會有空氣進出,可以降低 <sup>14</sup>N(n,p)<sup>14</sup>C 之 產量[9]。孔洞大小有一個分布涵蓋由奈米至毫米的範 圍,BET的模型不足,三維CT 之觀察必須涵蓋奈米至 毫米的範圍,同時也需要多取數據點作統計平均,使其 具有代表性。然而三維 CT,同步輻射取得的光束線時 間實在有限,每組數據約需兩天的光束線時間,所獲得 的僅為次微米之尺度之結果。奈米尺度以下須改用電子 顯微鏡觀察,微米尺度需要不同動態範圍設計之 X 光 儀器。在國際上以10微米級所作之三維影像也有文獻 發表,然而以次微米尺度測量出結果的,僅有我們台灣之 工作,可惜同步輻射就中心能夠提共的使用時間太少,觀 察之範圍也太小,無法做有意義之統計數據。因此在實 空間之數據不足下,我們也將推進至倒空間之測量,亦即 利用 SAXS 實驗。倘若這些孔洞具有 self-similarity 之 性質,可以提供氣體於孔洞內之輸送現象變化[14]。小

角度散射研究多孔材料之形貌可以得到統計結果是屬

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

於倒空間之研究。另外,我們也利用氫氣吸附之方式來 決定有效孔隙之多寡,因為盲孔是無法吸附氫氣的測量, 測定氫氣之絕對量我們可以用中子活化分析方法,以純 鍺偵檢器量測半衰期僅有 108 min, 1.294 MeV 之加馬射 線測定氫 41 之氣體含量。這是國際上首創,必須有一部 類似清華大學之核子反應器,以便做半衰期不長之中子 活化分析。



圖3. 石墨熱氧化法CO2生成率與溫度關係







圖5. 石墨X光小角度散射圖



圖6. 石墨吸附Ar後經中子活化分析所得<sup>41</sup>Ar之加馬射 線能譜圖

<sup>14</sup>C,只發射 156.5 keV 之貝他粒子,若輻射量相當 低,則最可靠之方法應該採用同位素碳十四訂年之設備 及方法,於液態閃爍偵檢器測量之。亦即將熱氧化所產 生之 CO<sub>2</sub> 轉換為 Benzene, Toluene, acethlene [15, 16] 等可以用混入閃爍體中,或直接吸附 CO2之方法 [17]。 運用液態偵檢器量測貝他粒子,其方法雖已發展多年, 但多是步驟相當繁複。液態閃爍偵檢器之效率校正, 可 以使用 NIST 之標準射源 SRM-4990C<sup>14</sup>C之 oxalic acid 為之。目前碳十四訂年之設備最靈敏的儀器為加速器質 譜儀, 測量 12C/14C 之比例, 可達 ppb 之水準。然而以 除役的觀點而言,我們<sup>14</sup>C之豁免管制數值遠大於同位 素碳十四訂年之超高靈敏度之最低偵檢極限,因此不須 運用液態偵檢器以及加速器質譜儀等設備。實際石墨體 除役之量测,若是活性強度較強的情況,可以將 CO2 吸附 於薄膜或是製成 BaCO3 上濾餅,再使用很薄的窗口之蓋 格檢器為之即可。我們以兩部蓋格偵檢器(LND723)測 量其偵檢效率約3%,雖遠不如液態閃爍偵檢器80%以 上之偵檢效率,但其方便性遠比液態閃爍偵檢器為佳, 費用也遠比其更低。我們蓋格偵檢器測量靈敏度可以量 測至 10 Bq/g 之射源,遠比法規規定<sup>14</sup>C 豁免量 10000 Bq/g 已經相當足夠。一般蓋格偵檢器測量具有無法分 辨貝他粒子或加馬射線等其他放射性核種之干擾的問 題,由於我們的<sup>14</sup>C 經過熱氧氣體化學分離,吸附及沉 澱等步驟,其他核種之汙染已可以排除及忽略之。我們 也考慮發展 CO2 流通式氣體比例偵檢器,可以將熱氧 化之氣體直接導入偵檢器內,其偵檢效率可以提升至 80%以上,但是對於其他氣體之放射性核種之干擾的問 題如<sup>3</sup>T及Cl<sub>2</sub>等較難處理。

至於國內 TRR 石墨最終處理之問題,如果可以用 於將來發展核反應器使用,或用於加速器產生快中子之 屏蔽材料均為首選。

## III. 完成之工作項目及成果

本計畫研究研究型核反應器石墨部分除役之時,先 以熱氧化法去除石墨表面沉積之碳十四,讓其他塊材部 分之碳十四得以降低其輻射量,藉以大量減少照射過 之石墨廢料處置之數量,此一研究有助於研究用反應器 石墨緩和劑除役廢料大量之減少。此一緩和劑除役之研 究在國際上發表之文獻相當少,因此完成此一工作,應該 可以在國際期刊上發表。而 <sup>41</sup>Ar 中子活化分析測定孔

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

洞之吸附量為本計畫所創,世界唯一之技術,應該可以 在國際期刊上發表及推廣。經過此以方法之建立,我們 也希望除了TRR除役之外,我們也希望所建立之技術評 估方式,可以用於將來石墨式反應器甚至高溫氣冷堆之 除役運用,取得國際標案。基礎研究上,多孔性材料之材 料分析,本來就是國際上化工領域,尤其是催化劑反應或 是化學分離反應,經常於多孔材料上進行,能夠建立實空 間與倒空間多孔材料分析之能力,其對國內人才之訓練 及將來化工產業之運用,亦有其價值。本計畫將有清華 大學核工所博士生以及新進之碩士生參與,對於輻射運 用與度量將可以培育相當經驗。

#### IV. 結論

石墨材料在核設施進行除役時,必須特別考量石墨 經中子照射後所產生之核輻射產物以<sup>14</sup>C為主,其半衰 期長達 5730年,也且十分容易融入生活圈中,必須特別 予以處置。本研究以核能研究所台灣研究用反應器 (TRR)的石墨緩和劑之除役為考量石墨材料<sup>14</sup>C之主要 來源為塊材<sup>13</sup>C(n, γ)<sup>14</sup>C以及石墨表面<sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>C兩種。 而石墨表面<sup>14</sup>N(n, p)<sup>14</sup>C為其主要汙染成分。石墨表面 的除汙方式,可以用加溫氧化法移除 石墨孔隙表面之 碳-14 成為二氧化碳後吸收移除,進行適當的廢棄物管 理。之後塊材之<sup>14</sup>C將相當低,較容易處理。石墨表面 的除汗方式與加溫之溫度,石墨之多孔表面積有關,本 計畫對於加溫氧化過程,石墨表面積變化及 CO2 移除 量做一個參數上之測量。石墨表面積之變化將以 BET, 配合 X 光小角度散射觀察,並以中子活化法 <sup>40</sup>Ar(n, γ)<sup>41</sup>Ar 量測石墨加熱前後吸附氫氣孔隙容積之變化以 確實了解表面碳移除之數量。另外,實際除役時,可以 運用蓋格偵檢器加上熱氧化化學分離測量<sup>14</sup>C之量,為 其除役管制最佳之方法。

## 參考文獻

- [1] M.P. Metcalfe, R.W. Mills, "Radiocarbon mass balance for a Magnox nuclear power station", Annuls Nucl Energy 75 (2015)665.
- [2] A.J. Wickham et. al., "Updating irradiated graphite disposal: Project 'GRAPA' and the international decommissioning network", J Env. Radioactivity, 171(2017)34-40.
- [3] C.E. Vaudey, N. Toulhoat, N. Moncoffre, N. Bererd, L. Raimbault, P. Sainsot, J.N. Rouzaud, A. Perrat-Mabilon, "Thermal behaviour of chlorine in nuclear graphite at a microscopic scale", J. Nucl Mater. 395(2009)62-68.
- [4] G.Holt, "Radioactive Graphite management at UK Magnox", https://wwwpub.iaea.org/MTCD/publications, 1991.
- [5] M.I. Ojovan et al., Nucl. Eng. Inter. (2016)
- [6] S. Nair, J. Soc. Radiol. Prot. 3(1983)16-22.
- [7] A. Theodesion et al., J. Nucl. Mater. 507 (2018)208-217.
- [8] Elliott P. Barrett, Leslie G. Joyner and Paul P. Halenda, "The Determination of Pore Volume and Area Distributions in Porous Substances. I. Computations from Nitrogen Isotherms", Phys. Rev. 73(1951)373.

- [9] 李志浩,鄭仁傑,羅維禮,陳家貫,核設施除役 石墨廢棄物特性研究,INER project 109A003.
- [10] Daniel LaBrier, Mary Lou Dunzik-Gougar, "Identification and location of <sup>14</sup>C-bearing species in thermally treated neutron irradiated graphites NBG-18 and NBG-25: Pre- and post-thermal Treatment", J Nucl Mater, 460(2015)174-183.
- [11] Junfeng Li, Mary Lou Dunzik-Gouga, Jianlong Wang, Recent advances in the treatment of irradiated graphite: A review, Annuals Nucl Energy 110 (2017) 140.
- 〔12〕 陳家貫、曾怡仁、黃君平,「TRR 石墨廢棄物 管理與熱氧化除污模擬研究」,核能研究所, INER-15284R,2020
- [13] J.H.Chao, W.S.Liu, C.Y.Chen, Radiat measurement, 42 (2007)1538-1544.
- [14] Pan, Q. Niu, K. Wang, X. Shi, M. Li, Microporus and Mesoporous Matter, 224 (2016)245-252.
- [15] B.N. Avdric and J.V.P.Long, Nature, 4412 (1954)993.
- [16] W.F. Marlow, R.W.Medlock, J Research of NBS, 64A(1960)143.
- [17] J. Guo, ,M. Atarashi-Andoh, and H. Amano, Journal of Radiation and Nuclear Chemistry 255 (2003)223.
- [18] Liam Payne, Peter J. Heard, Thomas B. Scott, PLOS one, Nov. 17 (2015).
- [19] Yongqi Zhu, Qing Huang, Cheng Li, et al., Journal of Nondestructive Evaluation, 39(2020)17.

# 放射性物料安全科技

# 低污染放射性廢棄物表面劑量率與核種活度之特性研究 Study of surface dose rate and radioactivity of low-contaminated radioactive waste

計畫編號:MOST 111-2623-E-A49-002-NU 計畫主持人:吳杰 e-mail:jaywu@nycu.edu.tw 計畫參與人員:吳昌蔚 執行單位:國立陽明交通大學生物醫學影像暨放射科學系

#### 摘要

本計畫研析國際間輻射量測作業與廢棄物分類檢 整技術之原理與方法,彙整核電廠除役過程中低活度廢 棄物的物流管理需求,並探討國際規範與量測廢棄物比 活度之技術要求。本計畫亦配合現場作業需求,以比活 度之國際規範需求探討表面污染偵測技術的應用合規 性,並以蒙地卡羅方法進行低活度表面污染之模擬與表 面污染偵檢器校正因子之計算,分析表面發射與面射源、 體射源特性以及計數率之關係,探討表面污染輻射度量 技術之不確定度,研析建立具可行性之表面污染快篩量 測程序。本計畫成果可應用於除役廢棄物的檢整量測作 業,提供主管機關作為解除管制量測技術與品質保證之 參考依據。

**關鍵詞:**除役廢棄物、外釋、比活度、表面污染

#### Abstract

This project aimed to analyze the principles and methods of international radiation measurement operations and waste classification and sorting techniques. It compiled the logistics management requirements for low-level radioactive waste during the decommissioning process of nuclear power plants, and explored the technical requirements for measuring waste activity levels based on international standards. The project investigated the compliance of surface contamination detection techniques with international standards for low activity levels. Using the Monte Carlo method, we simulated low-level surface contamination and calculated correction factors for surface contamination detectors, analyzing the relationship between surface emission and volume/area source characteristics and counting rates. We also investigated the uncertainty of surface contamination radiation measurement techniques and developed a feasible procedure screening measurement for surface contamination. The results of this project can be applied to sorting and measurement operations waste in decommissioning, providing a reference for regulatory measurement techniques and quality assurance.

**Keywords** : decommission, radioactive waste, clearance, Monte Carlo simulation

## I. 前言

核電廠在除役拆除過程中會產生大量的廢棄物,必

須依據法規與規範進行相關廢棄物的物流管理,才能達 到安全妥善的處理。國際原子能總署(International Atomic Energy Agency, IAEA)發佈 IAEA GSR part 6[1], 闡述對於核設施除役的安全管制要求,並提出要求須對 除役廢棄物進行妥善的物流管理。有關除役廢棄物的 流管理,包括處置、貯存或是在符合國際安全規範下進 行外釋,因此在管制立場上,管制機關會訂定各項安全 管制標準與規範,而在設施經營者執行面上,應有除役 計畫妥善規劃各項廢棄物的管理,若核設施運轉期間造 成物質或設備存在殘留的活化放射性核種,則需要進行 廢棄物處置,若暫時不進行或是不符合處置要求則需要 有妥善的貯存規劃,若物質或是設備屬於清潔或是輕微 污染,一般可透過量測確認其是否屬於可忽略劑量的影 響程度而可申請進行外釋。

為確保除役廢棄物的物流管理安全性,關鍵要點在 於建立具可信度、標準化的輻射度量技術,本計畫研析 國際間輻射量測作業與廢棄物分類檢整技術之原理與 方法,彙整核電廠除役過程中的低活度廢棄物的物流管 理需求,並探討國際規範與量測廢棄物比活度之技術要 求。本計畫亦配合現場作業需求,以比活度之國際規範 需求探討表面污染偵測技術的應用合規性,以蒙地卡羅 方法進行低活度表面污染之模擬與表面污染偵檢器範 正因子之計算,分析表面發射與面射源、體射源特性以 及計數率之關係,探討表面污染輻射度量技術之不確定 度,研析建立具可行性之表面污染快篩量測程序,計畫 成果提供主管機關作為解除管制量測技術與品質保證 之參考依據。

#### II. 研究內容

IAEA 於 2012 年出版之 Safety Reports Series No.67 「Monitoring for Compliance with Exemption and Clearance Levels」[2],報告提供了系統性的指南,用以 協助核能設施經營者評估解除管制的合規性,確保遵守 國際輻射防護監管標準。制定檢測策略須具備物料流的 概念,應先針對各類型的物質材料進行分類,可細分為 "預期清潔"或"潛在污染"類別,以及"表面污染(阿伐、 貝他粒子)"或"物質污染(加馬射線)"類型,並選擇所需 使用的偵檢儀器進行量測,有時可以直接度量出物質污 染數據,亦可採用如擦拭等間接度量法,故在整體量測 方案需互相結合直接量測法與間接量測法,並做綜合性 的描述與結果判定說明,方能提出符合解除管制標準的

決策。

IAEA SRS-67 號報告[2]提出三種量測技術探討檢 測策略,包括表面掃描,體積活度量測和取樣實驗室分 析,其中以表面掃描和體積活度量測相對成本便宜,可 以在已知放射性核種組成下,選定容易測量的放射性核 種作為代表核種,以建立一套具合理精確的程序與判定 方案;而取樣樣品進行實驗室分析是屬於較昂貴的方法, 但其可用來確認放射性核種的存在與否。在訂定檢測策 略時,有時量測技術無法完全準確區分出是否高於或低 於解除管制標準,其通常可以採用分級檢測方法,第一 階段先採以具成本效益的量測技術,如表面掃描、體積 活度量測,先有效確定哪些部分是明顯高於或低於水平, 而留下數量相對較小的不確定部分,進行第二階段較昂 貴的量測技術,如取樣實驗式分析。並用於監視此相對 較少的部分。

一般而言,經過每一道量測程序的度量結果,可用 以說明並分類為"受污染"(係指量測數據明顯高於解除 管制標準)、"清潔"(係指量測數據明顯低於解除管制標 準)或"不確定"(係指量測數據可能高於或低於解除管制 標準),經過最終分析結果,屬於受污染和不確定的類 別應將其作為放射性廢棄物進行除污或處置,可以證明 屬於清潔的廢棄物才可以從管制程序中執行外釋。

ISO 7503-1 報告[3]提供有關表面污染量測技術指 導,定義了表面污染為放射性物質沈積在界定的表面上, 而根據 ANSI N13.12 [4]之定義,表面活度為存在於物 件表面或接近表面的放射性,可使用單位面積上的活度 加以量化,單位為 Bq/cm<sup>2</sup>,而當物件長期曝露於中子輻 射時,物件可能因為裂縫或中子活化使其內表面或整體 具有放射性,此物件應被認為是體污染射源,而以體積 或質量比活度(specific activity)加以量化,單位為 Bq/cm<sup>3</sup> 或 Bq/kg,例如:核反應器的結構組件、屏蔽與管線等。

在核子反應器設施除役計畫導則中[5],訂定了除 役過程中產生的放射性廢棄物必須實測或推估其主要 核種、比活度、表面污染、中子活化性、空間劑量率等 特性。表面污染的量測常以污染偵檢器直接度量之,此 直接度量法適用於低背景輻射干擾、污染表面為平面且 無非放射性液體或固體覆蓋之情境下,以表面污染偵檢 器貼近放射性廢棄物 3 mm 內,直接量測其每秒鐘的計 數值(count per second, CPS),而表面活度(Bq/cm<sup>2</sup>)即為 CPS 除以儀器反應(instrument response, R)再除以偵檢 器窗面積(cm<sup>2</sup>),進一步計算,儀器反應 R 為儀器效率 (instrument efficiency,  $\varepsilon_i$ )與射源效率(source efficiency,  $\varepsilon_s$ ) 的乘積, $\varepsilon_i$ 以及  $\varepsilon_s$ 與核種的衰變特性、放射性廢棄物的 幾何與材質、射源窗與射源表面的污染等均有關係。本 研究透過蒙地卡羅粒子遷移模擬表面污染與體污染的 射源效率與儀器效率。

我們以蒙地卡羅方法進行表面污染偵檢器之通用 模型建立,如圖1,模型之特徵包括通用污染偵檢器幾 何以及表面污染與體污染基材幾何,其中偵檢器氣腔的 厚度為1mm、填充氖氣,濾片為6µm 雲母,基材分別 為水、鋁、水泥、鐵、銅,尺寸為20×20 cm<sup>2</sup>、厚度為 1 cm。表面污染射源位於表面 0.1 mm 之區域,體污染 射源則均匀分布於基材之中。

在表面污染的射源效率方面,ISO 7503-3 號報告[6] 的建議值為貝他衰變最大能量大於 400 keV 時為 0.5、 最大能量介於 150~400 keV 時為 0.25。圖 2 顯示了本研 究模擬不同射源材質下的射源效率,可以發現能量越高 射源效率越高,主要為貝他粒子的射程較長,較亦穿透 基材而貢獻於射源效率,因此大幅的提升了射源效率, 然而,模擬數值皆低於 ISO 7503 號報告的建議值,主 要的原因為 ISO 7503 號報告並未考慮射源材質的自吸 收。在水中的射源效率方面,Ni-63 為 2.2%、其他射源 在 13%~40.3%之間,Sr-90 的模擬結果與 ISO 7503 報告 的建議值接近。在高原子序的基材方面,有效原子序越 高射源效率大幅下降,主要的原因為貝他粒子的衰减。



圖1通用表面污染偵檢器之模型建立



圖 2 水、鋁、水泥、鐵、銅的射源效率,所模擬之射 源項包括:C-14、Ni-63、Sr-90、I-129

在表面污染的儀器效率模擬方面,射源均匀分布於 射源層上方並以等方向性發散,射源層的材質分別設計 為水、鋁、水泥、鐵、銅,並記錄通過射源層表面的粒 子發射數與污染偵檢器的粒子數,計算儀器效率。ISO 7503-3 號報告[6]的保守建議值為 40~70 keV: 0.26、 70~140 keV: 0.6、140~400 keV: 0.7、大於 400 keV: 0.67。圖 3 顯示了不同基材下的儀器效率,由結果可以 發現,在低能量下(Ni-63)的模擬結果遠低於建議值,主 要的原因為低能貝他粒子會被 6 μm 的濾片衰減,在中 高能量之下,模擬結果與建議值相近,除此之外,基材 的種類並不會顯著的影響儀器效率,主要的原因為射源 分布於基材上方,不會顯著的造成額外的散射與衰減效 果,因此僅在高能量下與高原子序的基材才會產生較多 的背散射。我們的模擬結果與 ISO 所提出低敏感度表 面污染增減器較為接近。



圖 3 不同射源材質下的儀器效率,所模擬之射源項包 括:C-14、Ni-63、Sr-90、I-129

在體污染的射源效率方面,放射性核種均勻分布於 體射源基材中,可能產生較多的多重散射與背散射,此 外輻射到達污染物的表面也會產生較多的衰減。體污染 模型設計為1 cm 厚的射源層上方覆蓋一層髒污層,表 面污染偵檢器設計為1 mm 厚的長方體,面積小於射源 層並置於髒污層上方3 mm。射源項設計為 C-14、Ni-63、Sr-90、I-129等難測核種。ISO 7503-3 [6]並無體污 染之數據。圖4顯示了不同射源材質下的射源效率,可 以發現模擬結果皆低於2%,而隨著貝他輻射的能量上 升而略微上升,主要的原因為基材所造成的自衰減。在 不同的原子序方面,原子序越大射源效率越低。



圖 4 水、鋁、水泥、鐵、銅的射源效率,所模擬之射 源項包括:C-14、Ni-63、Sr-90、I-129

由上述的模擬結果可知, ISO-7503 號報告的建議 值較為保守,且未能考量射源的自吸收、基材的背散射 以及基材的種類,針對不同的偵檢器幾何,蒙地卡羅模 擬可得到更為準確的射源效率與儀器效率,對於儀器反 應的評估有重要的影響,因此,我們建議針對不同的表 面污染偵檢器進行幾何建模與效率模擬,如此將可較為 準確的評估除役放射性廢棄物是否清潔,且可以外釋。

在探討表面污染快篩量測之不確定度與程序方面, 放射性同位素的衰變為一個隨機發生的過程,單位時間 內的變化量為隨機量,因此受到統計波動而呈現特定頻 率密度函數的樣態,如此的波動與統計的分布是無可避 免的,亦成為誤差的主要來源之一。利用低污染表面偵 檢器量測放射性同位素衰變所產生的輻射粒子,亦會引 入射源效率與儀器效率等因子,根據本研究的結果,此 兩因子悉由蒙地卡羅模擬而求得,亦具有統計上的誤差。 輻射的衰變與輻射的量測兩項誤差將藉由誤差擴散模

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

型,使得表面污染偵檢器讀值的不確定性更加上升。為 了解表面污染偵檢器讀值的可信度,我們必須使用計數 統計與誤差擴散模型分析輻射度量的結果,以確認表面 污染存在的可信度、裝備的正常性、偵檢器計讀值與背 景值計測值等資訊,最後得以求得關鍵水平(Critical Level,  $L_c$ )、偵測水平(Limit of Detection,  $L_D$ )、最小可測 濃度(Minimum Detectable Concentration, MDC)、與最小 可測計數率(Minimum Detectable Count Rate, MDCR)。

在最小可測濃度方面,根據 NUREG-1507 號報告 [7], MDC 定義如下式,其中 T 為量測時間、K 為效 率因子,可修正表面污染偵檢器的儀器效率與射源效率、 放射性廢棄物的幾何與材質、放射性同位素的衰變比例、 放射性廢棄物的自吸收、前處理的回收率與樣品的質量 等因子,以將偵測極限轉換為 MDA。由於 K 值具有統 計的波動,因此必須納入誤差擴散的計算中。在 95%的 信賴水平、K 值的標準不確定度為 σ下,則 K 值有 95% 的機會落在 2σ 內,在考量保守評估的條件下,我們應 使用 K 值的下限值稱為  $K_{0.05}$ ,而此時保守的 MDC 稱 為 MDC<sub>k0.05</sub>:

$$MDC = \frac{L_D}{K \times T} = \frac{3 + 4.65\sqrt{N_B}}{K \times T} \tag{1}$$

$$K_{0.05} = K \times (1 - 2\sigma)$$
 (2)

$$MDC_{K_{0.05}} = \frac{3 + 4.65\sqrt{N_B}}{K_{0.05} \times T}$$
(3)

在最小可測計數率方面,在表面污染偵檢的過程中, 工作人員常進行連續性掃描,MDCR 提供了一套分析 架構,以決定偵檢器的訊號來源與偵檢人員的成效特性。 靈敏度指數 d'(index of sensitivity)定義為背景平均值 N<sub>B</sub> 與訊號平均值 Ns(含背景)之間的距離,並以背景值的標 準差為單位表示,靈敏度指數可用來確認在特定失誤率 的情況下最小須達到的訊號平均值,在 95%的真陽率與 5%的偽陽率條件下 d'= 3.29, Ns 的計算如下式,而 MDCR 即為 Ns 除以量測時間。

$$N_s = d' \times \sigma_B + N_B \tag{4}$$

$$MDCR = \frac{N_s}{t} = d' \times \left(\frac{\sigma_B}{t} + \left(\frac{N_B}{t}\right) - \left(\frac{S}{t}\right)\right)$$
(5)

當偵檢人員操作表面污染偵檢時,通常是由兩個步 驟完成整個掃描過程,首先以連續掃描進行,此時以表 面污染偵檢器距離污染表面3mm之距離連續移動偵測 探頭,並針對儀器的讀值進行大致的觀察,此時偵檢人 員可能會以較為寬鬆的標準作為是否具有射源存在的 判定,若判定為陽性則進行第二階段的靜置量測,此時 偵檢人員需將表面污染偵檢器置於射源一段時間以進 行量測,此時判斷有無污染的標準會較為嚴格。

在 MDCR 的架構中, 偵檢人員的主觀判斷亦會影 響靈敏度指數的設定, 當偵檢人員預期表面污染存在時, 可能使用較小的靈敏度指數,亦即其對於污染的判定是 較為寬鬆的,如此可能提高偽陽性的機率:反之,當偵 檢人員預期表面污染不存在時,可能使用較高的靈敏度 指數,亦即其對於污染的判定是較為嚴謹的,如此可能 提高偽陰性的機率。若偵檢人員經過長時間的檢測都未 偵測到表面污染,則偵檢人員開始預期表面污染不存在, 因此靈敏度指數會提高,可能提高偽陰性的機率。同樣 的,若偵檢人員預期表面污染偵檢器具有較高靈敏度, 則其可能提高移動偵檢器的速度,如此靈敏度指數會提 高,可能提高偽陰性的機率。

我們亦可將偵檢人員的偵測效率利用模型加以評估,根據實驗結果偵檢人員的效率值 p 在 0.5~0.75 之間,因此常使用 0.5 作為偵檢人員效率的低限值,此時, 最低可測淨計數值 Ns,net 與 MDCR 則可修正為下式:

$$N_{s,net,surveyor} = \frac{d' \times \sqrt{N_B}}{\sqrt{p}}$$
(6)

$$MDCR_{net,surveyor} = \frac{d' \times \sqrt{N_B}}{t \times \sqrt{p}}$$
(7)

在連續掃描的情況下,MDC 亦需要進行修正,其 中 A 為掃描面積、ε<sub>s</sub> 與 ε<sub>i</sub>分別表示射源效率與儀器效 率,在 95%真陽性率與 5%偽陽性率的條件下 d'=3.29, 因此連續掃描下的最低可測活度 MDC 如下式:

$$MDC_{scan} = \frac{3.29 \times \sqrt{N_B}}{\sqrt{p} \times \varepsilon_i \times \varepsilon_s \times A \times t}$$
(8)

由上述結果可知,工作人員在進行表面污染偵測之前,必須確認其對於量測結果正確性的比例,以求得連續掃描下的最低可測活度,除此之外,亦須考量偵檢人員的效率值與污染偵檢器的儀器效率與射源效率,以最 佳化最低可測活度的評估。

#### III. 結論

本計畫透過研析 IAEA 對於除役廢棄物分類檢整 的整體原則,掌握除役低活度廢棄物在物流管理方面的 管制要求,以及研究國際推導解除管制標準的理論基礎, 並探討所需的解除管制量測技術。同時為精進除役廢棄 物解除管制所需之表面污染量測技術,本計畫參考國際 文獻,考量實務面量測所面臨的條件與環境,運用蒙地 卡羅方法進行低活度表面污染之模擬與表面污染偵檢 器校正因子之計算,分析表面發射與面射源、體射源特 性以及計數率之關係,探討表面污染輻射度量技術之不 確定度,提供主管機關作為解除管制量測技術與品質保 證之參考依據。

## 參考文獻

- [1] International Atomic Energy Agency (IAEA), Decommissioning of Facilities. 2014, IAEA General Safety Requirements Part 6.
- [2] International Atomic Energy Agency (IAEA), Monitoring for Compliance with Exemption and Clearance Levels. 2012, IAEA Safety Reports Series No.67.
- [3] Measurement of Radioactivity Measurement and Evaluation of Surface Contamination - Part 1: General Principles, Standard ISO 7503-1:2016, International Organization for Standardization, ISO, Geneva, Switzerland, 2016.
- [4] Surface and Volume Radioactivity Standards for Clearance, American National Standard ANSI N 13.12, American National Standards Institute, Inc., May 2013; published by the Health Physics Society.
- [5] 核子反應器設施除役計畫導則,會核字第 10800093491號,行政院原子能委員會,108年8 月14日修訂。
- [6] Measurement of Radioactivity Measurement and Evaluation of Surface Contamination - Part 3: General Principles, Standard ISO 7503-3:2016, International Organization for Standardization, ISO, Geneva, Switzerland, 2016.
- [7] U.S. Nuclear Regulatory Commission. (1996). NUREG-1507, Consolidated guidance about materials licenses: Program-specific guidance about possession licenses for manufacturing and distribution, standard review plan, and acceptance criteria for spent fuel storage casks. Washington, DC: U.S. Nuclear Regulatory Commission.

# 以 PFC 模擬處置孔間裂隙受開挖力學-熱力耦合作用之行為 Modelling the coupled thermal-mechanical behavior of rock fissure between deposition holes using PFC

計畫編號: MOST 111-2623-E-032-001 -NU 計畫主持人:楊長義 e-mail: yang@mail.tku.edu.tw 計畫共同主持人:李宏輝 計畫參與人員:何德祥、黃勗庭 執行單位:淡江大學土木系

摘要

面

化問題。

高放核廢料處置孔周邊之既存岩石裂隙或節理面 是水流入侵的主要路徑。當岩石裂隙內寬愈大,其水力 傳導性越高,而裂隙內寬則會受到開挖擾動應力重新分 配之力學作用,或遭受衰變熱應力之作用,易使其發生 錯動或開合等力學改變,因而使導其水性質發生變化。 本研究利用顆粒流程式 PFC2D 模擬兩個處置孔間之岩 柱內的一條節理受開挖擾動力學作用、併其後受衰變熱 應力作用兩者之耦合作用,過程中所造成節理裂隙變形 與受力行為之改變。

**關鍵字:**處置孔、節理、力學耦合、熱-力耦合、PFC。

#### Abstract

The erosion of Bentonite buffer in a deposition hole is mainly transported by the water inflow from rock joints. The rate of inflow highly depends on the apeture of joints and fractures. The large aperture of a joint has greater permeability property. The joint opening or closure behavior is dominated by the coupling effect of hole excavation and thermal stress. This research uses PFC2D to model the disturbance of hole tunnelling and heating effect on a single joint between two deposition holes. The change of joint opening and rock deformation during excavation and heating is observed.

**Keywords:** deposition hole, joint, mechanical coupling, mechanical-thermal coupling, PFC.

## I. 前言

高流通性的岩石裂隙(fractures)穿透高放射性核廢 料處置孔壁會使飽和緩衝材受侵蝕或流失,見圖 1.1,而 影響到緩衝材自封能力,致使喪失其安全功能性能。裂 隙內寬(aperture,e 值)愈大遷移速度愈快,故是影響滲 流或污染源遷移的重要因子;亦即滲透係數 K 與內寬(e 值)的平方成正比關係,意謂當裂隙內寬 e 值發生些微的 改變,即可能導致滲透係數 K 很大的變化。

因此,本研究利用顆粒流 PFC2D 程式(v5.0)來模擬 兩個核廢料處置孔間岩柱的一條裂面(本文通稱節理)在 受開挖擾動後應力重整(stress redistribution)的力學作用 (mechanical-effect)、以及其後續受衰變熱之熱應力作用 (thermal-stress)兩者的耦合作用所造成變形與受力的變

圖 1.1 處置坑道周邊裂隙節理示意

#### II. 主要內容與結果

本研究以 55000 顆顆粒建立一個長 40m 寬 30m 之 平行鍵結(parallel bond)模型,再進行現地應力加載。在 完成加載後,在模型中央生成一道長 5m(寬 20cm)之節 理裂面,示意如圖 2.1 所示雙處置孔即其間節理裂面之 水平橫切剖面模型。圖中並為預留孔內之加溫顆粒(紅色 區)的空間,故設計處置孔半徑為 2m、兩孔間距設為 10m,以進行雙處置孔先後開挖作用及先後加熱作用之 模擬。



圖2.1 雙處置孔尺寸與鉛直節理之走向幾何關係

現地應力之預壓方式,係採對模型邊界雙向壓縮, 是以 FISH 程式控制邊界牆速度來對模型施加圍壓,加 壓速率為 0.01m/s,施加目標應力為 13.5MPa 的 (水平 向)等向應力狀況。

在加載完成固定邊界牆位置後,再以平滑節理鍵結 模式(smooth-joint model)生成節理分別與兩處置孔的連 線方向 X-X 夾  $\theta = 0^{\circ} \cdot 45^{\circ} \cdot 90^{\circ} 之三種走向角度(其傾角$ 

90°)情況,如圖 2.2。並分別命名為:H0H joint (θ=0°)、 H45H joint ( $\theta$  = 45°)、H90H joint ( $\theta$  = 90°)、及圖中標示 No joint 表示不含節理的完整岩柱,以供比較討論。在現 地應力及節理設置生成後,再進行處置孔開挖作用之擾 動力學耦合效應模擬與分析。



圖 2-2 本文依其節理走向角度之四種案例

#### 2.1 單一孔開挖對節理之變形擾動

如圖 2.3 所示, 左孔單一孔先開挖對 H0H 及 H90H 雨種狀況之擾動對節理造成的張開量皆大於錯動量;且 發生張開量在節理中段都大於在兩端。進一步,可知開 挖擾動對正交於處置孔向(X-X)的 H90H 節理變形之影 響皆大於平行處置孔向 Y-Y(H0H)之影響。



## 2.2 第二孔開挖力學耦合對節理變形之擾動

透過圖 2.4 四者位移向量分佈圖,可觀察出與前述 位移量等高線分佈類似,向量分布場均呈左右對稱。即 在 HOH、H90H 節理及完整岩石條件下,三者之第二孔 開挖後均使岩柱整體位移向量減小;但在H45H節理中 則第二孔開挖後與單孔開挖時差不多,左右較為各自獨 立互不影響。

從節理面上位移向量的方向觀察,可知在雙孔開挖 後節理都是垂直節理面方向張開的,且節理中段的張開 量大於兩端(見圖 2.5),對 H90H 節理造成的張開量最大。



圖2.4 雙孔開挖造成節理之位移向量場比較



圖2.5 左右先後開挖造成節理之張開量比較

#### 2.3 單一孔加熱對節理之變形擾動

透過圖 2-6 所示加熱到 90℃ 時的位移向量,對節理 之影響,定性上可發現,(1)熱應力作用對 HOH 節理產 生切向位移干擾大於張開量;但對 H90H 節理干擾則主 要在正向位移。(2)將節理隨溫度作用的張開量整理於 圖 2.7,可發現熱應力對 H0H、H45H 最大張開量主要發 生在靠近加熱孔端,對 H90H 則發生在中段部位。(4) 隨溫度上升,使 H0H 節理之張開量漸次增加,但 H90H 節理張開量則漸次減少發生閉合現象。將左孔熱應力作 用後與前述力學耦合作用兩者之張開量進行比較,可得 知熱應力作用使 H0H、H45H 節理產生張開效應,但使 H90H 節理產生閉合效應。







圖 2.7 隨溫度上升之節理產生正向位移量變化

## 2.4 第二孔加熱之熱-力耦合對節理變形之擾動

圖 2.8 所示為右孔加熱到 90℃時之位移向量,並與 前述左孔加熱到 90℃時之比較。 由圖中觀察,可知右 孔加熱亦是主要發生向右孔內位移,右孔孔壁的斷鍵亦 比先加熱孔少,即使是無節理狀況,故知孔壁斷鍵破裂 與受熱順序有關。

對節理之受熱影響可配合圖 2.9 之比較,可知對 HOH、H45H 節理受右孔加熱其張開量更趨張開,且在 靠近先受熱的左端張開量最大,後受熱的右端則開口量 較小;而 H90H 則更趨閉合,一樣在中段的開口量較大。

## III. 結論

本計畫透由 PFC2D 模擬雨處置孔間節理受開挖力 學作用擾動及其後衰變熱應力作用雨者之耦合作用行 為改變。獲致以下主要結論:(1)兩處置孔間節理受開挖 擾動行為與節理的方向有關。開挖對平行(HOH)及垂直 (H90H)於處置孔方向兩種節理所造成的張開量皆大於 剪位移;而對斜向節理(H45H)則產生剪位移較明顯。(2) 開挖對兩孔間節理都是造成張開變形,且節理中段的張 開量大於兩端。(3)開挖在 H90H 節理因節理的吸納變形 作用使岩柱整體位移量減低,顯示兩孔開挖發生互相耦 合作用。(4)熱應力對 H0H、H45H 的最大張開量主要發 生在靠近加熱孔端,對 H90H 則在中段部位。(5)隨溫度 上升,使 H0H 節理之張開量漸次增加,但 H90H 節理之 張開量則漸次減少,熱應力使發生閉合現象。



圖 2.8 左右孔先後受熱後之位移向量比較



圖2.9 受不同溫度造成節理之正向位移

## 參考文獻

- 台灣電力公司(2021),我國用過核子燃料最終處 置初步安全論證報告,SNFD2021。
- [2] 李宏輝、楊長義(2018),熱力引致處置母岩損傷及 其對處置孔道之影響研析,科技部專題計畫成果 報告,MOST 106-2623-E-606-009-NU。
- [3] 何德祥(2021),以 PFC 模擬分析處置孔間裂面受 熱應力錯動行為,碩士論文,淡江大學。
- [4] 楊長義、翁孟嘉 (2014),模擬裂隙損傷區對母岩 受熱應力與外力作用之耦合效應研究(I),國科會 專題計畫完整報告,NSC 102-2623-E-032-002-NU。
- [5] 楊長義(2016),先進國家地下實驗室熱水力(THM) 耦合試驗成果與分析模式之研析,科技部專題計 畫完整報告,MOST 104-NU-E-032-002-NU。
- [6] 楊長義(2020),我國深層地質處置坑岩柱群之 力學穩定性模擬研究,科技部專題計畫完整報告,MOST 107-2221-E-032-007。
- [7] Andersson, J.C., C.D. Martin and H. Stille (2009), The Äspö pillar stability experiment: Part II- Rock mass response to couples excavation-induced and thermal-induced stresses, International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 46:879-895.
- [8] Eva, H. and O. Stig-Olof (2002), Numerical modelling of fracture displacements due to thermal load from a KBS-3 repository, TR-02-08, SKB.
- [9] Falth, B. and H. Holmark (2007), mechanical and thermo-mechanical discrete fracture near-field analyses based on preliminary data from the Fosmark, Simpevary and Laxemar sites, R-06-89, SKB.
- [10] Fredriksson, A., I. Staub and N. Outters (2004), Aspo Pillar Stability Experiment- Final 2D coupled thermo-mechanical modelling, R-04-02, SKB.
- [11] Lonnqvist, M. and H. Hokmark (2008), Thermomechanical analysis of a KBS-3H deposition drift at Olkiluoto site, R-08-30, SKB.
- [12] SSM(2015), Rock mechanics- Thermal properties and thermal modelling of the rock in a repository of spent nuclear fuel at Forsmark, TN 2015:01.
- [13] SSM(2019), 3D thermo-mechanical coupled modelling of thermo-seismic response of a fractured rock mass related to the final disposal of spent nuclear fuel and nuclear waste in hard rock, Research 2019:15.
- Wanne, T., E. Johansson and D. Polyondy (2004), Äspö pillar stability experiment: Final coupled 3d thermo-mechanical modelling: Preliminary particle – mechanical modeling, R-04-03, SKB.
- [15] Yoon, J.(2007), Application of experimental design and optimization to PFC model calibration in uniaxial compression simulation, International Journal of Rock Mechanics & Mining Sciences 44: 871–889.

# 放射性廢棄物最終處置重要核種遷移試驗與數學驗證模式建立之研析(III) Study on the migration experiments of important radionuclides and the development of mathematical verification models for the final disposal site (III)

計畫編號: MOST 111-2623-E-007-005-NU 計畫主持人: 田能全 e-mail:nctien@mx.nthu.edu.tw

執行單位:國立清華大學原子科學技術發展中心

### Abstract

Transport of nonreactive (tritium, HTO) and anion radionuclides through two columns with different was experimentally and mathematically diameters examined for three inflow rates. One-dimensional advective dispersive experiments were effectively designed to investigate radionuclide transport through a numerical calibration/validation nonequilibrium model. The two columns were filled with crushed granite, and transport of HTO and two iodine species-iodate (IO3-) and iodide (I)-through them was studied to obtain breakthrough curves for a water-saturated condition. The significance of I<sup>-</sup> was found in the smaller column for an input flow rate of 5 mL/min. The accelerated transport of I<sup>-</sup> may have resulted from anion exclusion, and its relatively stronger Coulomb repulsive force was probably because of its smaller hydration radius than IO<sub>3</sub>-.

**Keywords:** anion repulsion, transport, granite, iodide, iodate, tritium t

## I. 前言

For the geological disposal of HLW, granite, a type of crystalline rock, has been considered a viable host rock in various countries (Hedin, 2011). The current study examined whether anion exclusion exists for IO<sub>3</sub><sup>-</sup> and I<sup>-</sup> in Taiwan's local granite. Two different geometric columns (diameters: 1.6 & 2.6 cm; length = 30 cm) were filled with crushed granite in fixed porosity. A saturated flow condition was established, and tritiated water (HTO) was used as a nonreactive tracer to determine the physical properties of the column, such as the dispersivity and fraction of the immobile zone. The effect of the flow rate on IO3<sup>-</sup> and I<sup>-</sup> transport was investigated to examine whether the transport was species-controlled. The physical nonequilibrium (PNE) or two-region model (Gamerdinger et al., 1990; van Genuchten, 1981)embedded in the CXTFIT code was used to investigate and determine the transport parameters through a calibration process for data obtained from ADE experiments involving  $IO_3^-$  and  $I^-$ . Based on the dispersivity, distribution coefficients  $(K_d)$ , retardation factors (R) and kinetic parameters of radionuclide transport models, it would be effective for us to provide confidence in various scales from laboratory- to field-scale experiments in the next period.

## II. 主要內容

#### 2.1 Theory of advection and dispersion

The popular software CXTFIT can be used to deal with nonequilibrium ADE models caused by physical (PNE or two-region model) or chemical (chemical nonequilibrium (CNE) or two-site model) factors. The PNE model can be used to quantify the transport of sorbing and non-sorbing solutes, while the CNE model is usually used to describe the transport of sorbing solutes. Solutes investigated in this study were less sorptive, and hence, the PNE model was used to analyze and calibrate our experimental data.(Chandel & Swami, 2021).

#### **2.2 Experiments**

Since granite is made of volcanic rocks, there are crystalline particles in it, as evident in the polar microscope images in Figure 1. Furthermore, biotite in granite has a hue that is black or dark, and it is easy to identify quartz, which is somewhat white or grey-white, and feldspar, which is slightly brown. Matching images obtained through elemental mapping analysis and SEM-EDS were acquired and contrasted. Quartz, felspar, plagioclase, and biotite were the principal mineral components of granite, based on a comparison of different areas and the minerals that contribute to it. This information has also been reported in earlier research, which used other analysis tools. (i.e., X-ray diffraction analysis and Rutherford backscattering spectrometry analysis)

In general, laboratory studies are preferred for studying radionuclide transport because radiation restriction and experimental conditions can be much better controlled in the laboratory compared with in situ field tests. The ADE experimental apparatus (see Figure 2) in this work followed the guidelines and review in previous pieces of literature to provide practical recommendations (Palágyi & Štamberg, 2014). The classical, common, and dynamic devices employing a flow column system (Shi et al., 2021) that are used to obtain experimental breakthrough curves (BTCs), and it qualitatively estimated the dispersivity, retardation factor, and kinetic exchange coefficient for HTO,  $IO_3^-$ , and I<sup>-</sup>. A precise and efficient method was established in an earlier work to qualitatively and quantitatively analyze  $IO_3^-$  and  $I^-$ , both individually and when they coexist, at different concentrations; the method involved the use of ion chromatography (IC) and inductively coupled plasma optical emission spectrometry (ICP-OES). The method was used in the current study for performing effective

qualitative and quantitative analyses of the two forms of anionic iodine  $IO_3^-$  and  $I^-$ .



**Figure 1**. Images of the testing of granite for mineral distribution obtained by polar microscopy: (a) intact samples and (b) polished sample



Figure 2 Experimental devices

## III. 結果與討論

Figure 3 by using a dashed line. The BTC of Type A-5 was shifted to the left-hand side compared with the BTC of R = 1. In addition, in the case of anion exclusion, we hypothesize that enhanced I<sup>-</sup> transport is possible because of the negative charge of the species because of the negatively charged mineral surface (i.e., the anion exclusion mentioned above). Since the pore velocity (v)was obtained from the calibrations, the porosity of the mobile zone ( $\theta_{\rm m} = q/v$ ) could be easily obtained by using the relationship between flow rate (q) and pore velocity. Moreover, for HTO,  $\beta$  could be calculated using the formula  $\beta = \theta_{\rm m}/\theta$ . The hydrodynamic coefficient D of IO<sub>3</sub><sup>-</sup> and I<sup>-</sup> was further assumed to be identical to that of tritium. Additionally,  $\beta$  values obtained from HTO optimizations for the Type B column were also fixed; this might have caused minor errors, but it is mostly reasonable given that IO<sub>3</sub><sup>-</sup> and I<sup>-</sup> are weak/non-sorptive tracers (Gvirtzman & Gorelick, 1991; Gvirtzman & Magaritz, 1989).



**Figure 3** Comparison between Type A-5 BTC and the BTC obtained through forward calculation with R = 1 for I-

#### IV. 結論

Dynamic column experiments were performed with HTO,  $IO_3^-$ , and I<sup>-</sup> for three pore-water velocities and two column dimensions to determine if anion exclusion affected iodide and/or iodate transport.

HTO has been suggested to be a suitable tracer for determining average pore-water velocities and dispersion coefficients [49]. In this study, the two-region model was used to simulate tracer transport, and HTO was successfully used to determine the porosity of the mobile or immobile zone and the dispersivity for different columns.

In the PNE model, the theoretical factor that dominated the nonequilibrium behavior of the nonreactive tracer, such as HTO,  $IO_3$ , and I, was the diffusion-like process between the mobile and immobile zones. In this study, most cases showed high  $\beta$  and  $\omega$  values, with symmetric BTCs being observed at selected water velocities and column dimensions. This suggested the absence of significant nonequilibrium under the experimental conditions considered in our work.

Generally, iodine is regarded as a non-sorbing radionuclide in safety assessments for repositories, and previous studies (Palágyi & Štamberg, 2014) have reported a retardation factor of 1.0 for the element. In particular, I-129 is one of the most crucial radionuclides because of its extremely long half-life. In this study, we present an interesting and a potentially important investigation that indicates that I<sup>-</sup> transport might be enhanced because of anion exclusion in crushed granite columns.

It was possible to extrapolate from laboratory scale to an in situ or a field testing scale for HLW disposal in the following time because of the comparative experimental and modeling investigations. One of the most important factors to be considered in the conversion of laboratoryderived D to in situ circumstances is the difference in porosity and dispersivity between laboratory and in situ conditions. We further show that a low  $K_d$  in the disturbed surfaces is crucial to assess transport, in both laboratories and in situ testing, and that anion exclusion is probably a major mechanism in crystalline rocks.

#### 参考文獻

- Chandel, A., & Swami, D. (2021). Review of nonequilibrium flow and transport models in saturated porous media. 228–245. https://doi.org/10.32438/wpe.222021
- Gamerdinger, A., Wagenet, R., & Van Genuchten, M. (1990). Application of Two-Site/Two-Region Models for Studying Simultaneous Nonequilibrium Transport and Degradation of Pesticides. *Soil Science Society of America Journal*, 54, 957–963. https://doi.org/10.2136/sssaj1990.03615995005400 040003x
- Gvirtzman, H., & Gorelick, S. M. (1991). Dispersion and advection in unsaturated porous media enhanced by anion exclusion. *Nature*, *352*(6338), Article 6338. https://doi.org/10.1038/352793a0
- Gvirtzman, H., & Magaritz, M. (1989). Water and Anion Transport in the Unsaturated Zone Traced by Environmental Tritium. *Null.* https://doi.org/10.1007/978-3-642-74451-8\_13
- [5] Hedin, A. (2011). Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. Main report of the SR-Site project (R-11-01). SKB.
- [6] Palágyi, Š., & Štamberg, K. (2014). Transport parameters of I- and IO3- determined in crushed granitic rock columns and groundwater system under dynamic flow conditions. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 302(1), 647-653. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3267y
- [7] Shi, Y., Lee, C.-P., Yu, H., Hu, Y., Liu, H., Tien, N.-C., Wang, Y., Liu, W., Kong, J., Hua, R., & Zhang, A. (2021). Study on advection–dispersion behavior for simulation of HTO and Se transport in crushed granite. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 328(3), 1329–1338. https://doi.org/10.1007/s10967-021-07750-8

[8] van Genuchten, M. Th. (1981). Non-Equilibrium Transport Parameters from Miscible Displacement Experiments. In *Research Report 119*. 發展數值模擬工具探討膠體加速放射性核種衰變鏈多成員核種遷移與放射性廢棄

## 物地質處置安全評估應用

# Development of numerical model for colloid-facilitated transport of multiple members of a radionuclide decay chain and its application to safety assessment for deep geological disposal of high-level waste

計畫編號:111-2623-E-008-001-NU 計畫主持人:陳瑞昇 e-mail:jschen@geo.ncu.edu.tw 計畫共同主持人:梁菁萍 教授 執行單位:國立中央大學應用地質研究所

## 摘要

深層結晶岩體構造被認為是長期阻隔高階廢棄物 進入生物圈的可行選擇。放射性核種重新回到生物圈的 主要途徑為廢料外釋,並藉由流經處置場周遭岩體的裂 隙地下水而傳輸。因此了解核種在裂隙-母岩系統的遷 移行為對於場址的選擇、場址特性分析、運轉與封閉等 階段的高階廢料深地層處置的安全評估都相當重要。裂 隙地下水存在的膠體主要源於近場材料劣化或是天然 生成膠體因地下水流的傳輸而進入處置設施中。許多實 驗室與現地研究觀察到膠體可吸附核種並進一步使其 傳輸,因此會增加核種的移動性。本研究開發一個數值 模式工具用於預測膠體與核種衰變鏈的多個成員核種 在裂隙-母岩系統中的傳輸。本研究應用有限差分數值 方法求解耦合的偏微分方程式、常微分方與代數方程系 統。新開發的數值模式經與文獻的相關模式驗證確定其 信賴度,接著用來探討膠體時空變化對裂隙-母岩系統 衰變鏈成員核種傳輸的影響。

**關鍵詞:**高放射性核廢料、裂隙、基質、核種衰變鏈、 成員核種、膠體、安全評估、數值模式

#### Abstract

The disposal in a deep crystalline rock formation is considered for the long-term isolation of high-level waste (HLW) from biosphere. The most likely pathway for radionuclides coming back into the biosphere is the release of the waste and subsequent transport by groundwater flow through the fracture present in rocks surrounding the HLW repository. Radionuclide migration through a fracturematrix system is thus an important issue for HLW safety assessment carried out during site selection, site characterization, operation and closure. Presence of colloids in the fracture groundwater is derived from degradation of near field materials or natural colloids transported into the repository by groundwater flow. Considerable laboratory and field studies have observed that colloids increase the migration of radionuclides in groundwater owing to their potential for transporting sorbed radionuclides. This study is thus designed to develop a numerical model for predicting the coupled transport of the colloid and multiple members of a radionuclide decay chain in a fracture-matrix system. The finite difference method is applied to solve a system of couple partial differential equations, ordinary differential equations and algebraic equations. Comparisons of our developed numerical model against the analytical or numerical models available in the literature confirm its correctness. The newly developed numerical model is subsequently applied to understand how temporal and spatial evolution affects the colloid-facilitated transport of multiple members of radionuclide decay chain in a fractured-matrix system.

**Keywords** : high-level waste (HWL); fracture; matrix; radionuclide decay chain; member, colloid; safety assessment; numerical model

## I. 前言

高階廢棄物處置設施安全評估目的為估算經由工 程障壁與天然地質環境而逃離的核種傳輸,核種會經由 處置場週圍地層的裂隙(fracture)的地下水而遷移,因此 探討核種於裂隙-母岩系統的傳輸為近三十年來非常重 要的研究。

利用數學模式探討核種於裂隙-母岩系統傳輸的研究開始於 Tang et al. (1981),後續包括 Barker (1982)、 Sudicky and Frind (1984)、 Hodgkinson and Maul (1988)、 Sun and Buscheck(2003)、Hansen (2012)、Mahmoudzadeh et al. (2014)、Shahkarami et al. (2015)、Mahmoudzadeh et al. (2016)都發展模式探討核種於裂隙-母岩系統的傳 輸,但這些模式都忽略真實深地質處置場地下水中可能 存在的膠體(colloid)。

研究顯示膠體會加速核種在地下水的傳輸,膠體在 裂隙隨地下水遷移,膠體裂隙傳輸機制包括隨裂隙平均 地下水滲流遷移的移流傳輸、縱向延散與膠體吸附到裂 隙表面,在裂隙地下水因移流-延散過程而移動的膠體 稱為可移動膠體(mobile colloid),吸附於裂隙表面的膠 體稱為不可移動膠體(immobile colloid)。膠體的粒徑使 它不易由地下水擴散進入母岩系統。當膠體存在於地下 水時,核種在裂隙-母岩系統傳輸行為需多考慮核種會 吸附到裂隙地下水的可移動膠體與裂隙表面的不可移 動膠體。 許多研究發展膠體加速核種傳輸的數學或數值模擬模式,Hwang et al. (1990)提出一個解析模式,但假設 在裂隙水中的膠體質量濃度為常數。Natarajana and Kumar (2010)發展數值模式探討裂隙-膚層-母岩系統 膠體對核種傳輸的影響,但不是將膠體的質量濃度考慮 為常數,而是考慮膠體在裂隙地下水的移流-延散傳輸, 但這些研究只考慮單一核種的傳輸。

考慮衰變鏈多個成員核種對在模擬錒系或超鈾核 種遷移特別重要, Tien and Li (2007)考慮膠體的影響, 發展可考慮多個(N)成員衰變鏈於單一裂隙的解析解, 但他們的研究將裂隙中的膠體濃度考慮為常數,且需要 每個成員核種有相同遲滯因子。Chopra et al. (2016)發展 數學模式探討膠體對裂隙-含水層系統多個成員核種的 衰變鏈的影響,但他們的研究考慮膠體在裂隙地下水的 質量濃度為常數。忽略膠體濃度的時間與空間變化,將 會影響探討膠體對衰變鏈多成員核種傳輸的影響的正 確性。

根據上述核種於裂隙-母岩系統的國際研究現況與 考慮高階廢棄物深地層處置安全評估的需要,本計畫目 的為完整考慮膠體與衰變鏈多個成員核種共存於裂隙-母岩系統與膠體的可能機制/過程來發展全新的數值解 模式工具,此全新的數值模式工具可以探討膠體對核種 衰變鏈多成員核種遷移與放射性廢棄物地質處置安全 評估影響。

## II. 主要內容

本計畫發展如圖 1 所示的膠體與衰變鏈多成員核 種共存於裂隙-母岩系統遷移的數值模擬工具,考慮的 衰 變 鏈 為 N 個 成 員 核 種 Nuclide 1→Nuclide 2→..→...→Nuclide N,考慮的傳輸機制分成膠體與衰變 鏈所有成員核種兩部分。假設裂隙為水平無限延長且裂 隙開口寬度為不隨空間變化。



圖1 膠體加速衰變鏈多成員核種在裂隙-母岩系統遷移 示意圖。

#### (一) 膠體的傳輸

#### 1. 裂隙地下水的可移動膠體

可移動膠體在裂隙地下水的傳輸機制包括移 流-延散傳輸,膠體吸附到裂隙表面形成不可移動 膠體,但裂隙地下水中的可移動膠體因粒徑較大 並無法擴散進入母岩,所以對裂隙地下水中可移 動膠體的傳輸方程式可表為:

$$D_c \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - v_c \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} = \frac{\partial C(x,t)}{\partial t} + \frac{r_c}{b}$$
(1)

此處C(x,t)為裂隙地下水的膠體濃度;x為沿 著裂隙地下水流方向的座標;t為時間; $D_c$ 為膠體 於裂隙的水力延散係數(hydrodynamic dispersion coefficient); $v_c$ 是膠體的流速;b為裂隙開口寬; $r_c$ 為裂隙表面上不可移動的膠體與地下水可移動膠 體的交換率。

#### 2. 裂隙表面不可移動膠體

吸附於裂隙表面上不可移動的膠體的質量守 恆方程式可表示為:

$$\frac{\partial c_s(x,t)}{\partial t} - r_c = 0 \tag{2}$$

此處C<sub>s</sub>(x,t)為裂隙表面上不可移動膠體濃度。 假設裂隙地下水可移動膠體與裂隙表面不可 移動膠體吸附/脫附為平衡反應,可以用分配係數 (partition coefficient)表示為:

#### (二) 衰變鏈成員核種的傳輸

#### 3. 裂隙地下水可移動衰變鏈成員核種

衰變鏈成員核種在裂隙地下水的傳輸機制包 括移流-延散傳輸、一階放射性衰變反應/來自衰變 鏈上一代成員核種的內部增生(ingrowth)、吸附/脫 附到裂隙表面不可移動核種、吸附到可移動膠體、 吸附到不可移動膠體與擴散進入母岩地下水,所 以裂隙地下水所有衰變鏈成員核種的傳輸質量守 恆可表示為:

$$\frac{\partial N_i(x,t)}{\partial t} = D_f \frac{\partial^2 N_i(x,t)}{\partial x^2} - v_f \frac{\partial N_i(x,t)}{\partial x} - \lambda_i N_i(x,t) + \lambda_{i-1} N_{i-1}(x,t) - \frac{r_{s,i}}{b} - \frac{r_{cs,i}}{b} - r_{c,i} - \frac{q_i}{b} + \lambda_0 = 0 \quad i = 1, \dots N$$
(4)

此處N<sub>i</sub>(x,t)為裂隙地下水第 i 個成員核種濃度; D<sub>f</sub>為核種於裂隙地下水的水力延散係數; υ<sub>f</sub>是核 種的地下水流速;λ<sub>i</sub>為第 i 個成員核種的一階衰變 常數; r<sub>s,i</sub>為第 i 個成員核種吸附於裂隙表面的交 換率; r<sub>cs,i</sub>為第 i 個成員核種吸附於裂隙表面不可 移動膠體的交換率; r<sub>c,i</sub>為第 i 個成員核種吸附於 可移動膠體的交換率; q<sub>i</sub>第 i 個成員核種進入母岩 地下水的交換率。

#### 4. 可移動膠體吸附的衰變鏈成員核種

吸附於可移動膠體的衰變鏈第 *i* 個成員核種 的質量守恆可表示為:

$$\frac{\partial f_{c,i}(x,t)C(x,t)}{\partial t} = D_c \frac{\partial}{\partial x} \left( f_{c,i}(x,t) \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} \right) - \\
v_c \frac{\partial}{\partial x} \left( f_{c,i}(x,t)C(x,t) \right) - \lambda_i f_{c,i}(x,t) + \\
\lambda_{i-1} f_{c,i-1}(x,t) - r_{c,i} \\
i = 1, \dots N \tag{5}$$

$$\text{t.e.} f_{c,i}(x,t) \hat{y} \ i \ \text{ll action of the set of t$$

量核種量。

假設在裂隙地下水的核種吸附至可移動膠體為瞬 間平衡,可以下式表示

$$f_{c,i}(x,t) = K_{c,i}N_i(x,t)$$
  $i = 1,...N$ 

(6)

此處K<sub>c,i</sub>為裂隙地下水第 i 個成員核種與吸附於可移動膠體的分配係數。

## 5. 不可移動膠體吸附的衰變鏈成員核種

不可移動膠體吸附的第 i 個成員核種的核種 量守恆可表示為:

$$\frac{\partial f_{inc,i}(x,t)C_s(x,t)}{\partial t} = -\lambda_i f_{inc,i}(x,t)C_s(x,t) + \lambda_{i-1}f_{inc,i-1}(x,t)C_s(x,t) + r_c$$

$$i = 1, \dots N$$
(7)

此處f<sub>inc,i</sub>(x,t)為裂隙地下水第 i 個成員核種吸附 於不可移動膠體的單位質量核種量。

假設在裂隙地下水的核種吸附至不可移動膠體為瞬間平衡達成,可以下式表示

$$f_{inc,i}(x,t) = K_{inc\,i}N_i(x,t) \tag{8}$$

此處*K<sub>inc,i</sub>為裂隙地下水第 i 個成員核種於不可移動膠體吸附的分配係數。* 

#### 6. 裂隙表面吸附的衰變鏈成員核種

裂隙表面吸附的衰變鏈第 *i* 個成員核種的核 種量守恆可表示為:

$$\frac{\partial N_{s,i}(x,t)}{\partial t} = -\lambda_i N_{s,i}(x,t) + \lambda_{i-1} N_{s,i-1}(x,t) - r_{s,i}$$
  
$$i = 1, \dots N$$
(9)

此處N<sub>s,i</sub>(x,t)為裂隙表面地下水第 i 個成員核種濃度; r<sub>s,i</sub>為第 i 個成員核種於裂隙表面的交換率。 假設在裂隙地下水的核種吸附至裂隙表面吸附核 種為瞬間平衡達成,可以下式表示

$$N_{s,i}(x,t) = K_{s,i}N_i(x,t)$$
  $i = 1,...N$ 

(10)

此處K<sub>s,i</sub>為裂隙地下水第 i 個成員核種於裂隙表面 吸附的分配係數。

#### 7. 母岩核種的傳輸

擴散進入母岩的衰變鏈成員核種的傳輸可以 下式表示:

$$R_{m,i}\frac{\partial N_{m,i}(x,z,t)}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 N_{m,i}(x,z,t)}{\partial z^2} -$$

$$\lambda_{i}R_{m,i}N_{m,i}(x,z,t) + \lambda_{i-1}R_{m,i-1}N_{m,i-1}(x,z,t)$$

 $i = 1, \dots N \tag{11}$ 

此處 $N_{m,i}(x, z, t)$ 為母岩地下水第 i 個成員核種的 濃度; $D_m$ 為母岩地下水的擴散係數; $R_{m,i} = 1 + \frac{S_m}{\varphi_m}K_{m,i}$ 為母岩地下水第i個成員核種的遲滯因子;  $\varphi_m$ 為母岩的孔隙率; $K_{m,i}$ 為母岩地下水與母岩固 體第i 個成員核種分配係數; $S_m$ 為每單位母岩的 表面積。

裂隙與母岩間的核種交換率為

$$q_{i}(x,t) = -\varphi_{m} D_{m} \frac{\partial N_{m,i}(x,z,t)}{\partial z} \bigg|_{z = b} \quad i = 1, \dots N$$
(12)

針對上述式(1)-(12)的聯立偏微分方程組,本 研究將採用有限差分方法(finite difference method) 來求解。

## III. 結果與討論

#### 3-1 模式測試

根據有限差分方法求解方程式(1)-(12),本研究撰 Fortran 程式執行數值求解計算過程,為確認所發展的 數值解模式的正確性與 Fortran 計算程式的準確性,本 研究與前人所發展的解析解或數值解模式相互比較加 以評估。第1個案例為核種衰變鏈於裂隙-母岩系統的 傳輸,但忽略母岩擴散與吸附於裂隙地下水膠體的影響, 本研究所發數值解模式與 Liao (2023)的解析解進行比 較,考慮的衰變鏈為 $^{238}U \rightarrow ^{234}Th \rightarrow ^{234}U \rightarrow ^{230}Th \rightarrow$  $^{226}Ra,採用的入流邊界條件為 Bateman 時變邊界,但$ 只考慮邊界初始有第1個成員核種的來源,而忽略其他成員核種的來源,模擬條件與傳輸參數如表1所示,本研究數值解模式與 Liao (2023)結果非常一致(未放入)。

表 1 驗驗證案例所使用之參數。

參數	值
地下水的流速,v <sub>f</sub> [myear <sup>-1</sup> ]	50
放射性核種在裂隙內地下水的水力延散 係數, $D_f$ $[m^2 y ear^{-1}]$	1
母 岩 內 地 下 水 的 擴 散 係 數 , D <sub>m</sub> [m <sup>2</sup> year <sup>-1</sup> ]	0.005
裂隙開口的一半寬,b [m]	0.001
裂隙的長度, <i>L</i> [m]	200
母岩的厚度,W [m]	5
母岩的孔隙率, $\phi_m$ [-]	0.01
裂隙內地下水膠體的濃度, <i>C<sub>c</sub>(x,t)</i> [kg/m <sup>3</sup> ]	0.1
時間,t [year]	5000
一階衰變反應常數, $\lambda$ [year <sup>-1</sup> ]	
<sup>238</sup> U	1.54E-10
$^{234}Th$	10.5
<sup>234</sup> U	2.80E-6
<sup>230</sup> Th	8.66E-6
<sup>226</sup> Ra	4.33E-4
母岩內地下水衰變鏈第k個成員核種的 遲滯因子, R <sub>f,k</sub> [-]	
<sup>238</sup> U	1.22

冬數	值
$^{234}Th$	1.44
<sup>234</sup> U	1.22
<sup>230</sup> Th	1.44
<sup>226</sup> Ra	1.44
母岩內地下水的遲滯因子, $R_m$ [-]	
<sup>238</sup> U	27001
<sup>234</sup> Th	54001
<sup>234</sup> U	27001
<sup>230</sup> Th	54001
<sup>226</sup> Ra	54001
物種的初始濃度, <i>C<sub>f,0</sub>(x,t</i> ) [kgm <sup>-3</sup> ]	
<sup>238</sup> U	1
<sup>234</sup> Th	0
<sup>234</sup> U	0
<sup>230</sup> Th	0
<sup>226</sup> Ra	0
裂隙內可移動膠體與裂隙表面上不可移動膠體的分配係數, $K_1$ [m]	
<sup>238</sup> U	0
$^{234}Th$	0
<sup>234</sup> U	0
<sup>230</sup> Th	0
<sup>226</sup> Ra	0
衰變鏈第 <i>k</i> 個成員核種吸附在裂隙表面 上的分配係數, <i>K</i> <sub>2,k</sub> [m]	
<sup>238</sup> U	2.18E-4
$^{234}Th$	4.37E-4
<sup>234</sup> U	2.18E-4
<sup>230</sup> Th	4.37E-4
<sup>226</sup> Ra	4.37E-4
衰變鏈第k個成員核種吸附在可移動膠 體的分配係數,K <sub>3,k</sub> [m <sup>3</sup> /kg]	
<sup>238</sup> U	40
<sup>234</sup> Th	40
<sup>234</sup> U	40
<sup>230</sup> Th	40
<sup>226</sup> Ra	40

參數	值
衰變鏈第 <i>k</i> 個成員核種吸附在不可移動 膠體的分配係數, <i>K</i> <sub>4,k</sub> [m <sup>3</sup> /kg]	
<sup>238</sup> U	40
<sup>234</sup> Th	40
<sup>234</sup> U	40
<sup>230</sup> Th	40
<sup>226</sup> Ra	40

模式測試第 2 個案例考慮核種衰變鏈於裂隙-母岩 系統的傳輸,有考慮母岩擴散,但忽略膠體對傳輸的影 響,採用相同的衰變鏈與入流邊界條件,模擬條件與傳 輸參數如表 1 所示,圖 2 為本研究所發展的數值解模式 與 Chopra et al. (2016)的數值解模式沿著裂隙方向的 5 個成員核種濃度分布比較,圖中可以清楚的發現兩者模 擬所得結果在前 3 個成員核種都相當吻合。



圖2 本研究之數值解模式與 Chopra et al. (2016)數值解 模式在裂隙-母岩系統的5個子核種成員衰變鏈的傳輸 (有母岩擴散與無膠體吸附)的濃度分佈驗證比較。

模式測試的第3個案例考慮核種衰變鏈於裂隙-母 岩系統的傳輸,同時有考慮母岩擴散與膠體對傳輸的影響,但考慮的膠體濃度為常數(不隨時間與空間變化), 採用相同的衰變鏈與入流邊界條件,模擬條件與傳輸參 數如表1所示,圖3為本研究的數值解模式與 Chopra et al. (2016)數值解模式沿著裂隙方向的5個成員核種濃 度分布比較,圖中可以發現兩者在前3個成員核種模擬 所得結果都相同。

從圖2與圖3可看出,雖然第4及第4個核種的結 果不相符,但是透過案例1測試仍可以確認本研究數值 解模式較能正確模擬5個子核種成員衰變鏈在裂隙-母 岩系統的傳輸。



圖 3本研究之數值解模式與 Chopra et al. (2016)數值解

模式在裂隙-母岩系統的5個子核種成員衰變鏈的傳輸 (有母岩擴散與膠體吸附)的濃度分佈驗證比較。

## 3-2 膠體濃度的時間與空間變化對於放射性核種傳輸 之影響

本節利用發展的數值解模式模擬在有膠體情況下 5個子核種成員衰變鏈的傳輸,並且考慮兩種情況,分 別考慮膠體濃度在時間與空間的變化以及忽略膠體濃 度在時間與空間的變化(即膠體濃度為定值),相關之模 擬參數為表4,結果為圖4。

前人研究中指出,當模擬時間高於250年時,膠體 濃度會趨於穩定,所以考慮膠體濃度為定值,但是在低 於250年時膠體濃度在裂隙地下水中並不穩定,因此當 模擬在有膠體情況下核種的傳輸時,若時間低於250年, 必須要考慮膠體在時間與空間的變化,圖4可以看出, 當未考慮膠體時間與空間的變化,會高估核種的傳輸, 因此當要模擬膠體加速核種的傳輸時,必須要考慮膠體 在時間與空間的變化,以免高估核種的傳輸。



圖4 在有膠體吸附下,模擬5個子核種成員衰變鏈的傳 輸並且考慮膠體濃度在時間與空間的變化以及膠體濃 度為定值的濃度分佈。

## IV. 結論

本計畫發展膠體加速衰變鏈多成員核種於裂隙-母 岩系統遷移數值解模式工具,求解主要利用有限差分法 求取數值解,根據數值解模式計撰寫對應的 Fortran 程 式以執行計算。數值解模式經與前人研究進行不同的情 境比較有非常好的吻合。所發展的模式探討膠體對核種 衰變鏈的傳輸顯示膠體會加速核種的傳輸,但若考慮膠 體濃度為常數時,會相較考慮膠體濃度為的時空變化高 估濃度。本計畫所發展的數值解模式可以提供給政府單 位做為更貼近真實放射性廢料地質處置候選場址安全 評估使用。

## 参考文獻

- Barker, J. A., 1982. Laplace transform solutions for solute transport in fissured aquifers, Adv. Water Reosur. 5 (June), 98-104.
- [2] Champ, D.R., Young, J.L., Robertson, D.E., Abel, K.H., 1984. Chemical speciation of longlived radionuclides in a shallow groundwater flow system, Water Pollut. Res. J. Can. 19, 35–54.
- [3] Chopra, M., Sunny, F., Oza, R. B., 2016. Numerical modeling of colloid-facilitated radionuclide decay chain transport in a coupled fracture-matrix system, Environ. Earth Sci., 75, 1-12.
- [4] Hwang, Y., Chambre, P.L., Lee, W.W.L., Pigford, T.H., 1990. Analytical studies of colloid transport in fractured porous media, Mate. Res. Soc. Symp. Proc. 176, 599–605.
- [5] Hansen, S.K., 2012. Semianalytic solution for transport of a two-member decay chain in discrete parallel fractures, Water Resour. Res., 49, 6105– 6110, doi:10.1002/wrcr.20451.
- [6] Hodgkinson, D.P., Maul, P.R., 1988. 1-D modeling of 1-D modelling of radionuclide migration through permeable and fractured rock for arbitrary length decay chains using numerical inversion of Laplace transforms, Annals of Nuclear Energy, 15(4), 175-189.
- [7] Joshi, N., Ojha, C.S.P., Sharma, P.K., 2012. A nonequilibrium model for reactive contaminant transport through fractured porous media: model development and semianalytical solution .Water Resour. Res., 48, W10511.
- [8] Mahmoudzadeh, B., Liu, L., Moreno, L., Neretnieks, I., 2014. Solute transport in a single fracture involving an arbitrary length decay chain with rock matrix comprising different geological layers, J. Contam. Hydrol., 164, 59-71.
- [9] Mahmoudzadeh, B., Longcheng L., Moreno, L., Neretnieks, 2016. Solute transport through fractured rock: Radial diffusion into the rock matrix with several geological layers for an arbitrary length decay chain, J. Hydrol., 536, 133-146.
- [10] Natarajana, N., Kumar, G.S., 2010. Radionuclide and colloid co-transport in a coupled fracture-skinmatrix system, Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 370, 1-3, 49-57.
- [11] Sudicky, E.A., Frind, E.O., Sharma, P.K., 1984.

Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solution for a two-member decay chain in a single fracture, Water Resour. Res. 20 (7), 1021–1029.

- [12] Sun, Y., Buscheck, T.A., 2003. Analytical solutions for reactive transport of N-member radionuclide chains in a single fracture, J. Contam. Hydrol., 62-63, 695-712.
- [13] Tang, D.H., Friend, E.O., Sudick, E.A., 1981.
   Contaminant transport in fractured porous media: analytical solution for a single fracture. Water Resour. Res. 17 (3), 555–564.
- [14] Tien, N.C., Li, S.H., 2002. Transport of a twomember decay chain of radionuclides through a discrete fracture in a porous rock matrix in the presence of colloids, Nuclear Technology, 140, 83-93.
- [15] 廖中翊,2023,考慮具分岐降解反應途徑與時 變函數污染源之三維多污染物傳輸解析解模式, 國立中央大學應用地質研究所博士論文。
# 放射性廢棄物最終處置場址之機率式斷層位移危害度參數敏感度分析 Study on Sensitivity Analysis for Probabilistic Fault Displacement Hazard Analysis in Radioactive Waste Disposal Site

計畫編號:111-2623-E-008-002-NU 計畫主持人:李錫堤 e-mail:ct@ncu.edu.tw 計畫參與人員:高嘉謙 執行單位:國立中央大學應用地質研究所

# 摘要

地震對放射性廢棄物處置設施的影響可以包括強 烈地震、斷層位移和地表變形等。強烈地震產生的同震 地表位移可能會對位於斷層上或附近的結構物造成嚴 重損害。因此,我們可以使用機率式斷層位移危害度分 析來估算斷層位移對地表破裂或位移的影響。本研究旨 在延續前三期計畫並進一步進行機率式斷層位移危害度分 析的參數敏感性分析。我們將使用相關的預測公式 和變異性來計算花蓮地區斷層位移危害度,同時考慮知 識不確定性。為了了解各種知識不確定性的影響,可以 配合邏輯樹計算每個分支的危害度曲線並探討各參數 的敏感度。

關鍵詞:放射性廢棄物處置、斷層位移危害度、敏感度。

#### Abstract

Strong earthquakes can result in ground movements, fault displacements, and ground deformations for radioactive waste disposal facilities. A co-seismic surface displacement could cause extensive damage to structures located near or on a fault. The probabilistic fault displacement hazard analysis (PFDHA) has been proposed to estimate the level of slip on a fault as a result of surface ruptures. Hence, the study aims to continue the three previous projects and analyze parametric sensitivity analysis on PFDHA. Using the applicable prediction equations in the Hualien area and their variability, we will calculate fault displacement hazards and handle epistemic uncertainties. In order to comprehend epistemic uncertainties and explore the sensitivity of each parameter, hazard curves can be calculated based on each branch of the logic tree.

**Keywords**: Radioactive waste disposal, Fault displacement hazard, sensitivity.

# I. 前言

台灣地區位於活躍的造山帶,因此斷層和地震活動 頻繁。由於這些影響,建設工程必須謹慎考慮結構物的 抗震設計。地震會影響工程設施的安全,包括強烈地震 的影響、斷層移位和地表變形的影響,以及次生災害的 影響等。然而,由於處置窖位於地下深處,地震產生的 地震波和次生災害(如海嘯、山崩和土壤液化)通常不 是最重要的考慮因素。相反,斷層移位和地表變形對處 置窖的抗震設計最為關鍵。主要的地表變形通常發生在 主斷層的移位帶和其兩側一定範圍內。因為處置設施在 選址時會避開主要斷層,所以主斷層的移位帶不是處置 窖抗震設計的重點。然而,在主斷層之外,很可能會遇 到不容易檢測到的次要斷層或剪裂帶。這些次要斷層或 剪裂帶可能會在地震時產生位移,對結構物的安全造成 影響。因此,本研究旨在接續前期研究,進一步進行放 射性廢棄物最終處置場址之機率式斷層位移危害度參 數敏感度分析。

## II. 主要內容

機率式斷層位移危害度分析是一個用來評估斷層 地震位移對結構物或工程設施造成的損害的機率模型。 斷層位移危害度的評估是建立在地震機率論的基礎上, 主要考慮地震發生的機率、斷層位移的機率分布等因素。 通常會將地震機率轉換為斷層位移的機率分布,再將斷 層位移的機率分布,評估斷層位移造成的結構物破壞機 率。此方法稱為機率式斷層位移危害度分析(PFDHA, Probabilistic Fault Displacement Hazard Analysis),用來 描述某位置受某(些)斷層影響下之超越特定位移量之 機率,假設地震的發生是一種自然隨機過程而符合卜桑 模式,則在T時間內,至少有一次位移值D超越d的 機率如下:

$$P(D > d|T) = 1 - e^{-\nu(d)T}$$

上式中, v(d)為位移值 D 超越 d 的單位時間(年)平

均發生次數。

影響函數 v(d)的因素包含:1.潛在震源的位置,2. 震源的幾何型態,3.震源的地震發生率以及 4.位移衰減 的特性。其計算式如下:

$$v_k(d) = \sum_n N_n(m_0) \int_{m_0}^{m_u} f_n(m) \left[ \int_0^\infty f_{kn}(r|m) \right]$$

$$\cdot P_{kn}^*(D > d|m,r)dr]dm$$

上式中, $N_n(m_0)$ 是在第n 個震源在最小地震規模 $m_0$ 以上的年發生次數; $f_n(m)$ 是第n 個震源在最小地震規 模 $m_0$  至最大地震規模 $m_u$  間的規模機率密度函數;  $f_{kn}(r|m)$ 是第n 個震源在規模m時,斷層破裂面至第k個場址最短距離r的距離密度函數; $P_{kn}(Z > Z|m,r)$ 是 第n 個震源及第k 個場址在規模m 以及距離r時,位

移值 D 超越 d 的機率,可代入位移衰減函數求得。

位移衰減函數 $P_{kn}^*(D > d | m, r)$ 與地動衰減函數略 有不同:

 $P_{kn}^*(D > d|m, r) = P_{kn}(Slip|m, r)$ 

 $\cdot P_{kn}(D > d | m, r, Slip)$ 

上式的第一項 $P_{kn}(Slip|m,r)$ 是第n個震源在第k個 場址產生位移的機率(probability of slip),上式的第二項  $P_{kn}(D > d|m,r,Slip)$ 是第n 個震源在第k 個場址產生 位移 D>d 的超越機率(probability of exceedance)。

機率式斷層位移危害度分析之關鍵在於確定斷層 位移的機率分布,通常會採用機率密度函數來描述斷層 位移的機率分布。機率密度函數可透過過去地震資料的 統計分析或數值模擬等方式估算得到。評估斷層位移危 害度需要考慮多種因素,如斷層特性、地震特性、場址 特性等。因此,評估結果的可靠性和精確度也受到多種 因素的影響,需要經過不斷的改進和驗證。

機率式斷層位移危害度包含諸多參數,而敏感度分 析是一種用來評估模型輸入參數對輸出變量影響程度 的方法,通常使用敏感度指標來度量模型輸出對模型輸 入參數變化的響應程度,幫助研究者了解哪些參數對損 害概率的影響最大,從而針對這些關鍵參數進行更加精 確和可靠的分析和設計。

在前期的研究計畫中,已經有一些初步成果,包含 彙整與比較日本、美國與歐洲等已發表論文之發生地表 破裂機率與斷層位移預估式,確認相關參數之異同、使 用尺度與單位。如主斷層地表破裂預估式與次要斷層地 表破裂相關機率模式,其中包含 Youngs et al. (2003)與 Petersen et al. (2011)以沿主斷層線上不同位置與相對主 斷層總長度,計算其對應之位移量。並以該主斷層線最 大位移量或平均位移量,推估沿主斷層線上之正規化位 移量分布情形; Wells and Coppersmith (1994)利用全世 界之資料而提出各類斷層(整合正、逆、平移斷層)可能 造成之地表位移量; Moss and Ross (2011)整合逆斷層錯 動事件列入資料庫內進行分析並提出評估之經驗公式; Leonard (2010) 將穩定大陸地區 (Stable Continental Regions)、傾向滑移斷層(dip-slip)和走向滑移斷層 (strike-slip)分類並回歸出斷層總長度與平均位移量的 關係式; Wesnousky (2008)與 Biais (2013)整理 1857 至 2010年有地表破裂的地震事件,繪製地震破裂軌跡圖, 並附有沿破裂走向的同震滑動相關描述,前期計畫也以 該資料庫建立新的預估式; Youngs et al. (2003)與 Petersen et al. (2011)比照沿主斷層線之位移推估方法建 立經驗公式以計算遠離斷層線之位移量。日本提出的次 要位移預估式(Taokao et al., 2013)與次要斷層發生機率 函數(Taokao et al., 2014)以及包含地盤參數的主要斷層 破裂機率函數(Moss et al., 2013)。

本計畫以前期計畫開發的應用程式為基礎,將上述 所有經驗式建置於程式中並優化供特定參數組合下分 析。斷層之相關機率密度函數、斷層參數及位移預估式 可經邏輯樹分析,其中相關權重需透過專家經驗與專業 認可後訂定,最後危害度分析將針對斷層位移帶之分布、 斷層位移量對場址影響程度進行評估與不確定性分析。 亦可針對發生不同的地表破裂機率密度函數、斷層位移 預估式與斷層地震規模發生機率模式計算位移危害度。 最後,比較各函數與參數對斷層位移於不同再現期下之 影響,根據位移危害度曲線探討各模型的造成的知識不 確定性及敏感度分析。本計畫因應近期 2018 年有地表 破裂地震事件發生於花蓮,故將以米崙斷層為例,建立 斷層模型並置入程式,選用適合之相關經驗式,使用邏 輯樹分析並給予各經驗式合理對應之權重,計算花蓮地 區之斷層位移危害度,並於邏輯樹各節點輸出各別之危 害度曲線,交叉比較各參數組合下之危害度結果,評估 各參數影響結果之敏感度。

本計畫將各種斷層之地表破裂機率與斷層位移預 估式進行獨立危害度計算,以單一節點採用不同模型, 其餘節點配合原邏輯樹設定。

本計畫以米崙斷層為例進行機率式斷層位移危害 度分析,圖1可觀察出於沿主斷層線上不同位置之位移 量,於再現期475年下,最小約為8公分,最大可達近 1公尺;於再現期2475年下,最小約為28公分,最大 可達近3.3公尺。而相比於斷層的兩端點(x/L=0),當 x/L=0.1、0.2、0.3、0.4與0.5時,於再現期475年下, 可增加3.7至13.4倍;於再現期2475年下,可增加3.3 至12倍。以目前模型配合主斷層線最大位移量或平均 位移量計算沿主斷層線上之正規化位移量分布結果可 知斷層兩端點與中心位置差異甚大,雖仍有例外事件 (如1999年集集地震,北段破裂較大),但目前模型以多 數事件之統計結果仍具一定參考價值。



圖1 主要斷層沿線不同位置之位移危害度曲線

圖 2 之結果可知以主要斷層沿線上的不同位移預 估式之計算結果之異同,Petersen et al. (2011)發表雙線 性、二次和橢圓函數之三種函數,亦配合不同的主斷層 參數(地震矩規模或平均位移量)計算之,由結果可得在 斷層的中點(x/L = 0.5),於再現期 475 年下,最小約為 46 公分,最大可達近 1.62 公尺;於再現期 2475 年下, 最小約為 1.41 公尺,最大可達近 4.47 公尺。而相比於 各模型,於再現期 475 年下,差異約為 0.8 至 2.9 倍; 於再現期 2475 年下,約為 1 至 3.1 倍。



圖 2 主要斷層沿線於不同位移預估式之位移危害度曲 線比較圖

圖 3 可得在米崙斷層位移分析中,在不同主斷層之 地表破裂機率預估式下,於再現期 475 年下,最小約為 68 公分,最大可達近1公尺;於再現期 2475 年下,最 小約為 1.77 公尺,最大可達近3公尺。而相比於各模 型,於再現期 475 年下,差異約為 0.6 至1倍;於再現 期 2475 年下,約為 0.6 至1倍。

不同地震規模下的主要斷層平均位移量,各模型趨勢類似,僅WC1994的逆斷層模型相對較特別,之後計算時,模型採納需特別注意;而圖4可得在米崙斷層位移分析中,在不同主斷層之斷層位移預估式下,於再現期475年下,最小約為40公分,最大可達近1.85公尺;於再現期2475年下,最小約為0.8公尺,最大可達近8.15公尺。而相比於各模型,於再現期475年下,差異約為0.5至2.1倍;於再現期2475年下,約為0.4至3.6倍。



曲線比較圖



圖 4 主斷層於不同斷層位移預估式之位移危害度曲線 比較圖

離主要斷層線特定距離下的次要斷層發生地表破 裂機率,隨著不同網格大小有不同衰減尺度,但大致上 都隨著距離的增加而機率下降;而圖5可得,在花蓮醫 院(斷層距為0.2 公里)位移分析中,不同次要斷層之地 表破裂機率預估式(網格大小為50 公尺)下,於再現期 2475年下,皆小於1公分;於再現期100,000年下,最 小約為1.3公分,最大可達近15.2公分。而相比於各模 型,於再現期100,000年下,差異約為10倍。

離主要斷層線特定距離下的次要斷層位移量,大致 上都隨著距離的增加產生斷層位移量下降的情形;而圖 6 可得在花蓮醫院(斷層距為 0.2 公里)位移分析中,在 不同次要斷層之斷層位移預估式下,於再現期 2475 年 下,皆小於1公分;於再現期 100,000 年下,最小約為 12 公分,最大可達近19 公分。而相比於各模型,於再 現期 100,000 年下,差異約為 1.5 倍。





圖 6 次要斷層於不同斷層位移預估式之位移危害度曲 線比較圖

#### IV. 結論

本計畫已進行不同的主斷層之地表破裂機率與斷 層位移預估式以及次要斷層之地表破裂機率於機率式 斷層位移預估式之敏感度分析。米崙斷層之主要斷層位 移於不同主要斷層沿線上的位移預估式之計算結果,於 再現期 475 年下差異約為 0.8 至 2.9 倍;於再現期 2475 年下,約為1至3.1倍。在不同主斷層之地表破裂機率 預估式下,相比於各模型,於再現期475年下,差異約 為 0.6 至 1 倍;於再現期 2475 年下,約為 0.6 至 1 倍。 在不同主斷層之斷層位移預估式下,相比於各模型,於 再現期 475 年下, 差異約為 0.5 至 2.1 倍; 於再現期 2475 年下,約為0.4至3.6倍。以主斷層位移來說,不同主 斷層之地表破裂機率預估式並不太影響結果,但可能因 本計畫是以米崙斷層為例(地震矩規模為 6.56),如其他 更大的斷層需另案討論。在不同主斷層之斷層位移預估 式下,相對具敏感度,不論是預估式的中間值影響結果, 預估式的不確定性(殘差的標準差)亦對整個危害度曲 線有影響,尤其對長再現期影響甚鉅。

以花蓮醫院(距離斷層破裂面最短距離:0.2 公里)之 米崙斷層之次要斷層位移為例,在不同次要斷層之地表 破裂機率預估式(網格大小為 50 公尺)下,相比於各模 型,於再現期 100,000 年下,差異約為 10 倍。在不同 次要斷層之斷層位移預估式下,相比於各模型,於再現 期 100,000 年下,差異約為 1.5 倍。以次要斷層位移來 說,次要斷層之地表破裂機率預估式影響較大,但因目 前國際上較常使用之兩個預估式(Petersen et al., 2011) Takao et al., 2014)差異甚大,而導致結果有明顯差別。 而目前國際上較常使用之次要斷層位移預估式多來自 Petersen et al. (2011),本計畫以其兩個不同形式的迴歸 分析所得之位移結果相比,差異相對較小。

# 參考文獻

- Leonard, M. (2010). Earthquake fault scaling: Selfconsistent relating of rupture length, width, average displacement, and moment release. Bull. Seism. Soc. Am. 100 1971-1988.
- Moss, R. E. S., and Ross, Z. E. (2011). Probabilistic fault displacement hazard analysis for reverse faults. Bull. Seism. Soc. Am. 101 1542-1553.
- [3] Moss, R. E. S., Stanton, K. V., and Buelna, M. I. (2013). The impact of material stiffness on the likelihood of fault rupture propagating to the ground surface. Seismol. Res. Lett. 84 485-488.
- [4] Petersen, M. D., Dawson, T. E., Chen, R., Cao, T., Wills, C. J., Schwartz, D. P., and Frankel, A. D. (2011). Fault displacement hazard for strike-slip faults. Bull. Seism. Soc. Am. 101 805-825.
- [5] Takao, M., Tsuchiyama, J., Annaka, T., and Kurita, T. (2013). Application of probabilistic fault displacement hazard analysis in Japan. Journal of Japan Association for Earthquake Engineering 13 17-32.
- [6] Takao, M., Ueta, K., Annaka, T., Kurita, T., Makase, H., Kyoya, T., and Kato, J. (2014). Reliability improvement of probabilistic fault displacement hazard analysis. Journal of Japan Association for Earthquake Engineering 14 16.
- [7] Wells, D. L., and Coppersmith, K. J. (1993). Likelihood of surface rupture as a function of magnitude. Seismol. Res. Lett. 64 54.
- [8] Wells, D. L., and Coppersmith, K. J. (1994). New empirical relationships among magnitude, rupture length, rupture width, rupture area, and surface displacement. Bull. Seism. Soc. Am. 84 974-1002.
- [9] Youngs, R. R., Arabasz, W. J., Anderson, R. E., Ramelli, A. R., Ake, J. P., Slemmons, D. B., ... and Rogers, A. M. (2003). A methodology for probabilistic fault displacement hazard analysis (PFDHA). Earthquake spectra 19 191-219.

# 用過核燃料室內貯存護箱之熱移除與通風特性研究 (1/2) Study on Heat Removal and Ventilation Characteristics of an Indoor Drystorage Cask for Spent Nuclear Fuel (1/2)

計畫編號:MOST 111-2623-E-005-002 -NU 計畫主持人:張惠雲 e-mail:hychang586@nchu.edu.tw 計畫共同主持人:賴啟銘 計畫參與人員:邱品乘,李季徽,陳婉欣 執行單位:國立中興大學土木工程學系

#### 摘要

熱移除是用過核燃料乾式貯存設施安全評估的重 點項目之一。目前乾貯護箱與廠房整體之除熱評估以熱 傳分析為主,但仍未將環境風場相關影響納入評估。本 研究團隊最近針對混凝土護箱進行風洞實驗已初步證 實,除了護箱周圍的熱浮力,外部環境風壓所致的風力 亦應列入評估考量,特別是當這兩股自然通風氣流產生 拮抗時,將影響乾貯護箱與廠房整體的除熱性能。在上 述背景下,在這2年計畫的第1年研究除蒐集與研析國 際乾貯設施設計審查規範與評估技術資訊,特別針對室 內乾貯廠房之流場特性與護箱結構受風行為,應用風洞 實驗與熱傳分析等評估驗證技術,進行深入探討與研析。 所獲研究成果除提供國際發展乾貯護箱除熱實驗技術, 也可應用於本土化室內乾貯護箱與廠房建築之除熱評 估,與作為國內未來室內乾貯安全設計審查之參考。 關鍵詞:室內乾貯,護箱系統,廠房建築,除熱,風洞 實驗,熱傳分析。

#### Abstract

The efficiency of heat removal is one of the key points in the safety assessment of a drystorage canister system and the indoor ventilation affects the durability and safety of the storage systems, structures and components. From the above viewpoints, this first year of this 2 year-project conducts a series of computer fluid dynamics (CFD) simulation, and wind tunnel testing, as to build and develop the technology basis for evaluating the thermal performance and structural safety of indoor drystorage cask systems. The results obtained will help study the heat removal of local, indoor drystorage cask systems in Taiwan, and provide references for the standard review plans and safety regulations.

**Keywords** : indoor drystorage; cask systems; buildings; heat removal; wind tunnel testing; computational fluid dynamics (CFD)

# I. 前言

熱移除是用過核燃料乾式貯存設施安全評估的重 點項目之一。目前乾貯護箱與廠房整體之除熱評估以熱 傳分析 (Computational Fluid Dynamics, CFD) 為主,而 美國能源部即曾指出乾式貯存箱的熱流模式為技術缺 口分析 (gap analysis) 的重要項目。國外過去有研究 (Xie et al., 2002) 利用數值模擬方法,分析水平置放式 乾式貯存箱的自然對流現象。後續研究 (Pugliese et al., 2010) 依循 IAEA 意外分析模式,探討乾式貯存箱發生 複合式災害時所產生的損傷,包含箱體掉落以及火災等 災害情境。另外有研究 (Koga and Tominaga, 2008) 利 用簡化模式來觀察貯存箱環狀間隙內的冷卻氣流流動 特徵。比較最近的研究 (Li and Liu, 2016) 分析銲接式 鋼筒內裝高發熱核廢料時的熱性能。另外有研究 (Kim et al., 2014) 分析內裝 PWR 核廢料之混凝土護箱其熱 傳特性。

本計畫團隊曾利用 CFD 模擬並搭配熱流實驗,觀 察乾式貯存箱之熱流特性,並評估加裝減鹽裝置(salt particle collection device)對於乾式貯存箱散熱效能之影 響 (Chang et al., 2018)。最近針對混凝土護箱進行風洞 實驗已初步證實,除了護箱周圍的熱浮力,外部環境風 壓所致的風力亦應列入評估考量,特別是當這兩股自然 通風氣流產生拮抗時,將影響乾貯護箱與廠房整體的除 熱性能 (Lai et al., 2021a&b)。在上述背景下,本計畫研 究除蒐集與研析國際乾貯設施設計審查規範與評估技 術資訊,特別針對室內乾貯廠房之流場特性與護箱結構 受風行為,應用風洞實驗與熱傳分析等評估驗證技術, 進行探討與研析。

#### II. 主要內容

圖1所擬之本土室內乾貯設施其自然通風 (Natural ventilation) 設計的特色有二,即圖上符號❶屋脊通風塔 樓(Monitor roofs),與❷彎折式入出風道設計。該室內為 中央走道、對稱式空間,走道作為移動、吊裝乾式貯存 箱之動線,走道左右兩側以具結構功能之隔間牆分隔出 10 則空間,如圖上符號③每則空間可放置 24 個核二 NAC 乾式貯存箱,乾式貯存箱為直徑 2.5 m、高度 5 m 之圓柱體。囿於研究時程的限制,建築設計參數中僅有 高度 H 以及流道高度 Hv 為變數,其他參數均予以固定 不變。風向為北風以及南風,風速則有 0,1,3,10 m/s。



圖 1 本土室內乾貯設施建築通風設計例 (Unit: m)

圖 1 之乾式貯存箱③內部的用過核子燃料的餘熱 (設定為2.6kW/m<sup>3</sup>)會加熱箱體周遭空氣使其溫度升高、 密度降低,由於屋頂板為一斜面,因此,板面下方室內 側會形成一股斜向上流動的熱浮力氣流,進而帶動屋頂 板下方廠房內部空氣的流動,兩者會通過位於屋脊處的 通風塔樓(①)而流向戶外,形成熱浮力通風,如圖上紅 色線條④所示意。外風⑤流經通風塔樓時會對前述熱浮 力流動產生影響;外風有可能會經由下方空間的彎折式 入出風道流入室內⑤,如此也會影響到前述熱浮力流動。 而這兩股自然通風氣流④ v.s. ⑤/⑥有可能相輔相成而 增加整體的自然通風效益;也有可能產生拮抗作用,降 低整體的自然通風效益,如此形成本研究另一則探討議 題。

自然通風是利用自然力,例如風力和/或熱浮力,將 新鮮空氣引入室內空間而不使用任何機械能量。這些自 然力通常會同時影響到自然通風的效能,自然力之間可 以是孤立、對立或相互加強,最好的狀態是讓他們彼此 之間產生協同的相互加強,使自然通風效益達到最高。 有關建築自然通風的設計方式與研究成果已有相當豐 富的資料 (Izadyar et al., 2020; Zhang et al., 2021)。台灣 處於熱帶地區,在建築物屋脊處常可看到各式各樣的屋 脊通風塔樓設計,而設置屋脊通風塔樓的目的即是用來 增進其下方空間的室內通風效能(Chen et al., 2022)。

數值模擬的物理模型尺寸如圖 2,其等同於本計畫 所設計之室內乾貯設施(圖 1)之尺寸。考量物理模型的 對稱性,物理模型設定為如圖 1(a)藍色虛線區域所示之 空間,以便利用 CFD 數值方法觀測熱流結構與量值。 本研究是以 CFD 模擬軟體 PHOENICS 為解析工具 (Spalding, 2012),其本體架構為 Patankar 所提出的 SIMPLE (Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equation) algorithm,數值方法係在錯排網格(staggered grid) 系統上將統御方程式以控制體積積分法 (control volume integration approach) 差分展開,其中對流項、 空間微分項採用「混合法則」(hybrid scheme),紊流 模式採用 Two-Equation Model 中的 K-Epsilon Model。 格點系統擬採用適當尺度之非均勻格點,相對收斂準則 (relative convergence) 設定為 10<sup>-2</sup>。

所設定的計算域(computational domain)大小如圖 2 所示,係參考 (Franke et al., 2007; Tominaga et al., 2008; Blocken, 2015) 所建議的法則。在上游端,物理模型與 計算域的距離為建築物 Y 方向長度(圖 1(a)之參數 Ly) 的 3 倍,這是為了降低不必要的來風梯度(Blocken,

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

2015)。物理模型與計算域側邊邊界的距離為 0。與下游 端邊界的距離則為建築物 Y 方向長度的 15 倍,物理模 型與上方(Z 方向)邊界的距離為建築物 Z 方向長度的 3 倍。下游端的邊界、側邊邊界與頂端邊界設定為 Neumann condition,讓流體可自由進出計算域。來風風 速剖面之指數率係數(Power law index) = 0.15,用以模 擬空曠地況,所設定的風速係指位於高度 10m 處的風 速 Vo。假設屋頂板為隔熱性能極佳之板體,板面戶外 側的日射熱得不影響板面室內側的溫度結果。為便於說 明或呈現結果,圖形上會出現人體,此人體僅為視覺表 現,其不參與 CFD 模擬。囿於研究時程的限制,本計 畫僅考慮建築物的入出風口位於南北側,亦即戶外吹正 南風(夏季)以及正北風(冬季),如圖 1 所示即為吹北風, 其他風向與風速則暫時不予考慮。



圖 2 CFD 數值模擬所使用的物理模型與隔點系統

#### III. 結果與討論

為了驗證 CFD 模擬工作,本計畫研究針對相同配 置和參數的熱浮力通風案例進行了模擬與實驗,並將兩 者結果進行比較。所使用的實驗模型為圖 1 之 1/50 縮 尺模型,模型材料為壓克力,圓柱(圖 3 右下)用來模擬 乾式貯存箱;其中單側中央部位的 12 則加熱圓柱則用 來模擬乾式貯存箱之發熱,每則加熱圓柱的加熱瓦數為 9.65 W。加熱圓柱上表面中央處均設有 Type-K 熱電偶。 模擬與實驗的環境溫度相同,皆為實驗當時的 21.0 °C。 比較結果如圖 3 左所示,可知加熱圓柱上表面中央處的 溫度與實驗值兩者大致相似,預測結果與實驗值的平均 誤差 (error) 為 8.8%,可確定 CFD 模擬的可靠性。



圖 3 CFD 模擬與風洞實驗之比較驗證; 左:實驗結果與 模擬之比較; 右上: 流場之模擬結果; 右下: 模型照片

本計畫參考日本「集中室內乾貯設施除熱設計審查 基準」,利用中央垂直截面空氣平均溫度(基準值為45 °C)以及屋頂板溫的最大值(基準值為65°C)來做為室 內乾貯設施對於用過核子燃料貯存箱散熱效果之評估 依據,結果如表1所示。由結果可知,當H=12m且 Hv=5m時,本計畫所設計的室內乾貯設施式是符合前 述日本基準。所有模擬案例的屋頂板溫最大值均符合日 本基準所要求的 65°C;再者,雖然部分案例其空氣平 均溫度不均符合日本基準(45°C),但所超出的溫度量值 亦不高,相信經由後續的通風設計改善有機會可以達標。

表 1	本土室内	]乾貯設施自	然通風散	熱效能之	案例研析
-----	------	--------	------	------	------

	ø	4	Vo (m/s).					
		41	0	1.	3.	10.		
		Hy=5 m	<i>T</i> <sub>a0</sub> , ≥45 °C.	<i>T</i> <sub>atr</sub> >45 °C	<i>T</i> <sub>a0</sub> , ≥45 °C.	T <sub>a0</sub> >45 °C.		
	H=20 m.	Щу-э ш.	$T_{roof,max} \leq 65^{\circ}\mathrm{C}$ .	$T_{roof,max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof,\max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof,\max} \leq 65^{\circ} \text{C}$ .		
		Hy=1 m.	T <sub>a0</sub> >45 °C .	T <sub>atr</sub> >45 °C -	T <sub>at</sub> , >45 °C .	T <sub>a0</sub> >45 °C -		
			$T_{roof, \max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof,max} < 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof,max} < 65^{\circ}C$ .	$T_{roof,max} < 65^{\circ} \mathrm{C}$ .		
		II. C.	<i>T</i> <sub>air</sub> =45 °C .	<i>T<sub>air</sub></i> ≤45 °C .	<i>T</i> <sub>air</sub> ≤45 °C .	<i>T<sub>air</sub></i> <45 °C .		
H=12 m	II-12 m	Hy=5 m.	$T_{roof, \max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof, max} \leq 65^{\circ} C$ .	$T_{roof,max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof, max} \leq 65^{\circ} C$ .		
	n-12 m.	Un-1 m		<i>T</i> <sub>air</sub> >45 °C -	<i>T</i> <sub>ai</sub> , ≥45 °C .	<i>T</i> <sub>a</sub> ≥45 °C .		
	my-1 m.	$T_{roof, max} < 65^{\circ} C$ .	$T_{roof, max} < 65^{\circ} C$ .	$T_{roof,\max} \leq 65^{\circ} \mathrm{C}$ .	$T_{roof, max} \leq 65^{\circ} C$ .			

以下就達到基準的兩個案例(熱浮力通風與 hybrid ventilation 各一)來進行模擬結果之說明。當 H=12m, Hv=5m, Vo=0 時,並無外風吹拂的情況,因此,流場(圖 4(a))與溫度分布(圖 4(b))會沿著中央軸線呈現左右對稱。 戶外空氣有效地經由彎折式流道(圖中符號❶)進入室內, 經由乾式貯存箱的加熱2而向上流動,再經由通風塔樓 而流出戶外❸。如此也將乾式貯存箱的發熱帶至戶外, 達成貯存箱散熱的功效。

觀察中央垂直剖面處 (圖 1(a)之 A 剖面) 之室內空 氣溫度,結果如圖 5(a)所示,其平均值為 45.0°C;接著 觀察圖 5(b)之屋頂板最高溫低於 65°C。兩項溫度經確 認皆符合設計要求。

(a)



(b)



圖 4 H=12m, Hv=5m, Vo=0 時,中央垂直剖面處; (圖 1(a)之 A 剖面) (a)流場,與 (b)溫度分布



圖 5 H=12m, Hv=5m, Vo=0 時模擬之Īair與Troof, max

由於戶外風環境會直接影響到室內自然通風效果, 且台灣地區具有夏季吹南風、冬季吹北風的長年風向特 性,因此,觀察當 H=12m, Hv=5m, Vo=3 m/s (吹北風)時 的模擬結果,發現戶外氣流可藉由流經通風塔樓(圖 6 符號①)以及有效流入彎折式流道②,順利引致室內通 風。特別值得注意的是,在戶外氣流的下游端③,由於 流場結構的因素,流過建築物的尾流(wake flow)可順勢 流入南側的彎折式流道④,形成另一股室內通風氣流⑤。 戶外空氣經由兩則彎折式流道流入室內空間的低處,風 速平緩且可有效流經各高溫乾式貯存箱體,順利達成散 熱的功效。

室內空氣溫度如圖 7(a)所示,其平均值為 34.3°C。 如圖 7(b)屋頂板最高溫度亦小於 65°C。兩項溫度經確 認皆符合設計要求。

(a)







圖 6 H=12m, Hv=5m, Vo=3 m/s 時,中央垂直剖面處; (圖 1(a)之 A 剖面)(a) 流場,與(b) 溫度分布



圖 7 H=12m, Hv=5m, Vo=3m/s 時模擬之Tair與Troof, max

#### IV. 結論

為推動除役作業,國內台電公司目前已著手規劃於 核電廠內建置第二期室內乾貯設施。用過核燃料室內乾 式貯存設施之安全設計與審查的重點有三,即輻射防護, 結構安全與通風機能。室內乾貯廠房入氣區域之迷道, 原為屏蔽考量所設計,但對貯存護箱與廠房整體之除熱 影響,亦須列入設施安全評估。

本研究團隊最近針對乾貯混凝土護箱之除熱性能 評估,特別是環境風場影響,進行風洞試驗驗證與熱傳 分析 (Wang et al., 2021 a & b)。結果顯示除了護箱周圍 的熱浮力,外部環境風壓所致的風力亦應列入評估考量, 特別是當這兩股自然通風氣流產生拮抗時,可能影響乾 貯護箱與廠房整體的除熱性能,值得特別研究。在上述 背景下,本計畫針對本土室內乾貯護箱與廠房整體之除 熱評估與審驗技術,規劃 2 年期研究,進行一系列的風 洞試驗,結構模擬與熱傳分析。

本年度計畫首先利用 CFD 模擬並搭配熱流實驗, 觀察室內乾式貯存護箱之熱流特性。為了驗證 CFD 模 擬工作,本計畫針對相同配置和參數的熱浮力通風案例 進行了模擬與實驗,並將兩者結果進行比較。所使用的 實驗模型為 1/50 縮尺模型,模型材料為壓克力,圓柱 用來模擬乾式貯存箱;其中單側中央部位的 12 個加熱 圓柱則用來模擬乾式貯存箱之發熱。比較結果可知,加 熱圓柱上表面中央處的溫度與實驗值兩者大致相似,預 測結果與實驗值的平均誤差(error)為 8.8%,可確定 CFD 模擬的可靠性。

另外參考日本「集中室內乾貯設施除熱設計審查基 準」,利用中央垂直截面空氣平均溫度(基準值為45°C) 以及屋頂板溫的最大值(基準值為65°C)來做為室內乾 貯設施對於用過核子燃料貯存箱散熱效果之評估依據。 由結果可知,本計畫所設計的室內乾貯設施式是符合前 述日本基準。所有模擬案例的屋頂板溫最大值均符合日 本基準所要求的65°C;再者,雖然部分案例其空氣平 均溫度不均符合日本基準(45°C),但所超出的溫度量值

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

亦不高,相信經由後續的通風設計改善有機會可以達標。 藉由本計畫研究進一步掌握本土室內乾貯護箱與 廠房整體除熱的關鍵問題,與可能的設計方針與對策。 相關成果,將彙整成本土室內乾貯設施建築物通風性能 計審查導則(草稿)以提供參考。

# 參考文獻

- [1]「核能電廠用過核燃料室內乾式貯存安全審查 及管制研討會」資料,原能會物管局,106年4 月19至20日。
- [2] リサイクル燃料貯蔵(株)リサイクル燃料備蓄
   センターの新規制基準適合性に関する資料提
   出」 August, 2020
- [3] August, 2020Xie H., Gao Z., Zhou Z., 2002, A numerical investigation of natural convection heat transfer in horizontal spent-fuel storage cask, Nuclear Engineering and Design 213: 59-65.
- [4] Pugliese G., Lo Frano R., Forasassi G., 2010, Spent fuel transport cask thermal evaluation under normal and accident conditions, Nuclear Engineering and Design 240: 1699-1706.
- [5] Koga T., Tominaga Y., 2008, Heat removal characteristics of a concrete cask by a simplified test model, Nuclear Engineering and Design 238: 1189-1195.
- [6] Li J., Liu Y.Y., 2016, Thermal modeling of a vertical dry storage cask for used nuclear fuel, Nuclear Engineering and Design 301: 74-88.
- Kim H.M., No H.C., Bang K.S., Seo K.S., Lee S.H., 2014, Development of scaling laws of heat removal and CFD assessment inconcrete cask air path, Nuclear Engineering and Design 278: 7-16.
- [8] Chang H.Y., Chen R.H., Lai C.M., 2018, Numerical Simulation of the Thermal Performance of a Dry Storage Cask for Spent Nuclear Fuel, Energies 11(1): 149.
- [9] Yao-Hung Wang, Kuo-Cheng Yen, Heui-Yung Chang, Chi-Ming Lai, 2021a. Heat removal and hybrid ventilation characteristics of a vertical dry storage cask for spent nuclear fuel. Nuclear Engineering and Design, 378, 111183.
- [10] Wang, Y. H., Lin, Y. P., Chang, H. Y., & Lai, C. M, 2021b. Ventilation pattern and heat dissipation characteristics of a vertical dry storage cask for spent nuclear fuel: Wind tunnel experiments and CFD simulations. Annals of Nuclear Energy, 160, [108364].
- [11] Izadyar N., Miller W., Rismanchi B., Garcia-Hansen V., 2020, Impacts of façade openings' geometry on natural ventilation and occupants' perception: a review, Build. Environ. 170: 106613.
- Zhang H., Yang D., Tam V.W.Y., Tao Y., Zhang G., Setunge S., Shi L., 2021, A critical review of combined natural ventilation techniques in sustainable buildings, Renew. Sustain. Energy Rev. 141: 110795.
- [13] Spalding DB. The PHOENICS Encyclopedia. London: CHAM Ltd.; 2012.
- [14] Blocken B., 2015, Computational fluid dynamics for urban physics: importance, scales, possibilities,

limitations and ten tips and tricks towards accurate and reliable simulations. Build. Environ. 91: 219–245.

- [15] Franke J., Hellsten A., Schlunzen H., Carissimo B., 2007, Best Practice Guideline for the CFD Simulation of Flows in the Urban Envi-ronment; COST Office: Brussels.
- Chen C.M., Lin Y.P., Chung S.C., Lai C.M., 2022, Effects of the Design Parameters of Ridge Vents on Induced Buoyancy-Driven Ventilation, Builds 12: 112.
- [17] Tominaga Y., Mochida A., Yoshie R., Kataoka H., Nozu T., Yoshikawa M., Shirasawa T., 2008, AIJ guidelines for practical ap-plications of CFD to pedestrian wind environment around buildings. J. Wind Eng. Ind. Aerodyn. 96: 1749–1761.

# 用過核子燃料最終處置母岩具裂縫時對熱分佈影響與緩衝材料修正策略 The Effect of Thermal Distribution and the Modified Strategy of Buffer Material for Fractured Matrix on Nuclear Waste Repository

計畫編號:111-2623-E-024-001-NU 計畫主持人:林大偉 e-mail:david@mail.nutn.edu.tw 計畫參與人員:專任助理郭智惠、碩士生鄭富安 執行單位:國立臺南大學機電系統工程研究所

#### 摘要

本計畫考量當母岩具裂隙之條件將開發最終處置 場內母岩-緩衝材料之裂隙/孔隙熱-水-力 THM 理論與 不確定模型以預估處置場內之溫度分布現象及不準度 與緩衝材料修正策略。

本計畫將依照 SKB 設計規格發展一用過核燃料最 終處置場中母岩-緩衝材料之孔隙熱-水-力模型,模型將 分別以孔隙熱傳模型、Brinkman 模型、Forchheimer 阻 力流模型與結構力學模型耦合而成。繼而,接續 109 計 畫建立之孔隙條件下之熱分散關係,繼續完成裂隙條件 下之熱分散關係,以建立處置場母岩與緩衝材料之熱流 系統。進一步將結合母岩裂隙與裂隙網絡開發更為符合 真實情形包含地底母岩裂隙之孔隙熱水力模型。本計畫 最終將根據實驗室實驗之量測誤差及現地條件之數據 誤差建立不確定模型,以實際增強模型的實用價值。

藉由現地資料建立此一模擬現地之用過核燃料最終處置場熱-水-力裂隙/孔隙 THM 耦合模型,進行用過 核燃料最終處置場相關防護界定之評估,如環境因素, 進一步獲得溫度、流場與儲存條件之間的關聯性。本計 畫的關鍵技術在於開發出一用過核燃料最終處置場熱-水-力裂隙/孔隙 THM 耦合模型,由現地資料、模擬與 實驗三者整合而成,能夠有效評估預測其溫度、流場與 熱應力的影響。

**關鍵詞:**用過核廢料最終處置場、裂隙/孔隙熱水力模型、 不確定模型

#### Abstract

The purpose of this project is to develop porous thermal-hydraulic-mechanical (THM) conjugated theory and uncertainty model of matrix-buffer material on the nuclear waste repository.

The analysis and prediction of the nuclear waste repository should depend on a reasonable model combined with the error analysis. The SKB design will be used in this model. This model combines with the porous heat transfer, Brinkman model, Forchheimer drag and structure mechanics model. In addition, the porous THM model will conjugate with fracture network for the realistic application. To enhance the realistic practice of this porous THM model. Finally, the development of uncertainty model will be depended on the experimental error and data error of in-situ in advance. The key technology of this project is to propose a porous THM model with fracture based on the uncertainty analysis. It integrates the simulation, experiment and realistic in-situ design. It can evaluate the complex physic phenomena of porous conditions availably.

**Keywords:** Nuclear waste repository, Fracture/porous thermal-hydraulicmechanical (THM) model, Uncertainty model

#### I. 前言

核廢料處置需天然條件搭配得宜,這是最終處置無 法保證及必須有風險評估機制的重要因素。故探討在天 然之母岩與緩衝材料下熱-水-力之現象為確保處置場 能維持廢棄物罐安全之必要研究。

Laura 等人利用 TOUGH-FLAC 及 FLAC-TOUGH 二種模擬軟體預測最終處置場之含鹽自然條件下長期 之 THM 行為[1]。以及瑞典核燃料與廢棄物處理公司設 置了一系列評估模式與方法討論在膨鬆土於不同濕潤 度下預測結果之不準度以評估可能之風險[2]。

熱擴散係數是一項重要之動態係數, Ozgumus 等 人[3]探討孔隙對於多孔介質熱分散的影響,發現在較 低的雷諾數下(小於 10),縱向及橫向的熱擴散係數是可 忽略的。同樣在廢棄物罐所在之不同深度方面, Kedzierski 等學者[4]探討地熱模型時曾討論深度對於 熱傳係數及壓力之影響,結果發現從 503 米到 2098 米 的深度增加,熱傳係數增加 70%。

然而有許多複雜問題尚待釐清,尤其是母岩細部裂 縫構造、地下水狀態與熱傳結果間之關聯。此為用過核 燃料最終處置場裂隙/孔隙熱-水-力 THM 耦合模型開 發之重要原因。

#### II. 主要內容

用過核燃料最終處置場之分析與現象預測必須協同合理模型與不準度預估,本計畫將開發處置場內之母 岩-緩衝材料之母岩具裂隙之孔隙熱-水-力 THM 理論與 不確定模型,以預估處置場內之相關現象及不準度。計 畫之模型將結合地層裂隙與裂隙網絡開發更為真實包 含地底母岩裂隙之孔隙熱-水-力模型,並進一步根據實 驗室實驗之量測誤差及現地條件之數據誤差建立不確 定模型,以實際增強模型的實用價值。本計畫依照 SKB 設計規格[5]與台電 SNFD-TR2017[6]技術支援報告之

設計規格及材料參數發展一用過核燃料最終處置場中 母岩-緩衝材料之裂隙/孔隙熱-水-力模型,由現地資料、 模擬與實驗三者整合而成,能夠有效評估預測其溫度、 流場與熱應力的影響。

#### 2.1 處置場母岩-緩衝材料之孔隙熱-水-力 THM 理論建 立

本計畫將結合 SKB 設計規格與孔隙熱傳實驗獲得 之熱擴散長度[7],開發處置場內之母岩-緩衝材料之孔 除熱-水-力 THM 理論。此模型將分別以二組孔隙材料 熱傳模型、二組 Brinkman 模型與二組結構力學模型耦 合而成,而母岩與緩衝材料之接觸面將以 Forchheimer 阻力流模型定義。

本研究以數值模擬方式探討水於多孔介質中熱傳 之研究,其所建構的分析模型設定為壓力、流場與溫度 場之耦合類型,數學模型包含連續方程、Brinkman 動量 方程、能量平衡方程等。

連續方程式:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon \rho_f) + \nabla \cdot (u \rho_f)$$

$$= Q_{br}$$
(1)

**動量平衡方程式**:

$$\frac{\rho_f}{\varepsilon} \left( \frac{\partial u}{\partial t} + (\nabla u) \frac{u}{\varepsilon} \right)$$

$$= -\nabla P + \nabla \cdot \left[ \frac{1}{\varepsilon} \left\{ \mu \left( \nabla u + (\nabla u^T) \right) - \frac{2}{3} \mu (\nabla u) I \right\} \right]$$

$$- \left( \frac{\mu}{\kappa} + \beta_F |u| + \frac{Q_{br}}{\varepsilon^2} \right) u$$

$$+ F \qquad (2)$$

在多孔介質中完全飽和之介質與流體,如下所示: 介質能量平衡方程式:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[ (1 - \varepsilon) \rho_p C_{p,p} T_p \right] - (1 - \varepsilon) \nabla \cdot \left( k_p \nabla T_p \right)$$
$$= 0 \tag{3}$$

流體能量平衡方程式:

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[ \varepsilon \rho_f C_{p,f} T_f \right] + \nabla \cdot \left( \rho_f C_{p,f} D T_f \right) - \varepsilon \nabla \cdot \left( k_f \nabla T_f \right)$$
$$= 0 \tag{4}$$

式中 $\rho$ 為密度、u為流體流速、 $Q_{br}$ 為質量力、 $\mathcal{E}$ 為孔隙率、  $\mu$ 為流體的動力黏度、K為滲透率、 $\beta_F$ 為 Forchheimer 係 數、F為強制力項、 $C_p$ 為常壓比熱及k為熱傳導係數。 熱-水-力耦合後修正之應力之計算:

$$\sigma_{ij}^{c} = \sigma_{ij} - \alpha \Delta P \delta_{ij} - 3\alpha_{T} K \Delta T \delta_{ij}$$
(5)

式中 $\alpha$ 為 Biot 數、 $\alpha_T$ 為熱擴散係數、K為容積彈性模數 (bulk modulus)、 $\delta_{ij}$ 為克羅內克函數(Kronecker delta)。

#### 2.2 Forchheimer 阻力 (Forchheimer Drag)

當二個孔隙材料組合在一起時,經由二材料接觸面間之流動將考慮 Forchheimer 阻力。舉例而言,母岩中流動之水將會以多大的速度及流量流進(流出)緩衝材料中。

Forchheimer Drag= $\beta_F  u  u$			(6)
$\beta_F = f_s C_f \varepsilon \rho / \sqrt{\mathbf{k}}$	無因次摩擦係數	$C_f =$	

$$\frac{1.75}{\sqrt{150\varepsilon^3}}$$

(7)

本計畫之處置場現地配置資料來自瑞典 KBS-3V 處置概念及 SKB 設計報告。處置場之週期陣列配置示 意圖,申請人提出一四角形陣列模型,每一角落有一1/4 廢棄物罐處置措施,朝中心分別為緩衝材料及母岩。廢 棄物罐處置坑兩兩間初始距離為 6m,廢棄物罐深度為 500m。廢棄物罐假設為一熱源,四面假設為對稱週期邊 界,且上下二面假設為對流熱傳邊界,分別改變緩衝材 料孔隙率、平流流量,以獲得溫度的變化。模擬模型如 圖 1 所示。



圖1 母岩-緩衝材料之孔隙熱-水-力 THM 理論模型

#### 2.3 包含複雜岩石裂隙網絡之處置場母岩-緩衝材料之 孔隙熱-水-力 THM 理論建立

結合裂隙網絡與孔隙 THM 模型,為一最新之基於 Brinkman 模型之地下孔隙結合裂隙網絡 THM 模型。此 模型相較於 Darcy 模式將可獲得較為精確之熱傳結果, 加入結構應變效應將可預測長期運轉之地熱井的產能 變化。裂隙網絡條件之變化可進一步探討孔隙與裂隙於 地熱取熱中扮演之角色比重,進而了解不同地質條件下 處置場更為實際之熱分布與應力分布。

本計畫進一步欲考量母岩-緩衝材料之間,因熱源 與長期地下水流動造成應力變化,對儲集層孔隙條件之 影響及裂隙效應,將開發一結合裂隙網絡之孔隙熱-水-力模型(porous THM model with fracture network)以預 估處置場更為實際之熱分布與應力分布。

#### 2.4 裂隙網絡

如圖 1 之基於母岩-緩衝材料孔隙 THM 模型,母 岩尺寸依照 SKB 設計規格為 6 立方米。本計畫於該母 岩中心內模擬一裂隙網絡,以 Qu 等人於 2017 提出之 網絡為基礎[8],進行三種裂隙模式之討論,如圖 2 所

示。分別設計主裂隙(後稱"case1")(如圖 2(a))、主裂隙 與次裂隙(後稱"case2")(如圖 2(b))與主裂隙、次裂隙和 微裂隙(後稱"case3")(如圖 2(c)) 與無裂隙(後稱 "case4")(如圖 2(d))。



#### 2.5 孔隙熱-水-力理論之不確定模型

本計畫主要研究過程分為二大步驟,一為以實驗與 孔隙熱-水-力模型擬合建立核廢料處置場之現地裂隙/ 孔隙熱質傳條件下的熱分散係數,二為以裂隙/孔隙熱-水-力模型結合現地條件發展核廢料處置場的物理模型。

在實驗過程中會因實驗誤差而對計算結果產生影響,為了瞭解其影響程度,需要對實驗過程中各參數進 行不準度分析。不準度分為系統及隨機二類,系統不準 度可藉由儀器規格獲得,隨機不準度則需由多次實驗之 數據統計而得,本計畫之實驗誤差包含了實驗室實驗之 量測誤差及現地條件之數據誤差。

# III. 結果與討論

#### 3.1 模型驗證

本計畫提出之週期性模型經過與 Lee 等人於 2019 發表之 KRS(Korea Repository System)系統之分析之結 果[9]比較以驗證之。圖 3 為本計畫模型與 KRS 結果之 溫度比較,在 7.8 年時誤差僅為 0.02%,此可驗證本模 型之正確性。



圖 3 本計畫驗證模型與參考文獻[9]之溫度比較圖 (位置點(510mm, 0mm, 3100mm))

#### 3.2 近場溫度與應力分布分析

本計畫之用過核燃料處置場模型係根據台電 SNFD-2017報告建立,處置場位於地下 500 m 用過燃 料桶之間距為6m,示意圖如圖4。



圖 4 用過核燃料處置場模型示意圖

首先,本研究將探討處置場第十年之溫度與應力分 布結果,如圖 5。圖 5(a)為當潛流為 12m/s 時用過核燃 料最終處置場週期性模型之溫度分布圖。由圖中可以清 楚地觀察到用過核燃料儲存桶至母岩之溫度分布,溫度 明顯地由儲存桶遞減至母岩中心。圖 5(b)更進一步顯示 沿著模型對角位置二儲存桶之截面(方向指數為[1,1,0]), 且高度分別為由底面往上 1050mm(儲存桶底部)、 4000m(儲存桶中央)、5920mm(儲存桶頂部)之溫度分布。 由圖 5(b)可觀察到最高溫發生於儲存桶底部為 341K。 圖 5(c)為處置場之應力分布圖,由圖中可觀察到最大應 力值發生在儲存罐表面為 39.7 MPa。由此結果可獲得 儲存罐表面可能之挫曲與平面應力之分布,而進一步避 免材料之失效。



圖 5 處置場在第 10 年時之(a)溫度分布、(b)模型高度分 別為由底面往上 1050mm(儲存桶底部)、4000m(儲存桶 中央)、5920mm(儲存桶頂部)之溫度分布、(c)應力分布

根據 SKB 於 2008 之研究報告顯示(SKB, 2008), 處置場釋放輻射之生命期假定為 70 年。亦即,處置場 之熱量增加之估算可以 70 年當作增加之期限。因此, 本研究將探討在第 70 年時處置場之溫度與應力分布。 圖 6 顯示第 70 年時沿著模型對角位置二儲存桶之截面 (方向指數為[1,1,0]),且高度分別為由底面往上 1050mm(儲存桶底部)、4000m(儲存桶中央)、5920mm(儲 存桶頂部)之溫度分布。於圖 6(b),最大溫度發生於儲存 桶底部為 345K 且比第十年時之溫度高約 4 K。而在第 70 年時之最大應力增加至 43.4 MPa(圖 6(c))。根據 SKB 於 2010 之研究報告(SKB, 2010),應力限制為 45 MPa。 根據本模型探討台電之設計,台電設計之處置場在第 70 年時完全符合國際安全規範。



圖 6 處置場在第 70 年時之(a)溫度分布、(b)模型高度分 別為由底面往上 1050mm(儲存桶底部)、4000m(儲存桶 中央)、5920mm(儲存桶頂部)之溫度分布、(c)應力分布

#### 3.3 於最大儲存量下之儲存桶最佳化距離分析

本計畫最佳化之目的為獲得處置場之最大廢燃料 儲存桶之儲放量。最佳化過程中本研究假設儲存桶底部 之溫度為最佳化之目標函數並最大化此目標函數,同時 加一限制式為此目標函數需小於 373K。故本研究將可 獲得在此目標函數及限制式下二儲存桶間最小距離。

如圖7所示, 在最佳化過程中隨二儲存桶間距由 6m 遞減變化至 5.535m 時,溫度趨勢(儲存桶底部 1050mm 高度位置)由 345K 增加至 373K。此時單位模 型之儲存量增加 117.5%。最高溫度仍符合法規之安全 規範。



圖 7 最佳化過程中隨二儲存桶間距變化之溫度趨勢 (儲存桶底部 1050mm 高度位置)

#### 3.4 裂隙網絡

母岩尺寸依照 SKB 設計規格為 6 立方米,於該 母岩中心內模擬裂隙網絡,進行4種裂隙模探討。

本計畫接著4個模型分別在 COMSOL 中以水流速 2m/s,進行模擬6秒與120分鐘。

圖 8 為 case1-3 於 120 分鐘時之溫度分布圖,圖 9 為 4 個模型在 3 個測量點模擬時間 6 秒的隨時間變化 之溫度變化圖,可以觀察到在 6 秒時井頂部的溫度,有 裂隙模型溫度比無裂隙模型上升更快。



(模擬時間:120分鐘)



圖 9 裂隙模型隨時間變化之溫度變化圖(a)井底部、(b) 井頂部、(c)模型頂部(模擬時間:6秒)

#### 3.5 孔隙熱-水-力理論之不確定模型計算

本計畫之實驗誤差包含了實驗室實驗之量測誤差 及現地條件之數據誤差:

- 在實驗量測上,T-type 熱電偶之誤差為±0.2℃、數據 摘取系統誤差為±0.2℃、壓差計誤差為±0.01 MPa、 針筒式高壓泵浦 ISCO 500D 壓力誤差為±0.01 MPa、 流速誤差為±0.5%。
- 在現地條件下,滲透率與孔隙率為一預估值相對誤 差較大,在不準度分析時將其誤差假設為10%。而尺 度部分為一預設之尺寸,故其不準度設計為尺度單 位下一位,材料性質則不取不準度。

#### IV. 結論

本計畫根據 KBS-3V 設計及台電支援報告相關詳 細尺寸,建立處置場模型,以獲得現地規模 THM 模型 之溫度與應力分布。首先,完成本團隊提出之用過核燃 料最終處置場孔隙 THM 模型之驗證。藉由已驗證之模 型探討用過核燃料最終處置場之近場溫度與應力分布 分析,進一步以自行開發之最佳化簡易共軛梯度法之最 佳化方法研究於最大儲存量下之儲存桶最佳化距離分 析。本模型並進一步考慮岩層中若具有複雜之裂隙時對 近場溫度分布之影響,最終將本模型之參數具體以不準 度方法分析以掌握此模型之數值誤差。

計畫所開發之孔隙 THM 模型可實際掌握岩層與緩 衝材料之熱傳與孔隙變化,獲得詳細之溫度、應力與流 場變化,並根據此結果獲得最佳化之間距及可提升之儲 存容量。

#### 参考文獻

- [1] Laura Blanco Martín, Ralf Wolters, Jonny Rutqvist, Karl-Heinz Lux, Jens T. Birkholzer, Comparison of two simulators to investigate thermal-hydraulicmechanical processes related to nuclear waste isolation in saliferous formations, Computers and Geotechnics 66, 219-229, 2015.
- [2] S. Finsterle, B. Lanyon, M. Åkesson, S. Baxter, M. Bergström, N. Bockgård, W. Dershowitz, B. Dessirier, A. Frampton, Å. Fransson, A. Gens, B. Gylling, I. Hančilová, D. Holton, J. Jarsjö, J.-S. Kim, K.-P. Malmberg, V. Kröhn, D. M. Pulkkanen, A. Sawada, A. Sjöland, U. Svensson, P. Vidstrand and H. Viswanathan. Conceptual uncertainties in modelling the interaction between engineered and natural barriers of nuclear waste repositories in crystalline rocks, Geological Society, London, Special Publications 482, 261-283, 2018.

- [3] T. Ozgumus and M. Mobedi, "Effect of pore to throat size ratio on thermal dispersion in porous media," Int. J. Thermal Sciences 104, 135-145, 2016.
- [4] P. Kędzierski, Z. Nagórski, and T. Niezgoda, "Determination of local values of heat transfer coefficient in geothermal models with internal functions method," Renewable Energy 92, 506-516, 2016.
- [5] SKB, Svensk Kärnbränslehantering AB, 2010, Design, production and initial state of the canister, SKB Technical Report TR-10-14.
- [6]台灣電力公司,用過核子燃料最終處置計畫-潛 在處置母岩特性調查與評估階段-我國用過核子 燃料最終處置技術可行性評估報告-技術支援報 告,SNFD-TR2017。
- [7] D.T.W. Lin, J.C. Hsieh, B.Y. Shih, "The optimization of geothermal extraction based on supercritical CO<sub>2</sub> porous heat transfer model," Renewable Energy 143, 1162-1171, 2019.
- [8] Z. Qu, W. Zhang, T. Guo "Influence of different fracture morphology on heat mining performance of enhanced geothermal systems based on COMSOL," Int. J. of Hydrogen Energy 42, 18263-18278, 2017.
- [9] J. Lee, H.J. Choi, G.Y. Kim, D.K. Cho, "Numerical analysis of the effect of gap-filling options on the maximum peak temperature of a buffer in an HLW repository," Progress in Nuclear Energy 111, 138-149, 2019.

# 輻射防護與放射醫學科技(I)

# 人工智慧深度學習輔助診斷脊椎壓迫性骨折

# Application of deep learning algorithm to detect and visualize vertebral fractures on plain frontal radiographs

計畫編號:111-2623-E-002-002-NU 計畫主持人:陳宣佑 e-mail:hychen83@ntu.edu.tw 計畫共同主持人:曾聖彬 執行單位:國立台灣大學醫學院附設醫院

#### 摘要

脊椎壓迫性骨折雖是最常見骨折,但因症狀不明顯 且缺乏積極診斷,三分之二病患僅引起輕度疼痛及身高 縮水,容易忽略。早期介入治療可減少78%再次骨折, 效果顯著,然而,在台灣每年有超過六萬脊椎骨折隨機 分散的發生,現有的人力和資源運作相當困難。若由人 工智慧自動辨識脊椎骨折的模型做初步篩選測試,再由 專家做診斷確認,預期能有巨大幫助。

本研究目標為(1)建立多模式脊椎骨折巨量資料 庫;(2)提升人工智慧自動辨識脊椎骨折模型診斷正 確度;(3)有效導入模型於臨床路徑找出被忽略的病 患。

**刷键词:**人工智慧、深度學習、演算法、骨質疏鬆、脊 椎骨折。

#### Abstract

Although spinal compression fractures are the most common fracture, they are easily overlooked due to the lack of proactive diagnosis and the fact that two-thirds of patients suffer from only mild pain and height loss. However, with over 60,000 randomly dispersed vertebral fractures occurring in Taiwan each year, it is difficult to operate with the available manpower and resources. It is expected to be of great help if the initial screening test is performed by an artificial intelligence model that automatically identifies vertebral fractures, and then confirmed by experts for diagnosis.

The objectives of this study are (1) to build a large database of multimodal vertebral fractures; (2) to improve the diagnostic accuracy of the DCNN model; and (3) to effectively import the model into the clinical pathway to identify overlooked patients.

**Keywords:** artificial intelligence, machine learning, algorithms, osteoporosis, vertebral fracture

#### I. 前言

Vertebral fractures (VFs), which are identified as deformities of vertebral bodies based on the imaging of the lateral spine, are a hallmark of osteoporosis. VFs are the most common osteoporotic fractures worldwide, and twothirds of VFs are clinically silent. Men aged over 65 years had 10-20 % incidence rate compared to women with 18-30%, and the numbers of VFs are two-fold more than hip fractures. VFs are associated with significant loss of independence, morbidity, and mortality, and incur high societal costs. In Europe, the economic burden, which is estimated at  $\in$  37 billion, is expected to increase by 25% by 2025. Patients with VFs need prompt preventive treatment, although they remain largely undiagnosed; this is because VFs are asymptomatic or induce only a mild pain and there is a lack of routine radiographic detection in the clinical pathway. The healthcare teams have provided programs, such as fracture liaison services, to specifically find and treat osteoporotic patients with high fracture risk, and the pharmacological and lifestyle interventions to reduce fracture risk have been well evidence based.

The major method of screening osteoporotic patients is by existing fragility fractures, gathering extensive historical information through Fracture Risk Assessment Tool (FRAX), or conduction Dual-Energy X-ray Absorptiometry (DEXA). Detection of VFs is paramount in the effort to decrease secondary osteoporotic fractures, and diagnosing VFs is therefore of critical importance for the implementation of both primary therapeutic and secondary preventive interventions. However, there are more than 60,000 VFs in Taiwan, due to limited existing manpower and resources, it is challenging to put clinical pathway into real world practice. An ideal Convolutional neural networks (CNN)-based protocol for hospitals automatically identifies VFs, then experts review the scans of patients at risk and make the final confirmation can be helpful.

Convolutional neural networks (CNN) are capable of processing data in the form of images, videos, signals, sequences, and so on. In the architecture of a CNN, each convolution process is executed by a filter, which extracts the local information from the different parts of an image. The CNN can obtain local information from many different levels and combine these extracted features to build the global information. Numerous researchers in the field of medical imaging have been using CNN-based models to accomplish various tasks, and their successes in medicine provide a myriad of potential prospects to the deep learning research. Many methods such as gradient-weighted class activation mapping (Grad-CAM) have been developed for the visual depiction of a deep convolutional neural network (DCNN) to assist clinicians in identifying the pathologic regions and validate the performance of DCNNs.

The research aims to address the low diagnosis rate of vertebral fractures, which are the most common type of

fracture but often go unnoticed, with only mild pain and height loss in two-thirds of patients. Early detection of vertebral fractures is crucial for reducing secondary osteoporotic fractures and is closely related to the implementation of primary treatment and secondary prevention interventions. Once vertebral fractures occur, there is a high probability of disability, and the incidence and mortality rates increase rapidly, causing a huge socioeconomic burden. Early intervention treatment can reduce 78% of subsequent fractures, and the effect is significant. Thus, it is important to develop routine radiographic examinations to diagnose vertebral fractures.

The objectives of this study are: (1) to establish a massive database of multi-modal vertebral fracture data; (2) to improve the accuracy of artificial intelligence automatic identification of vertebral fracture models; and (3) to effectively identify patients.

# II. 主要內容

#### Proposed Framework

In this section, we first present our main framework and then show the architectural design of the CNN model. The framework of this study is shown in Figure 1, where a large number of X-ray images (In AP view or lateral view) are first explored and analyzed; then the data are cut and divided into Training Set, Validation Set, and Testing Set. The 5-fold Cross Validation is used for model training and validation (training and validation data together account for 80% of the total data; testing data account for 20% of the total data), and multiple classification models are constructed by deep learning techniques (e.g., various CNN-based methods). The ensemble method is used to integrate different models to achieve better accuracy than a single model. Finally, the optimized models are evaluated with test data.  $\circ$ 



Figure 1. The framework flow chart of deep ensemble model in this study

Figure 2 illustrates the architecture of the CNN classification model. Firstly, we perform cropping, normalization, and resizing in the data preprocessing stage to improve the quality of the training. Then, we fine-tune five classifiers based on different pre-trained networks. The ensemble method is used to integrate a few models into one to achieve better performance. Finally, we can obtain two outputs from the ensemble model, the first one is the detection result of fracture and the second one is the Grad-Cam (gradient-weighted class activation mapping) of the model. Grad-CAM is currently used for visual mapping of deep convolutional neural networks (DCNNs) to help clinicians identify pathological regions and verify the

performance of DCNNs. More detail will be shown in later sections.



Figure 2. The architecture of the classification model

## <u>Experiment Setup</u>

Dataset

The dataset contains a total of 1000 x-ray images of the spine, with 500 images in the anterior-posterior (AP) view and 500 images in the lateral view. Within each view, 250 of the images have vertebral fractures, while the other 250 do not have any fractures. It's important to note that this kind of medical image dataset requires careful handling and protection of patient privacy. All images have been deidentified and properly stored and protected to ensure patient confidentiality is maintained. Metric

We employed a variety of metrics to properly evaluate the proposed model, which is described below.

- 1. AUC (Area Under the ROC Curve): AUC represents the degree of separability between the true positive rate (sensitivity) and the false positive rate (1-specificity) for different thresholds. AUC ranges from 0 to 1, with a higher value indicating better performance.
- 2. Accuracy: Accuracy is the proportion of correct predictions made by a classification model out of all the predictions made.
- 3. Recall (Sensitivity): Recall is the proportion of true positive predictions made by a classification model out of all the actual positive cases in the dataset. Recall is a useful metric when the cost of false negatives is high.
- 4. Precision: Precision is the proportion of true positive predictions made by a classification model out of all the positive predictions made. Precision is a useful metric when the cost of false positives is high.
- 5. F1-Score: F1-Score is a harmonic mean of precision and recall, and it combines the two metrics to provide a balanced evaluation of the classification model. It ranges from 0 to 1, with a higher value indicating a better performance of the model. F1-score is a popular metric for imbalanced datasets as it considers both precision and recall.Implement Details

We implement the proposed model in PyTorch. Specifically, we set the batch size to 8. We use the stochastic gradient descent optimizer and tune the learning rate among [1e-2, 1e-3, 1e-4] for model finetuning.

## III. 結果與討論

Table 1 shows the model results of training with different ensemble strategies. From the results, we have the

following observations:

- 1. In the AP view dataset, the ensemble of all EfficientNets models outperforms other approaches.
- 2. In the lateral view dataset, the ensemble of all baseline models outperforms other approaches.
- 3. Generally speaking, a lateral view dataset can achieve a better training result.
- 4. Ensemble the last layer output of every model (HL) did not perform better than ensemble the results directly.

Based on the given observations, it appears that ensemble strategies have a significant impact on the performance of a model for vertebral fracture recognition. Specifically, the ensemble strategy used depends on the view of the input data.

Table 1. Results training with different ensemble strategies									
Model	AUC	Accuracy	Recall	Precision	F1-score				
AP view									
Ensemble 1	0.80±0.04	$0.80 \pm 0.04$	0.78±0.06	0.82±0.04	0.80±0.05				
Ensemble 2	$0.80{\pm}0.04$	$0.80 \pm 0.04$	$0.80{\pm}0.04$	0.81±0.06	$0.80 \pm 0.04$				
Ensemble 3	0.82±0.04	0.82±0.04	0.82±0.04	0.82±0.05	0.82±0.04				
Ensemble 1HL	0.81±0.04	0.81±0.04	0.81±0.07	0.80±0.03	0.81±0.05				
Ensemble 2HL	0.81±0.06	0.81±0.06	0.76±0.07	0.84±0.06	$0.80 \pm 0.06$				
Ensemble 3HL	0.81+0.06	0.81+0.06	0.76+0.07	0.83+0.06	$0.80 \pm 0.07$				
		Lateral	view						
Ensemble 1	0.85±0.03	0.85±0.03	0.86±0.03	0.84±0.04	0.85±0.03				
Ensemble 2	0.87±0.04	0.87±0.04	0.88±0.03	0.87±0.05	0.87±0.03				
Ensemble 3	0.86±0.04	0.86±0.04	0.86±0.05	0.86±0.04	0.86±0.04				
Ensemble 1HL	0.86±0.04	$0.86 \pm 0.04$	0.88±0.05	0.85±0.03	0.86±0.04				
Ensemble 2HL	$0.85 \pm 0.04$	$0.84{\pm}0.04$	$0.86 \pm 0.05$	$0.84{\pm}0.05$	$0.85 \pm 0.04$				
Ensemble 3HL	$0.86 \pm 0.04$	$0.86 \pm 0.04$	$0.85 \pm 0.05$	0.86+0.03	$0.86 \pm 0.04$				

#### **Baseline Model Analysis**

Table 2 presents the results of training with different pre-trained backbones. There are a few observations we found from the results:

- 1. In the AP view dataset, EfficientNet-B0 outperforms other backbones
- 2. Similarly, EfficientNet-B1 outperforms other backbones in lateral view.
- 3. Generally speaking, a lateral view dataset can achieve a better training result.

Table 2. Results training with different backbone models										
Model	AUC	Accuracy	Recall	Precision	F1-score					
	AP view									
ResNet50	0.78±0.03	0.78±0.03	0.73±0.05	0.81±0.04	0.77±0.04					
Efficient-B0	$0.75 \pm 0.07$	0.75±0.07	$0.75 \pm 0.08$	0.75±0.07	0.75±0.07					
Efficient-B1	0.79±0.05	0.79±0.05	0.76±0.09	0.81±0.07	0.78±0.05					
Efficient-B2	0.76±0.04	0.76±0.04	0.79±0.07	0.76±0.07	0.77±0.04					
Efficient-B4	0.73±0.09	0.73±0.09	0.66±0.17	$0.79 \pm 0.09$	0.70±0.13					
		Lateral	view							
ResNet50	0.79±0.04	0.79±0.04	0.83±0.06	0.76±0.04	0.79±0.05					
Efficient-B0	0.84±0.03	0.84±0.03	0.86±0.01	0.84±0.06	0.85±0.03					
Efficient-B1	$0.82 \pm 0.04$	0.82±0.04	$0.86 \pm 0.04$	$0.80 \pm 0.06$	$0.83 \pm 0.03$					
Efficient-B2	$0.84{\pm}0.04$	$0.84{\pm}0.04$	0.87±0.03	0.82±0.06	0.84±0.03					
Efficient-B4	$0.82 \pm 0.06$	$0.82{\pm}0.06$	0.86±0.03	$0.81 \pm 0.08$	$0.83 \pm 0.04$					

#### Visualization Analysis

Grad-CAM, which stands for Gradient-weighted Class Activation Mapping, is a technique that can be used to generate visual explanations of the decisions made by a Convolutional Neural Network (CNN). Grad-CAM works by using the gradients of the target class concerning the feature maps of the last convolutional layer of the CNN. This information can be superimposed on the original input image to show which parts of the image are most important for CNN's decision. By providing visual explanations of how CNN is making its decisions, Grad-CAM can help to improve the interpretability and transparency of these models and can provide insights into how they are processing information. For each of the baseline models, we are doing case studies on the correct and incorrect classified samples respectively to see if the model captures reasonable feature of data. Only the case studies of the best baseline for each view are present for the sake of simplicity.



Figure 3. Grad-Cams of 2 correctly classified AP view samples

Figure 3 presents the Grad-Cams of 2 correctly classified samples, where Figure 3A, 3C is a true positive sample and Figure 3B is a true negative sample.

From Figure 3A and Figure 3B, we can see that in most of the correctly classified sample's Grad-Cam, its heatmap are highlighting the spine area, which indicates that the models are using the presence or absence of features in the spine region as key factors in making their predictions. This observation is not surprising since this area is where vertebral fractures typically occur. However, it's important to note that relying solely on the spine region may not be sufficient for an accurate diagnosis of vertebral fractures. Other regions of the body may also contain important visual cues, such as the ribs or the pelvis. Figure 3C shows that some of the Grad-Cams focus not only on the spine itself but also cover the muscle tissues or organs around it.

# IV. 結論

This project established a massive database of vertebral fracture images. It took advantage of the subset of the database to develop deep learning models for the automatic identification of vertebral fracture models.

The framework used in this study involved exploring and analyzing X-ray images and constructing multiple classification models using deep learning techniques.

In summary, the research conducted in this study demonstrated the effectiveness of deep learning models in improving the accuracy of the automatic identification of vertebral fracture models. The accuracy of identifying vertebral fractures was significantly improved by utilizing multiple classification models constructed through various deep learning techniques and combining them with the ensemble method. Among the different ensemble strategies tested, an ensemble of all models was found to be the best performance (AUC=0.87, accuracy=0.87, recall=0.88, precision=0.87, and F1-score=0.87). It achieved high scores in every evaluation metric, including AUC, accuracy, recall, precision, and F1-score.

These findings have significant implications for the early detection and treatment of vertebral fractures, which is critical in reducing secondary osteoporotic fractures and the associated healthcare burden. Future research should consider expanding the database of multi-modal vertebral fracture data to construct a more robust and accurate model for vertebral fracture detection. Such a model would have important clinical applications and could potentially lead to better patient outcomes by allowing for early intervention and prevention of subsequent fractures. It is crucial to continue investigating and developing new techniques and methods to improve the detection and diagnosis of vertebral fractures, as it has the potential to significantly impact public health and the quality of life for patients.

# 參考文獻

- Kong, S. H., Lee, J. W., Bae, B. U., Sung, J. K., Jung, K. H., Kim, J. H., & Shin, C. S. (2022).
  Development of a Spine X-Ray-Based Fracture Prediction Model Using a Deep Learning Algorithm. Endocrinology and metabolism (Seoul, Korea), 37(4), 674–683. https://doi.org/10.3803/EnM.2022.1461
- Muehlematter, U. J., Mannil, M., Becker, A. S., Vokinger, K. N., Finkenstaedt, T., Osterhoff, G., Fischer, M. A., & Guggenberger, R. (2019). Vertebral body insufficiency fractures: detection of vertebrae at risk on standard CT images using texture analysis and machine learning. European radiology, 29(5), 2207–2217. https://doi.org/10.1007/s00330-018-5846-8
- Yu, J. S., Yu, S. M., Erdal, B. S., Demirer, M., Gupta, V., Bigelow, M., Salvador, A., Rink, T., Lenobel,S. S., Prevedello, L. M., & White, R. D. (2020). Detection and localisation of hip fractures on anteroposterior radiographs with artificial intelligence: proof of concept. Clinical radiology, 75(3),237.e1–237.e9. https://doi.org/10.1016/j.crad.2019.10.022

Mars X X: 7 Tang X Xia I Lia

- Wang, X., Xu, Z., Tong, Y., Xia, L., Jie, B., Ding, P., Bai, H., Zhang, Y., & He, Y. (2022). Detection and classification of mandibular fracture on CT scan using deep convolutional neural network. Clinical oral investigations, 26(6), 4593–4601. https://doi.org/10.1007/s00784-022-04427-8
- [5] Choi, J. W., Cho, Y. J., Lee, S., Lee, J., Lee, S., Choi, Y. H., Cheon, J. E., & Ha, J. Y. (2020). Using a Dual-Input Convolutional Neural Network for Automated Detection of Pediatric Supracondylar Fracture on Conventional Radiography. Investigative radiology, 55(2), 101– 110.https://doi.org/10.1097/RLI.00000000000061 5
- [6] Yoga Dwi Pranata, Kuan-Chung Wang, Jia-Ching Wang, Irwansyah Idram, Jiing-Yih Lai, Jia-Wei Liu, IHuiHsieh, Deep learning and SURF for automated classification and detection of calcaneus fractures inCT images, Computer Methods and Programs in Biomedicine, Volume 171,2019,Pages 27-37,ISSN 0169-2607.

https://doi.org/10.1016/j.cmpb.2019.02.006.

 [7] Gan, K., Xu, D., Lin, Y., Shen, Y., Zhang, T., Hu, K., Zhou, K., Bi, M., Pan, L., Wu, W., & Liu, Y.(2019). Artificial intelligence detection of distal radius fractures: a comparison between the convolutional neural network and professional assessments. Acta orthopaedica, 90(4), 394–400.https://doi.org/10.1080/17453674.2019.160012

- [8] Kitamura, G., Chung, C. Y., & Moore, B. E., 2nd (2019). Ankle Fracture Detection Utilizing a Convolutional Neural Network Ensemble Implemented with a Small Sample, De Novo Training, and Multiview Incorporation. Journal of digital imaging, 32(4), 672–677. https://doi.org/10.1007/s10278-018-0167-7
- [9] Rayan, J. C., Reddy, N., Kan, J. H., Zhang, W., & Annapragada, A. (2019). Binomial Classification of Pediatric Elbow Fractures Using a Deep Learning Multiview Approach Emulating Radiologist Decision Making. Radiology. Artificial intelligence, 1(1), e180015.

https://doi.org/10.1148/ryai.2019180015

Adams, M., Chen, W., Holcdorf, D., McCusker, M.
 W., Howe, P. D., & Gaillard, F. (2019). Computer vs human: Deep learning versus perceptual training for the detection of neck of femur fractures. Journal of medical imaging and radiation oncology, 63(1), 27–32. https://doi.org/10.1111/1754-9485.12828

# 優化卵巢癌特異性抗體 CHI3L1 作為診療示蹤劑的應用性 Optimizing the ovarian cancer specific antibody CHI3L1 as a theragnostic tracer for clinical applications

計畫編號:NSTC 111-2623-E-002-003-NU 計畫主持人:江盈澄 e-mail:yingchengchiang@ntu.edu.tw 計畫參與人員:唐錦淇 執行單位:國立臺灣大學醫學院婦產科

# 摘要

根據衛生福利部國民健康署癌症登記報告,卵巢癌 發生率逐年升高,其死亡率在婦科惡性腫瘤中名列第一。 由於缺乏有效的診斷工具,大部分病人確診時已是晚期。 發展卵巢癌治療藥物及其伴隨式早期診斷工具,正確地 篩選目標加以特異性地進行治療,是很有潛力的精準醫 療策略。

CHI3L1 基因位於第一號染色體 1q32.1 位置,與慢 性發炎、組織重塑和腫瘤形成有關。我們先前的研究發 現,在卵巢癌病患癌組織中,CHI3L1 的高度表現有較 差的預後,CHI3L1 會促進 Mcl-1 蛋白表現,使卵巢癌 細胞對紫杉醇有抗藥性。CHI3L1 會調控 Akt 與 Erk 訊 息傳遞路徑活化,促進 β-catenin 與 SOX2 蛋白表現, 使細胞具有癌症幹細胞的特性。由此可見,CHI3L1 在 卵巢癌的發展扮演相當重要的角色。

我們在先前的計畫中建立了數種銦-111 標誌特異 性 CHI3L1 抗體藥物,初步發現此藥物在小鼠動物的卵 巢癌細胞腫瘤部位有較高的累積劑量,提供了研究模式 的基礎,然而這些經過銦-111 標誌後腫瘤特異性抗體藥 物也顯示出在血清中穩定度不足的問題。此外在生物分 布試驗中也顯示藥物在脾臟、腎、肝臟等重要器官都有 聚積的現象。在本年度的計畫中,為提升本腫瘤特異性 抗體藥物之安定性,並強化藥物在腫瘤部位堆積的特異 性以及降低藥物在重要器官的累積情形,我們預計將原 先的 CHI3L1 抗體藥物以鎦-177 標誌後加以優化,這些 經過修飾後的特異性 CHI3L1 抗體藥物,再經由相關實 驗後找出何種最適合在生物體內進行卵巢癌診斷造影, 同時也評估腫瘤治療效果。以本計畫所發展的鎦-177 標 誌特異性 CHI3L1 修飾抗體,將有助於提供未來卵巢癌 精準醫療突破性的發展。

**關鍵詞:**卵巢癌診斷與治療、鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗體、同位素應用。

#### Abstract

According to the cancer registration reports of the Health Promotion Administration, Ministry of Health and Welfare, the incidence of epithelial ovarian cancer increases in recent years and the mortality rate is highest in all gynecologic malignancies in Taiwan. The majority of the patients are diagnosed at advanced stage due to lack of effective diagnostic tools. It is the potential strategy of precision medicine to develop the therapeutic drugs of epithelial ovarian cancer and the companion diagnostic tools which will select the target population correctively to manage the malignant tumors specifically.

CHI3L1 is located on chromosome 1q32.1, and associated with chronic inflammation, tissue remodeling and formation of solid tumors. Our previous studies showed the epithelial ovarian cancer patients with high CHI3L1 expression had a poor prognosis, and CHI3L1 promotes chemoresistance via inhibition of drug-induced apoptosis by up-regulating Mcl-1. CHI3L1 induces both the Akt and Erk signaling pathways, through the expression of  $\beta$ catenin followed by SOX2, to promote the properties of ovarian cancer stem-like cells. It shows that CHI3L1 plays an important role in the tumorigenesis of the epithelial ovarian cancer.

We developed several specific In-111 labeled CHI3L1 antibodies in our previous project. We found that higher accumulated dosage of In-111 labeled CHI3L1 antibodies in the ovarian cancer cell xenografts of the mice which provided the basis of further research. However, the stability of these In-111 labeled CHI3L1 antibodies in the serum was not good enough. Besides, the biodistribution experiments showed the accumulation of In-111 labeled CHI3L1 antibodies in spleen, kidney and liver of the mice. In this proposal, we developed and modified Lu-177 labeled CHI3L1 antibodies to optimize these antibodies for higher stability in serum and accumulation in tumor. We evaluated the feasibility of Lu-177 labeled CHI3L1 modified antibodies for diagnosis and treatment for epithelial ovarian cancer. The Lu-177 labeled CHI3L1 modified antibodies in the proposal offered a breakthrough development in precision medicine of epithelial ovarian cancer.

**Keywords:** Diagnosis and treatment of epithelial ovarian cancer, Lu-177 labeled *CHI3L1* modified antibodies, Isotope application.

#### I. 前言

在婦癌的領域中,卵巢癌逐漸成為一個愈來愈重要的疾病[1,2]。由於缺乏有效且精確的影像學診斷工具, 超過百分之七十的卵巢癌病人在確診時已是晚期[3-5]。 因此發展出卵巢癌早期診斷的篩檢方式,並特異性的針 對腫瘤進行治療將會是非常有潛力的嶄新腫瘤診療策 略。Chitinase-3-like protein (*CHI3L1*)基因功能在於參與

細胞增生分化、細胞凋亡、血管新生、發炎及組織重塑性的過程[6]。我們先前的研究發現 CHI3L1 可以做為卵 巢癌患者的臨床預後指標, CHI3L1 高度表現者會有較 差的預後, CHI3L1 會促進 Mcl-1 蛋白表現,使卵巢癌 細胞對紫杉醇有抗藥性[7]。CHI3L1 也能透過調控 Akt 與 Erk 訊息傳遞路徑活化促進 β-catenin 與 SOX2 蛋白 表現,使卵巢癌細胞具有癌症幹細胞的特性[8]。由此可 見, CHI3L1 在卵巢癌扮演相當重要的角色。

我們在先前的計畫(109-2623-E-002-004-NU)中建 立了數種銦-111 標誌特異性 CHI3L1 抗體藥物,初步發 現這些藥物在小鼠動物的卵巢癌細胞腫瘤部位有較高 的累積劑量,提供了研究模式的基礎,然而這些經過銦 -111 標誌後腫瘤特異性抗體藥物也顯示出在血清中穩 定度不足的問題。此外在生物分布試驗中也顯示藥物在 脾臟、腎、肝臟等重要器官都有聚積的現象。在本年度 的計畫中,為提升本腫瘤特異性抗體藥物之安定性,並 強化藥物在腫瘤部位堆積的特異性以及降低藥物在重 要器官的累積情形,我們預計將原先的 CHI3L1 抗體藥 物以鎦-177 標誌後加以優化,這些經過修飾後的特異性 CHI3L1 抗體藥物,再經由相關實驗後找出何種最適合 在生物體內進行卵巢癌診斷造影,同時也評估腫瘤治療 效果。本計畫所發展的鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾 抗體將能藉由影像學的分析,評估應用在卵巢癌功能性 診斷的可行性與腫瘤治療的適用性,有助於發展以 CHI3L1 為治療標的之策略,有機會實際應用在腫瘤病 患的治療。

#### II. 主要內容

(一)研究目的:測試 CHI3L1 抗體經放射性同位素a-177 標誌後,進行藥物穩定度試驗,並使用疾病鼠 動物模式,注射鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗 體後進行實驗,包含 NanoSPECT/CT 生物造影實 驗及觀察小鼠腫瘤大小變化。

#### (二) 實驗設計

- 1. 穩定度試驗:
  - (1)將標幟樣本與人類血漿以體積比1:19的比例 混合,置於37℃培養箱反應,於1、4、24、48 小時分別取出過濾,再以Radio-TLC分析藥物 穩定度。
  - (2) 分別將C24、C41及p-SCN-Bn-DTPA加入0.1M carbonate-Bicarbonate buffer 中混和均匀,再使 用 HCl 或 NaOH 將 pH 調整至 8.4 左右,放置 於 37℃ 環境下持續震盪 3 小時,使用 50 kDa 之蛋白過濾器離心 14000 ×g 10 分鐘,將離心 下來之液體倒掉後,將純水加入離心管後再次 離心,此步驟重複三次,最後將留在濃縮管內 之液體吸出,並使用適量純水沖洗濃縮管,將 回收之產物使用 BCA 定量,接著再進行質譜 分析。
  - (3)將接合好之DTPA-C24及DTPA-C41加入適量 之177LuCl3反應,將反應完產物使用 Radio-TLC 分析純度,如純度>90%即可進行後續試 驗。如純度低於90%則使用 50 kDa 之蛋白過 濾器進行純化,純化後使用 Radio-TLC 分析成

品純度達90%則可進行後續實驗。

- (4) 標幟效率以放射線薄層色層分析儀(Radio-Thin Layer Chromatography, Radio-TLC, System 200 Imaging Scanner, Bioscan, U.S.A)分析,展 開液使用 0.1 M ammonium acetate, 100 mM EDTA,展開濾紙是 ITLC/SG (instant thin-layer chromatography/silica-gel, Gelman Sciences, Ann Arbor, MI, USA)。接合好之 Lu-177-DTPA-C24 或 Lu-177-DTPA-C41 會留在原點,而未 標上的 Lu-177 位於展開液前端。
- 2. 動物實驗
  - (1)疾病鼠動物模式是將 CA5171 或 ES2 卵巢癌細胞接種在 BALB/c mice 實驗小鼠右後肢,待腫瘤成長至 200-500 mm3 後進行造影試驗。
  - (2)進行 SPECT/CT 造影時,以鎦-177 進行標誌蛋 白質藥物,給藥途徑為尾靜脈注射,投與劑量 為每隻小鼠為藥物比活度 4~8 μCi/μg,每隻動 物給予 0.1-2 mg/kg.之鎦-177 標幟之 mAbs 藥 物,單一劑量給予。於 1、4、24、48 小時進行 SPECT/CT 生物造影實驗,分析試驗物質在不 同器官與組織中的分布情形,及試驗物質隨時 間而產生的變化。
  - (3) 定期測量腫瘤大小,評估鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗體對腫瘤的治療效果。
- 3. 統計分析:

使用 SPSS 16.0 (SPSS Inc., Chicago, IL, USA) 軟體, Student's t test 或 One-way analysis of variance (ANOVA) 用來檢定連續變數, Fisher's exact test 用來檢定類別變數,數值以平均值 <u>+</u> 標 準誤差來呈現,而p值<0.05 則認為有統計學上的 意義。

## III. 結果與討論

#### (一) 鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗體的穩定性

- 以 Radio-TLC 分析鎦-177 標幟抗體藥物,包括 Lu 177-Ab1(C24)及 Lu 177-Ab2(C41)。Lu-177-Ab 之標誌效率僅4成,經 Vivaspin 離心純化可 提高放化純度,但總活度會下降。
  - (1) 藥物的純度經過 Vivaspin 離心純化後, Lu 177-Ab1 從 45.3%, 71.5% (1 次 Vivaspin 離心純化), 88.2% (2 次 Vivaspin 離心純化), 87.3% (3 次 Vivaspin 離心純化)至 92.0% (4 次 Vivaspin 離心 純化)。Lu 177- Ab2 從 46.2%, 63.4% (1 次 Vivaspin 離心純化), 82.2% (2 次 Vivaspin 離心 純化), 91.2% (3 次 Vivaspin 離心純化)至 93.4% (4 次 Vivaspin 離心純化)。
  - (2)總活度經過 Vivaspin 離心純化後, Lu 177-Ab1 從 1260 μCi,836 μCi (1 次 Vivaspin 離心純化), 578 μCi (2 次 Vivaspin 離心純化),452 μCi (3 次 Vivaspin 離心純化)至 342 μCi (4 次 Vivaspin 離 心純化)。Lu 177-Ab2 從 1186 μCi,796 μCi (1 次 Vivaspin 離心純化),580 μCi (2 次 Vivaspin 離心純化),481 μCi (3 次 Vivaspin 離心純化)至 353 μCi (4 次 Vivaspin 離心純化)。

- (3)經4次離心純化,其放射化學純度可達90%以 上,最後Lu-177-Ab1,Ab2總活度約3.4mCi/vial, 此標幟之藥物進行後續實驗。
- 藥物穩定度試驗: Lu-177 標誌抗體在 4℃ 以及 37℃ 血清安定性至 144 小時皆呈現穩定狀態 (>90%)。
  - (1) Lu 177- Ab1 在 4°C 的藥物穩定度,從 98.2%
    (24 小時),100% (48 小時),95.2% (72 小時)至 96.1% (144 小時)。
  - (2) Lu 177- Ab2 在 4°C 的藥物穩定度,從 95.0%
    (24 小時),94.2% (48 小時),92.6% (72 小時)至 93.0% (144 小時)。
  - (3) Lu 177- Ab1 在 37℃ 血清的藥物穩定度,從 94.2% (24 小時),92.4% (48 小時),92.1% (72 小時)至 91.1% (144 小時)。
  - (4) Lu 177- Ab2 在 37°C 血清的藥物穩定度,從 97.2% (24 小時),94.1% (48 小時),95.4% (72 小時)至 93.8% (144 小時)。

## (二) 鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗體的動物實驗

- 1. NanoSPECT/CT 生物造影實驗
  - 試驗給藥劑量為1mg/kg,其活度約為Lu-177-DTPA (400 uCi), Lu-177-DTPA-Ab1 (400 or 800 uCi)及Lu-177-DTPA-Ab2 (400 or 800 uCi), 在給藥後第1、24、48小時進行腫瘤模式小鼠 NanoSPECT/CT造影。
  - (2)不同時間點的 NanoSPECT 及 CT 融合圖顯示 主要聚積在腹腔內部分臟器以及腫瘤的位置, 腫瘤部位的訊號隨時間增加,在注射後 48 小時 後訊號仍非常明顯。
- 2. 小鼠腫瘤大小變化
- (1) 在治療 14 天後, CA5171 腫瘤模式小鼠的各組 腫瘤大小分別為: PBS 為 1804.1±318.7 mm3, Lu-177-DTPA(200μCi)為 2489.4±285.7 mm3, Lu-177-DTPA-Ab1(600 uCi)為 645.2±68.6 mm3 和 Lu-177-DTPA-Ab2(600μCi)為 524.4±44.5 mm3 (p <0.01, one-way ANOVA)。</li>
- (2) 在治療 17 天後, CA5171 腫瘤模式小鼠的各組 腫瘤大小分別為: PBS 為 2862.9±377.8 mm3, Lu-177-DTPA(200µCi)為 3176.5±553.5 mm3, Lu-177-DTPA-Ab1(200µCi)為 1528.1±369.5 mm3 和 Lu-177-DTPA-Ab2(200µCi)的 1247.6±120.8 mm3(p=0.01, one-way ANOVA)。
- (3) 在治療9天後,ES2 腫瘤模式小鼠的各組腫瘤 大小分別為:PBS為2553.5±286.2 mm3,Lu-177-DTPA(400µCi)為1770.8±432.2 mm3,Lu-177-DTPA-Ab1(800µCi)為442.4±44.2 mm3和 Lu-177-DTPA-Ab2(800µCi)為372.4±189.4 mm3。(p=0.02, one-way ANOVA)。
- (4) 在治療 12 天後,各組腫瘤大小分別為:PBS為 3353.3±319.1 mm3,Lu-177-DTPA(400 uCi)為 2501.5±448.7 mm3,Lu-177-DTPA-Ab1(400 uCi)為 1726.8±495.4 mm3,Lu-177-DTPA-Ab2(400 uCi)為779.6±174.6 mm3(p = 0.03, one-way ANOVA)。

(5)在 CA5171 及 ES2 卵巢癌小鼠模式以尾靜脈給 藥後,結果顯示鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修 飾抗體具有抑制腫瘤生長的治療效果。

#### (三) 討論

我們開發了以 DTPA 為螯合劑的放射性藥物 CHI3L1 抗體,以提高其穩定性和效率。為了提高治療 效率,我們進一步將抗體與螯合劑偶聯,然後進行放射 性核素標記以生成放射性藥物。Lu-177-DTPA-CHI3L1 放射性藥物抗體,在卵巢癌動物模式中具有有效的治療 反應。不僅可引導放射性藥物到達靶位抑制腫瘤生長, 而且通過局部近距離放射治療破壞腫瘤。在我們的研究 中,200 至 800μCi 不同劑量的 Lu-177 標記 CHI3L1 抗 體在卵巢癌小鼠中均具有抗腫瘤活性。然而,放射性藥 物的最佳劑量需要進一步研究。

#### IV. 結論

放射性標記的 CHI3L1 抗體是卵巢癌的具潛力的放射性診斷與治療藥物。本計畫以鎦-177 標誌特異性 CHI3L1 修飾抗體進行相關實驗,研究結果顯示 Lu-177 標記 CHI3L1 抗體在卵巢癌小鼠中均具有抗腫瘤活性, 本數據可提供一個具有價值之研究模式,將來有機會應 用在卵巢癌的診治。

#### 参考文獻

- 衛生福利部國民健康署癌症登記年度報告. http://www.hpa.gov.tw/Bhpnet/Web/Stat/Statistics. aspx.
- [2] Chiang YC, Chen CA, Chiang CJ, Hsu TH, Lin MC, You SL, et al. Trends in incidence and survival outcome of epithelial ovarian cancer: 30-year national population-based registry in Taiwan. J Gynecol Oncol. 2013;24(4):342-51.
- [3] Goff BA, Mandel LS, Melancon CH, Muntz HG. Frequency of symptoms of ovarian cancer in women presenting to primary care clinics. Jama. 2004;291(22):2705-12.
- [4] Coleman RL, Monk BJ, Sood AK, Herzog TJ. Latest research and treatment of advanced-stage epithelial ovarian cancer. Nature reviews Clinical oncology. 2013;10(4):211-24.
- [5] Banerjee S, Kaye SB. New strategies in the treatment of ovarian cancer: current clinical perspectives and future potential. Clin Cancer Res. 2013;19(5):961-8.
- [6] Kzhyshkowska J, Yin S, Liu T, Riabov V, Mitrofanova I. Role of chitinase-like proteins in cancer. Biol Chem. 2016 Mar;397(3):231-47.
- [7] Chiang YC, Lin HW, Chang CF, Chang MC, Fu CF, Chen TC, et al. Overexpression of CHI3L1 is associated with chemoresistance and poor outcome of epithelial ovarian carcinoma. Oncotarget. 2015;6(37):39740-55.
- [8] Lin HW, Chiang YC, Sun NY, Chen YL, Chang CF, Tai YJ, et al. CHI3L1 results in poor outcome of ovarian cancer by promoting properties of stem-like cells. Endocrine-related cancer. 2019;26(1):73-88.

# 利用影像生物指標區辨路易氏體失智症前驅期與老年重度憂鬱症症(第二年) Application of imaging biomarkers in identifying prodromal dementia with Lewy bodies in late-life depression

計畫編號:111-2623-E-075-001-NU 計畫主持人:周元華 e-mail:c520608@ms64.hinet.net 計畫共同主持人:楊凱鈞、劉慕恩、楊邦宏 計畫參與人員:謝文琦 執行單位:臺北榮民總醫院品質管理中心

#### 摘要

失智症是重要的公共衛生議題,需要及早辨識與介入。在部份未有失智臨床表現的老年憂鬱症個案,已能 偵測到失智相關之病理變化。雖然這些研究以阿茲海默 症為主,但路易氏體失智症與老年憂鬱症之關係較阿茲 海默症更為密切;因此老年憂鬱症個案也是研究路易氏 體失智症前驅期的重要對象。

多巴胺轉運器與 I-123-MIBG 心臟造影是診斷路易 氏體失智症的兩個主要生物標記。兩種工具併用,可以 提升診斷路易氏體失智症的能力;但也會增加受試者的 負擔。若使用 Tc-99m-TRODAT 進行多巴胺轉運器造影, 因為不同核種間能窗的差異 (Tc-99m: 140 keV 與 I-123: 159 keV);理論上可進行兩者的同日造影。但傳統 SPECT 機器之能窗解析度約 9%,無法避免兩核種間互 相干擾。採用 CZT 的新型 SPECT 機器,除了有較高的 影像解析度與偵測零敏度;其能窗解析度也為傳統機器 的 2 倍,更適合進行 Tc-99m-TRODAT 與 I-123-MIBG 的同日雙核種造影來促進其臨床應用。目前尚未有相關 臨床研究。

本研究在第一年因為供藥困難,僅進行 1231 假體 造影的研究,結果顯示使用此造影參數;影像解析度可 達到 10mm 以下。在第二年進行 I-123 與 Tc-99m 同時 造影之假體造影時,發現雖然 I-123 的單獨假體造影可 得到良好的造影品質,但 I-123 與 Tc-99m 同時假體造 影之結果,會受到太多低能量散射之干擾;而有過多雜 訊。雖經過調整造影與影像重組參數,但尚未能有滿意 之結果。故我們暫緩在人體的同時造影,先進行單一核 種的個別造影;共收案 8 位重度憂鬱症患者。雖然初期 的人體造影也受到雜訊干擾,但經過校正後已經顯著改 善。我們可以運用 GE NM 870 CZT,取得良好的 I-123-MIBG 2D 影像。會以此為基礎,在確保同時造影之影 像品質後,完成收案與進行進一步的分析與探討;以達 成預定的研究目標。

**關鍵詞:**老年憂鬱症、路易氏體失智症、I-123-MIBG、 Tc-99m-TRODAT、雙核種、同日造影。

#### Abstract

Dementia is a critical public health concern that necessitates early identification and intervention. In some patients with late-life depression (LLD), dementia-related pathology may be present. Although current research on LLD's dementia pathology primarily focuses on Alzheimer's disease (AD), dementia with Lewy bodies (DLB), the second most prevalent neurodegenerative dementia, is more closely related to depression than AD. Therefore, investigating DLB pathology in LLD is also crucial.

Dopamine transporter (DAT) and 123I-MIBG myocardial scintigraphy are the two primary biomarkers for identifying DLB. Although combining DAT and 123I-MIBG imaging can enhance the accuracy of DLB diagnosis, the two-day imaging process increases patient burden. It is theoretically possible to obtain Tc-99m-TRODAT for DAT imaging and 123I-MIBG data in a one-day protocol by utilizing the different energy windows of these two isotopes (Tc-99m: 140 keV and I-123: 159 keV). However, the limited resolution of the conventional SPECT camera's energy window (approximately 9%) may not prevent cross-talk contamination between the two isotopes, limiting the application of dual-isotope SPECT imaging.

The newly developed SPECT camera, equipped with Cadmium-Zinc-Telluride (CZT) detectors, offers higher detector sensitivity, spatial resolution, and approximately two times the energy resolution of conventional SPECT cameras. These features make the CZT SPECT camera a promising tool for a one-day protocol of Tc-99m-TRODAT and 123I-MIBG imaging, but there are currently no related clinical studies.

In the first year of the study, technical issues prevented the use of 123I-MIBG, and the multi-modal imaging design made it impossible to initially obtain other imaging data. As a result, we conducted a phantom study with 123I alone, indicating that imaging parameters could achieve resolutions better than 10 mm. In the second year, simultaneous 123I and Tc-99m phantom imaging resulted in more artifacts than 123I imaging alone, which affected quantification results. Therefore, we decided to conduct only single isotope imaging studies on our subjects until relevant technical issues were resolved. The preliminary

results for the eight recruited LLD patients demonstrated the feasibility of 123I-MIBG imaging. After confirming simultaneous imaging quality through phantom studies, human studies will be conducted to achieve the study's objective.

**Keywords**: late-life depression, dementia with Lewy bodies, I-123-MIBG, Tc-99m-TRODAT, dual-isotope, one-day protocol

# I. 前言

失智症的照護與治療是重要的公共衛生議題。根據 The Global Burden of Disease Study 2016,失智症在全球 之盛行率為 1.7% (1)。在 2016年,全球有 4 千 4 百萬 人罹患失智症,其所造成的支出為 8180億美金。目前 失智症還缺乏有效的治療,因此疾病預防在降低失智症 的影響上很關鍵 (2-4)。老年憂鬱症 (late-life depression, LLD)會增加 4%之失智發生率,比許多心血管與代謝問 題之風險還高 (2)。有憂鬱症病史者,其發生失智症的 風險約是一般族群的 2 倍 (5,6)。所以在近幾年的失智 症防治策略,越來越強調憂鬱症的重要性 (3,4)。

憂鬱症可能是失智症的危險因子或前驅期 (prodrome)表現 (3, 4, 7)。研究顯示:每次重度憂鬱發作 會增加約14%之失智風險(8,9),LLD 導致失智的風險 較青壯年憂鬱症高 (10),而且較接近失智症診斷時的 憂鬱症其導致失智的風險比較高 (11)。也有許多研究支 持:部份 LLD 個案,已經有失智症相關的疾病變化 (4, 12, 13)。如 2014 年台灣本土的研究:具憂鬱症病史的 高龄個案,其腦部造影之類澱粉酶 (amyloid)增加 (14)。 目前相關研究,大多侷限於憂鬱症與最常見的失智症: 阿茲海默症 (Alzheimer's Disease, AD)之關係。路易氏 體失智症 (Dementia with Lewy bodies, DLB)是除了 AD 以外最常見的退化性失智症 (15), 而且 DLB 與憂鬱症 的關聯性,比 AD 還顯著:DLB 具憂鬱症病史之比率 是 AD 的 4 倍 (16),台灣本土的研究也報告 DLB 具憂 鬱症共病之比率是 AD 的 2 倍 (17)。約有 20%的 DLB 個案一開始被診斷為重度憂鬱症 (18)。

這些研究結果顯示:LLD和 DLB 的關係較 AD 更 為密切,部份 LLD 個案可能已經有 DLB 相關之病生理 變化 (15)。對 LLD 個案之 DLB 病生理研究,可協助進 一步了解憂鬱症與失智症之相互關係;評估及早辨識失 智症之可能性,也可協助發展更有效的治療方法。為了 能夠及早辨識 DLB 之病生理變化,需要改善目前偵測 工具之精確度;以及改善使用偵測工具相關之流程,讓 其在臨床上的應用更便利。

#### II. 主要內容

根據 2017 年第四版的 DLB 診斷標準, 有三個生物 指標:(1) 多巴胺轉運器 (dopamine transporter, DAT)下 降(2) I-123-MIBG 之心肌 閃 爍 圖 (myocardial scintigraphy) 吸收下降與(3) 多項睡眠生理檢查 (Polysomnography, PSG)確認有在快速動眼期睡眠時缺 乏肌肉抑制 (REM sleep without atonia)。

路易氏體病理會造成正腎上腺素交感神經系統結 後神經分布之異常。I-123-MIBG 是正腎上腺素的衍生 物,I-123-MIBG myocardial scintigraphy 已經被驗證可 以用來估計 myocardial 之交感神經系統分布之異常,故 此工具可以用來評估路易氏體病理 (19)。I-123-MIBG myocardial scintigraphy 除了在協助 DLB 的診斷上具高 sensitivity/specificity (0.77~0.98/0.94~0.97)外 (19, 20); 幾個追蹤 3 至 4 年的研究均顯示: 起始之 I-123-MIBG 數據對最後之診斷預測非常有效 (19, 21)。因此 I-123-MIBG myocardial scintigraphy 被認為在辨別 DLB 之早 期非常有幫助 (19, 21),也可以協助診斷前驅型 DLB (22)。

路易氏體病理所造成神經退化也會導致 nigrostriatal 多巴胺迴路之異常 (23),使用正子 (positron emission tomography)或單光子 (single photon emission computed tomography, SPECT)的 DAT 造影;可 以偵測相關的異常,也被驗證是 DLB 之生物指標 (24)。 值得注意的是:在 DLB 個案中,憂鬱之嚴重度和尾核 (caudate)之 DAT 有顯著負相關 (25)。此結果和過去對 DLB 與巴金森氏症的研究相符:憂鬱症嚴重度與 DAT 呈負相關 (26, 27)。故 DAT 在 DLB 相關之憂鬱情緒中 扮演重要角色。

對 DLB 的早期偵測,研究顯示:併用 DAT 與 I-123-MIBG 造影,能更有效地鑑別 DLB 與 AD;比任一 個單一影像工具好 (28)。但併用兩項工具,會需要至少 兩次的造影,造成受試者的負擔;特別是在高齡與神經 精神疾病的患者。在台灣我們是利用 Tc-99m-TRODAT 來進行多 DAT 造影,其和 I-123-MIBG 造影所需要的 能窗 (energy window)不同 (29),故有可能在同一天進 行兩項造影。但因為兩個核種的能窗 (Tc-99m: 140 keV 與 I-123: 159 keV)十分接近,所以傳統的 SPECT 機器 (能窗解析度約在 9%)無法避免 crosstalk 的干擾;是很 大的限制。

Cadmium-zinc-telluride (CZT)是新的 detectors 技術, 能顯著改善 SPECT 機器的能窗解析度(約2倍)、 detector 敏感度(Tc-99m:約4倍、I-123:約2倍)以及空 間解析度(約2倍)(30)。故採用 CZT 的 SPECT 機器, 更適合進行兩個不同核種的同時或同日造影(31,32)。 已經有研究驗證:採用 CZT 的 SPECT 機器,進行 Tc-99m 與 I-123 兩類核種造影劑的同時造影,其品質和分 別造影類似(33-36)。但目前未有利用 CZT SPECT 機 器,進行 Tc-99m-TRODAT 與 I-123-MIBG 同日造影的 相關研究。

本研究之主要目的:納入未有失智之 LLD 患者, 評估其臨床表現;以及利用二項造影工具 (DAT 與 123I-MIBG)來評估其路易氏體病理之表現與影響。特 別是藉由新的 CZT SPECT 機器 (GE SPECT/CT 870CZT WB),發展適合同日進行二項造影的造影方法。 並評估是否能利用這些資訊,建立有效的模型來及早辨 識 DLB 個案。

I-123-MIBG 之造影方式:(1) 每位受試者注射 3mCi=111MBqI-123 MIBG;(2)在注射I-123 MIBG 後, 分別在第15分鐘及4小時各造影一次;(3)每次收集10 分鐘的平面影像 (研究方法細節請洽主持人確認)。

## III. 結果與討論

我們首先使用如下之 The NEMA IEC phantom 進行 I-123 假體造影。將 I-123 藥物 10mCi 活度,注射到假 體內使背景活度為 5.3 kBq/cc;另外六個造影區域之活 度為背景值的四倍以上 (0.00056 mCi/ml)。



影像經過 CT 衰減校正 後,如左之影像軸狀圖。 結果顯示:其影像解析 度可達到 10mm 以下。 相關數值已經呈現在第 一年之報告中。

我們也使用 2D 假體,進行 I-123 與 Tc-99m 同時造 影評估 (研究方法細節請聯繫主持人);其結果如下圖:



# I-123 Only



#### I-123+Tc-99m Dual source

比較 I-123 only 與 I-123+Tc-99m Dual source 之結果發現:單獨使用 I-123 能窗造影的影像品質較佳。使用雙種射源的影像,影像品質較差;有許多顆粒化之影像,可能是因為太多低能量散射所造成。此推測是來自:因為器官的部分都在 AP 位置,活性高,散射線也多,後位相(PA)器官少,活性低一點,相對雜訊少。比較圈選區域的活性比值可以看到:單獨照射的數值較高。由於

此假體實驗顯示:目前的設定還無法適當的進行同時造 影。雖然經過幾次與原廠討論,希望能改善造影與影像 重建時之設定;但因為牽涉的技術問題比較複雜,目前 尚在確認適合的解決方案。

本研究在這一年內共納入 8 位重度憂鬱症受試者 (男 2/女 6),其平均年齡為 68.5±7.3 歲。如在第一年之 報告所述:在開始進行 LLD 個案之 MIBG 造影後,我 們曾發現有雜訊光點之問題;經過 GE 原廠使用 30mCi 平面均勻射源進行各個 Pixel 訊號均勻度校正後,之後 即可以正常取像如下圖。相關分析結果如下表。





個案	年齡	Н	М	HMR (早)	Н	М	HMR (晚)	WR (HMR)	WR (BC: -)	WR (BC: +)
1	73	92.6	46.8	1.98	47.5	27.8	1.71	13.6	37.6	47.7
2	84	60.0	42.1	1.43	37.2	27.4	1.35	5.1	24.7	34.2
3	70	114.2	48.9	2.34	77.9	31.0	2.51	-7.4	17.1	12.8
4	64	45.9	36.1	1.27	25.2	23.0	1.10	13.8	33.3	72.7
5	62	96.0	56.2	1.71	55.0	33.7	1.63	4.4	30.4	35.0
6	67	95.4	46.0	2.08	62.4	30.0	2.08	-0.3	21.3	21.1
7	65	77.9	44.9	1.74	62.1	31.2	1.99	-14.6	3.9	-12.8
8	63	133.5	73.5	1.82	103.7	56.4	1.84	-1.3	5.8	4.3

Abbreviations: H: heart ROI mean counts, M: midiastinum ROI mean counts, HMR: H/M ratio, WR: washout rates (%), BC: background correction

#### IV. 結論

本研究之初步結果顯示:我們可以運用 GE NM 870 CZT。取得良好的個別 I-123-MIBG 2D planar 與 Tc-99m-TRODAT 影像。但兩類核種同時造影的假體研究研究 顯示:使用雙種射源的影像,影像品質較差;也有許多 顆粒化之影像,可能是因為太多低能量散射所造成。因 此我們決定先不進行在人體的同時造影;希望先能利用 改變造影或影像重組參數或方法,確保造影品質。但因 牽涉的技術問題比較複雜,目前尚未確認適合的解決方 案。在確認能夠順利進行同時兩類核種的新假體造影後, 我們會開始進行臨床同日雙核種造影,並加速收案。在 有足夠的個案數之後,才能進一步確認影像分析的結果。 也才能以此為基礎:進行與臨床資訊的整合,以及判讀 可能的臨床意義。

#### 参考文獻

- E. Nichols *et al.*, Global, regional, and national burden of Alzheimer's disease and other dementias, 1990-2016: a systematic analysis for the Global Burden of Disease Study 2016. *Lancet Neurol* 18, 88-106 (2019).
- [2] G. Livingston *et al.*, Dementia prevention, intervention, and care. *The Lancet* 390, 2673-2734 (2017).
- [3] E. J. Lenze, A. N. Voineskos, M. A. Butters, J. F. Karp, Stopping Cognitive Decline in Patients With Late-Life Depression: A New Front in the Fight Against Dementia. *Am J Geriatr Psychiatry* 26, 828-834 (2018).
- [4] F. S. Dafsari, F. Jessen, Depression—an underrecognized target for prevention of dementia in Alzheimer's disease. *Transl Psychiatry* 10, 160 (2020).
- [5] B. S. Diniz, M. A. Butters, S. M. Albert, M. A. Dew, C. F. Reynolds, Late-life depression and risk of vascular dementia and Alzheimer's disease: systematic review and meta-analysis of communitybased cohort studies. *Br J Psychiatry* 202, 329-335 (2013).
- [6] R. L. Ownby, E. Crocco, A. Acevedo, V. John, D. Loewenstein, Depression and Risk for Alzheimer Disease: Systematic Review, Meta-analysis, and Metaregression Analysis. Arch Gen Psychiatry 63, 530-538 (2006).
- [7] T. Leyhe *et al.*, A common challenge in older adults: Classification, overlap, and therapy of depression and dementia. *Alzheimers Dement* 13, 59-71 (2017).
- [8] L. V. Kessing, P. K. Andersen, Does the risk of developing dementia increase with the number of episodes in patients with depressive disorder and in patients with bipolar disorder? *J Neurol Neurosurg Psychiatry* 75, 1662-1666 (2004).
- [9] V. M. Dotson, M. A. Beydoun, A. B. Zonderman, Recurrent depressive symptoms and the incidence of dementia and mild cognitive impairment. *Neurology* 75, 27-34 (2010).
- [10] D. E. Barnes *et al.*, Midlife vs Late-Life Depressive Symptoms and Risk of Dementia: Differential Effects for Alzheimer Disease and Vascular Dementia. *Arch Gen Psychiatry* 69, 493-498 (2012).
- [11] R. C. Green *et al.*, Depression as a Risk Factor for Alzheimer Disease: The MIRAGE Study. *Arch Neurol* 60, 753-759 (2003).
- [12] K. D. Harrington, Y. Y. Lim, E. Gould, P. Maruff, Amyloid-beta and depression in healthy older adults: A systematic review. *Aust N Z J Psychiatry* 49, 36-46 (2015).
- [13] K. K. F. d. Nascimento, K. P. Silva, L. F. Malloy-Diniz, M. A. Butters, B. S. Diniz, Plasma and cerebrospinal fluid amyloid-β levels in late-life depression: A systematic review and meta-analysis. *J Psychiatr Res* 69, 35-41 (2015).
- [14] K.-Y. Wu *et al.*, Increased brain amyloid deposition in patients with a lifetime history of major depression: evidenced on 18F-florbetapir

(AV-45/Amyvid) positron emission tomography. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 41, 714-722 (2014).

- [15] H. Fujishiro, Late-Life Depression and Lewy Body Disease. *Am J Geriatr Psychiatry* 27, 287-289 (2019).
- [16] B. P. Boot *et al.*, Risk factors for dementia with Lewy bodies. *A case-control study* 81, 833-840 (2013).
- [17] P.-Y. Chiu *et al.*, Depression in dementia with Lewy bodies: A comparison with Alzheimer's disease. *PLoS One* 12, e0179399 (2017).
- [18] J. E. Galvin *et al.*, Lewy body dementia: The caregiver experience of clinical care. *Parkinsonism Relat Disord* 16, 388-392 (2010).
- [19] J. Komatsu *et al.*, 123I-MIBG myocardial scintigraphy for the diagnosis of DLB: a multicentre 3-year follow-up study. *J Neurol Neurosurg Psychiatry* 89, 1167-1173 (2018).
- G. Treglia, E. Cason, Diagnostic Performance of Myocardial Innervation Imaging Using MIBG Scintigraphy in Differential Diagnosis between Dementia with Lewy Bodies and Other Dementias: A Systematic Review and a Meta-Analysis. J Neuroimaging 22, 111-117 (2012).
- [21] M. Estorch *et al.*, Cardiac 123Imetaiodobenzylguanidine imaging allows early identification of dementia with Lewy bodies during life. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 35, 1636 (2008).
- [22] I. G. McKeith *et al.*, Research criteria for the diagnosis of prodromal dementia with Lewy bodies. *Neurology* 94, 743-755 (2020).
- [23] L. Patterson, S. P. Rushton, J. Attems, A. J. Thomas, C. M. Morris, Degeneration of dopaminergic circuitry influences depressive symptoms in Lewy body disorders. *Brain Pathol* 29, 544-557 (2019).
- [24] I. G. McKeith *et al.*, Diagnosis and management of dementia with Lewy bodies: Fourth consensus report of the DLB Consortium. *Neurology* 89, 88-100 (2017).
- [25] F. Roselli *et al.*, Severity of neuropsychiatric symptoms and dopamine transporter levels in dementia with Lewy bodies: A 123I-FP-CIT SPECT study. *Mov Disord* 24, 2097-2103 (2009).
- [26] D. Weintraub *et al.*, Striatal Dopamine Transporter Imaging Correlates with Anxiety and Depression Symptoms in Parkinson's Disease. *J Nucl Med* 46, 227-232 (2005).
- [27] C. Vriend *et al.*, Depressive symptoms in Parkinson's disease are related to reduced [<sup>123</sup>I]FP-CIT binding in the caudate nucleus. *J Neurol Neurosurg Psychiatry* 85, 159-164 (2014).
- [28] S. Shimizu *et al.*, Utility of the combination of DAT SPECT and MIBG myocardial scintigraphy in differentiating dementia with Lewy bodies from Alzheimer's disease. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 43, 184-192 (2016).
- [29] T. J. Biggans, Same day cerebral perfusion and dopamine transporter imaging for differential diagnosis of cerebral impairment. *Med Eng Phys*

64, 56-64 (2019).

- [30] T. Niimi, M. Nanasato, M. Sugimoto, H. Maeda, Evaluation of Cadmium-Zinc-Telluride Detectorbased Single-Photon Emission Computed Tomography for Nuclear Cardiology: a Comparison with Conventional Anger Single-Photon Emission Computed Tomography. *Nucl Med Mol Imaging* 51, 331-337 (2017).
- [31] P. J. Slomka, R. J. H. Miller, L.-H. Hu, G. Germano, D. S. Berman, Solid-State Detector SPECT Myocardial Perfusion Imaging. J Nucl Med 60, 1194-1204 (2019).
- [32] C. Nappi, V. Gaudieri, M. Petretta, Simultaneous dual-tracer 99mTc-tetrofosmin and 123I-BMIPP acquisition with CZT for ischemic memory: The future approaches to image the past. *J Nucl Cardiol* 28, 196-198 (2021).
- [33] T. Blaire *et al.*, Determination of the Heart-to-Mediastinum Ratio of 123I-MIBG Uptake Using Dual-Isotope (123I-MIBG/99mTc-Tetrofosmin) Multipinhole Cadmium-Zinc-Telluride SPECT in Patients with Heart Failure. *J Nucl Med* 59, 251-258 (2018).
- [34] D. Bellevre *et al.*, First determination of the heart-to-mediastinum ratio using cardiac dual isotope (123I-MIBG/99mTc-tetrofosmin) CZT imaging in patients with heart failure: the ADRECARD study. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 42, 1912-1919 (2015).
- [35] Y. Yamada *et al.*, Feasibility of simultaneous 99mTc-tetrofosmin and 123I-BMIPP dual-tracer imaging with cadmium-zinc-telluride detectors in patients undergoing primary coronary intervention for acute myocardial infarction. *J Nucl Cardiol* 28, 187-195 (2021).
- [36] Y. Yamada *et al.*, Shortened acquisition time in simultaneous 99mTc-tetrofosmin and 123I-βmethyl-p-iodophenyl pentadecanoic acid dualtracer imaging with cadmium-zinc-telluride detectors in patients undergoing primary coronary intervention for acute myocardial infarction. *Nucl Med Commun* 40, 1130-1137 (2019).

# 標靶 α-突觸核蛋白的正子斷層造影藥物開發 Developing a PET imaging agent targeting α-synuclein

計畫編號:MOST 111-2623-E-016-001-NU 計畫主持人:馬國興教授 e-mail:kuohsing91@yahoo.com.tw 計畫共同主持人:鄭澄意教授 計畫參與人員:楊承勳講師、王秀伃研究助理、李紜漪研究生 執行單位:國防醫學院生物及解剖學研究所

#### 摘要

巴金森氏症是一種神經退化性疾病,其特徵是黑質 紋體路徑的多巴胺神經元退化,以及大腦神經元異常推 積 α-突觸核蛋白形成路易氏體與路易氏神經突,進而引 發運動障礙。病理性的 α-突觸核蛋白堆積於嗅球是早期 巴金森氏症的重要指標,隨著病程演進而擴散至其他腦 區域。目前尚缺乏有效標靶 α-突觸核蛋白堆積的正子斷 層造影藥物可供精準診斷巴金森氏症。本研究團隊最近 研發一種正子斷層造影藥物[18F]α-syn-3,初步研究結 果顯示此放射性藥物對於 α-突觸核蛋白的結合親和度 遠大於 Tau 蛋白與 Aβ 蛋白。本計畫將進一步評估 [18F]α-syn-3 在齧齒類與非人類靈長類巴金森氏症模式 的造影效性。本計畫為期三年,第一年將分別建立 MPTP 與魚藤酮誘發的巴金森氏症小鼠模式,並以放射 自顯影術與免疫組織化學法評估[18F]α-syn-3 對於這些 動物模式大腦的 α-突觸核蛋白的專一性與敏感性。第二 年將在 MPTP 與魚藤酮巴金森氏症小鼠模式分別進行 [18F]α-syn-3 、[18F]DOPA(多巴胺的類似物)、與 [18F]PE2I(結合於多巴胺轉運體) 搭配小動物正子斷層 造影研究,經由比對這些造影研究的結果,以評估 [18F]α-syn-3 在這些巴金森氏症小鼠模式的造影效性。 第三年將根據前兩年的研究結果,於 MPTP 與魚藤酮 選擇其中一種合適的神經毒素建立巴金森氏症獼猴模 式,並分別運用[18F]a-syn-3、[18F]DOPA、與[18F]PE2I 搭配正子斷層造影評估[18F]α-syn-3 在此動物模式的造 影效性。在完成上述研究後,實驗結果將有助於評估此 正子斷層造影藥物在臨床應用的可行性。

**關鍵詞:**巴金森氏症大鼠、異種移植、正子造影、史托 利細胞、免疫調控。

#### Abstract

Parkinson's disease (PD) is a neurodegenerative disease. The characteristics of PD include dopaminergic neuron loss in the nigra-striatal pathway and the formation of Lewy bodies and Lewy neurites due to abnormal aggregates of  $\alpha$ - synuclein in neurons, finally causing the movement disorder. The Lewy bodies and Lewy neurites are major hallmarks of PD which can be found in the olfactory bulb at early stages of PD, then appear in other brain regions at later stages. Currently, PET imaging agent targeting to  $\alpha$ -synuclein aggregates for precision diagnosis of PD remains lacking. We recently develop a new radiotracer [18F] $\alpha$ - syn-3. The pilot studies show that the  $[18F]\alpha$ -syn-3has a much higher binding affinity on  $\alpha$ synuclein, compared to on tau and AB proteins. In this three-year project, we will evaluate the imaging validity of [18F]a-syn-3 in the PD rodent and non-human primate model. In the first year, the MPTP- and rotenone-induced PD mouse model will be established, respectively. By using the autoradiography and immunohistochemistry, the specificity and sensitivity of  $[18F]\alpha$ -syn-3 on the  $\alpha$ synuclein aggregates in the brain of these mouse model will be investigated. In the second year, the respective studies of [18F]a-syn-3, [18F]DOPA(an analog of L-DOPA), and [18F]FE-PE2I(targeting to dopamine transporters) coupled with animal-positron emission tomography (animal-PET) will be performed in the MPTP- and rotenone-induced PD mouse model. The imaging validity of  $[18F]\alpha$ - syn-3 in these animal model could be evaluated by comparing the results of animal-PET studies mentioned above. In the third year, the neurotoxin will be determined according previous results of studies to establish the PD monkey model. The respective studies of [18F]a-syn-3, [18F]DOPA, and [18F]FE-PE2I coupled with PET will be performed in the PD monkey model to evaluate the imaging validity of [18F]a-syn-3 in PD monkey model. The results of these researches will be helpful to evaluate the clinical feasibility of [18F]α-syn-3 as a PET imaging agent.

**Keywords** : α-synuclein, Parkinson's Disease, Rotenone, Positron Emission Tomography.

#### I. 前言

此計畫為第一年計畫。本計畫將運用行為測試、正 子斷層造影以及免疫組織化學法評估標靶 α-突觸核蛋 白的正子斷層造影藥物對於診斷巴金森氏症的造影效 性。將以 rotenone (2.5 mg/kg/day)或 MPTP(46 mg/kg/day)做為神經毒素建立巴金森氏症小鼠模式,再 以滾輪運動測試 (rotarod test) 評估運動行為變化。先 前文獻顯示小鼠在施打 rotenone 四週後可發現大腦神 經元的 α-突觸核蛋白堆積現象(Dodiya, Forsyth et al. 2020);而 MPTP 誘導模式則在連續施打 14 天後出現 α-突觸核蛋白堆積(Gibrat, Saint-Pierre et al. 2009)。

#### II. 主要內容

(一) [18F] α-syn-3 之製備

將來自迴旋加速器之放射性氟 18 溶液通過 PSHCO3 分離管柱進行氟離子之分離,以內含 8 毫克 Kryptofix® 222 與6 毫克/毫升之碳酸鉀之 85%乙腈水 溶液通過分離管柱將氟離子沖出進入反應瓶中,以氮氣 /氦氣吹入並加熱反應瓶將瓶中之乙腈水溶液蒸乾,並 分次加入 0.5 毫升之乙腈溶液並蒸乾溶液,共三次。將 1.5 毫克之前驅物溶解於 0.2 毫升無水二甲基甲醯胺 並加入反應瓶中,於攝氏 95 度密閉反應 10 分鐘,經 冷卻至室溫後以1 毫升之乙腈溶液稀釋,並通過過濾 膜過濾後注入高效能液相層析儀中進行純化作業(沖提 液採用梯度濃度如下:0~5 分鐘採 50% 乙腈水溶液, 5~15 分鐘乙腈濃度由 50% 提升至 95%, 15~40 分鐘 維持 95% 乙腈水溶液, 40~50 分鐘乙腈濃度由 95% 逐 漸下降至 50%, 50~55 分鐘維持 50% 乙腈溶液)。收集 樣品波峰後,將收集液通過C18 純化管柱(事先以5 毫 升純酒精與5 毫升去離子水依序活化),並以去離子水 沖洗 C18 管柱,最終以純酒精將產物自 C18 管柱中沖 出並收集,最終溶於10%純酒精、40% PEG300 與50% 生理食鹽水之混合溶液中,並經由孔徑 0.22 微米之過 濾膜過濾後可得[18F]α-syn-3 注射液。

#### (二) 放射性藥物分析

- 薄層層析(NormalphaseThinLayerChromatography; NP-TLC)分析:將待測樣品以毛細管微量點到 NP-TLC 分析紙上,將分析紙置於內含適當展開液之 展開槽內進行展開作業,到達固定的展開高度後 取出分析紙並風乾,以放射薄層層析儀設備掃描, 即可確認待測樣品放射化學純度。
- 2. 高效能液相層析(HighperformanceLiquidChromatography; HPLC):將待測 樣品以沖提液溶解稀釋,注入高效能液相層析儀 系統,將沖提液帶入層析管柱內進行分離解析,樣 品依序通過紫外光陣列偵檢器與放射流式偵檢器, 分別偵測紫外光吸收訊號與輻射訊號,經分析後 可確認樣品之放射化學純度。
- 放射核種純度分析:將待測樣品以去離子水稀釋, 置入多頻道能譜分析儀中進行能譜分析,可確認 放射核種衰變過程釋放之粒子能量,進而分析其 放射核種純度。
- 放射性核種種類分析:將少量待測樣品置入活度 偵檢器(dosecalibrator)中,並於不同時間分別量測 同一待測樣品活度,依據公式計算可得其半衰期, 進而確認放射核種之種類。
- 該驗值分析:以酸驗試紙沾取代測樣品,將其成色 進行比對,可確認樣品之酸鹼程度。

#### (三) 巴金森氏症小鼠動物模式建立

使用出生後 8 週的雄性 C57BL/6J 品系小鼠(約 25g),購自台灣樂斯科,所有實驗程序皆依照國防醫學 院動物管理委員會所制訂之倫理規範下進行。

 Rotenone 誘導巴金森式症小鼠:方法參考文獻 (Miyazaki, Isooka et al. 2020),並根據過往研究經 驗做微調整。rotenone 以 2.5 mg/ml 的濃度溶於 DMSO, 連續皮下注射 28 天 (2.5 mg/kg/day), 並 定期觀察小鼠健康狀況。

 MPTP 誘導巴金森氏症小鼠:方法參考文獻(Gibrat, Saint-Pierre et al. 2009)做微調整。連續 14 天以皮 下注射 MPTP (46 mg/kg/day,溶於 0.9 % 生理食 鹽水),定期觀察小鼠健康狀況。

#### (四) 滾輪運動測試 (rotarod test)

以行為測試觀察 rotenone 或 MPTP 誘導巴金森症 小鼠的運動協調性與平衡性,在神經毒素注射前1週, 及注射後兩天、注射後第四周進行滾輪運動測試,實驗 方法參考文獻(Sun, Jia et al. 2020),實驗前先進行訓練, 確保小鼠能在滾輪機上保持穩定(固定轉速4 rpm,維 持一分鐘)。正式測試時,將小鼠放置於旋轉滾輪,設定 轉速12 rpm/min,時限 180秒,紀錄小鼠在滾輪上的 時間。

#### (五) 小動物正子斷層造影

小鼠以吸入式麻醉劑(2% isoflurane in oxygen)維持 麻醉狀態,再以尾靜脈分別注射正子斷層造影藥物 [18F]DOPA (0.6-0.7 mCi)、[18F]FE-PE2I (0.4-0.5 mCi) 及[18F]α-syn-3(約 0.3 mCi),並將小鼠固定於小動物正 子 斷 層 造 影 儀 (small animal-PET; BIOPET 105, BIOSCAN) 能窗設定為 250-700 keV,並以理想結合時 間進行靜態造影影像撷取。造影資料使用 3D-OSEM 重 組,利用 Amide 軟體分析,參考小鼠大腦解剖圖譜及 核磁共振影像圈選感興趣區域(region of interest)進行量 化。

#### (六) 免疫組織化學染色

小鼠以腹腔注射舒泰 50 (2 mg/100g) 深度麻醉,接 著以 4%三聚甲醛溶液(paraformaldehyde)進行灌流犠牲 手術,術後取腦脫水處理後做冷凍切片,擷取紋狀體及 黑質部腦區切片,厚度 30 μm。本計畫預計針對下列生 物標記(biomarker)進行免疫組織化學染色:酪氨酸羥化 酶 (TH)、多巴胺轉運體 (DAT)、α-突觸核蛋白 (αsynuclein)以及 ubiquitin(Fares, Jagannath et al. 2021),腦 切片浸泡不同的一級抗體,並於 4℃環境下作用 16 小 時,接著以 PBS 清洗後置入適當二級抗體於是溫下放 置 1 小時,可見光染色以 DAB 呈色。

#### III. 結果與討論

由於原本給藥模式無法成功建立魚藤酮誘導之小 鼠疾病模式,因此本團隊再次針對皮下給藥之溶劑配置 方式進行多次調整。經探討,原先使用皮下注射模式時, 死亡率之成因可能肇因於溶劑 DMSO 之毒性超過小鼠 可負荷之程度,而在使用純玉米油進行皮下給藥的模式, 則發現藥品存在溶解不完全之現象,經綜合前述兩項因 素,本團隊將皮下注射之溶劑配置調整為:先以少量 DMSO 將魚藤酮溶解後,再以以玉米油 (corn oil) 將此 溶液稀釋至 10%,將此溶液以皮下注射的方式對小鼠進 行給藥持續 28 天(每日劑量 2.5mg/kg 之魚藤酮)。於給 藥前一周(Pre)、開始給藥的第一(W1)、第二(W2)、第三 (W3)、第四周(W4)、結束給藥後一周(W5)進行滾輪運動 測試,並在結束給藥後進行[18F]PE21、[18F]DOPA、 [18F]□syn-3 的正子造影。經統計分析,在滾輪運動測 試,並無法觀察到給藥組和未給藥組在統計上的差異 (圖 A);正子造影方面因樣本數過小,暫無法進行統計 分析(圖 B、C);本團隊亦藉由[18F]□syn-3之動態造影 (dynamic)模式,得知其在小鼠體內最佳造影時間,約為 注射後 60-80 分鐘之區間(圖 D)。



圖 A 魚藤酮給藥前後的滾輪運動測試 將滾輪運動測試儀器設定為在 150 秒從 5rpm 上升到 50rpm 的速率進行測試,分別為藥前一周、開始給藥的 第一、第二、第三、第四周以及結束給藥後一周。經統 計,兩組間無顯著差異。





圖 B 完成給藥後之小鼠[18F]PE2I 正子影像與統計結 果

小鼠在給藥完成後以[18F]FEPE2I進行正子造影,並將 其紋狀體區域訊號以專一攝取率 (SUR)進行量化分析。 由於n值僅為2,尚無法判定統計差異。





圖 C 完成給藥後之小鼠[18F]DOPA 正子影像與統計結 果

小鼠在給藥完成後以[18F]DOPA 進行正子造影,並將其 紋狀體區域訊號以專一攝取率 (SUR)進行量化分析。 由於n值僅為2,尚無法判定統計差異。





圖 D 給藥 28 天後小鼠的[18F]αsyn-3 正子影像統計結 果

小鼠在給藥完成後以[18F]asyn-3 進行正子造影,以動 態造影模式進行 120 分鐘,並將其紋狀體區域訊號以專 一攝取率 (SUR)進行量化分析,以檢測藥物進入小鼠 體內的再平衡時間,以得到[18F]asyn-3 示蹤劑在 40-60 分鐘進行靜態造影為最佳時間。經分析結果,可得知 [18F]asyn-3 在小鼠體內最佳造影時間約在注射後 60-80 分鐘之區間。

#### IV. 結論

在此計畫中,本團隊以動態造影檢測[18F]αsyn-3示 蹤劑於小鼠體內之分布,得知其在小鼠體內最佳造影時 間約為注射後 60-80 分鐘之區間 (圖 D),在後續將採用 此區間段來進行靜態造影。另一方面,由於魚藤酮誘導 之小鼠疾病模式在前述多項測試中仍未建立成功(圖 E), 本團隊在後續的研究中將持續調整其實驗設計與參數, 預計將給藥時間自 28 天延長為 56 天,並在給藥 28 天 後及 56 天後進行正子造影,以期成功建立此疾病模式。



圖 E 此計畫中建立巴金森氏症小鼠模式之實驗設計修 正過程。



- Arnaoutoglou, N. A., J. T. O'Brien and B. R. Underwood (2019). "Dementia with Lewy bodies from scientific knowledge to clinical insights." Nat Rev Neurol 15(2): 103-112.
- [2] Bagchi, D. P., L. Yu, J. S. Perlmutter, J. Xu, R. H. Mach, Z. Tu and P. T. Kotzbauer (2013).
- [3] "Binding of the radioligand SIL23 to α-synuclein fibrils in Parkinson disease brain tissue establishes feasibility and screening approaches for developing a Parkinson disease imaging agent." PloS one 8(2): e55031.
- [4] Bang, J.-I., I. S. Jung, Y. S. Song, H. S. Park, B. S. Moon, B. C. Lee and S. E. Kim (2016). "PET imaging of dopamine transporters with [18F] FE-PE2I: Effects of anti-Parkinsonian drugs." Nuclear medicine and biology 43(2): 158-164.
- [5] Betarbet, R., T. B. Sherer, G. MacKenzie, M. Garcia-Osuna, A. V. Panov and J. T. Greenamyre (2000). "Chronic systemic pesticide exposure reproduces features of Parkinson's disease." Nature neuroscience 3(12): 1301-1306.
- [6] Blum, D., S. Torch, N. Lambeng, M.-F. Nissou, A.-L. Benabid, R. Sadoul and J.-M. Verna (2001). "Molecular pathways involved in the neurotoxicity of 6-OHDA, dopamine and MPTP: contribution to the apoptotic theory in Parkinson's disease." Progress in neurobiology 65(2): 135-172.
- [7] Bové, J. and C. Perier (2012). "Neurotoxin-based models of Parkinson's disease." Neuroscience 211: 51-76.
- [8] Burré, J., M. Sharma and T. C. Südhof (2018). "Cell biology and pathophysiology of α- synuclein." Cold Spring Harbor perspectives in medicine 8(3): a024091.
- [9] Chen, Y.-A., W.-S. Huang, Y.-S. Lin, C.-Y. Cheng, R.-S. Liu, S.-J. Wang, I.-H. Li, S.-Y. Huang, C.-Y. Shiue and C.-Y. Chen (2012). "Characterization of 4-[18F]-ADAM as an imaging agent for SERT in non-human primate brain using PET: a dynamic study." Nuclear medicine and biology 39(2): 279-285.

- [10] Decressac, M., B. Mattsson, M. Lundblad, P. Weikop and A. Björklund (2012). "Progressive neurodegenerative and behavioural changes induced by AAV-mediated overexpression of α-synuclein in midbrain dopamine neurons." Neurobiology of disease 45(3): 939-953.
- [11] Del Tredici, K. and H. Braak (2016). "Review: Sporadic Parkinson's disease: development and distribution of α-synuclein pathology." Neuropathology and Applied Neurobiology 42(1): 33-50.
- Dodiya, H. B., C. B. Forsyth, R. M. Voigt, P. A. Engen, J. Patel, M. Shaikh, S. J. Green, A. Naqib, A. Roy, J. H. Kordower, K. Pahan, K. M. Shannon and A. Keshavarzian (2020).
- [13] "Chronic stress-induced gut dysfunction exacerbates Parkinson's disease phenotype and pathology in a rotenone-induced mouse model of Parkinson's disease." Neurobiol Dis 135: 104352.
- [14]Dorsey, E. R., A. Elbaz, E. Nichols, F. Abd-Allah, A. Abdelalim, J. C. Adsuar, M. G. Ansha, C. Brayne, J.-Y. J. Choi, D. Collado-Mateo, N. Dahodwala, H. P. Do, D. Edessa, M. Endres, S.-M. Fereshtehnejad, K. J. Foreman, F. G. Gankpe, R. Gupta, G. J. Hankey, S. I. Hay, M. I. Hegazy, D. T. Hibstu, A. Kasaeian, Y. Khader, I. Khalil, Y.-H. Khang, Y. J. Kim, Y. Kokubo, G. Logroscino, J. Massano, N. Mohamed Ibrahim, M. A. Mohammed, A. Mohammadi, M. Moradi-Lakeh, M. Naghavi, B. T. Nguyen, Y. L. Nirayo, F. A. Ogbo, M. O. Owolabi, D. M. Pereira, M. J. Postma, M. Qorbani, M. A. Rahman, K. T. Roba, H. Safari, S. Safiri, M. Satpathy, M. Sawhney, A. Shafieesabet, M. S. Shiferaw, M. Smith, C. E. I. Szoeke, R. Tabarés-Seisdedos, N. T. Truong, K. N. Ukwaja, N. Venketasubramanian, S. Villafaina, K. g. weldegwergs, R. Westerman, T. Wijeratne, A. S. Winkler, B. T. Xuan, N. Yonemoto, V. L. Feigin, T. Vos and C. J. L. Murray (2018).
- [15] "Global, regional, and national burden of Parkinson's disease, 1990–2016: a systematic analysis for the Global Burden of Disease Study 2016." The Lancet Neurology 17(11): 939-953.
- [16] Doty, R. L. (2012). "Olfactory dysfunction in Parkinson disease." Nature Reviews Neurology 8(6): 329-339.
- [17] Eriksson, O., A. Mintz, C. Liu, M. Yu, A. Naji and A. Alavi (2014). "On the use of [18 F] DOPA as an imaging biomarker for transplanted islet mass." Annals of nuclear medicine 28(1): 47-52.
- [18] Fares, M. B., S. Jagannath and H. A. Lashuel (2021). "Reverse engineering Lewy bodies: how far have we come and how far can we go?" Nature Reviews Neuroscience 22(2): 111-131.
- [19] Fodero-Tavoletti, M. T., R. S. Mulligan, N. Okamura, S. Furumoto, C. C. Rowe, Y. Kudo, C. L. Masters, R. Cappai, K. Yanai and V. L. Villemagne (2009). "In vitro characterisation of BF227 binding to α-synuclein/Lewy bodies." European journal of pharmacology 617(1-3): 54-58.
- [20] Fox, S. H. and J. M. Brotchie (2010). "The MPTP-

lesioned non-human primate models of Parkinson's disease. Past, present, and future." Progress in brain research 184: 133-157.

- [21] Garnett, E., G. Firnau and C. Nahmias (1983).
   "Dopamine visualized in the basal ganglia of living man." Nature 305(5930): 137-138.
- [22] Gibrat, C., M. Saint-Pierre, M. Bousquet, D. Lévesque, C. Rouillard and F. Cicchetti (2009).
- [23] "Differences between subacute and chronic MPTP mice models: investigation of dopaminergic neuronal degeneration and  $\alpha$ -synuclein inclusions." Journal of neurochemistry 109(5): 1469-1482.
- Goedert, M., M. G. Spillantini, K. Del Tredici and H. Braak (2013). "100 years of Lewy pathology." Nature Reviews Neurology 9(1): 13-24.
- [25] Hawkes, C. H., K. Del Tredici and H. Braak (2010). "A timeline for Parkinson's disease." Parkinsonism Relat Disord 16(2): 79-84.
- [26] Heinz, S., A. Freyberger, B. Lawrenz, L. Schladt, G. Schmuck and H. Ellinger-Ziegelbauer (2017). "Mechanistic investigations of the mitochondrial complex I inhibitor rotenone in the context of pharmacological and safety evaluation." Scientific reports 7(1): 1-13.
- Hu, L.-Y., A. C. Yang, S.-C. Lee, Z.-H. You, S.-J. Tsai, C.-K. Hu and C.-C. Shen (2020). "Risk of Parkinson's disease following gout: a populationbased retrospective cohort study in Taiwan." BMC Neurology 20(1): 338.
- [28] Huang, Y. Y., K. H. Ma, T. W. Tseng, T. K. Chou, H. Ng, J. C. Mirsalis, Y. K. Fu, T. C. Chu, W. S. Huang and C. Y. Shiue (2010). "Biodistribution, toxicity and radiation dosimetry studies of the serotonin transporter radioligand 4-[18F]-ADAM in rats and monkeys." Eur J Nucl Med Mol Imaging 37(3): 545-555.
- [29] Jagmag, S. A., N. Tripathi, S. D. Shukla, S. Maiti and S. Khurana (2016). "Evaluation of Models of Parkinson's Disease." Frontiers in Neuroscience 9(503).
- [30] Jankovic, J. (2008). "Parkinson's disease: clinical features and diagnosis." Journal of neurology, neurosurgery & psychiatry 79(4): 368-376.
- [31] Jhao, Y.-T., C.-H. Chiu, C.-F. F. Chen, T.-K. Chou, Y.-W. Lin, Y.-T. Ju, S.-C. Wu, R.-F. Yan, C.-Y. Shiue and S.-H. Chueh (2019). "The Effect of Sertoli Cells on Xenotransplantation and Allotransplantation of Ventral Mesencephalic Tissue in a Rat Model of Parkinson's Disease." Cells 8(11): 1420.
- [32] Johnston, T. M. and S. H. Fox (2014). "Symptomatic models of Parkinson's disease and LDOPA- induced dyskinesia in non-human primates." Behavioral Neurobiology of Huntington's Disease and Parkinson's Disease: 221-235.
- [33] Josephson, L., N. Stratman, Y. Liu, F. Qian, S. H. Liang, N. Vasdev and S. Patel (2018). "The binding of BF-227-like benzoxazoles to human α-synuclein and amyloid β peptide fibrils." Molecular imaging 17: 153601211879629

# 核電廠部份廠址外釋之劑量評估及輻射偵檢相關規範與案例研析 Regulation and Case Study for Dose Modeling and Radiation Survey of Partial Site Releases in Decommissioning Nuclear Power Plants

計畫編號:111-2623-E-007-007-NU 計畫主持人:趙得勝 e-mail:dschao@mx.nthu.edu.tw 計畫共同主持人:梁正宏 計畫參與人員:陳孟渝、鍾岳均、余岳倫、王湲媛、林亞勳 執行單位:國立清華大學原子科學技術發展中心

# 摘要

部分廠址外釋為除役核電廠執照終止前的一個選 項,即在確保公眾健康與安全的原則之下,經由設施經 登者提出申請及管制機關嚴謹的審查管制程序,可先行 外釋部分廠址供無限制使用,藉此達到活化土地資產、 保護環境生態及確保人民財產自由之目的。目前為止, 美國已累積了許多執行與管制上的經驗,許多核電廠已 完成部分廠址外釋的案例,且管制機關也已制訂完善的 法源規範及標準審查計畫與指引。鑒於國內過去並未曾 實際執行過部分廠址外釋的經驗,未來在冗長的除役期 間可能會有部分廠址外釋的需求,除了設施經營者應徹 底瞭解部分廠址外釋的實際做法與必須符合的條件之 外,管制機關也應強化國內在部分廠址外釋的法源基礎 與管制缺口。因此,本研究針對國際除役核電廠部分廠 址外釋的具體做法與管制方案進行研析,並依執行面向 與管制面向進行工作規劃。執行面向主要聚焦於部分廠 址外釋之廠址歷史評估與特性偵檢作業、執照文件變更 請求、劑量評估方法、最終狀態偵檢、以及國際案例分 析等;管制面向則針對法規架構、管制程序、標準審查 計畫、以及劑量評估審查指引等進行分析。藉由本研究 計畫的執行,可精進國內在除役核電廠部分廠址外釋的 審查技術及管制效力,相關的研究成果也可做為未來強 化除役法規的參考。

**關鍵詞:**核電廠除役、部分廠址外釋、多機構輻射偵檢 與現場調查手冊、劑量評估、最終狀態偵檢、導出濃度 指引水平

#### Abstract

Partial site release is an option prior to the approval of license termination for decommissioning nuclear power plants. Under the principle of ensuring public health and safety, part of the facility site can be released first for unrestricted use through the request by licensee and the strict review and regulation by regulatory agency, so as to achieve the purpose of recovering land assets, protecting environmental ecology, and ensuring people's property liberty. So far, the United States has accumulated a lot of experience in implementation and regulation. Many nuclear power plants have implemented the partial site release, and the regulatory agency has also formulated appropriate regulations and standard review plan and guidance. In consideration of the fact that the partial site release has never been happened in our country, there might be requests for partial site release during the long period of decommissioning in the future. Not only the licensee should thoroughly understand the actual practices and conditions that must be met for partial site release, but the regulatory agency should also strengthen the current domestic legal basis and regulatory gap in partial site release of decommissioning nuclear power plants. For this reason, the specific practices and regulatory program for partial site release of decommissioning nuclear power plants are investigated in this project. The working items included the aspects of implementation and regulation. In the implementation aspect of partial site release, we mainly focused on the historical site assessment and characterization survey, request of license amendment program, dose modeling approach, final status survey, analysis of international cases, etc. In the regulatory aspect, we analyzed the regulatory framework, regulatory procedures, standard review plan, and review guidance of dose modeling, and etc. By means of this research project, it is expected to improve the review technology and regulatory effectiveness of part site release in domestic decommissioning nuclear power plants, and the results can be also used as useful reference to strengthen the decommissioning regulations in the future.

**Keywords :** Decommissioning of Nuclear Power Plants, Partial Site Release, Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual (MARSSIM), Dose Modeling, Final Status Survey, Derived Concentration Guideline Level (DCGL)

## I. 前言

部分廠址外釋 (Partial Site Release) 為除役核電廠 執照終止計畫完成前的權宜之計,其目的是保障人民的 財產自由、可加速活化除役核電廠周邊的土地資產及保 護其環境生態,然而如何確保部分廠址外釋的過程不 會對公眾的健康與安全造成威脅或風險,則成為除役核 電廠管制上的一大挑戰。目前為止,美國的除役核電廠 已有相當多的部分廠址外釋的案例,並且美國 NRC 也 因應此特殊需求進行管制上的一些變革,如:強化部分 廠址外釋的法源基礎、建立部分廠址外釋的管制程序、 制訂部分廠址外釋的標準審查計畫、提出部分廠址外釋 之劑量評估指引等。近幾年,國內核一、二廠機組的運 轉執照年限已陸續或即將屆期,設施經營者也在機組預 定永久停止運轉 3 年前向主管機關提交除役計畫並已 獲得審查在案,目前都已進入除役停機過渡階段,而核 三廠也即將於幾年內面臨機組運轉執照屆期,近期已提 出除役計畫並正在審查之中。過去,國內核電廠也曾提 出部分廠址外釋的想法,雖僅止於討論及評估階段,然 鑒於國內過去並未曾實際執行過核電廠部分廠址外釋 的經驗,未來在冗長的核電廠除役作業期間,亦可能會 有部分廠址外釋的可能需求,除了設施經營者應徹底瞭 解部分廠址外釋的實際做法與必須符合的條件之外,管 制機關也應強化目前國內在部分廠址外釋的法源基礎 與管制缺口。有鑑於此,本研究計畫主要是針對國際上 部分廠址外釋之劑量評估與輻射偵檢相關規範進行研 析,藉此精確掌握部分廠址外釋之法規架構、審查及管 制程序、偵檢方案、以及劑量評估方法等;同時,本研 究也以國際除役核電廠之部分廠址外釋案例做為分析 標的,藉此獲知部分廠址外釋執行上的實務細節與可資 參考的經驗。。

#### Ⅱ. 背景分析與研究方法

在 1998 年時,美國 NRC 首先接獲 Oyster Creek Nuclear Generating Station (OCNGS) 的設施經營者 (GPU, Inc.) 通知,提出在其永久停止運營之前計畫擬 出售部分設施和廠址,當時 Oyster Creek 認為出售這些 設施和廠址予未獲得許可的第三方並不需要經過美國 NRC 的批准,因為這些區域並未含有高於背景的放射 性活度 [1]。在此之後,陸續有許多的核電廠設施經營 者相繼提出類似的部分廠址外釋需求,而美國 NRC 也 因應部分廠址外釋的相關需求研擬修法,並針對該方案 訂定標準審查計畫 (Standard Review Plan, SRP) 及劑 量評估審查指引 [2-6]。為了深入瞭解除役核電廠部分 廠址外釋的具體做法與管制方案,本研究將依執行面向 與管制面向進行工作規劃,如圖1所示。在執行面向, 將聚焦於部分廠址外釋之廠址歷史評估與特性偵檢作 業、執照文件變更請求、劑量評估方法、最終狀態偵檢、 以及國際案例分析等項;在管制面向,則將針對部分廠 址外釋之法規架構、管制程序、標準審查計畫、以及劑 量評估審查指引等進行分析。



圖 1 本研究計畫的工作流程圖

#### III. 結果與討論

#### (一)美國管制規範分析

為了建立部分廠址外釋之標準化申請與管制程序, 美國 NRC 於 2003 年頒布了部分廠址外釋的最終法規, 允許動力用反應器的設施經營者在主管機關正式核准 執照終止計畫之前,可釋放其部分設施或廠址以供無限 制使用。除確定了部分廠址外釋的標準和監管架構之外, 也提供額外的保證確保在執照終止計書之前釋出的部 分廠址之殘留放射性可滿足執照終止標準,並明訂僅 能作為無限制使用之目的。

因應部分廠址外釋之需求,美國核管會分別針對 10 CFR 2、10 CFR 20、以及 10 CFR 50 等章節段落進 行修訂或增刪。在上述的法規尚未修訂之前,部分廠址 外釋可能存在一些疑慮,包括設施經營者可能會採取一 系列的部分廠址外釋申請來規避適用執照終止法規所 規定的標準、欠缺部分廠址外釋特定的規範可能造成不 一致的安全標準及不足的管制監管措施、執照終止法規 中的公眾參與要求無法適用於部分廠址外釋申請。在新 制訂的部分廠址外釋規定中已全盤地考量上述這些疑 慮:

- 1.10 CFR 2.1201:必須在財產釋出使用之前召開非正 式的聽證會。
- 2.10 CFR 20.1401 (b): 在執照終止放射標準納入部分 廠址外釋的做法。
- 3.10 CFR 20.1401 (c): 根據新訊息確定其未符合相關 標準的廠址必須進行額外清理的要求,納入部分廠 址外釋的做法。
- 4.10 CFR 50.2: 說明廠址歷史評估的目的及方法,及 受影響區及非受影響區的分類與定義。
- 5.10 CFR 50.75:新增部分廠址外釋之任何財產外釋 及最終處置的紀錄保存規定。
- 6.10 CFR 50.82: 在原始執照終止規定中,新增釋放部 分反應器設施或廠址供無限制使用的做法。
- 7.10 CFR 50.83 (a):在獲得執照終止計畫核准之前, 需要事先獲得 NRC 的書面批准才能部分釋出設施 或廠址以供無限制使用。
- 8.10 CFR 50.83 (b):對於未受影響區的外釋,如果不 需要修改執照,設施經營者可以提交書面申請要求 NRC 准予放行。
- 9.10 CFR 50.83 (c): 在收到設施經營者關於釋出未受 影響區的批准請求後,NRC 應確認設施經營者是否 依照要求充分評估外釋廠址的影響、任何外釋廠址 歸類為未受影響區的理由是否充分合理。
- 10.10 CFR 50.83 (d):對於受影響區的外釋,設施經營 者應提交針對該外釋廠址的執照修改申請。
- 11.10 CFR 50.83 (e): 在收到設施經營者關於解除受影 響區域的執照修改申請後,NRC 應確定設施經營 者已依照要求充分評估外釋廠址的影響。
- 12.10 CFR 50.83 (f): NRC 應通知收到部分廠址外釋 請求或執照修改申請,並將外釋請求或執照修改 申請公開徵求意見。

圖 2 所示為未受影響區及受影響區部分廠址外釋 之法規架構示意圖,圖中分別顯示此兩類廠址外釋的法 規架構,包含設施經營者與管制機關的申請與審查規範,
#### 設施經營者並應遵守標準審查計畫 NUREG-1727 中對 應適用的章節來據以辦理。



圖 2 未受影響區及受影響區部分廠址外釋之法規架構 示意圖

#### (二)部分廠址外釋執行案例分析

美國過去已有許多除役核電廠成功完成部分廠址 外釋的請求,本研究已就所收集到的案例進行分析並歸 納如表1所示,各案例依其電廠名稱、位置、永久停止 運轉日、外釋單元或其面積、是否屬受影響區、外釋申 請日期、外釋核准日期等進行分類。由表可知,大部分 設施會選擇先部分釋出未受影響區,然亦有些許案例涵 蓋受影響區或以受影響區作為釋出區域。由外釋申請日 期及核准日期顯示,大部分的部分廠址外釋案例之審查 期程都可在一年內完成。

表1 美國核設施部分廠址外釋之案例分析

除投电板名称	位置	永久停止逻辑日	外羅單元 (面積)	非爱/受影響區	外禅中請日期	外释结准日期
Fort Calhean Station, Unit 1	Fort Calhean. Nzbraska	June 24, 2016	3-SUs (-120 acres)	非走影整值	June 29, 2018	April 10, 2019
Haddam Neck Plant	Middlesex County, Connecticut	Dec. 5, 1996	64 open land SUs, 1 structure, 6 subsurface will SUs (Not available)	油蓝非爱影攀猛 从爱影攀猛	July 31, 2007	Nov. 26, 2007
Zion Nuclear Power Station	Zion, Illinois	Feb. 13, 1998	11 SUs. (-214 acres)	非爱彩碧道	August 27, 2015	March 31, 2016
Humboldt Bay Power Plant Unit 3	Humboldt County, California	July 16, 1985	HHPP-FSSP-OOL10- 11 md HBPP-FSSP- OOL10-12 SUs (30.4 acres)	安影響區	Nov. 9, 2016	Jan. 5, 2018
Clinton Power Station Unit 1	Clinton, Illinois	Under operation	Property owned by Exclon Generation Company, LLC, (-4 acres)	非爱影繁适	Nev. 18, 2011	March 15, 2012
La Crosse Boiling Water Reactor	Verson County, Wisconsin	April 30, 1987	5 SUs (-88 acres)	非受影響區	June 27, 2016	April 12, 2017
Crystal River Nuclear Plant Unit 3	Florida, LLC	Feb. 20, 2013	21 5Us. (-3854 acres)	非受影響區	Jan. 22, 2019	Jan. 2, 2020

#### 1.設施經營者之申請程序

設施經營者提出部分廠址外釋請求時,必須根 據 10 CFR 50.83 的規定提供完整的補充資料,主管 機關即可據此進行審查,以確保欲部分外釋的廠址 可符合無限制性使用的法規要求。設施經營者之補 充資料應涵蓋目的、背景、外釋廠址效應評估、財 產描述、部分廠址釋出的時程、廠界改變影響評估、 環境衝擊、其它資訊、執照基準影響、結論。

#### 2. 管制機關之管制程序

當美國 NRC 收到設施經營者所提出的部分廠 址外釋需求之後會依據既有法規來進行技術審查 及獨立評估。具體來說,根據美國聯邦法規 10 CFR 50.83 的規定,動力用反應器設施或廠址在執照終 止計畫獲核准前欲先行釋出部分廠址供無限制使 用,必須於釋出前獲得書面核准才能為之。在 10 CFR 50.83 的規範之下,如釋放區域屬於未受影響 區域,則應不需要修改執照;如釋放區域屬於受影響區或涉及執照相關規範,則應評估是否需要進行 設計變更修改。管制機關負責人員應逐項審查設施 經營者的請求文件,並依 10 CFR 50.83 各節的要求 進行評估。

#### (三)部分廠址外釋之劑量評估方法與管制

#### 1. 部分廠址外釋之劑量評估

由於部分廠址外釋之劑量評估牽涉與其它廠 址之間的協同劑量效應,必須同時考慮廠內 (onsite) 與廠外 (off-site) 的曝露途徑與劑量貢獻,這 也使得部分廠址外釋的劑量評估工作變得更形重 要。如圖 3 所示,當前欲部分釋出的廠址所殘留之 放射性核種可能影響過去已先完成部分釋出的廠 址或受其影響,同時其也可能會對於未來即將要進 行執照終止的廠址造成影響抑或受其影響,例如: 在部分廠址釋出的當下,個體因殘留的放射性所造 成的劑量即使符合劑量限值,但這樣的條件在其餘 廠址進行執照終止時,可能因為其它假設的限制條 件解除而使其劑量超出限值。因此,部分廠址外釋 的劑量評估必須考慮協同劑量效應,藉此確保該釋 出廠址不會造成過去已釋出的廠址超出原先設定 的劑量限值,另也必須確認在當前欲釋出廠址所設 定的劑量評估條件之下,不會造成未來即將進行執 照終止的其餘廠址的限制或後續整治上的負擔。



圖 3 當前欲外釋廠址與已先行外釋廠址及原執照廠址 之間的協同劑量效應示意圖

#### 2. 部分廠址外釋劑量評估之審查程序

為了妥善處理部分廠址外釋劑量評估相關的 議題,美國NRCNMSS辦公室因應要求於2001年 提出部分廠址外釋劑量評估模型的指引草案[6],該 指引文件係為標準審查計畫[7]的補充文件,主要目 的為提供部分廠址外釋劑量評估之審查技術與標 準,以作為內部工作人員評估部分廠址外釋案件劑 量影響之指引,同時也可提供設施經營者或負責廠 址除役相關人員參考。

部分廠址外釋之審查程序與該區域的分類有 關,可根據廠址歷史評估的結果而定。當欲部分釋 出的區域經廠址歷史評估被歸類為非受影響區時, 即可據此證實其可符合 10 CFR 20 Subpart E 的無條

件釋出標準。對於被歸類為受影響區的部分釋出廠 址則必須證實其符合 10 CFR 20.1402 的劑量要求。 在部分廠址中,劑量來源不僅受限於存在於部分外 釋廠址之中的殘留放射性活度,外釋區域外的離場 源項 (offsite sources) 也會是可能的貢獻。在進行劑 量分析時,除了符合性分析之外,也應針對其它可 能預期的劑量進行分析,這些分析將評估部分廠址 外釋是否會影響執照許可廠址的執照終止。

此補充性指引並未針對標準審查計畫中的劑 量評估要求進行重大變更,唯一的改變為須提供與 部分廠址外釋相關的必要資訊。例如:必須確定是 否存在場外源項,並經由此部分廠址外釋而造成可 觀的劑量。為協助接收審查 (acceptance review)及 協助設施經營者準備必要的資訊,此補充性指引也 提供部分廠址外釋之接收審查清單供參。

對於部分廠址外釋而言,因執照許可廠址仍在 運轉中,將會有來自於受設施經營者控制的場外 源項的劑量貢獻。部分廠址外釋之曝露情節大抵可 分為兩類,分別為:符合性情節 (compliance scenarios) 及預期性情節 (prospective scenarios)。符 合性情節牽涉所提出之部分廠址外釋的符合性評 估,或是先前已完成之部分釋出廠址因受當前部分 廠址外釋影響的符合性評估。符合性情節需考量目 前或未來存在於部分外釋廠址與先前已完成之部 分外釋廠址或執照許可廠址之間的曝露路徑。另一 方面,預期性情節則牽涉部分廠址外釋及未來執照 許可廠址除役活動之間相互作用的評估,其目的係 為了確定未來潛在的相互作用,並且可藉由部分廠 址外釋的額外整治或加諸未來除役其它源項的限 制來解決這些問題。此補充性指引提供一工作表作 為部分廠址外釋之曝露情節篩選使用,初步分三個 類別依序篩選:(a) 源項篩選;(b) 傳遞過程篩選; (c) 曝露途徑篩選。

#### (四)部分廠址外釋之標準審查計畫研析

在美國現行除役核電廠的管制規範之下,部分廠址 外釋可依循 10 CFR 50.83 的要求進行申請與審查,此 項規定目前僅限於動力用反應器部分釋出廠址供無限 制性使用之目地,這些要求與用於除役及執照終止之 10 CFR 50.82 不同。為此,美國 NRC 因應部分廠址外 釋申請案審查之需求,於2006年2月提出了在執照終 止計畫核准之前釋放部分反應器設施或廠址以供無限 制使用的標準審查計畫 (NUREG-1836) [5],此計畫提 供部分廠址外釋申請案審查的評估與接受標準,包括 技術審查範圍、設施經營者應提交資訊、管制要求與指 引、法規符合性評估標準與參考資料等。雖然本計畫之 主要目的係作為管制機關工作人員的審查指引,但相關 的內容對於設施經營者與申請者也是有用的。此外,此 標準審查計畫的另一個目的則是提供有用的資訊,以便 公眾可更清楚地瞭解管制機關對於部分廠址外釋的審 查過程以及拒絕或接受此類請求的標準。部分廠址外釋 之審查管制程序涵蓋以下步驟:接收審查、公眾參與及 協調、詳細的技術審查、現場實地參訪與視察、確認放 射性調查、評估發現、核准程序。

NUREG-1836 標準審查計畫提供執行部分廠址外 釋管制時的技術指南和法規要求,內容揭露設施經營者 或申請人提交部分廠址外釋請求時應遵循的監管架構, 以及美國 NRC 工作人員審查、評估和處理此類請求時 將使用的步驟。標準審查計畫確定了每個審查項目的審 查重點、接收標準、監管要求和指引、設施經營者須提 交的資料、評估結果 和參考資料。專案負責人和審查 者可以依個案選擇特定項目,並定義相對應的技術審查 級別,並非所有情況都需要詳細執行所有的審查項目。 審查者負責按照各辦公室和部門程序的要求記錄所有 發現、差異、缺失等資訊於文件之中,該文件的副本應 置放於NRC的 ADAMS 文件資料庫中。當發現缺失時, 專案負責人應要求提供額外資訊或以書面形式向設施 經營者尋求澄清。審查項目包含:擬外釋廠址區域之一 般資訊與描述、擬外釋廠址之放射性特性偵檢、對執照 許可方案之影響、無限制釋出標準 (非受影響區)、無限 制釋出標準 (受影響區)、最終狀態偵檢設計和偵檢結 果、環境審查、紀錄維護等,並且針對上述各項目均有 制定其對應的審查重點與審查程序。

#### IV. 結論

本研究已針對除役核電廠部分廠址外釋之國際管 制規範發展沿革及法規架構、執行案例、劑量評估方法 與管制、以及標準審查計畫等進行完整地研析,藉此 清楚地瞭解部分廠址外釋在管制與執行面向可能遭遇 的困難與挑戰。茲歸納所得的結論與建議如下:

- 過往核電廠的除役管制規範大部分建構於完整廠址 執照終止的管制架構之上,為因應未來可能的部分 廠址外釋需求,在現行的除役法規架構上或應適度 地調整。然目前在沒有特定法源規範的情況之下, 可先採個案審查的方式作為暫時性的配套方案。
- 部分廠址外釋確為設施經營者可先行釋出財產以活 化資產的可行作法,而大部分案例係以先行釋出非 受影響區,且通常在提出請求後一年左右的時間即 可獲得核准。
- 相較於完整廠址的執照終止,部分廠址外釋必須考 慮場外源項、擬部分外釋廠址與其餘執照許可廠址 或先前已釋出廠址之間的相互作用,以及未來使用 或剩餘執照許可廠址在執照終止時的限制。
- 4. 部分廠址外釋的管制程序可能因各電廠的特定狀況 或複雜度而遭遇管制技術上的困難。為避免造成執 行或管制上的限制,國內未來可考慮擬定標準審查 計畫或導則,藉此精進國內在除役核電廠部分廠址 外釋的審查技術及管制能量。

# 參考文獻

- "Proposed Sale of Some Land That is a Portion of a Licensee's Site, Including Land in the Exclusion Area", SECY-99-238, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (1999).
- (2) "Partial Release of Reactor Site for Unrestricted Use Before NRC Approval of the License Termination Plan", *Regulatory Issue Summary 2000-19*, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2000).
- [3] "Rulemaking Plan to Standardize the Process for

Allowing a Licensee to Release Part of its Reactor Facility or Site for Unrestricted Use Before Receiving Approval of its License Termination Plan", *SECY-00-0023*, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2000).

- (4) "Request for Assistance Regarding the Impact of Interactive Dose Effects on Partial Site Releases", *ML003753021*, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2000).
- (5) "Standard Review Plan for Releasing Part of a Reactor Facility or Site for Unrestricted Use Before Approval of the License Termination Plan", NUREG-1836, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2006).
- [6] "Draft Staff Guidance for Dose Modeling of Proposed Partial Site Releases", *ML012140043*, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2001).
- [7] "NMSS Decommissioning Standard Review Plan", NUREG-1727, U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) (2000).

# .專一性放射標誌<sup>89</sup>Zr-DFO\*-ImmunoPET 造影劑於腫瘤 PD-L1 表現之偵測 Site-Specifically Radiolabeled<sup>89</sup>Zr-DFO\*-ImmunoPET Tracer for Imaging PD-L1 Expression in Tumor

計畫編號:111-2623-E-166-001-NU 計畫主持人:黃蜂運 e-mail:fyhuang@ctust.edu.tw 計畫共同主持人:樊修秀、陳國庭 執行單位:中臺科技大學醫學影像暨放射科學系

#### 摘要

近幾年, 鋯-89 免疫正子斷層造影已成為一有利工 具作為臨床前及臨床研究各種免疫治療的治療前病人 篩選或治療後療效評估。本研究旨在發展隨機性及專一 性標誌<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 作為非侵入性偵測腫瘤上 PD-L1 表現。研究方法係利用離胺酸及醣基修飾方法製 備隨機性及專一性耦合技術製備隨機性及專一性 DFO 修飾抗體複合體;緊接,進行 DFO 抗體複合體的錯-89 放射標誌,完成體外相關特性分析及穩定性測試後於小 鼠大腸癌動物腫瘤模型進行各項體內評估包括:正子造 影、影像半定量分析、藥物動力學、生物分佈、病理學 及免疫組織化學染色分析。隨機性製備可得到 CAR 為 0.4、1.4 及 2.0 之 DFO 抗體複合體,專一性則可得 2.0 及 3.6之 DFO 抗體複合體。隨機性及專一性標誌之<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑其體外穩定性於 PBS 中7天均 能維持在 94%之放射化學純度。體內結果顯示,隨機性 標誌造影劑<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 20X 組別展現出最佳 之腫瘤造影能力,其腫瘤對正常組織器官之藥物攝取比 為所有隨機法標誌藥物中最高。此外,生物分佈及 PD-L1 免疫組織化學染色實驗結果證實,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑於腫瘤之累積應為特異性之 PD-L1/PD-1 結 合所致。初步研究結果顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影 劑能成功進行偵測老鼠大腸癌腫瘤上 PD-L1 表現,此 研究成果值得進一步發展作為 PD-L1/PD-1 免疫檢查點 治療前之病人篩選及治療後之療效評估可能應用。 **關鍵詞:**錯-89;正子斷層造影;DFO;細胞程式死亡配

體-1/細胞程式死亡受體-1

#### Abstract

Recent years, <sup>89</sup>Zr-ImmunoPET has become a useful tool for preclinical and clinical study in the various immunotherapies for patient stratification before treatment or evaluation of therapeutic efficacy after treatment. In this study, random and site-specifically radiolabeled <sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1 tracer will be developed for imaging of PD-L1 expression on tumor. To prepare random and sitespecifically radiolabeled <sup>89</sup>Zr-ImmunoPET tracer, the lysine-based and enzyme-based (glycan modification) bioconjugation technique will be used to prepare DFO-anti-PD-L1 conjugate, respectively and then DFO-anti-PD-L1 conjugates will be radiolabeled with <sup>89</sup>Zr. After in vitro

quality control and stability test, the random radiolabeled <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 tracers will be evaluated in the mouse colorectal cancer model for various in vivo studies including PET imaging, region of interest analysis of image, pathological pharmacokinetic. biodistribution. and immunohistochemically assay. For preparation of conjugates, DFO-conjugates with the chelator-to-antibody ratio (CAR) of 0.4 - 2.0 and 2.0/3.6 were prepared by conventional and site-specific method, respectively. Both of random and site-specifically radiolabeled <sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1 tracers showed good in vitro stability and radiochemical purity were large than 94% 7 day incubation in PBS. Results from in vivo study showed that random radiolabeled <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 20X tracer provided the best tumor imaging ability and displayed highest tumorto-normal tissue uptake ratio compared with other randomradiolabeled ones. Furthermore. results from biodistribution and pathological and immunohistochemically exam indicated that the 89Zr-DFOanti-PD-L1 tracer was specifically uptake in the tumor via PD-L1/PD-1 binding. Preliminary results showed that <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 tracer is able to detect PD-L1 expression on tumor and it is paving the way for using it as noninvasive biomarker for patient stratification before immunotherapy and evaluation of therapeutic efficacy after treatment. Keywords: <sup>89</sup>Zr; PET; DFO; PD-L1/PD-1

# I. 前言

新的免疫檢查點療法為人類癌症治療寫了歷史新 頁,其顯著的效力及相對可管控的副作用程度,讓它迅 速成為臨床癌症治療的新利器(Sharma et al, 2015)。目 前常用的免疫檢查點標靶,包括有 CTLA-4 及 PD-L1/PD-1等,這些受體或分子在生理上的功能已知與維 持免疫平衡及避免自體免疫有關。自 2011 年美國食品 藥物管理局核准免疫治療藥物 Ipilimumab (anti-CTLA-4 monoclonal antibody)後,至今全球已有9種PD-L1/PD-1 免疫檢查點抑制劑核准用於臨床使用;其中包括 3種 PD-L1 抑 劑 劑 (i.e. atezolizumab, avelumab, and durvalumab)及 6 種 PD-1 抑制劑(i.e. nivolumab, pembrolizumab, cemiplimab, sintilimab, toripalimab, camrelizumab)。這些免疫檢查點抑制劑以單獨或合併 的方式進行治療,已成功在超過 22 種癌症及相關疾病 上進行臨床治療應用。雖然免疫檢查點療法已迅速且廣

泛地在癌症治療進行應用,但病人的治療反應率仍偏低, 整體平均小於 20% (Haslam et al., 2019)。為解決上述 問題,臨床在進行此免疫治療前,必須先進行病人篩選。 根據最近的研究顯示,病人腫瘤細胞的 PD-L1 表現量 和接受此免疫療法的治療反應率有很大的關聯性。目前 臨床上進行腫瘤 PD-L1 表現量分析的生物指標 (biomarker)以免疫組織化學染色 (immunohistochemistry; IHC)分析法為主 (Antonia et al., 2018); 然而,免疫組織化學染色分析方法仍存在一 些限制。

免疫正子斷層造影(ImmunoPET)是最近在核子醫 學暨分子影像領域中相當受重視的應用及研究標的。隨 著治療用單株抗體的發展,ImmunoPET 造影藥物的發 展與需求也跟著上升。ImmunoPET 結合了單株抗體的 高靶向特異性及正子斷層造影的高偵測靈敏性,具備非 侵入性、動態偵測、高靈敏性、全身性及可定量等特性, 是相當具潛力發展作為免疫檢查點療法的預指標,以協 助進行免疫治療計畫擬定、病人篩選及免疫治療後反應 率追蹤。常見的正子造影同位素中,Zr-89 在 ImmunoPET 的發展與應用日益受囑目;Zr-89 的物理性 半衰期為 78.4 小時,能匹配完整單株抗體藥物於體內 的藥物動力學及生物分佈等特性,進行最佳腫瘤藥物累 積時的造影。

ImmunoPET 造影劑的製備,第一步的螯合劑修飾 抗體複合體製備常常成為造影劑發展成功與否之關鍵。 螯合劑抗體複合體的製備技術可簡單區分為隨機及專 一性生物耦合兩種方式,其不同耦合方式將分別得到非 均質與均質之抗體複合體。綜合文獻回顧結果,目前尚 無專一性抗體複合體結合螯合劑 DFO\*於免疫檢查點 <sup>89</sup>Zr-ImmunoPET 造影劑的設計與應用。本研究計畫將 引進酵素法醣基修飾製備專一性耦合抗體複合體及螯 合劑 DFO\*進行 <sup>89</sup>Zr 放射標誌,結合兩者優點以發展 「專一性放射標誌<sup>89</sup>Zr-DFO\*-ImmunoPET 造影劑於腫 瘤 PD-L1 表現之偵測」。預期新發展的造影劑能改善傳 統<sup>89</sup>Zr-ImmunoPET 藥物之穩定性及影像品質問題。為 進行概念驗證,本計畫原規劃為三年期,但僅通過第一 年期部份,其研究主軸將聚焦在<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1mAb 及 <sup>89</sup>Zr-DFO\*-anti-PD-L1-mAb 造影劑之製備、特 性分析及其體內評估的先期試驗。

# II. 主要內容

隨機性耦合 DFO 抗體複合體之製備主要透過抗體 上離胺酸殘基-一級胺進行生物耦合反應(圖1)。首先, 將 anti-PD-L1 單株抗體藥物之溶液置換為磷酸鹽緩衝 溶液(100 mM sodium phosphate, 150 mM NaCl, pH 7.5) 或碳酸鈉溶液(0.1 M Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)並移除溶液中可能含有 一級胺之物質。接著,使用 DMSO 溶劑進行新鮮配製 10 mM DFO-NCS 溶液,和 anti-PD-L1 單株抗體藥物溶 液以分子莫耳數比為 3:1 至 100:1 不同比例進行混合於 0.5 mL Eppendorf 管中,以磷酸鹽緩衝溶液或碳酸鈉溶 液作為反應緩衝液,於室溫反應 60 分鐘。



圖1 隨機性耦合 DFO 抗體複合體製備流程

專一性耦合 DFO 抗體複合體(CAR of 2 and 4) 之 製備主要透過酵素法抗體醣基修飾套組試劑進行。其製 備程序主要分為三個步驟包括有(一)醣基移除(例如, 使用 Endoglycosidase 製備螯合劑-抗體比為 2;如圖 2 或  $\beta$ -1,4-Galactosidase 製備螯合劑-抗體比為 2;如圖 3)、 (二)疊氮活化(例如,利用酵素  $\beta$ -1,4-Galactosyltransferase 將帶有疊氮官能基的 UPD-GalNAz 催化附加在 GlcNAc殘基上以使抗體成為具有疊氮活化 之官能基,作為接下來的疊氮-炔烴點擊化學反應時使 用)、(三)點擊化學反應(例如,透過點擊化學反應時使 用)、(三)點擊化學反應(例如,透過點擊化學 SPAAC 的環加成反應將 DBCO-PEGn-DFO 化合物耦合於抗體 上疊氮活化位置,形成穩定的三[氮]唑五環結構)。最後, 完成專一性耦合 DFO 抗體複合體之製備(螯合劑-抗體 比為 2 或 4),作為生產專一性放射標誌 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb 造影劑使用。



圖 2 酵素法專一性耦合 DFO 抗體複合體 (CAR of 2) 製備流程。



到 5 醉系法等一性稱合 DFO 机脂酸合脂(CARO 4)製備流程。

DFO 抗體複合體與 <sup>89</sup>Zr 的放射標誌程序如下:將 製備好不同的 DFO 抗體複合體分別取 200-500  $\mu$ g(10 mg/mL) 至 1.5 mL eppendorf 離心管中。接著,將活度 為 1-2 mCi (10 mCi/mL) 的 <sup>89</sup>Zr-oxalate solution 加入

DFO 抗體複合體反應小管中。標誌反應於1 M HEPES 於室溫下 350 rpm 振盪反應 40 分鐘。最終產物 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb ImmunoPET 造影劑的放射化學產 率、放射化學純度及抗體濃度分別以 ITLC/SG 放射薄 層分析儀及高效液相層析儀搭配 SE 管柱進行分析。

不同<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb 造影劑的體外穩定 性於 PBS 中進行評估。將純化後的<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb 造影劑分別加入於 PBS (25 ℃; pH=7.4) 中進 行培養。在放射性藥物加入後的第 0,1,2,3,7 天分別取 樣以放射薄層分析儀及高效液相層析儀進行放射化學 純度分析。

為了觀測<sup>89</sup>Zr-ImmunoPET 造影劑於腫瘤上 PD-L1 表現之偵測,老鼠大腸結腸癌腫瘤細胞 CT-26:將於本 研究中進行評估。細胞株將從生物資源保存及研究中心 (新竹,台灣)購得,細胞培養後以進行後續相關細胞 及動物實驗。細胞株以 Dulbecco's Modified Eagle Medium (DMED)培養液(含10% fetal bovine serum 及 100 units/mL penicillin and 100  $\mu$ M/mL streptomycin)進 行培養,細胞培養於 37°C並含 5%的二氧化碳。

最佳化造影時間點評估,以隨機性<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb 造影劑於 PD-L1 表現之大腸癌動物腫瘤 模型(CT-26)進行 ImmunoPET 造影評估。當腫瘤於 小鼠皮下生長至 100-150 mm<sup>3</sup> 後,荷瘤小鼠隨機分成 3 組;接著,透過靜脈注射給予不同 CAR 造影劑<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 mAb(30-50 μCi),待藥物注射後1、 24、48、72、168 小時進行 PET 造影。

#### III. 結果與討論

以隨機法及專一性法製備不同 CAR 之 DFO 抗體 複合體其 SE-HPLC (圖 4A-4D)及質譜分析 (圖 4E-4H) 特性分析結果分別如圖 4 及圖 5 所示。在圖 4 中 所示,隨機法以螯合劑 DFO 對抗體在分子莫耳數比 3 倍、10 倍及 20 倍過量之耦合反應時, SE-HPLC 分析均 可得到化學純度 100%的 DFO-anti-PD-L1 抗體複合體, 溶液外觀澄清透明且無明顯沉澱,且 pH 值皆在 7.0 – 7.5範圍;經質譜分析則分別得到 0.4、1.4及 2.0之 CAR。 在圖 5 中所示,專一性法可分別製得疊氮修飾之 CAR 為 2 及 4 的 N<sub>3</sub>-anti-PD-L1 抗體複合體,其 SE-HPLC 分 析結果顯示其化學純度均為 100%。緊接,在透過利用 SPAAC 點擊化學反應進行 DFO 螯合劑接合,其 SE-HPLC 分析結果亦顯示其產物化學純度為 100%。在利 用質譜分析,則可得 CAR 分別為 2.04 (圖 5C)及 3.62 (圖 5F)。



圖 4 隨機法 DFO-anti-PD-L1 抗體複合體之 SE-HPLC
 (圖 A-D) 及質譜分析結果 (圖 E-H)。



圖 5 專一性 DFO-DBCO-N<sub>3</sub>-anti-PD-L1 抗體複合體之 SE-HPLC 及質譜分析結果。

隨機性製備 DFO 抗體複合體與鋯-89 放射性標誌 其 Radio-TLC 及 HPLC 分析結果顯示,在 <sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1\_3X、<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_10X 及 <sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1\_20X 三種藥物於純化前其放射化學產率分 別可得 73.8%、90.7%及 92.0%;於純化後,則皆可得到 放射化學純度為 100%。專一性製備 DFO 抗體複合體 與鋯-89 放射性標誌其 Radio-TLC 及 HPLC 分析結果顯 示,在 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 2 及 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 4 兩種藥物於純化前其放射化學產率分 別可得 98.6%及 94.4;於純化後,則皆可得到放射化學 純度為 100%。

告-89 放射標誌隨機性及專一性 DFO-anti-PD-L1
 抗體複合體之造影劑體外穩定性測試結果如圖 6 及圖 7
 所示。在圖 6 中,隨機性標誌造影劑 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_3X、<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_10X 及 89Zr-DFO-anti-PD-L1\_20X 在 PBS 中經過 168 小時後之穩定性,其放射化學純度分別為 94.5.±0.6%、96.6±1.1%及 94.3±0.3%;
 顯示穩定性僅隨時間有輕微下降的趨勢,這可能與

DFO 屬六牙基配體與鋯-89 形成錯合物不穩定有關,造 成小量的鋯-89 在 DFO 螯合劑中掉落或解離。在圖 7 中,專一性標誌造影劑 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 2 及 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 4 在 PBS 中經過 168 小 時後之穩定性,其放射化學純度仍維持在 100.0 $\pm$ 0%及 98.6 $\pm$ 0.4%;顯示二者專一性標誌造影劑藥物擁有較好 的穩定性。其中,CAR 為 2 的 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造 影劑又比 CAR 為 4 的 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑有更 高的穩定性,直至 168 小時仍保持 100%的放射化學純 度。



圖 6 鋯-89 放射標誌隨機性 DFO-anti-PD-L1 抗體複合 體於體外穩定性之放射薄層分析結果。圖(●),為<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_3X 造影劑;圖(○),為<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_10X 造影劑於;圖(▼),為<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 20X 造影劑。



圖 7 鋯-89 放射標誌專一性 DFO-anti-PD-L1 抗體複合 體於體外穩定性之放射薄層分析結果。圖( $\bullet$ ),為<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 2 造影劑;圖( $\circ$ ),為<sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1\_CAR of 4 造影劑。

隨機性標誌<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_20X 造影劑於小 鼠大腸結腸癌動物腫瘤膜型之正子造影結果如**圖 8** 所 示。正子斷層結果顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1-mAb 造 影劑於腫瘤累積隨時間先升後降,最佳的腫瘤影像對比約在藥物注射後的24-48小時,而在72小時開始出現減少造影劑之攝取。<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1造影劑除了累積於富含 PD-L1 表現的腫腫瘤外,亦在其它 PD-L1 表現之正常組織器官累積,如脾臟及淋巴結等。此外,造影劑藥物於72小時後,發現明顯於骨骼處有所累積(如脊椎及關節等部位),成因可能為造影劑於體內不穩定,其鋯-89 解離後游離態的 <sup>89</sup>Zr 造成骨累積所致。



圖 8<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_20X 造影劑於 PD-L1 表現之 小鼠大腸癌動物腫瘤模型之正子免疫斷層攝影。造影劑 於靜脈注射後 1 h, 24 h, 48 h, 72 h 及 168 h 後進行造影, 圖中箭頭處指示為腫瘤部位。

# IV. 結論

本研究已完成隨機性及專一性 DFO-anti-PD-L1 mAb 抗體複合體製備建立及特性分析;同時,亦完成二 者 DFO 抗體複合體的錯-89 放射標誌與體外穩定性測 試。藥物體外穩定性結果顯示,隨機性及專一性標誌之 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑均展現良好之藥物穩定性, 其在 PBS 環境中 7 天均能維持大於 94%的放射化學純 度;其中,專一性標誌的 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1\_CAR of 2 造影劑展現出有最佳的體外穩定性。此外,在初期的 隨機法標誌 <sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑體內評估結果 顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑體內評估結果 顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑體內評估結果 顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑體內評估結果 顯示,<sup>89</sup>Zr-DFO-anti-PD-L1 造影劑是現出有最好 的腫瘤造影對比度能力。初期實驗結果證實,<sup>89</sup>Zr-DFOanti-PD-L1 之免疫正子影像劑有能力造影評估其腫瘤 上之 PD-L1 表現,值得進一步發展此<sup>89</sup>Zr-ImmunoPET 造影劑作為 PD-L1/PD-1 免疫檢查點治療前之病人篩選 及治療後之療效評估可能。

# 參考文獻

- [1] Sharma P, Allison JP. The future of immune checkpoint therapy. Science. 2015;348:56-61.
- [2] Haslam A, Gill J, Prasad V. Estimation of the percentage of US patients with cancer who are eligible for and respond to checkpoint inhibitor immunotherapy drugs. JAMA Netw Open. 2020;3:e200423.
- [3] Antonia SJ, Villegas A, Daniel D et al. Overall survival with durvalumab after chemoradiotherapy in stage III NSCLC. N Engl J Med. 2018;379:2342-2350.

# 利用新穎錄 68 標定纖維母細胞活化蛋白抑制劑正子掃描來評估已知或疑似肺癌

# 之病人:與標準氟18葡萄糖正子掃描之比較

# Novel (68)Ga-FAPI PET in evaluation of the patient with known or suspected lung cancer: comparison with standard (18)F-FDG PET

計畫編號: 111-2623-E-182A-001-NU 計畫主持人:何恭之

e-mail: b8301068@gmail.com

計畫共同主持人:楊政達、李適鴻、枋岳甫、郭志熙、徐稟智、吳

青陽、蘇子佩

執行單位:林口長庚紀念醫院

# 摘要

近來在國際上,纖維母細胞活化蛋白抑制劑(FAPI) 之放射性追蹤劑已被廣泛應用在腫瘤正子造影,甚至朝 放射核種治療的方向發展。已有文獻報告顯示,FAPI 正 子掃描對於末期肺癌的轉移偵測表現比常規葡萄糖正 子掃描更好。然而,目前對於其它期別的肺癌或肺結節 之診斷效益仍未明,因此我們提出這項計畫進行研究。 由於這是台灣首次 FAPI 藥物的臨床試驗,新藥審查歷 經超過一年後終獲通過。目前臨床試驗已有六例肺癌病 人接受(68)Ga-FAPI-46 正子造影,初步結果顯示有 3 例 FAPI-PET 能幫助 FDG-PET 得到更明確的癌症分期:1 例確認局部殘餘腫瘤,1 例排除遠端轉移,1 例確認遠 端轉移。FAPI-PET 與 FDG-PET 相較,改變了 50% (3/6) 的檢查結果。我們將持續收案,收集更多數據資料來證 實 FAPI-PET 的臨床效益。

**關鍵詞**: 鎵 68 同位素標定纖維母細胞活化蛋白抑制劑-46,纖維母細胞活化蛋白抑制劑-正子掃描,肺癌

#### Abstract

Recently, in the international community, radiotracers of fibroblast-activation-protein inhibitor (FAPI) have been widely used in positron emission tomography (PET) for tumor imaging, and are even being developed towards radionuclide therapy. Literature has reported that FAPI-PET scans show better performance in detecting metastases in stage IV lung cancer than conventional FDG-PET scans. However, the diagnostic benefits for other stages of lung cancer or lung nodules are still unknown, so we propose this plan for research. Since this is Taiwan's first clinical trial of FAPI drugs, the new drug review took more than a year to pass. Currently, six lung cancer patients have undergone (68)Ga-FAPI-46 PET imaging, and preliminary results show that FAPI-PET has helped obtain clearer cancer staging than FDG-PET in three cases: one confirmed residual local tumor, one ruled out distant metastasis, and one confirmed distant metastasis. Compared to FDG-PET. FAPI-PET changed the results of 50% (3/6) of the exams. We will continue to enroll patients and collect more data to confirm the clinical benefits of FAPI-PET.

Keywords: (68)Ga-FAPI-46; FAPI-PET; lung cancer

#### I. 前言

肺癌是台灣癌症致死原因的第一位,葡萄糖正子掃 描被臨床指引建議用來對肺癌進行分期。然而,偽陽性 與偽陰性的結果使得葡萄糖正子掃描在肺癌分期上有 所限制。此外,葡萄糖正子掃描不建議用於評估肺癌病 人的腦轉移。因此對於肺癌病患,發展新穎放射性追蹤 劑來克服正子葡萄糖之限制是很有前途的。

近來證據顯示,利用一種小分子纖維母細胞活化蛋 白抑制劑(FAPI)之放射性追蹤劑可廣泛應用在腫瘤正 子造影上。對於肺癌,在一些報告中顯示 FAPI 正子掃 描對毛玻璃狀結節與腦轉移之偵測展現極有前景的優 勢,可用來克服葡萄糖正子掃描在評估肺癌上之限制。 一項對於第四期肺癌病人的研究,顯示 FAPI 正子掃描 和葡萄糖正子掃描相較,在腦部、淋巴結、骨頭與肋膜 轉移之偵測上有更好的表現。值得注意的是,以螯合物 為基礎之 FAPI 分子可作為診斷與可能的治療藥劑,在 未來有機會實現腫瘤治療之應用。

在這個計畫中,我們將執行一個前瞻性研究,對於 已知或疑似肺癌之病人,將 FAPI 正子掃描與葡萄糖正 子掃描進行直接比較。我們預期新穎 FAPI 追蹤劑可增 進肺癌之診斷與分期或再分期,並對發展中之 FAPI 放 射核種治療藥劑作為未來肺癌治療之選項有正面的效 益。

# II. 主要內容

藥品審查:此臨床人體試驗案於 2021 年中向衛福 部提出申請,經申覆、諮詢醫藥品查驗中心、重新送件 等冗長審查過程,於 2022 年 9 月底獲衛福部核准通過 (68)Ga-FAPI-46 放射性新藥的臨床人體試驗案。審查過 程中,衛福部對於此放射新藥的藥品原料一直有疑義, 承蒙原能會核能研所惠予協助進行定量核磁共振分析 藥品原料,最終通過審查。

初步人體試驗結果:人體試驗案獲衛福部通過後, 有進行六例檢查。

#### III. 結果與討論

在已收案的六例個案中,為3位男性與3位女性, 年齡分佈為54歲至68歲。其中2例為肺結節診斷,4 例為肺癌分期/再分期。在2例肺結節診斷中,FAPI-PET 與FDG-PET之結果相同;而在4例肺癌分期中,1例 FAPI-PET 與FDG-PET之結果相同,3例FAPI-PET 有 與FDG-PET 不相同之結果。有3位FAPI-PET 能幫助 FDG-PET 得到更明確的癌症分期:1例確認局部殘餘 腫瘤,1例排除遠端轉移,1例確認遠端轉移。FAPI-PET 與FDG-PET 相較,改變了50% (3/6)的檢查結果。

根據我們初期收案六例的結果顯示,FAPI-PET 比 起傳統 FDG-PET 對於肺癌病人可以提供額外的訊息, 幫助更正確的臨床分期。

FAPI FDG

圖:男性 60 歲有第三期非小細胞肺癌經同步化學放射 治療,要進行再分期以評估是否能進行手術。FDG-PET 無法確認是否有肋膜轉移,經 FAPI-PET 確認遠端轉移。

#### IV. 結論

FAPI 核素診療是近年全球核醫學界高度發展的項 目,但台灣一直未能加入這項領域。本計畫完成了非常 艱難的新藥審查,FAPI 藥物審查通過後,可帶動國內 後續 FAPI 相關臨床研究。

作為台灣的首例 FAPI 臨床研究,初步結果顯示 FAPI 的正向效益。本計畫第一年的執行成果,正式開 啟國內 FAPI 核素診療的臨床研究,帶領台灣加入全世 界核醫最新發展的行列。

# 參考文獻

- [1] Cause of Death Statistics, Ministry of Healthcare and Welfare, Taiwan.
- https://www.mohw.gov.tw/cp-4964-55572-2.html,
- [2] National Comprehensive Cancer Network. Non-Small Cell Lung Cancer. https://www.nccn.org/professionals/physician\_gls/p df/nscl.pdf.
- [3] Kandathil A, Kay FU, Butt YM, et al: Role of FDG PET/CT in the Eighth Edition of TNM Staging of Non-Small Cell Lung Cancer. Radiographics 38:2134-2149, 2018
- Hicks RJ, Roselt PJ, Kallur KG, et al: FAPI PET/CT: Will It End the Hegemony of (18)F-FDG in Oncology? J Nucl Med 62:296-302, 2021
- [5] Dendl K, Schlittenhardt J, Staudinger F, et al: The Role of Fibroblast Activation Protein Ligands in Oncologic PET Imaging. PET Clin 16:341-351,

2021

- [6] Loktev A, Lindner T, Mier W, et al: A Tumor-Imaging Method Targeting Cancer-Associated Fibroblasts. J Nucl Med 59:1423-1429, 2018
- [7] Lindner T, Loktev A, Giesel F, et al: Targeting of activated fibroblasts for imaging and therapy. EJNMMI Radiopharm Chem 4:16, 2019
- [8] Lindner T, Loktev A, Altmann A, et al: Development of Quinoline-Based Theranostic Ligands for the Targeting of Fibroblast Activation Protein. J Nucl Med 59:1415-1422, 2018
- [9] Kratochwil C, Flechsig P, Lindner T, et al: (68)Ga-FAPI PET/CT: Tracer Uptake in 28 Different Kinds of Cancer. J Nucl Med 60:801-805, 2019
- [10] Loktev A, Lindner T, Burger EM, et al: Development of Fibroblast Activation Protein-Targeted Radiotracers with Improved Tumor Retention. J Nucl Med 60:1421-1429, 2019
- Meyer C, Dahlbom M, Lindner T, et al: Radiation Dosimetry and Biodistribution of (68)Ga-FAPI-46 PET Imaging in Cancer Patients. J Nucl Med 61:1171-1177, 2020
- [12] Chen H, Pang Y, Meng T, et al: 18F-FDG and 68Ga-FAPI PET/CT in the Evaluation of Ground-Glass Opacity Nodule. Clin Nucl Med 46:424-426, 2021
- [13] Fu W, Liu L, Liu H, et al: Increased FAPI Uptake in Brain Metastasis From Lung Cancer on 68Ga-FAPI PET/CT. Clin Nucl Med 46:e1-e2, 2021
- [14] Giesel FL, Heussel CP, Lindner T, et al: FAPI-PET/CT improves staging in a lung cancer patient with cerebral metastasis. European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging 46:1754-1755, 2019
- Hao B, Wu J, Pang Y, et al: 68Ga-FAPI PET/CT in Assessment of Leptomeningeal Metastases in a Patient With Lung Adenocarcinoma. Clin Nucl Med 45:784-786, 2020
- [16] Wang L, Tang G, Hu K, et al: Comparison of (68)Ga-FAPI and (18)F-FDG PET/CT in the Evaluation of Advanced Lung Cancer. Radiology 303:191-199, 2022
- Baum RP, Schuchardt C, Singh A, et al: Feasibility, Biodistribution, and Preliminary Dosimetry in Peptide-Targeted Radionuclide Therapy of Diverse Adenocarcinomas Using (177)Lu-FAP-2286: First-in-Humans Results. J Nucl Med 63:415-423, 2022
- [18] Millul J, Bassi G, Mock J, et al: An ultra-highaffinity small organic ligand of fibroblast activation protein for tumor-targeting applications. Proc Natl Acad Sci U S A 118, 2021
- [19] Galbiati A, Zana A, Bocci M, et al: A novel dimeric FAP-targeting small molecule-radio conjugate with high and prolonged tumour uptake. J Nucl Med, 2022
- [20] Calais J: FAP: The Next Billion Dollar Nuclear Theranostics Target? J Nucl Med 61:163-165, 2020

蒐集國際大腦解剖標準化軟體之技術、版權、與專利資訊暨評估核醫影像學檢查

之最佳使用時機(II)

# Collecting technique, copyright, and patent information of international brain anatomy standardization software, and evaluate the optimal timepoint to use nuclear medicine imaging in diagnosis evaluations

計畫編號:111-2623-E-182-001 -NU 計畫主持人:蕭穎聰 e-mail:ihsiao@mail.cgu.edu.tw 計畫共同主持人:林昆儒、邱百誼、洪光威、白明奇、曾繁斌、陳 世欣

執行單位:長庚大學醫學影像暨放射科學系

# 摘要

本計劃的目的是透過蒐集並整合最新的腦分子影 像臨床研究文獻,特別關注<sup>99m</sup>Tc-ECD、<sup>18</sup>F-FDG、<sup>99m</sup>Tc-TRODAT-1、<sup>123</sup>I-MIBG、Amyloid PET 等已於目前台灣 臨床使用的放射性核醫藥物,找出這些核醫影像學檢查 之最佳使用時機與流程,以正確地達到鑑別診斷失智症 相關疾病(如阿茲海默症、額顯葉型失智症、帕金森氏 症及路易氏體失智症等),為可能有失智症的病人提供 更適宜的診斷。本計畫為兩年期計畫的第二年,第一年 的研究重點是透過 Pubmed、Web of Science、Google Scholar 中的非系統性搜索以及相關參考文獻,搜尋目 前各種腦影像分析工具軟體,彙整醫學影像分析工具, 以支持臨床選擇合適的影像處理工具來進行影像的分 割、對位以及定量處理。第二年的研究則是彙整相關腦 分子影像臨床研究文獻,經臨床與基礎討論共識來建立 一套更完善的失智症相關影像輔助臨床診斷流程,以利 早期鑑別診斷出失智症相關疾病。

**關鍵詞:**失智症,分子影像,臨床診斷流程,ECD, TRODAT,Amyloid PET

#### Abstract

Molecular imaging using various nuclear medicine tracers is able to provide valuable and complementary diagnosis information for early and differential diagnosis of neurodegenerative diseases resulting dementia. The goal of this project is by collecting and integrating the latest clinical research literature on molecular imaging for dementiarelated diagnosis, to identify the best timing to accurately differentiate dementia-related diseases such as Alzheimer's disease, frontotemporal dementia, Parkinson's disease, and Lewy body dementia. In particular, special focus is on the clinical use of such as 99mTc-ECD > 18F-FDG > 99mTc-TRODAT-1 > <sup>123</sup>I-MIBG > Amyloid PET that have been clinically available in Taiwan. This is the second-year project of the two-year grant, with the research focus in the first year to understand the image processing capabilities and clinical application scenarios of various up-to-date image analysis software, to assist physicians in selecting appropriate software for image segmentation, alignment, and quantitative processing. The research aim in the second year is to consolidate relevant clinical research literature on brain molecular imaging and establish a more comprehensive process of dementia-related imagingassisted clinical diagnosis through consensus review, in order to facilitate the differential and early diagnosis of dementia-related neurodegenerative diseases.

**Keywords** : dementia, molecular imaging, clinical workflow, TRODAT, ECD, Amyloid PET

# I. 前言

面對超高齡化時代的來臨,失智症人口快速增加, 醫療照護成本與需求逐年上升,已然成為全球不可漠視 的公衛議題[1]。令人遺憾地,根據國際失智症協會 (Alzheimer's Disease International, ADI)於 2021 年發佈 的全球失智症報告中顯示,全球 5,500 萬名失智者中約 有 74.5%的失智者未被及時診斷出來[2]。反觀台灣,根 據「失智症防治照護政策綱領暨行動方案 2.0」資料顯 示,截至 2020 年 9 月,亦有高達 45.9%的失智者沒有 及時診斷。以上均透露出目前醫療體系可能在失智診斷 量能上的不足,且伴隨未來該疾病在檢測及療法上的突 破,對早期與區別診斷的需求也勢必將增加。

失智症患者的腦部會持續性地退化,是老年族群中 常見的神經退化性症候群,除了常見的阿茲海默症 (Alzheimer's disease, AD)[3],還包括額顳葉型失智症 (Frontotemporal dementia, FTD)[4]、帕金森氏症 (Parkinson's disease, PD)[5]、路易氏體失智症 (Dementia with Lewy bodies, DLB)[6]等。此外,在失 智症照護上,早期診斷更是舉足輕重的一環[7]。一般臨 床用於評估失智症的診斷工具有:認知功能評估(如 MMSE、CDR、ADAS-Cog 等)[8-10]、實驗室生化檢 驗(如血液、腦脊髓液等檢體分析)[11,12]、腦部影像 檢查(如 CT 電腦斷層、MRI 磁振造影等)[13,14]。然 而,即便有了上述的輔助診斷工具,失智症的病因仍不 易釐清,難以達到早期診斷[15]。所幸有賴於新興的影

像分析軟體、腦血流及腦神經相關核醫影像藥物的研發, 臨床醫師可藉由分子影像,如腦血流與腦代謝造影[16, 17]、多巴胺轉運體造影[18]、心臟造影[19]以及近期著 重研究的類澱粉蛋白沈積正子影像(Amyloid PET)[20] 等,結合不同的生物標記物,以提升臨床醫師早期且正 確區別診斷出失智個案的機會,並適時予以改善病程進 展的治療[21-23]。

隨著國際上新穎診斷腦神經疾病相關之放射性藥物的成功開發及批准使用[24,25],漸漸地亦能在台灣 看到相關追蹤劑於臨床上之診斷應用。面對失智海嘯席 捲而來,這些追蹤劑的臨床使用時機也愈顯重要,有必 要透過臨床研究文獻回顧及臨床資訊來建議診斷失智 症的準則指引,做為臨床醫師在適當時機做出正確地診 斷之參考,強化醫療體系對失智症的診斷量能,因應失 智症所帶來的衝擊與挑戰。

#### II. 主要內容

本計畫旨在對台灣已開放做臨床使用的核醫藥物 如<sup>99m</sup>Tc-ECD、<sup>18</sup>F-FDG、<sup>99m</sup>Tc-TRODAT-1、<sup>123</sup>I-MIBG、 Amyloid PET 等,進行相關研究文獻之蒐集,調查這些 功能性腦分子影像於臨床的用途及效用,加以彙整,並 提出以台灣為主與失智症相關之醫學影像輔助臨床診 斷流程的建議,經由專家小組會議討論來達成共識,找 出核醫腦功能影像學檢查之最佳使用時機,以有效能早 期與鑑別診斷出 AD、FTD、PDD、DLB 等失智症相關 的神經退化性疾病。

#### 2.1 <sup>99m</sup>Tc-ECD 腦血流灌注造影

在腦神經退化性疾病中,很容易觀察到大腦灌注不足和代謝低下的現象[26]。由於神經元功能仰賴於血液中的氧氣,而局部的血管擴張能促進氧氣的輸送。因此,透過<sup>99m</sup>Tc-ECD 能間接地反映出腦皮質活度,藉以觀察腦神經退化性疾病的變化[27]。

典型的 AD 在疾病早期至晚期階段,可分別於後扣 帶回皮質、楔前葉、顳葉、頂葉以及額葉皮質等區域觀 察到低灌注的特徵。該種灌注型態在早期甚至出現症狀 前就會表現出來,有助於臨床上鑑別診斷 AD 與 FTD[28]。另外,根據研究顯示枕葉的灌注減少為 DLB 的特徵,有助於鑑別診斷 AD 與 DLB[29]。因此,美國 神經學會(American Academy of Neurology, AAN)及 歐洲核醫學協會(The European Association of Nuclear Medicine Neuroimaging Committee, ENC)等機構均已應 用該分子影像建立了相關的失智症診斷指南[30, 31]。

## 2.2 <sup>18</sup>F-FDG 葡萄糖代謝造影

<sup>18</sup>F-FDG 可用於評估體內葡萄糖代謝情況,由於其 成像特性,常被應用於癌症的診斷、分期及治療成效的 監測,尤其在乳癌、大腸癌、淋巴癌及黑色素瘤等惡性 腫瘤的診治上有莫大的幫助[32]。

在腦神經影像應用上,<sup>18</sup>F-FDG 可以偵測腦神經退 化性疾病的主要特徵,也就是大腦葡萄糖代謝低下的情 形。與腦血流 SPECT 相比,利用 <sup>18</sup>F-FDG 正子造影技 術可在更短的時間內,提供解析度更高、更精準的腦部 代謝資訊[33]。

在多數研究及臨床診斷經驗下已證實其於檢測早 期 AD 大腦功能變化、疾病分期及鑑別診斷 AD 與其他 失智症等具有高度價值[34-37]。根據由 Norman L Foster 等人[38]所發表的研究結果發現,AD(常於顳頂葉、後 扣帶皮層區域)與FTD(額葉、前扣帶皮層及前顳葉區 域)所顯示的葡萄糖代謝低下區域不盡相同,有助於AD 與FTD的鑑別診斷。另外,枕葉與頂葉代謝低下(特 別是在初級視覺皮質區)與 cingulate island sign 被視為 是DLB的特徵,可用以區分AD與DLB[6]。

#### 2.3 99mTc-TRODAT-1 突觸前多巴胺轉運體造影

99m Tc-TRODAT-1可與突觸前多巴胺轉運體結合, 藉以評估大腦多巴胺神經元的數量,來協助臨床醫師判 斷患者的運動神經障礙疾病是否由多巴胺神經退化所 致[39]。

根據研究顯示,相較於 AD,具有運動障礙臨床症 狀的 PD 或 DLB 患者腦部的紋狀體(包括被殼、尾核), 對 TRODAT-1 的攝取會顯著下降,這個特徵有助於區 分 AD 與 PD 或 DLB[6]。另外,亦有研究指出早期 PD 的臨床症狀常為不對稱的肢體僵硬,通常也能在分子影 像上看到於嚴重患側的對側半球有顯著缺損且呈不對 稱的特徵。因此,單側紋狀體尾部缺損較嚴重為典型的 PD 特徵;若對稱性偏低,且紋狀體頭尾部缺損程度相 近,則可能為 DLB 或其他帕金森氏症候群如多發性系 統退化症 (multiple system atrophy, MSA)、進行性核上 眼神經麻痺 (progressive supranuclear palsy, PSP)[40,41]。

#### 2.4<sup>123</sup>I-MIBG 心臟造影

MIBG 與去甲腎上腺素(Noradrenaline, NA)相似, 聚積於交感神經末鞘內,主要應用於偵測鬱血性心衰竭、 缺血性心臟病及心肌病變[19]。

由於在 PD 或 DLB 的病患身上經常伴隨去甲腎上 腺素交感神經節後的退化,可觀察到<sup>123</sup>I-MIBG 攝取顯 著減少。相較於其他帕金森氏症候群如 MSA、PSP,由 於致病機制的不同,通常對<sup>123</sup>I-MIBG 的攝取不會有顯 著減少的特徵[19];然而,也有部分研究從一些 MSA、 PSP 患者中觀察到<sup>123</sup>I-MIBG 攝取略為下降[42,43]。因 此,此影像特徵主要可用來作為區分 PD 或 DLB 與其 他帕金森氏症候群的一項參考依據。

#### 2.5 Amyloid PET 類澱粉蛋白沉積正子造影

目前廣泛為臨床上使用的 Amyloid 放射性藥物有: <sup>18</sup>F-Florbetapir (AV45)、<sup>18</sup>F-Florbetaben (FBB)及 <sup>18</sup>F-Flute

Metamol (FMM)等,其中<sup>18</sup>F-FBB已獲台灣食藥署 核准能於臨床上做使用。由於其藥物特性可通過血腦屏 障,與腦中的類澱粉蛋白斑塊結合,因此可評估腦中是 否有不正常的類澱粉蛋白斑塊沉積[44-47]。

類澱粉蛋白斑塊是 AD 最主要的神經病理學特徵 [48]。典型的 AD 在疾病早期至晚期階段,可分別於內 側顳葉、海馬迴、外側顳葉、頂葉、額葉及枕葉等皮質 區域觀察到類澱粉蛋白的沉積[44]。當病人腦中無或者 僅有少量的類澱粉蛋白沉積,可以用來排除患者認知障 礙是起因於 AD 的可能性,以鑑別診斷出 AD[49]。此 外,也有臨床研究顯示,Amyloid PET 具區分 PD 與 DLB 的診斷價值,通常 PD 的類澱粉蛋白沉積情況與正常人 相似;反之,DLB 通常有較多的類澱粉蛋白沉積[50]。

綜上所述,每種影像生物標記都有其優勢及局限性, 須根據不同的臨床與實際狀況,選擇最合適的掃描檢查,

以達到實際的臨床效用。

#### III. 結果與討論

#### 3.1 失智症相關疾病之各種腦成像技術文獻蒐集結果

目前已蒐集近年應用於研究失智症相關疾病的各 種腦成像技術之研究文獻,統計結果如表 1。根據統計 結果可發現 MRI 及 PET 影像較常被拿來做應用。可能 是因為依結構性影像(CT/MRI)而言,MRI 通常被認 為是較佳的診斷工具;而依功能性影像(SPECT/PET) 而言,與 SPECT 相比,PET 結合病理相關的影像追蹤 劑,相對更能準確地反映出腦部功能,且提供更好的對 比度及空間解析度。

表1 應用於失智症相關疾病的各種腦成像技術之研究

文	獻	統	計	-結	月	R
	1112					

	MRI	СТ	PET	SPECT
Dementia	1,916	213	882	58
PD/DLB	583	132	224	78

#### 3.2 失智症相關疾病之臨床診斷指引與流程蒐集結果

目前已蒐集共計 35 篇與失智症相關疾病之臨床診 斷指引與流程。並從中篩選出與台灣實際臨床狀況較相 符之診斷流程方針與建議,提供給臨床醫師及相關專家 進行會議討論。主要參照之失智症診斷流程方針包含三 種,如下:

- 方針一:此一方針所提出的診斷流程建議[51-53], 大致可劃分為使用不同影像生物標記的三條途徑, 包括運用 Amyloid PET 或 CSF 於診斷懷疑為 AD 的 患者,以確認其類澱粉蛋白沉積及分佈的狀態;<sup>18</sup>F-FDG 用於診斷懷疑為非 AD 但無動作障礙的患者; 以及若臨床表現有認知障礙且伴隨運動障礙的患者 則建議進行突觸前多巴胺轉運體造影或<sup>123</sup>I-MIBG 心臟造影。
- 2. 方針二:此一方針所提出的診斷流程建議[54-56], 結合了 Amyloid PET/CT 及<sup>18</sup>F-FDG PET/CT,以確 認 PET/CT 的效用與適合應用於何種亞型。若懷疑 為 PD 或 DLB,可考慮以<sup>18</sup>F-FDG 或(和)突觸前 多巴胺轉運體造影做進一步的確認或排除;若懷疑 為 AD,可考慮以 Amyloid PET 或(和)<sup>18</sup>F-FDG 做 進一步的確認或排除;若懷疑為 FTD,則可考慮以 <sup>18</sup>F-FDG 或(和) Amyloid PET 做進一步的確認或排 除。
- 3. 方針三:此一方法所提出的診斷流程建議[57-59], 主要針對 AD、PD 及 DLB,若懷疑為 AD 則可以 Amyloid PET 做進一步的鑑別診斷,並根據結果可 能需要搭配<sup>18</sup>F-FDG 獲得有關代謝型態的資訊;若 懷疑為 PD 或 DLB 則以突觸前多巴胺轉運體造影做 診斷,並可能需再搭配<sup>18</sup>F-FDG 或 Amyloid PET 做 進一步的鑑別診斷。

#### 3.3 審查會議共識結果

經臨床與基礎討論共識,決議以方針一作為核心, 進而調整並提出以台灣為主與失智症相關之醫學影像 輔助臨床診斷流程(如圖1),詳細說明如下:

- 第一步:經病史調查、血液檢查、臨床神經心理功 能評估(如 MMSE、CDR、ADAS-Cog 等),以排 除由酒癮、譫妄、憂鬱、HIV、Vit.B12缺乏、甲狀 腺功能低下等其他因素所引起之失智症。
- 2. 第二步:若有認知功能問題或臨床初步診斷懷疑為 輕度認知功能障礙或其他退化性失智症,則安排結 構性影像(CT/MRI)檢查,評估腦萎縮狀況、排除 其他可能導致神經退化性疾病相關症狀的病因,如 腦血管相關疾病、正常腦壓水腦、腫瘤、腦部感染 或發炎等。若臨床及結構性影像結果趨於特定診斷, 則不需再做進一步的檢查;若仍無明確診斷結果, 則需結合分子影像進行診斷。
- 3. 第三步:依有無動作障礙的臨床表現分為兩大途徑
- (1)途徑一:當病人無動作障礙的臨床表現,建議優先以<sup>18</sup>F-FDG或<sup>99m</sup>Tc-ECD進行掃描,依該影像判 讀結果初步分為典型阿茲海默症型態及非典型阿 茲海默症型態。若為顧頂葉、後扣帶皮層區域代謝 或灌注顯著下降的典型阿茲海默症型態,則建議 結合 Amylolid PET 來鑑別診斷 AD 或其他亞型的 可能性;若該影像分布特徵趨向非典型阿茲海默 症型態,以FTD 為例,於額葉、前扣帶皮層及前 顳葉區域且不對稱性(常偏向左半腦)的代謝或灌 注低下常為其特徵。若於枕葉有代謝或灌注低下 且保留 cingulate island sign 的特徵,則可能為 PD 或 DLB,此時可再結合 TRODAT-1 做進一步的鑑 別診斷。若仍無確切發現或明確診斷結果,則須結 合 Amyloid PET 來確認該認知障礙起因於 AD 的 可能性。
- (2)途徑二:當病人有動作障礙的臨床表現,建議優先以TRODAT-1進行掃描。若無確切發現或明確診斷結果,可再結合<sup>18</sup>F-FDG或<sup>99m</sup>Tc-ECD,來獲取更多的診斷資訊。若TRODAT-1攝取顯著下降,則可依其分布特徵作鑑別診斷,如PD通常於單側紋狀體尾部有較嚴重的缺損、DLB或其他帕金森氏症候群則通常在紋狀體頭尾部有相當的缺損。根據需求可再結合<sup>123</sup>I-MIBG,作為區分PD或DLB(通常有顯著攝取下降)與其他帕金森氏症候群(通常攝取正常)的參考依據。並且可以依患者一年內是否伴隨認知障礙,來區分PDD與DLB。



圖 1 以台灣為主與失智症相關之醫學影像輔助臨床診 斷流程

## IV. 結論

本計畫是為期兩年的整合型研究,第一年的研究成 果包括了解各種影像分析軟體的影像處理能力、最新技 術進展、版權與專利資訊以及臨床使用情境等,包括各 種影像分割、對位及定量處理,利於未來在醫學影像分 析處理平台上的開發;第二年的研究成果為蒐集並彙整 腦分子影像相關臨床研究文獻,針對台灣臨床現況來考 量不同影像生物標記的實用性、成本效益與病患後續治 療方針等,經臨床與基礎討論共識,提出以台灣為主與 失智症相關之影像輔助臨床診斷流程建議,改進既有的 臨床工作流程,利於未來建立以核醫腦功能影像為輔助 利器的失智診斷友善模式,進而降低失智症醫療照護成 本,並避免病患因多次就醫、安排多種檢查而延誤就診。

# 參考文獻

- [1] Collaborators, G.B.D.D.F., *Estimation of the global* prevalence of dementia in 2019 and forecasted prevalence in 2050: an analysis for the Global Burden of Disease Study 2019. Lancet Public Health, 2022. **7**(2): p. e105-e125.
- Serge Gauthier, P.R.-N., José A. Morais, Claire Webster, World Alzheimer Report 2021. 2021: Alzheimer's Disease International. p. 17-18.
- [3] Breijyeh, Z. and R. Karaman, *Comprehensive Review on Alzheimer's Disease: Causes and Treatment.* Molecules, 2020. **25**(24).
- [4] Young, J.J., et al., *Frontotemporal dementia: latest evidence and clinical implications*. Ther Adv Psychopharmacol, 2018. **8**(1): p. 33-48.
- [5] Emamzadeh, F.N. and A. Surguchov, *Parkinson's Disease: Biomarkers, Treatment, and Risk* Factors. Front Neurosci, 2018. 12: p. 612.
- [6] McKeith, I.G., et al., Diagnosis and management of dementia with Lewy bodies: Fourth consensus report of the DLB Consortium. Neurology, 2017. 89(1): p. 88-100.
- [7] Rasmussen, J. and H. Langerman, *Alzheimer's Disease - Why We Need Early Diagnosis.* Degener Neurol Neuromuscul Dis, 2019. **9**: p. 123-130.
- [8] Folstein, M.F., S.E. Folstein, and P.R. McHugh, "Mini-mental state". A practical method for grading the cognitive state of patients for the clinician. J Psychiatr Res, 1975. **12**(3): p. 189-98.
- Morris, J.C., *The Clinical Dementia Rating (CDR):* current version and scoring rules. Neurology, 1993.
   43(11): p. 2412-4.
- [10] Kueper, J.K., M. Speechley, and M. Montero-Odasso, The Alzheimer's Disease Assessment Scale-Cognitive Subscale (ADAS-Cog): Modifications and Responsiveness in Pre-Dementia Populations. A Narrative Review. J Alzheimers Dis, 2018. 63(2): p. 423-444.
- [11] Stevenson-Hoare, J., et al., *Plasma biomarkers* and genetics in the diagnosis and prediction of *Alzheimer's disease*. Brain, 2023. **146**(2): p. 690-699.
- [12] Blennow, K. and H. Zetterberg, *Biomarkers for Alzheimer's disease: current status and prospects for the future.* J Intern Med, 2018. **284**(6): p. 643-

663.

- [13] in Dementia: A NICE-SCIE Guideline on Supporting People With Dementia and Their Carers in Health and Social Care. 2007: Leicester (UK).
- [14] Young, P.N.E., et al., *Imaging biomarkers in neurodegeneration: current and future practices.* Alzheimers Res Ther, 2020. **12**(1): p. 49.
- [15] Beach, T.G., et al., Accuracy of the clinical diagnosis of Alzheimer disease at National Institute on Aging Alzheimer Disease Centers, 2005-2010. J Neuropathol Exp Neurol, 2012. 71(4): p. 266-73.
- [16] Matsuda, H., Role of neuroimaging in Alzheimer's disease, with emphasis on brain perfusion SPECT. J Nucl Med, 2007. 48(8): p. 1289-300.
- [17] Ferrando, R. and A. Damian, Brain SPECT as a Biomarker of Neurodegeneration in Dementia in the Era of Molecular Imaging: Still a Valid Option? Front Neurol, 2021. 12: p. 629442.
- [18] McCleery, J., et al., *Dopamine transporter imaging for the diagnosis of dementia with Lewy bodies.* Cochrane Database Syst Rev, 2015. **1**(1): p. CD010633.
- [19] Orimo, S., et al., 123I-MIBG myocardial scintigraphy for differentiating Parkinson's disease from other neurodegenerative parkinsonism: a systematic review and metaanalysis. Parkinsonism Relat Disord, 2012. 18(5): p. 494-500.
- [20] Chapleau, M., et al., *The Role of Amyloid PET in Imaging Neurodegenerative Disorders: A Review.* J Nucl Med, 2022. **63**(Suppl 1): p. 13S-19S.
- [21] Risacher, S.L. and A.J. Saykin, *Neuroimaging* biomarkers of neurodegenerative diseases and dementia. Semin Neurol, 2013. **33**(4): p. 386-416.
- [22] Porsteinsson, A.P., et al., *Diagnosis of Early Alzheimer's* Disease: *Clinical Practice in 2021*. J Prev Alzheimers Dis, 2021. **8**(3): p. 371-386.
- [23] Aisen, P.S., et al., On the path to 2025: understanding the Alzheimer's disease continuum. Alzheimers Res Ther, 2017. 9(1): p. 60.
- [24] Ni, R. and R.M. Nitsch, Recent Developments in Positron Emission Tomography Tracers for Proteinopathies Imaging in Dementia. Front Aging Neurosci, 2021. 13: p. 751897.
- [25] Jie, C., et al., *Tauvid: The First FDA-Approved PET Tracer for Imaging Tau Pathology in Alzheimer's Disease.* Pharmaceuticals (Basel), 2021. **14**(2).
- [26] Donnemiller, E., et al., Brain perfusion scintigraphy with 99mTc-HMPAO or 99mTc-ECD and 1231-beta-CIT single-photon emission tomography in dementia of the Alzheimer-type and diffuse Lewy body disease. Eur J Nucl Med, 1997.
   24(3): p. 320-5.
- [27] van Dyck, C.H., et al., Comparison of technetium-99m-HMPAO and technetium-99m-ECD cerebral SPECT images in Alzheimer's disease. J Nucl Med, 1996. **37**(11): p. 1749-55.
- [28] Le Ber, I., et al., Demographic, neurological and behavioural characteristics and brain perfusion

SPECT in frontal variant of frontotemporal dementia. Brain, 2006. **129**(Pt 11): p. 3051-65.

- [29] Hanyu, H., et al., Comparative value of brain perfusion SPECT and [(123)I]MIBG myocardial scintigraphy in distinguishing between dementia with Lewy bodies and Alzheimer's disease. Eur J Nucl Med Mol Imaging, 2006. **33**(3): p. 248-53.
- [30] Knopman, D.S., et al., *Practice parameter:* diagnosis of dementia (an evidence-based review). Report of the Quality Standards Subcommittee of the American Academy of Neurology. Neurology, 2001. **56**(9): p. 1143-53.
- [31] Kapucu, O.L., et al., EANM procedure guideline for brain perfusion SPECT using 99mTc-labelled radiopharmaceuticals, version 2. Eur J Nucl Med Mol Imaging, 2009. 36(12): p. 2093-102.
- [32] Almuhaideb, A., N. Papathanasiou, and J. Bomanji, 18F-FDG PET/CT imaging in oncology. Ann Saudi Med, 2011. **31**(1): p. 3-13.
- [33] O'Brien, J.T., et al., 18F-FDG PET and perfusion SPECT in the diagnosis of Alzheimer and Lewy body dementias. J Nucl Med, 2014. 55(12): p. 1959-65.
- [34] Minoshima, S., et al., Brain [F-18]FDG PET for Clinical Dementia Workup: Differential Diagnosis of Alzheimer's Disease and Other Types of Dementing Disorders. Semin Nucl Med, 2021.
   51(3): p. 230-240.
- [35] Kato, T., et al., *Brain fluorodeoxyglucose (FDG) PET in dementia*. Ageing Res Rev, 2016. **30**: p. 73-84.
- [36] Minoshima, S., et al., (18)F-FDG PET Imaging in Neurodegenerative Dementing Disorders: Insights into Subtype Classification, Emerging Disease Categories, and Mixed Dementia with Copathologies. J Nucl Med, 2022. 63(Suppl 1): p. 2S-12S.
- [37] Shivamurthy, V.K., et al., Brain FDG PET and the diagnosis of dementia. AJR Am J Roentgenol, 2015. 204(1): p. W76-85.
- [38] Foster, N.L., et al., *FDG-PET improves accuracy in distinguishing frontotemporal dementia and Alzheimer's disease*. Brain, 2007. **130**(Pt 10): p. 2616-35.
- [39] Kung, H.F., et al., *Imaging of dopamine* transporters in humans with technetium-99m TRODAT-1. Eur J Nucl Med, 1996. **23**(11): p. 1527-30.
- [40] Filippi, L., et al., 123I-FP-CIT semi-quantitative SPECT detects preclinical bilateral dopaminergic deficit in early Parkinson's disease with unilateral symptoms. Nucl Med Commun, 2005. 26(5): p. 421-6.
- [41] Walker, Z., et al., Striatal dopamine transporter in dementia with Lewy bodies and Parkinson disease: a comparison. Neurology, 2004. 62(9): p. 1568-72.
- [42] Kamada, T., et al., *MIBG myocardial scintigraphy in progressive supranuclear palsy.* J Neurol Sci, 2019. **396**: p. 3-7.
- [43] Frohlich, I., et al., Myocardial MIBG scintigraphy: a useful clinical tool? : A retrospective study in 50 parkinsonian patients. Neurol Sci, 2010. 31(3): p.

403-6.

- [44] Hampel, H., et al., *The Amyloid-beta Pathway in Alzheimer's Disease*. Mol Psychiatry, 2021. 26(10): p. 5481-5503.
- [45] Doraiswamy, P.M., et al., Amyloid-beta assessed by florbetapir F 18 PET and 18-month cognitive decline: a multicenter study. Neurology, 2012. 79(16): p. 1636-44.
- [46] Sabri, O., et al., Florbetaben PET imaging to detect amyloid beta plaques in Alzheimer's disease: phase 3 study. Alzheimers Dement, 2015. 11(8): p. 964-74.
- [47] Thal, D.R., et al., [(18)F]flutemetamol amyloid positron emission tomography in preclinical and symptomatic Alzheimer's disease: specific detection of advanced phases of amyloid-beta pathology. Alzheimers Dement, 2015. **11**(8): p. 975-85.
- [48] Ma, C., F. Hong, and S. Yang, *Amyloidosis in Alzheimer's Disease: Pathogeny, Etiology, and Related Therapeutic Directions.* Molecules, 2022. 27(4).
- [49] Suppiah, S., M.A. Didier, and S. Vinjamuri, *The* Who, When, Why, and How of PET Amyloid Imaging in Management of Alzheimer's Disease-Review of Literature and Interesting Images. Diagnostics (Basel), 2019. **9**(2).
- [50] Gomperts, S.N., et al., *Imaging amyloid deposition in Lewy body diseases*. Neurology, 2008. **71**(12): p. 903-10.
- [51] Chetelat, G., et al., Amyloid-PET and (18)F-FDG-PET in the diagnostic investigation of Alzheimer's disease and other dementias. Lancet Neurol, 2020. 19(11): p. 951-962.
- [52] Koric, L., et al., Molecular imaging in the diagnosis of Alzheimer's disease and related disorders. Rev Neurol (Paris), 2016. **172**(12): p. 725-734.
- [53] Abbasi Gharibkandi, N. and S.J. Hosseinimehr, *Radiotracers for imaging of Parkinson's disease*. Eur J Med Chem, 2019. **166**: p. 75-89.
- [54] Dumba, M., et al., *Clinical (18)F-FDG and amyloid brain positron emission tomography/CT in the investigation of* cognitive *impairment: where are we now?* Br J Radiol, 2019. **92**(1101): p. 20181027.
- [55] Sabbagh, M.N., et al., Increasing Precision of Clinical Diagnosis of Alzheimer's Disease Using a Combined Algorithm Incorporating Clinical and Novel Biomarker Data. Neurol Ther, 2017.
   6(Suppl 1): p. 83-95.
- [56] Motara, H., et al., *Clinical impact and diagnostic* accuracy of 2-[(18)F]-fluoro-2-deoxy-d-glucose positron-emission tomography/computed tomography (*PET/CT*) brain imaging in patients with cognitive impairment: a tertiary centre experience in the UK. Clin Radiol, 2017. **72**(1): p. 63-73.
- [57] Orad, R.I. and T. Shiner, *Differentiating dementia* with Lewy bodies from Alzheimer's disease and Parkinson's disease dementia: an update on imaging modalities. J Neurol, 2022. **269**(2): p.

639-653.

- [58] Villemagne, V.L., et al., *Molecular Imaging Approaches in Dementia*. Radiology, 2021. **298**(3): p. 517-530.
- [59] Picillo, M., P. Barone, and M.T. Pellecchia, Merging Clinical and Imaging Biomarkers to Tackle Parkinson's Disease. Mov Disord Clin Pract, 2017. 4(5): p. 652-662.

# 分析 F-18 α-syn-3 於神經毒劑誘發之 PD 動物腦中之分佈 Characterize the brain distribution of F-18 α-syn-3 on neurotoxin induced PD animal models

計畫編號:111-2623-E-182-004-NU 計畫主持人:翁啓昌 e-mail:ccweng@mail.cgu.edu.tw 計畫共同主持人:鍾宜秀、林雅婷 計畫參與人員:何奕霈 執行單位:長庚大學醫學影像暨放射科學系(所)

#### 摘要

帕金森氏症為全球第二常見之神經退化性疾病,病 患常見之臨床異常表現為靜顫、步態不穩等行為之症狀。 根據研究指出其行為異常與病患腦部多巴胺神經元損 傷有關,然而目前病因仍不清楚。因此許多相關之動物 模型利用神經毒劑或基因轉殖之方式來進行相關病因 之探討,如其中 6-OHDA 所誘發之動物模型因其能單 獨誘發半腦產生多巴胺神經損傷而受到廣泛之使用。近 年來根據屍檢結果發現沉積在病患腦部死亡多巴胺神 經元內之 α-synuclein 很有可能為導致多巴胺神經元退 化之主因,然而目前針對該蛋白異常所導致之神經元傷 害之長期觀察結果仍相當匱乏,為了協助該研究之進行, 目前國內及全球皆致力於開發可結合至 α-synuclein 之 放射性試劑,並期望其未來可用於探討其導致多巴胺神 經元退化之影響。本研究計劃主要三個,首先為評估國 內由核研所發展之 F-18-syn-3 於 6-OHDA 處理之動物 模型上之表現及分佈情形,第二則於 PFFs 所誘發之動 物模型上驗證 F-18-syn-3 偵測 α-synuclein 之能力,最 後則是將其與具 PFFs 偵測能力之 SPECT 藥品比較並 確認合併 6-OHDA 與 PFFs 使用之 α-synuclein 累積情 形。

**關鍵詞:**帕金森氏症、6-烴基多巴胺、α-突觸核蛋白、 F-18-syn-3、PFFs

#### Abstract

Parkinson's disease (PD) is the second most common neurodegenerative disease worldwide. The most typical abnormalities of patients are resting tremor, gait instability and other behavioral symptoms. To date, lots of research reports have concluded this abnormal behavior should be related to the gradually loss of dopamine neuron function in the PD patient's brain, however, the pathogenesis mechanism is still poorly understood. As such reason, several neurotoxin-induced or transgenic PD animal models have been applied for delineating the possible pathogen factor of PD. For example, the 6-OHDA one is one of the widely used neurotoxin because of the advantage to construct the hemiparkinosnism model. Recently, according to results from postmortem of PD patients, it has been found that  $\alpha$ -synuclein deposition within the aberrant dopamine neurons should be the mainly possible cause of its degeneration. However, the data of longitudinal observation of DA neuronal damage versus the abnormal accumulation of  $\alpha$ - synuclein is still quite limited. For the better understanding of this relationship, couples of groups including INER are working on developing the novel in vivo a-synuclein-targeting radiotracers and hope these tracers can be used in the future to demonstrate the impact of  $\alpha$ -synuclein dysfunction on dopamine neurons. The aims of this project are listed as follows. Firstly, to evaluate the biodistribution of F-18-syn-3 developed by INER on a common 6-OHDA-treated animal models. The second is to characterize the asynuclein detecting ability of F-18-syn-3 on a PFFs-injected PD animal model. In the end is to compares it's a-synuclein targeting efficacy with a known asynuclein detecting SPECT radiotracer and to confirm if the combination with 6-OHDA and PFFs will speed up the accumulation of  $\alpha$ -synuclein or not.

**Keywords**: Parkinson's Disease, 6-OHDA, α-synuclein, F-18-syn-3, PFFs

#### I. 前言

帕金森氏症 (Parkinson's Disease; PD) 是目前全世 界第二常見之神經退化性疾病,其特徵包括肌肉僵硬、 顫抖和運動協調障礙等症狀。雖然帕金森氏症的病因尚 未完全明確,但過去幾年的研究表明,一種名為 alphasynuclein ( $\alpha$ -syn) 的蛋白質異常堆積於病患腦部多巴胺 神經元內可能與其病理機制有關。 $\alpha$ -syn 是一種在神經 元突觸中常見的蛋白質,它的主要作用是調節神經元的 信號傳遞。然而,過多的 $\alpha$ -syn 可能會形成聚集體,稱 為Lewy 小體,這是帕金森氏症和其他神經退行性疾病 的標誌性特徵之一。近年來,研究人員對 $\alpha$ -syn 的機制 和作用進行了廣泛的研究,並探討了其在帕金森氏症發 病中的作用。這些研究結果有助於加深對帕金森氏症發 病中的作用。這些研究結果有助於加深對帕金森氏症 因和治療的理解,並提供了潛在的治療方法。因此,進 一步研究 alpha-synuclein 與帕金森氏症之間的關聯性, 將對理解和治療這種疾病產生重要的啟示。

為探討帕金森氏病之病理機轉及可能之治療方式、藥品,部分針對多巴胺神經元之放射性藥品被研發出並 投入相關研究或已進入臨床應用。如目前常見於歐洲 PD 病患檢查使用之 DaTscan (又名 Ioflupane、I-123-FP-

CIT) 是一種核醫學放射性示蹤劑, DaTscan 經靜脈注 射後可通過血腦障蔽並進入患者腦內,與多巴胺神經元 表面的轉運蛋白 (dopamine transporter) 結合,同時結 合單光子發射電腦斷層掃描 (SPECT) 成像技術,透過 該示蹤劑於腦內與多巴胺神經元結合之分布影像,進而 評估患者的多巴胺神經元受損情形。除該藥品外,目前 亦有部分相關之示蹤劑如 F-18-FDOPA、Tc-99m-TRODAT 亦可透過結合至多巴胺神經元內不同標的, 進行多巴胺神經元功能性評估;可惜的是,目前針對多 巴胺神經元退化抑或者凋亡之現象並無一有效之臨床 治療方式,因此上述現行之放射性示蹤劑目前僅能用於 追蹤病患腦內多巴胺神經元持續惡化之程度。近年來因 α-syn 被認為可能是造成多巴胺神經元退化之初期原因, 也因此,目前有部分研究團隊投入針對 α-syn 放射活體 示蹤劑之研究,期盼能找到其與 PD 發病機制之關聯性 並提供未來針對該疾病研發相關治療方式之參考。

#### II. 主要內容

為確認針對 α-syn 為標的之放射性示蹤劑於 PD 研 究上之可行性,計畫本年度主要目的為開發及確認該放 射性示蹤劑之放化標幟及生物分佈特性。所試驗之放射 性示蹤劑包括經由國內核能研所自行研發之 F-18-syn-3 以及本實驗室與賓州大學所共同開發之 I-123-N-(3-(4-iodophenyl) isoxazol-5-yl)-4-methoxybenzamide。除確 認其標幟及製備過程方式外,亦透過不同之 PD 動物模 型,結合活體造影、自動輻射顯影、病理組織染色等方 式,確認其生物分布以及確認其對 α-syn 蛋白之結合特 質及潛力。

# III. 結果與討論

#### 3.1 放射性 F-18-Syn-3 製備

該藥品之標幟產率、純度及其所使用之反應前驅物 資訊如表1所示。從該表中可以清楚觀察到,當標幟過 程中所使用之反應前驅物增加至4mg,產率較所方所建 議之前驅物用量增加約1倍左右,因此若考量到後續造 影使用,建議應適度增加標幟之前驅物使用量。此外, 該現象也與2007年一篇報導[<sup>18</sup>F]FP-CIT標幟過程內容 相似,於該文獻中提到於相同反應條件之下,從使用 2mg 之反應前驅物提高到4mg,反應產率約從35%提 升至將近50%[1]。此外,本計畫原所使用之HPLC純 化圖譜,因其梯度之條件容易造成產物滯留時間飄移且 分離純化所需時間較長,因此本計畫以另一 isocratic 方 式進行該藥物純化製備之變更。圖1為經過HPLC純 化、Sep-Pak C18 Plus Light Cartridge 處理後 F-18-syn-3 之分析圖譜,從該圖譜中可以觀察到經過此方式製備之 產物純度大於99%。

表	1	F-18-S	yn-3	標幟	效率	資訊
---	---	--------	------	----	----	----

前驅物(mg) 0.5mg		1.6mg	4mg
產率	<1%	5±2%	12±4%
放射化學純度	N.D.	>90%	>99%
N	3	6	3



圖 1 F-18-SYN-3 經 HPLC 純化之品質確校圖譜。

#### 3.2 小動物活體造影掃描

為確認實驗動物造影最合適之時間點,本計畫使用 3 隻未經任何藥物處理之正常 SD 大鼠進行為 1 個小時 之動態攝影,該影像之時間活度分析曲線結果如圖 2 所 示。從該圖中可以明顯觀察到該藥物於注射後,腦部藥 物的攝取率數值偏低(僅約 0.2-0.3g/mL 左右),且約莫 於注射後 20 分鐘後即於兩側紋狀體之攝取狀況達到平 衡。



# 圖 2 F-18-syn-3 於正常 SD 大鼠之腦部時間活度曲線分 析圖。L-ST: left striatum; R-ST: right striatum; CB: cerebellum.

雖從該藥物於正常大鼠之時間活度曲線觀察所得 進腦率偏低,但由於正常大鼠腦內並無 PD 相關病變之 α-syn 蛋白積累,因此本研究進一步採用經顱內注射 6-OHDA 以及 PFFs 之動物進行該藥物之活體造影實驗確 認該藥物之腦部攝取率以及針對病變蛋白之偵測能力 (圖 3)。從該圖 3(A)可以清楚觀察到,該藥物於腦部之 攝取率相當低,但仍有可能是因為該組實驗動物腦內沒 有該病變蛋白堆積,因此無法觀察到該藥物於腦內積累 之情況。然而,於圖 3(B)中,該實驗動物經本計畫中另 一示蹤劑(I-123-N-(3-(4-iodophenyl) isoxazole-5-yl)-4methoxybenzamide)確認可於該動物腦中觀察到病變蛋 白堆積情形,然而使用該 F-18-syn-3 藥物仍無法於其動 物腦中觀察到明顯訊號堆積之情形,可能代表該藥物作 為該病變蛋白的偵測潛力仍需再多加評估。



圖 3 F-18-syn-3 於(A)6-OHDA 處理過後及(PFFs)處理 過後之代表 PET 活體影像。(\*為 6-OHDA 處理側)

#### 3.3 自動輻射顯影

為確認 F-18-syn-3 作為偵測 α-syn 病變蛋白堆積之 能力,本計畫之自動輻射顯影實驗分為兩部分,其一為 使用活體造影完畢之組織進行離體之自動輻射顯影實 驗,其二為使用經組織染色確認其有大量病變蛋白堆積 之轉殖基因鼠(A53T)腦部切片與該示蹤劑進行體外自 動輻射顯影試驗。其中,由於離體自動輻射顯影的組織 活度較低,因此本次計畫執行過程中無法得到明顯之影 像如圖 4 所示。從該圖中可以明顯觀察到藉由使用該放 射性示蹤劑之標準品,可有效地抑制該放射性示蹤劑於 該組織上之結合訊號(證實該示蹤劑透過本實驗室之製 備方式後放射化學純度極高),可惜的是,與該組織之 anti-Ps129 染色結果圖 4(C)相比幾無吻合之處,該示蹤 劑可能無法有效地用於偵測該病變蛋白。



圖 4 F-18-syn-3 與轉殖基因鼠腦部組織之自動輻射顯 影影像(A)全結合組(B)非特異性結合組(C)α-syn 免疫 組織染色圖片

#### 3.4 免疫組織染色

為確認本實驗中所準備之 6-OHDA 動物模型之正 確性,本計畫於經 6-OHDA 處理過後之動物投入活體 造影實驗之前,隨機選取經少數隻動物進行動物模型之 確效,主要為確認該手術是否成功(多巴胺神經元是否 已遭破壞),採用一般常見之免疫組織染色方式進行該 模型至驗證,結果如圖 5 所示,代表本實驗中所準備之 動物模型正確性無誤。





### IV. 結論

從本年度執行之計劃可以得到一簡便之F-18-syn-3 製備及純化方式,並且可透過增加反應前驅物至4mg進 而增加其產率,相信該產率應足以提供一般研究及動物 實驗使用。然而比較可惜的是該藥物進腦比率偏低,且 與本計劃中所採用之動物及動物組織檢體中所表現出 之 α-syn 病變蛋白結合率偏低,相較之下,本實驗室所 使 用 之 I-123-N-(3-(4-iodophenyl)isoxazol-5-yl)-4methoxybenzamide 有較好的結合表現。但因目前研究指 出該病變蛋白上有許多不同之結合位點,因此可能需再 多準備不同種類之 α-syn 病變蛋白檢體以詳加確認該正 子試劑之結合特質。

# 參考文獻

Lee SJ, Oh SJ, Chi DY, Kang SH, Kil HS, Kim JS, et al. One-step high-radiochemical-yield synthesis of [18F] FP-CIT using a protic solvent system. Nuclear medicine and biology. 2007;34(4):345-51.  $\circ$ 

# 放射治療與 CRISPR 基因編輯活化免疫並應用於腫瘤核醫造影研究 Investigation for radiotherapy and CRISPR gene editing to activate immunity and apply it to tumor nuclear imaging platform

計畫編號:MOST-111-2623-E182-003-NU 計畫主持人:蕭永晉 e-mail:hschin@mail.cgu.edu.tw 計畫共同主持人:程俊嘉 計畫參與人員:謝宗霖 執行單位:長庚大學生物醫學研究所

#### 摘要

放射治療(Radiotherapy, RT)不僅會損傷腫瘤,還會 誘導腫瘤中干擾素(Interferon, IFN)的表達。關於 IFN 在調節肺癌中CD8+T細胞介導的抗腫瘤活性方面的矛 盾機制知之甚少。我們的研究發現,放療後的肺癌細胞 中可誘導 IFN 和 CXCL9/10 的表達。並且經 RT 和 IFNy 預處理的 A549 可顯著激活 CD8+T 細胞,從而顯著抑 制 A549 集落(colony formation)形成。 RNAseq 和隨後 的 qPCR 結果顯示, IFNy 誘導 PD-L1、CXCL10 和 ICAM-1 表現,而 PD-L1 剔除(knockdown)激活 CD8+ T細胞,但ICAM-1 剔除(knockdown)減少CD8+T細胞 活性。在與 A549 細胞共培養時免疫細胞表現出較低 活性的肺癌患者中,CD8+T細胞和非 CD8+ 的 PBMC 中的 CXCR3 和 CXCL10 分別表現減少。我們推測 RT 抑制肺癌並過表達 PD-L1、CXCL10 和 ICAM-1,它們 在調節 CD8+T 細胞活性方面表現出不同的作用。我們 提出 CXCL10 刺激的 CXCR3<sup>high</sup>CD8+T 細胞表現出抗 腫瘤免疫,可能是通過 CXCL10/CXCR3 激活的 LFA-1-ICAM-1 相互作用增強 T 細胞-腫瘤細胞粘附,但 CXCR3<sup>low</sup>CD8+T細胞在肺癌患者中具有低CXCL10, 以至免疫系統主要被 PD-L1 耗盡。

**關鍵詞:**肺癌、CD8+T 細胞、STAT3、PD-L1、放射治 療、免疫治療

#### Abstract

Radiotherapy (RT) not only damages tumors but also induces interferon (IFN) expression in tumors. Little is known about the contradictory mechanism of IFNs in regulating CD8<sup>+</sup> T-mediated anti-tumor activity in lung cancer. This study found that RT induced IFNs and CXCL9/10 expression in the RT-treated lung cancer cells. Specifically, RT- and IFN $\gamma$ -pretreated A549 significantly activated CD8<sup>+</sup> T cells, resulting in significant inhibition of A549 colony formation. RNAseq and consequent qPCR results revealed that IFN $\gamma$  induced PD-L1, CXCL10, and ICAM-1, whereas PD-L1 knockdown activated CD8<sup>+</sup> T cells but ICAM-1 knockdown diminished CD8<sup>+</sup> T cells activation. We further demonstrated that CXCR3 and CXCL10 decreased in the CD8<sup>+</sup> T cells and nonCD8<sup>+</sup> PBMCs, respectively, in the patients with lung cancer that expressed lower reactivation as co-cultured with A549 cells. We speculated that RT suppressed lung cancer and overexpress PD-L1, CXCL10, and ICAM-1, which exhibited different roles in regulating CD8<sup>+</sup> T cell activity. We propose that CXCR3<sup>high</sup>CD8<sup>+</sup> T cells stimulated by CXCL10 exhibit anti-tumor immunity, possibly by enhancing T cells-tumor cells adhesion through CXCL10/CXCR3-activated LFA-1-ICAM-1 interaction, but CXCR3<sup>low</sup>CD8<sup>+</sup> T cells with low CXCL10 in patients with lung cancer were exhausted by PD-L1 dominantly. **Keywords:** Lung Cancer \ CD8+T cell \ STAT3 \ PD-L1 \ Radiotherapy \ Immunotherapy

# I. 前言

Lung cancer is the most common type and the leading cause of cancer-related deaths worldwide, 80% of which are non-small cell lung cancer (NSCLC). In Asia, patients with lung adenocarcinoma have dominantly appeared in non-smokers with EGFR-positive and exon19 deletion and exon21 L858R mutation [1]. Therefore, targeted therapies like tyrosine kinase inhibitors are promising to eradicate lung cancer in clinical practice [2]. For other types of lung cancer without dominant gene mutations, targeted therapies are not suggested.

Immunotherapies are currently applied in clinical practice and result in good therapeutic outcomes in patients with lung cancer [3]. For patients without adequate application of targeted therapies, immunotherapies are an option for lung tumor treatment. One of the immunotherapies is based on the activation of CD8<sup>+</sup> T cells through blocking immune checkpoints by antibodies targeting PD-1 and CTLA4 in CD8<sup>+</sup> T cells [4], enhancing CD8<sup>+</sup> T cells to recognize tumor cells by TCR-MHCI:neoantigens interaction and secrete granzymes and perforin to elicit tumor cell apoptosis and death [5]. In principle, it is well known that tumor cells express PD-L1 and bind to PD-1 to exhaust CD8<sup>+</sup> T cells [6-8]. One of the factors to stimulate PD-L1 expression in tumor cells is interferon (IFN). Therefore, tumor cells are considered to escape CD8<sup>+</sup> T cell attack in the inflammatory tumor microenvironment due to overexpression of PD-L1 derived by IFNs. However, besides induction of PD-L1 in the inflammatory microenvironment, IFNs also mediate MHCI expression in tumors [9, 10] that theoretically enhances

recognition and activation of CD8<sup>+</sup> T cells. Meanwhile, it has been reported that IFNs enhance anti-tumor immune responses [11], which are positively associated with better patient survival in several cancers [12, 13]. The observation is contradictory for IFNs in tumor treatment. Therefore, the investigation of the detailed mechanism is required to understand the role of IFNs in the tumor microenvironment.

IFNs are not only secreted by immune cells, but also by virus-infected cells. Short viral DNAs or RNAs specifically activate STING signaling pathways, resulting and interferon-stimulated in IFNs genes (ISGs) overexpression [14, 15]. Literature has indicated that radiotherapy (RT)-treated tumors also mediate the expression of type I IFNs [16]. The possible mechanism is that RT-damaged DNA induces consequent activation of cGAS-STING signaling pathways, resulting in type I IFNs and ISGs expression and secretion [17, 18]. In practice, literature has indicated that RT enhances the homing rate of immune cells to the tumor microenvironment [19, 20] that is stimulated by IFNs and ISG CXCL9/10 [21, 22]. However, we know that IFNs induce PD-L1 expression in tumors [23, 24], which possibly exhausts CD8<sup>+</sup> T cells. Current studies have demonstrated that RT improves the anti-tumor efficacy of clinical immunotherapies targeting PD-1 [25-27]. Indeed, overexpression of PD-L1 is positively correlated with tumor immunotherapies [28], but controversial is how PD-L1, which is already abundantly expressed in tumors, continues to express and increase anti-PD-1 immunotherapy. We propose that the phenomena may be derived from other molecules mediated by IFNsmediated other gene expressions, such as MHCI for neoantigens presentation [29] or ICAM-1 for T lymphocyte adhesion [30].

We previously demonstrated that RT induced IFNs in lung A549 cancer cells [21] and HCC PLC5 cells that further induced CD8<sup>+</sup> T cell activation [31]. However, we found that RT also induced PD-L1 expression in PLC5 cells [31]. We, therefore, hypothesize RT induces not only PD-L1 but also CD8<sup>+</sup> T cells-recognized molecules for further activation of CD8<sup>+</sup> T cells in the tumor microenvironment. This study intended to investigate the RT effect on lung cancer cells to explain the clinical phenomena that RT induces immune system activation in tumor patients, particularly for CD8<sup>+</sup> T cells since CD8<sup>+</sup> T cells are the main eradicator of tumors.



II. 主要內容

Main findings:

1. Radiotherapy enhances healthy PBMCs to suppress lung cancer in vitro (Figure 1), and recruits CD8<sup>+</sup> T cells

detected by nuclear imaging (Figure 2).

- 2. Radiotherapy increases IFNs and augments PBMCs for suppressing A549 in vitro.
- Radiotherapy induces PD-L1, CXCL10, and ICAM-1 expression through autocrine IFNs stimulation in lung cancer.
- 4. IFNγ mediates PD-L1 and ICAM-1 expression through the JAK2-STAT3 signaling pathway in A549.
- Knockdown of PD-L1 increases activation of CD8<sup>+</sup> T cells to suppress tumors.
- 6. Knockdown of ICAM-1 reduces PBMCs-mediated anti-A549 colony formation and CD8<sup>+</sup> T cell activation.
- 7. CXCR3 and its binding ligand CXCL10 decreased in patients with late-stage lung cancer, contributing to the reduction of tumor-mediated immune activation.



Figure 1. Radiotherapy (RT) increases IFNexpression that stimulates cancer cells to reactivate CD8<sup>+</sup> T cells. (A) IFNs, including IFNA and IFNG, and ISGs, including CXCL9, CXCL10, and ISG15, were detected in A549 and LL/2 cells treated with irradiation and (B) 1  $\mu$ M and 10  $\mu$ M of MSA2, an agonist of STING, for 24 h. (C) A549 cells pretreated with 10 Gy of irradiation and 20 ng/mL of IFNy were incubated with healthy PBMCs for 24 h. Consequently, the cytotoxic markers granzyme B (GZMB), perforin (PRF1), and activation markers CD69, IFNG, and exhaustion marker PD-1 were detected using qPCR in the CD8<sup>+</sup> T cells isolated using a MACS CD8<sup>+</sup> T Cell Isolation Kit. (D) IFNa and IFNy levels were detected in the cultured medium of A549 treated with 0 Gy and 10 Gy of irradiation using Western blots after IFNa and IFNy captured by coimmunoprecipitation. (E) Meanwhile, colony formation was used to assess the anti-A549 activity of PBMCs in the A549 pretreated with 20 ng/mL of IFNa and IFNy for 24 h compared to untreated A549. \*p < 0.05.



Figure 2. Radiotherapy (RT)-treated LL/2 mixed with LL/2 enhances CD8<sup>+</sup> T cell recruitment towards tumor microenvironment detected using <sup>111</sup>In-labeled aCD8 antibody nuclear imaging platform. (A) Mouse LL/2 lung tumor cells were injected into the subcutaneous legs of mice of 5 weeks old C57BL/6 mice to establish the tumor xenograft model. (B) A PET/SPECT nuclear imaging platform was used to detect the injected <sup>111</sup>In-labeled aCD8 antibody in the LL/2 and LL/2 mixed with 10 Gy RT-LL/2 tumor xenografts. (C) Quantification of radioactive counts in tumors was investigated and compared. \*p < 0.05. T: tumor; S: spleen; L: liver.

# III. 結果與討論

In this study, we validated that RT suppressed lung tumor cell proliferation by measuring tumor cell viability and colony formation. Meanwhile, we validate that RTinduced type I IFNs and ISGs expression in A549 and LL/2 lung cancer cells. Particularly, we found that RT- and IFNypretreated A549 significantly induced higher CD8<sup>+</sup> T cell activation compared to untreated A549 cells, resulting in higher anti-tumor immunologic activity by measurement of A549 colony formation. It is an interesting finding that IFNs-treated tumors enhance CD8<sup>+</sup> T cells to recognize and suppress tumors. Through RNAseq and consequent validation using qPCR and flow cytometry, we demonstrated that RT and IFNs induced not only PD-L1 but also CXCL10 and ICAM-1. Therefore, it makes sense that PD-L1 and ICAM-1 correlatedly expressed in genesurvival rate and gene-immunotherapeutic efficacy in patients with cancers. Interestingly, PD-L1 and ICAM-1 presented opposite CD8<sup>+</sup> T cell-regulatory functions; PD-L1 suppressed CD8<sup>+</sup> T but ICAM-1 activated it. These findings provide evidence and a possible mechanism that RT and IFNs enhance tumor immunotherapies in certain tumor types.

PD-L1 binds to PD-1 on CD8<sup>+</sup> T cells to furthermore exhaust CD8<sup>+</sup> T cells for protecting autologous cells. Therefore, PD-L1 and PD-1 are the therapeutic targets in tumor immunotherapies, such as pembrolizumab and nivolumab targeting PD-1; Atezolizumab targeting PD-L1 clinical practice. Literature has observed that in overexpressed PD-L1 is highly correlated with anti-PD-1 immunotherapy [28]. However, the controversy is how PD-L1, which is already abundantly expressed in tumors, continues to express and to further increase anti-PD-1 study immunotherapy. Our demonstrated another possibility that overexpression of CXCL10 and ICAM-1 in tumor cells plays a significant role to help CD8<sup>+</sup> T cell adhesion and further activation by recognizing the alloantigens in A549 cells. We notice that LL/2 cells were not suppressed by the syngeneic splenocytes from a C57BL/6 mouse, therefore, the experiment investigating the role of ICAM-1 was performed in A549-to-PBMCs considerably being allogeneic rejection. Based on the observation that RT induces PD-L1, CXCL10, and ICAM-1 at the same time, RT combined with anti-PD-1 immunotherapy is suggested in clinical practice for patients with lung cancer.

CXCR3 is a surface receptor expressed in T lymphocytes responding to T cell transmigration toward CXCL9- and CXCL10-overexpressed inflammatory tissue microenvironment [32, 33]. LFA-1 activation is mediated by CXCL9/10-CXCR3 binding and consequent Kindline-3-mediated cytoskeletal change in CD8<sup>+</sup> T cells [34], which further interact with ICAM-1 expressed on the surface of tumors [35]. Specifically, we found that CXCR3 decreased in the CD4<sup>+</sup> T and CD8<sup>+</sup> T cells in patients with lung cancer. We speculate that low-expression of CXCR3 in T lymphocytes may reduce their recruitment into the tumor microenvironment [33]. Particularly, higher tumorinfiltrated CD8<sup>+</sup> T cells are correlated with better immunotherapeutic efficacy [36]. Therefore. low expression of CXCR3 of T lymphocytes in a patient with lung cancer may be a target for exchanging tumors from "cold tumors" to "hot tumors" for improving clinical immunotherapeutic efficacy. Meanwhile, we notice that CXCL10 is also low-expressed in the PBMCs of patients with lung cancer compared to healthy volunteers, and in a patient's PBMCs co-incubated with A549 cells compared to a healthy volunteer. CXCL9 and CXCL10 are secreted by DCs after phagocytosis of virus or virus-infected cells, which furthermore recruit T lymphocytes. The cGAS-STING pathway mediates induction of CXCL9/10 in DCs, therefore, STING agonists are potential as therapeutic agents [37, 38] for activating DCs and recruiting T lymphocytes in tumor treatment. We demonstrated that RT also induces CXCL9 and CXCL10 expression which was considered through activation of the cGAS-STING signaling pathway by cytosolic DNA binding to cGAS [16]. This study further demonstrated that autocrine IFNs mediated CXCL10 expression. Therefore, RT is considered for the enhancement of T lymphocytes recruitment toward the tumor microenvironment. exchanging tumor characteristics from "cold tumors" to "hot tumors".

#### IV. 結論

We demonstrated that RT not only suppressed lung tumor cells in vitro but also improved PBMCs- and splenocytes-mediated anti-tumor activity. Meanwhile, IFNy-IFNGR1/2-JAK2-STAT3 axis mediated PD-L1 and ICAM-1 expression in A549, which exhibited opposite roles for CD8<sup>+</sup> T cell activation, whereas PD-L1 exhausted CD8<sup>+</sup> T cells but ICAM-1 activated it (Fig 3). We propose that CXCR3<sup>high</sup>CD8<sup>+</sup> T in healthy volunteers exhibited antitumor capacity by CXCL10/CXCR3-activated LFA-1-ICAM-1 interaction and resulted in consequent CD8<sup>+</sup> T cell activation (Fig 3A). Otherwise, CXCR3<sup>low</sup>CD8<sup>+</sup> T in patients with lung cancer was exhausted by PD-L1 dominantly (Fig 3B). Meanwhile, autocrine IFNs mediated CXCL10 and ICAM-1 expression in RT-treated tumors, which is potential to enhance LFA-1-ICAM-1 interaction for further activating anti-tumor CD8<sup>+</sup> T cells (Fig 3C). The study illustrates the potential mechanism of RT and IFNs in regulating CD8<sup>+</sup> T cell activation in lung cancer.



Figure 3. The proposed hypothesis illustrates the potential mechanism of PD-L1, CXCL10, and ICAM-1 for regulating CD8<sup>+</sup> T cell activation in lung cancer. (A) CXCR3<sup>high</sup>CD8<sup>+</sup>T in healthy volunteers recognized ICAM-1 through CXCL10-activated LFA-1 to stimulate granzyme B (GZMB) and perforin (PRF1) induction in CD8<sup>+</sup> T cells. High levels of CXCL10 in healthy PBMCs were considered to bind to CXCR3, resulting in activation of LFA-1 and interaction with ICAM-1. (B). Otherwise, CXCR3<sup>low</sup>CD8<sup>+</sup>T with low levels of CXCL10 in patients with lung cancer were dominantly exhausted by PD-L1, resulting in a reduction of anti-tumor immunological activity in CD8+ T cells. (C) Irradiation (IR) induced autocrine IFNs stimulation for JAKs-STAT3 activation and consequent PD-L1 and ICAM-1 overexpression in lung cancer. Meanwhile, IR also induced CXCL10 expression in lung cancer cells to potentially activate CD8<sup>+</sup> T cells through enhancing T cells adhesin with tumor cells by LFA-1-ICAM-1 interaction. RT: radiotherapy.

# 参考文獻

- [1] K. Shostak, A. Chariot, EGFR and NF-kappaB: partners in cancer, Trends Mol Med 21(6) (2015) 385-93.
- [2] Y.J. Kim, M. Oremus, H.H. Chen, T. McFarlane, D. Fearon, S. Horton, Factors affecting treatment selection and overall survival for first-line EGFRtyrosine kinase inhibitor therapy in non-small-cell lung cancer, J Comp Eff Res 10(3) (2021) 193-206.
- [3] W.G. Kerr, J.D. Chisholm, The Next Generation of Immunotherapy for Cancer: Small Molecules Could Make Big Waves, J Immunol 202(1) (2019) 11-19.
- [4] A. Kalbasi, A. Ribas, Tumour-intrinsic resistance to immune checkpoint blockade, Nat Rev Immunol 20(1) (2020) 25-39.
- [5] S.P. Cullen, M. Brunet, S.J. Martin, Granzymes in cancer and immunity, Cell Death Differ 17(4) (2010) 616-23.
- [6] I. Mellman, G. Coukos, G. Dranoff, Cancer immunotherapy comes of age, Nature 480(7378) (2011) 480-9.
- [7] V.K. Anagnostou, J.R. Brahmer, Cancer immunotherapy: a future paradigm shift in the treatment of non-small cell lung cancer, Clin Cancer Res 21(5) (2015) 976-84.
- [8] K. Sideras, K. Biermann, J. Verheij, B.R. Takkenberg, S. Mancham, B.E. Hansen, H.M. Schutz, R.A. de Man, D. Sprengers, S.I. Buschow, M.C. Verseput, P.P. Boor, Q. Pan, T.M. van Gulik, T.

Terkivatan, J.N. Ijzermans, U.H. Beuers, S. Sleijfer, M.J. Bruno, J. Kwekkeboom, PD-L1, Galectin-9 and CD8(+) tumor-infiltrating lymphocytes are associated with survival in hepatocellular carcinoma, Oncoimmunology 6(2) (2017) e1273309.

- [9] F. Zhou, Molecular mechanisms of IFN-gamma to up-regulate MHC class I antigen processing and presentation, Int Rev Immunol 28(3-4) (2009) 239-60.
- [10] Y. Shirayoshi, P.A. Burke, E. Appella, K. Ozato, Interferon-induced transcription of a major histocompatibility class I gene accompanies binding of inducible nuclear factors to the interferon consensus sequence, Proc Natl Acad Sci U S A 85(16) (1988) 5884-8.
- [11] X. Cao, Y. Liang, Z. Hu, H. Li, J. Yang, E.J. Hsu, J. Zhu, J. Zhou, Y.X. Fu, Next generation of tumoractivating type I IFN enhances anti-tumor immune responses to overcome therapy resistance, Nat Commun 12(1) (2021) 5866.
- G.H. Windbichler, H. Hausmaninger, W. Stummvoll, A.H. Graf, C. Kainz, J. Lahodny, U. Denison, E. Muller-Holzner, C. Marth, Interferon-gamma in the first-line therapy of ovarian cancer: a randomized phase III trial, Br J Cancer 82(6) (2000) 1138-44.
- A. Giannopoulos, C. Constantinides, E. Fokaeas, C. Stravodimos, M. Giannopoulou, A. Kyroudi, A. Gounaris, The immunomodulating effect of interferon-gamma intravesical instillations in preventing bladder cancer recurrence, Clin Cancer Res 9(15) (2003) 5550-8.
- [14] W.M. Schneider, M.D. Chevillotte, C.M. Rice, Interferon-stimulated genes: a complex web of host defenses, Annu Rev Immunol 32 (2014) 513-45.
- [15] R. Yu, B. Zhu, D. Chen, Type I interferonmediated tumor immunity and its role in immunotherapy, Cell Mol Life Sci 79(3) (2022) 191.
- M. McLaughlin, E.C. Patin, M. Pedersen, A. Wilkins, M.T. Dillon, A.A. Melcher, K.J. Harrington, Inflammatory microenvironment remodelling by tumour cells after radiotherapy, Nat Rev Cancer 20(4) (2020) 203-217.
- [17] A.A. Lugade, E.W. Sorensen, S.A. Gerber, J.P. Moran, J.G. Frelinger, E.M. Lord, Radiationinduced IFN-gamma production within the tumor microenvironment influences antitumor immunity, J Immunol 180(5) (2008) 3132-9.
- J. Le Naour, L. Zitvogel, L. Galluzzi, E. Vacchelli,
   G. Kroemer, Trial watch: STING agonists in cancer therapy, Oncoimmunology 9(1) (2020) 1777624.
- [19] R. Ganss, E. Ryschich, E. Klar, B. Arnold, G.J. Hammerling, Combination of T-cell therapy and trigger of inflammation induces remodeling of the vasculature and tumor eradication, Cancer Res 62(5) (2002) 1462-70.
- [20] S. Matsumura, B. Wang, N. Kawashima, S. Braunstein, M. Badura, T.O. Cameron, J.S. Babb, R.J. Schneider, S.C. Formenti, M.L. Dustin, S.

Demaria, Radiation-induced CXCL16 release by breast cancer cells attracts effector T cells, J Immunol 181(5) (2008) 3099-107.

- [21] C.C. Cheng, Y.F. Chang, A.S. Ho, Z.L. Sie, J.S. Chang, C.L. Peng, C.C. Chang, Irradiation Mediates IFNalpha and CXCL9 Expression in Non-Small Cell Lung Cancer to Stimulate CD8(+) T Cells Activity and Migration toward Tumors, Biomedicines 9(10) (2021).
- X. Han, Y. Wang, J. Sun, T. Tan, X. Cai, P. Lin, Y. Tan, B. Zheng, B. Wang, J. Wang, L. Xu, Z. Yu, Q. Xu, X. Wu, Y. Gu, Role of CXCR3 signaling in response to anti-PD-1 therapy, EBioMedicine 48 (2019) 169-177.
- [23] M. Mandai, J. Hamanishi, K. Abiko, N. Matsumura, T. Baba, I. Konishi, Dual Faces of IFNgamma in Cancer Progression: A Role of PD-L1 Induction in the Determination of Pro- and Antitumor Immunity, Clin Cancer Res 22(10) (2016) 2329-34.
- [24] Q. Lei, D. Wang, K. Sun, L. Wang, Y. Zhang, Resistance Mechanisms of Anti-PD1/PDL1 Therapy in Solid Tumors, Front Cell Dev Biol 8 (2020) 672.
- [25] J.W. Hodge, C. Guha, J. Neefjes, J.L. Gulley, Synergizing radiation therapy and immunotherapy for curing incurable cancers. Opportunities and challenges, Oncology (Williston Park) 22(9) (2008) 1064-70; discussion 1075, 1080-1, 1084.
- [26] C. Lu, J. Guan, S. Lu, Q. Jin, B. Rousseau, T. Lu, D. Stephens, H. Zhang, J. Zhu, M. Yang, Z. Ren, Y. Liang, Z. Liu, C. Han, L. Liu, X. Cao, A. Zhang, J. Qiao, K. Batten, M. Chen, D.H. Castrillon, T. Wang, B. Li, L.A. Diaz, Jr., G.M. Li, Y.X. Fu, DNA Sensing in Mismatch Repair-Deficient Tumor Cells Is Essential for Anti-tumor Immunity, Cancer Cell 39(1) (2021) 96-108 e6.
- [27] A.K. Salama, M.A. Postow, J.K. Salama, Irradiation and immunotherapy: From concept to the clinic, Cancer 122(11) (2016) 1659-71.
- [28] Y. Xu, B. Wan, X. Chen, P. Zhan, Y. Zhao, T. Zhang, H. Liu, M.Z. Afzal, S. Dermime, S.N. Hochwald, P. Hofman, H. Borghaei, D. Lin, T. Lv, Y. Song, A.M.E.L.C.C.G. written on behalf of, The association of PD-L1 expression with the efficacy of anti-PD-1/PD-L1 immunotherapy and survival of non-small cell lung cancer patients: a meta-analysis of randomized controlled trials, Transl Lung Cancer Res 8(4) (2019) 413-428.
- [29] M. Martini, M.G. Testi, M. Pasetto, M.C. Picchio,

G. Innamorati, M. Mazzocco, S. Ugel, S. Cingarlini, V. Bronte, P. Zanovello, M. Krampera, F. Mosna, T. Cestari, A.P. Riviera, N. Brutti, O. Barbieri, L. Matera, G. Tridente, M. Colombatti, S. Sartoris, IFN-gamma-mediated upmodulation of MHC class I expression activates tumor-specific immune response in a mouse model of prostate cancer, Vaccine 28(20) (2010) 3548-57.

- [30] E. Dong, X.Z. Yue, L. Shui, B.R. Liu, Q.Q. Li, Y. Yang, H. Luo, W. Wang, H.S. Yang, IFN-gamma surmounts PD-L1/PD1 inhibition to CAR-T cell therapy by upregulating ICAM-1 on tumor cells, Signal Transduct Target Ther 6(1) (2021) 20.
- [31] C.C. Cheng, A.S. Ho, C.L. Peng, J. Chang, Z.L. Sie, C.L. Wang, Y.L. Chen, C.Y. Chen, Sorafenib suppresses radioresistance and synergizes radiotherapy-mediated CD8(+) T cell activation to eradicate hepatocellular carcinoma, Int Immunopharmacol 112 (2022) 109110.
- [32] J.C. Nolz, G.R. Starbeck-Miller, J.T. Harty, Naive, effector and memory CD8 T-cell trafficking: parallels and distinctions, Immunotherapy 3(10) (2011) 1223-33.
- [33] M.T. Chow, A.J. Ozga, R.L. Servis, D.T. Frederick, J.A. Lo, D.E. Fisher, G.J. Freeman, G.M. Boland, A.D. Luster, Intratumoral Activity of the CXCR3 Chemokine System Is Required for the Efficacy of Anti-PD-1 Therapy, Immunity 50(6) (2019) 1498-1512 e5.
- [34] T. Ni, A.C. Kalli, F.B. Naughton, L.A. Yates, O. Naneh, M. Kozorog, G. Anderluh, M.S. Sansom, R.J. Gilbert, Structure and lipid-binding properties of the kindlin-3 pleckstrin homology domain, Biochem J 474(4) (2017) 539-556.
- [35] S. Li, H. Wang, B. Peng, M. Zhang, D. Zhang, S. Hou, Y. Guo, J. Ding, Efalizumab binding to the LFA-1 alphaL I domain blocks ICAM-1 binding via steric hindrance, Proc Natl Acad Sci U S A 106(11) (2009) 4349-54.
- [36] B. Janji, M. Hasmim, S. Parpal, G. Berchem, M.Z. Noman, Firing up the cold tumors by targeting Vps34, Oncoimmunology 9(1) (2020) 1809936.
- [37] C. Zhu, J. Li, M. Yao, C. Fang, Potential for treatment benefit of STING agonists plus immune checkpoint inhibitors in oral squamous cell carcinoma, BMC Oral Health 21(1) (2021) 506.
- [38] A. Amouzegar, M. Chelvanambi, J.N. Filderman, W.J. Storkus, J.J. Luke, STING Agonists as Cancer Therapeutics, Cancers (Basel) 13(11) (2021).

# 輻射防護與放射醫學科技(II)

# 發展三氮雜環壬烷螯合放射性氟化鋁之成纖細胞活化蛋白正子造影劑 Development of Al<sup>18</sup>F-labeled NOTA-FAPI-Conjugate Tracers for PET Imaging

計畫編號:MOST 111-2623-E-A49-003-NU

計畫主持人:陳傳霖 e-mail:clchen2@nycu.edu.tw

计畫參與人員:張瑋岷

執行單位:國立陽明交通大學醫放系

#### 摘要

在腫瘤基質的組成中,成纖細胞亞型被稱作癌症相 關成纖維細胞(cancer associated fibroblast; CAF)其角色 與腫瘤的生長、轉移及發展有密切關聯,其中成纖細胞 活化蛋白(fibroblast associated protein; FAP)的表現是區 別正常的成纖維細胞與癌症相關成纖細胞(CAF)的重 要標的,因此專一性的成纖細胞活化蛋白抑制劑(FAPI) 亦是藥物開發上重要的方向,其中 4-喹啉苷胺基 2-氰 基吡咯烷(4-Quinolinoyl)glycyl-2-cyanopyrrolidine)骨架 的化合物具有很好的 FAP 抑制能力,因此在我們基於 這個結構以 NOTA 配體修飾一個較短的連接基並用 F-18 標記作為成纖維細胞活化蛋白表達腫瘤成像的 PET 示踪劑。方法:<sup>18</sup>F-AIF-1 與 <sup>111</sup>In-FAPI-04 之標誌 前驅物及標準品可經由數步驟的合成方式製備。將<sup>18</sup>F-AIF-1 標誌前驅物與[Al<sup>18</sup>F]<sup>2+</sup>在 110 ℃ 反應 15 分鐘即 可獲得<sup>18</sup>F-AlF-1,而<sup>111</sup>In-FAPI-04</sup>則可由標誌前驅物 與<sup>111</sup>In<sup>3+</sup> 離子在 90 ℃ 反應 10 分鐘獲得, 可藉由高解 析度質譜,放射性薄膜層析及高效能液相層析進行分析, 小動物造影則以分別荷有 FAP-HT-1080 與 wild type-HT-1080 小鼠進行動物造影。結果:<sup>18</sup>F-AIF-1 標誌前驅 物及標準品與 <sup>111</sup>In-FAPI-04 標誌前驅物的合成皆有合 適的產率,<sup>18</sup>F-AlF-1 放射化學產率為> 30% (n=5);放 射化學純度大於 95%。而 <sup>111</sup>In-FAPI-04 放射化學產率 為>95% (n=3); 放射化學純度大於 98%。由動物實驗上 分别荷有 FAP-HT-1080 與 wild type-HT-1080 小鼠進行 動物造影,PET/MR 成像顯示,<sup>18</sup>F-AIF-1 在 FAP-HT-1080 中也顯示出特異性積聚,並通過泌尿系統快速排 泄。結論:本研究成功多步合成了標誌前驅化合物和標 準化合物,成功製備出藥物<sup>18</sup>F-AIF-1和<sup>111</sup>In-FAPI-04。 <sup>18</sup>F-AIF-1 的 PET/MR 成像可以得到更高的攝取 FAP-HT-1080,雖然它增加了泌尿道的代謝部分,但也降低 了靶向能力。

關鍵詞:成纖細胞活化蛋白、正子造影,單光子造影劑

#### Abstract

Fibroblast activation protein (FAP) is a biomarker that is currently known to be abundantly expressed in epithelial tumor stroma. Therefore, FAP has the potential to become a target for tumor detection or therapy. From earlier studies, the N-(4-quinolinoyl)-glycyl-(2- cyanopyrrolidine) scaffold had excellent significant FAP affinity. Here we based on this structure to modify a shorter linker with NOTA ligand and labelled with F-18 as a PET tracer for fibroblast activation protein expression tumor imaging. Methods: The precursor and authentic compound of <sup>18</sup>F-AlF-1 and <sup>111</sup>In-FAPI-04 were prepared from multi-steps syntheses with suitable yields. The radiolabeling of <sup>18</sup>F-AIF-1 was performed with [Al<sup>18</sup>F]<sup>2+</sup> conjugate at 110 °C for 15 min and <sup>111</sup>In-FAPI-04 was labelled from DOTA ligand chelation with <sup>111</sup>In<sup>3+</sup> ion at 90 °C for 10 min. The quality controls for radiochemical purity were executed from radio-TLC and radio-HPLC analysis. The imaging was performed in the dual FAP-HT-1080 and wild type-HT-1080 tumor bearing mice. Result: The novel fluorinelabelled tracer <sup>18</sup>F-AlF-1 and its reference compound could be synthesized with good yield. The radiolabelling yield of <sup>18</sup>F-AlF-1 was higher than 30%, and the radiochemical purity >95%. The <sup>111</sup>In-FAPI-04 tracer also could be prepared with similar methods with high radiolabelling yield and radiochemical purity >95%. From PET/MR the<sup>18</sup>F-AlF-1 also was showed specific Imaging, accumlatuion in FAP-HT-1080 and fast excreted by urinary Conclusion: In this study the precursor and system. authentic compound were successfully synthesized in multiple steps, and drugs <sup>18</sup>F-AIF-1 and <sup>111</sup>In-FAPI-04 were successfully produced. The PET/MR imaging of <sup>18</sup>F-AlF-1 could be obtained could be obtained higher uptake in FAP-HT-1080, although it increases the metabolic part of the urinary tract, it also reduces the target ability.

Keywords : Fibroblast activation protein 
> PET tracer

# I. 前言

多數腫瘤是由上皮細胞中的體細胞突變累積所造 成,其後續發展與其微環境(microenvironment)有關,在 微環境中不僅有惡性細胞同時也包含基質細胞(stroma cell)如血管細胞,發炎細胞及成纖細胞等,並在數種腫 瘤中如乳癌、大腸癌、胰臟癌等,其為環境基質的質量 佔整個腫瘤的九成以上,因此腫瘤微環境為腫瘤的生長 與轉移侵襲提供重要發展因素。在此微環境中,癌症相 關成纖維細胞(cancer associated fibroblast; CAF)與腫瘤 之進展和轉移侵襲息息相關。<sup>1-3</sup>因此癌症相關成纖細胞 (CAF)的表現可做為腫瘤診斷與治療之標的。其中成纖 細胞活化蛋白(FAP)的表現為區別正常的成纖維細胞與 癌症相關成纖細胞(CAF)的重要差異,此蛋白酶屬於脯 胺酸寡肽酶家族 S9,也是一種 II 型膜結合糖蛋白,屬 於二肽基肽酶家族,是由絲胺酸蛋白酶(serine proteases) 所組成,其功能可優先裂解鍵結於蛋白脯胺酸後的醯胺

鍵的胜肽殘基。如此可以重塑細胞外基質,如將膠原蛋 白分解以促進腫瘤細胞的侵襲,可能也參與誘導上皮向 間質轉化等,8-9 進而改變腫瘤微環境促進腫瘤組織的 剛性,或增加腫瘤治療之抗性與免疫抑制等。10-11 成纖 細胞活化蛋白(FAP)具有二肽基肽酶(dipeptidyl peptidase)及肽鍵內切酶(endopeptidase)活性,由同一活 性中心催化。12因此有别於同一家族中其他成員包括二 肽基肽酶(DPPs:DPPIV,DPP8,DPP9)僅有二肽基 肽酶活性及脯胺酸寡肽酶(PREP, POP)僅有肽鍵內切 酶特性。13 而成纖細胞活化蛋白在活化成纖維細胞中具 有高度表達並在超過 90%人類上皮細胞腫瘤的週細胞 檢測中可觀察到,14因此成纖細胞活化蛋白是一可做為 檢測診斷與治療之標靶,而專一性的成纖細胞活化蛋白 抑制劑(FAPI)是藥物開發上重要的方向。在相關的成纖 細胞活化蛋白抑制劑(FAPI)開發上,以 Jansen 等人合成 4- 喹啉苷胺基 2- 氰基吡咯烷(4-Quinolinoyl)glycyl-2cyanopyrrolidine)骨架的化合物,此類結構對於成纖細 胞活化蛋白之抑制(FAP)活性可低至奈米級濃度,並對 二肽基肽酶(DPPs)與脯胺酸寡肽酶(PREP)具高度差異 之選擇性。因此以此些結構為基礎衍生出目前有一系列 診療用核醫放射藥物,將此一標靶結構標誌上放射性如 FAPI01 或在連接上 DOTA 或 NOTA 配位基進行放射性 金屬標誌(FAPI04)等,本計畫預計以4-喹啉苷胺基2-氰 基吡咯烷(4-Quinolinoyl)glycyl-2-cyanopyrrolidine)骨架 為並修飾三氮雜環壬烷螯合配基(NOTA)以進行 Al<sup>18</sup>F 之標誌開發一新型之成纖細胞活化蛋白正子造影劑。

#### II. 主要內容

<sup>18</sup>F-AlF-1 之標誌前驅物,標準品及<sup>111</sup>In-FAPI04 之 標誌前驅物合成的途徑如圖 1 及圖 2,此類放射藥物 <sup>111</sup>In-FAPI04 之標誌前驅物,<sup>18</sup>F-AlF-1 之標誌前驅物與 標準品之合成路徑有其相似之處皆可以 2-(tertbutoxycarborylamine)與(S)-pyrrolidine-2-carboxamide 或 (S)-2,2-difluoropyrrolidine-2-carboxamide 進行醯胺鍵的 縮合反應,經再結晶可得到醯胺鍵化合物(2),再利用 TFAA 脫水將醯胺鍵轉變成腈鍵(C≡N),經萃取可得腈 鍵化合物。再利用 TFA 除去叔丁氧基保護基(tertbutoxycarbonyl, Boc)再以乙醚潤洗純化,可得胺基產物 或二氟代胺基產物。氫氧機取代之-喹啉-4-羧酸化合物, 可經由三步驟的合成獲得,以市售之 6-甲氧基取代之 1H-indene-1,2(3H)-dione 與丙酮酸(Pyruvic acid),在 NaOH 提供的強鹼水溶液中進行加成反應後,經由 10 %H2SO4(aq) 調整酸鹼性,即可在酸性中析出可得 6-甲 氧取代喹啉-2,4-雙羧酸,化合物。經由205℃的高溫下, 水解,過濾後得到化合物。再以 48%的 HBr 除去甲氧 基保護之氫氧機化合物,產率。利用 Thionyl chloride 將 羧酸根進行甲基酯保護,得到甲基酯化合物。再以1-氯, 3-溴丙烷或,1,2—二溴乙烷的反應,可分別得到氯丙基 取代或溴乙基取代之喹啉-4-羧酸酯之化合物,以氯丙 基取代喹啉-4-羧酸酯之化合物再與叔丁氧基 piperazine 反應再經由皂化的酯水解反應,可得去保護物產物隨後 與二氟代胺基產物進行醯胺鍵的合成可得到雙叔丁氧 基保護之產物,經 TFA 取保護再與活化 DOTA 螯合配 基反應即可得到 FAPI04 標誌前驅物(圖 2)。 而若以溴

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

乙基取代之喹啉-4-羧酸酯之化合物在與 NODA 配基 反應可得 NODA 取代之喹啉-4-羧酸酯之化合物。經由 皂化的酯水解反應,可得去保護物產物。再與胺基化合 物進行醯胺鍵的合成可得到雙叔丁氧基保護放射性標 幟標準品化合物進一步以 TFA 去保護及可得 <sup>18</sup>F-AIF-1 之標誌前驅物,進一步與 F-19AICl<sub>3</sub>進行配位及可得標 準品。(圖 1),標誌前驅物經高效能液相層析儀分析分 別及收集到純的配基。進一步分別與 Al<sup>18</sup>F 及 <sup>111</sup>In 進 行標誌,進行純化,層析儀分析等,並建立荷有 FAP-GFP<sup>++</sup>-HT-1080 與 HT-1080 wild type 腫瘤小鼠體內核醫 造影



圖 2 合成 <sup>111</sup>In-FAPI04 之標誌前驅物

# III. 結果與討論

標誌前驅物經高效能液相層析儀分析分別在 3.11 分鐘及 3.55 分鐘可觀察到及收集到高純度的配基(圖 3)



圖 3 合成 FAPI04 標誌前驅物<sup>18</sup>F-AIF-1 之標誌前驅 物,高效能液相層析分析

由高解析度質譜分析可分別得到 FAPI04 C<sub>40</sub>H<sub>53</sub>N<sub>10</sub>O<sub>10</sub>F<sub>2</sub><sup>+</sup> cal. m/z = 871.3909 [M+H] <sup>+</sup> anal. m/z = 871.3931, <sup>18</sup>F-AIF-1 之標誌前驅物 C<sub>29</sub>H<sub>38</sub>N<sub>7</sub>O<sub>7</sub><sup>+</sup> cal m/z = 596.2827 [M+H] <sup>+</sup> anal. m/z = 596.2822, 標準品C<sub>29</sub>H<sub>38</sub>N<sub>7</sub>O<sub>7</sub>AIF<sup>+</sup> cal m/z = 640.2470 [M+H] <sup>+</sup> anal. m/z = 640.2466, (圖 4)



圖 4 FAPI04 標誌前驅物<sup>18</sup>F-AIF-1 之標誌前驅物,標 準品之高解析度質譜分析

利用螯合方式進行標誌以放射性薄層分析(Radio-TLC)分析,經由顯示<sup>18</sup>F-AlF-1之標誌產物放射化學轉 換率(radiochemical conversions, RCC) 42% (圖 6, A)。 <sup>111</sup>In-FAPI04 標誌產物放射化學轉換率(radiochemical conversions, RCC) 標幟效率為 95%(圖 6, E)。分別純化 後的結果(圖 6, B 與 F),以高效能液相層析儀分析後結 果,放射性[<sup>18</sup>F]AlF-1 滞留時間約在 21.8分鐘(圖 6, D), 與標準品的滯留時間 21.4 分鐘相當(圖 6, C),,而<sup>111</sup>In-FAPI-04 的滯留時間約在 5.72 分鐘(圖 6, G)。<sup>18</sup>F-AlF-1 脂溶性(logP,分配係數) 結果如表一所示,<sup>18</sup>F-AlF-1 的 logP 值為-1.13±0.02(n=3)、Log $D_{7.4}$ =-1.79±0.01(n=3), 顯示該藥物具有較高的親水性。







圖 5<sup>18</sup>F-AIF-1 與 In-111-FAPI04 之放射性標誌結果: (A) <sup>18</sup>F-AIF-放射性標幟反應的 Radio-TLC 結果,標幟效率 為 42%。(B) <sup>18</sup>F-AIF-經由 C18 cartridge 純化後的 Radio-TLC 結果。(C) [<sup>19</sup>F]AIF-1 的滯留時間。(D) [<sup>18</sup>F]AIF-1 的滯留時間(E) In-111-FAPI04 放射性標幟反應的 Radio-TLC 結果,標幟效率為 95%。(F) In-111-FAPI04 經由 C18 cartridge 純化後的 Radio-TLC 結果。(G) <sup>111</sup>In-FAPI-04 的滯留時間。

	LogP	LogD <sub>7.4</sub>
<sup>18</sup> F-AlF-1	-1.13±0.02 (n=3)	-1.79±0.01 (n=3)
	表一、18F-AIF-1的分配係數	

雄 性 免 疫 缺 陷 老 鼠 (BALB/cAnN.Cg-Foxn1nu/CrlNarl)兩側上臂處,分別為 FAP-GFP<sup>++</sup>-HT-1080 (右側)與 HT-1080 wild type (左側)。<sup>18</sup>F-AIF-1 的 PET/MR 造影可觀察到在 40 分鐘內放射藥物累積在 FAP-GFP<sup>++</sup>-HT-1080 相對較多,在兩個腫瘤周邊亦有藥 物攝取,至一小時於腫瘤即無較明顯之攝取,由於藥物 水溶性較佳,因此代謝途徑主要為尿路代謝為主少部分 由肝臟代謝,而<sup>111</sup>In-FAPI04 藥物的影像則較明顯 FAP-GFP<sup>++</sup>-HT-1080 且代謝途徑主要為尿路代謝。



圖 6 荷瘤小鼠經由尾靜脈注射 <sup>18</sup>F-AIF-1 進行小動物 PET/MR 造影影像(A)及尾靜脈注射 <sup>111</sup>In-FAPI-04 進行 小動物 SPECT/CT 造影影像(B)。結果紅色箭頭標示為 荷 FAP-GFP++-HT1080; 白色箭頭標示為荷 Wild-type-HT1080。

## IV. 結論

本研究成功地的合成新型<sup>18</sup>F-AIF-1 標誌前驅物及 標準品與<sup>111</sup>In-FAPI-04 標誌前驅物並成功的生產<sup>18</sup>F-AIF-1 放射化學產率為>30%;放射化學純度大於95%。 與<sup>111</sup>In-FAPI-04 放射化學產率為>95% (n=3);放射化 學純度大於98%。<sup>18</sup>F-AIF-1 的 PET/MR 造影可觀察到 在 30 分鐘內放射藥物有較佳之造影在 FAP-GFP<sup>++</sup>-HT-1080 相對較多專一性的積聚,並通過泌尿系統快速排 泄。

#### 参考文獻

- Sompalle, R.; Roopan, S. M. Review on Benzothiazoles: Synthesis and Diverse Biological Activitie. *Chemical Science Review and Letters* 2014;2:7.
- [2] Rajeeva B; Srinivasulu N; Shantakumar S. Synthesis and Antimicrobial activity of some new 2substituted benzothiazole derivatives. *E-Journal of Chemistry* 2009;6:5.
- [3] M. Singh; S.K. Singh; M. Gangwar; G. Nath; S.K. Singh. Design synthesis and mode of action of some benzothiazole derivatives bearing an amide moiety as antibacterial agents. *RSC Adv* 2014:4:11.
- [4] S.P. Singh; S. Segal. Study of fungicidal activities of some benzothiazoles. *Ind.J. Chem* **1988**;27:3.
- [5] Kini S; Swain S; A, G. Synthesis and Evaluation of novel Benzothiazole Derivates against Human Cervical Cancer cell lines. *Ind J Pharm Sci* 2007;5.
- [6] S.T. Huang; I.J. Hsei; C. Chen. Synthesis and anticancer evaluation of bis(-benzimidazoles), bis(benzoxazoles), and benzothiazoles. *Bioorg. Med. Chem.* 2006;14:14.
- [7] Siddiqui, N.; Pandeya, S. N.; Khan, S. A.; Stables, J.; Rana, A.; Alam, M.; Arshad, M. F.; Bhat, M. A. Synthesis and anticonvulsant activity of sulfonamide derivatives-hydrophobic domain. *Bioorg Med Chem Lett* 2007;17:255-9.
- [8] N. Siddiqui; M. Alam; Siddiqui, A. A., Synthesis and analgesic activity of some 2-[{4-(alkyl thioureido) phenyl} sulphonamido]-6-substituted benzothiazoles,. *Asian J. Chem.* 2004;16:4.
- Pattan S; Suresh C; Pujar V; Reddy V; Rasal V; Koti B. Synthesis and antidiabetic activity of 2-amino[5"(4-sulphonylbenzylidine)-2, 4-thiazolidinenone]-7-chloro-6-flurobenzothiazole. *Ind J Chem.* 2005;44:5.
- S.R. Pattan; Ch Suresh; V.D. Pujar; V.V.K. Reddy;
   V.P. Rasal; Koti, B. C. Synthesis and antidiabetic activity of 2-amino [5(4-sulphonylbenzylidene-2,4-thiazolidenedinone]-7-chloro-6-flourobenzothiazole. *Ind. J. Chem* 2005;44,;5..
- [11] Klunk, W. E.; Engler, H.; Nordberg, A.; Wang, Y.; Blomqvist, G.; Holt, D. P.; Bergstrom, M.; Savitcheva, I.; Huang, G. F.; Estrada, S.; Ausen, B.; Debnath, M. L.; Barletta, J.; Price, J. C.; Sandell, J.; Lopresti, B. J.; Wall, A.; Koivisto, P.; Antoni,

G.; Mathis, C. A.; Langstrom, B. Imaging brain amyloid in Alzheimer's disease with Pittsburgh Compound-B. *Ann Neurol* 2004;55:306-19.

- Bradshaw, T. D.; Chua, M. S.; Browne, H. L.; Trapani, V.; Sausville, E. A.; Stevens, M. F. In vitro evaluation of amino acid prodrugs of novel antitumour 2-(4-amino-3methylphenyl)benzothiazoles. Br J Cancer 2002;86:1348-54.
- [13] N Korzeniewski, S Wheeler, P Chatterjee, A Duensing, S Duensing. A novel role of the aryl hydrocarbon receptor (AhR) in centrosome amplification – implications for chemoprevention. Molecular Cancer 2010;9:153-164

# 建立 Zr-89 專一性位置標誌抗體影像平台以動態觀測人類神經母細胞瘤經

# Temozolomide 治療後程式死亡配體-1 之表現量 Development of a site-specifically <sup>89</sup>Zr-labeled antibody imaging platform for monitoring the PD-L1 expression of human GBM during the treatment of temozolomide

計畫編號:111-2623-E-A49-004-NU 計畫主持人:吳駿一 e-mail:chunyiwu@nycu.edu.tw 計畫共同主持人:李易展、陳裕仁、張文議、劉仁賢 計畫參與人員:蔡依婷、張庭瑀、洪文翔、謝昕樺 執行單位:國立陽明交通大學生物醫學影像暨放射科學系

#### 摘要

根據我國統計資料,惡性腫瘤已連續三十幾年位居 十大死因首位, 腦瘤雖非十大癌症之一, 但預後極差, 其中又以多形性膠質母細胞瘤(glioblastoma multiforme, GBM)為最,近半數患者存活時間只有九到十二個月, 雨年內死亡率達七成以上。針對如此棘手的腦瘤,臨床 上的治療手段相當有限,帝盟多(temozolomide)是少數 可使用的化學治療藥物,鑒於近年來免疫檢查點抑制療 法(immune checkpoint blockade, ICB)或許是末期患者的 最後一線生機,此研究本擬探討免疫檢查點抑制療法合 併帝盟多的療效,然而國外團隊卻於近期發表類似研究, 經與需求單位討論,此研究轉為評估硼中子捕獲治療 (boron neutron capture therapy, BNCT)合併免疫療法的 可行性。硼中子捕獲治療在我國已被應用於末期腦瘤患 者,部分患者療效顯著,但部分患者即便擁有理想的含 硼藥物腫瘤積聚量,卻仍然無法順利延長壽命。故本研 究期望建立 anti-PD-L1 抗體核醫影像平台以動態觀測 腫瘤 anti-PD-L1 的表現量, 俾便以非侵入影像預測合併 治療的療效。研究結果顯示,放射性 anti-PD-L1 抗體主 要積聚於肝臟及脾臟,而腦部及腫瘤卻未見積聚,推測 係因原位腦腫瘤未能如同過往文獻所述破壞血腦障壁, 致使放射性抗體無法到達腦腫瘤處。而荷皮下鼠腦神經 膠質母細胞瘤之小鼠經硼中子捕獲治療後,腫瘤積聚量 明顯增加,西方墨點法亦證實腫瘤 PD-L1 表現量於治 療後提高約1.5倍。實際治療結果指出,硼中子捕獲治 療無論合併 anti-PD-L1 抗體或小分子藥物,皆可有效延 長荷腫瘤小鼠存活期,兩組有將近一半的小鼠達完全治 癒,此研究結果或可嘉惠臨床患者。

**關鍵詞:**多形性膠質母細胞瘤、硼中子捕獲治療、免疫 檢查點抑制療法、抗細胞程式死亡配體-1、放射性標誌 抗細胞程式死亡配體-1 抗體

#### Abstract

In Taiwan, malignant tumors have been among the top 10 causes of death for over 30 years. Although brain tumors are not among the top, the prognosis for brain tumors, particularly glioblastoma multiforme (GBM), is extremely poor, and the limited treatment options for this malignancy make it an ongoing challenge. Nearly half of the GBM patients survive only 9 to 12 months, and over 70% of patients die within two years. Temozolomide is the standard chemotherapy drug for these patients, but its efficacy is limited. Immune checkpoint blockade (ICB) with PD-L1 inhibitor has become the last option for advanced cancer patients. Our objective is to investigate the potential of combining anit-PD-L1 ICB with Temozolomide chemotherapy. However, due to the recent publication of similar results, the aim has shifted to determining the therapeutic efficacy of boron neutron capture therapy (BNCT) in combination with anti-PD-L1 ICB. BNCT has been used for years in Taiwan, with some patients responding well, while others do not see an extension in their life span, despite acceptable boron drug accumulation in tumors. Noninvasive molecular imaging was applied to assess the expression level of PD-L1 of GBM tumors that received BNCT to predict the potential outcome of combination therapy. Results showed that radiolabeled anti-PD-L1 antibody mainly localized in the liver and spleen after intravenous injection, but did not accumulate in the tumors or brain, suggesting the antibodies did not cross the blood-brain barrier. However, an increase in the accumulation of radiolabeled anti-PD-L1 antibody was observed after BNCT in the subcutaneous model, and Western blotting confirmed an approximately 1.5-fold increase in PD-L1 expression after treatment, providing a rationale for combination therapy. BNCT combined with either anti-PD-L1 antibodies or small molecules effectively extended the lifespan of tumor-bearing mice, with around 50% being cured. These results indicate that BNCT combining with anti-PD-L1 ICB may be promising therapy for GBM patients in the near future.

**Keywords** : Glioblastoma multiforme (GBM), boron neutron capture therapy (BNCT), immune checkpoint blockade, anti-PD-L1, radiolabeled anti-PD-L1 antibody

# I. 前言

蒂盟多(temozolomide, TMZ)是少數可有效延長多 形性膠質母細胞瘤病人存活期的藥物,口服後,蒂盟多 會 被 轉 化 為 5-(3-methyltriazen-1-yl) imidazole-4carboximide (MTIC),最後再裂解形成 methyldiazonium cation 與 5-aminoimidazole-4-carboxamide (AIC),可抑 制腫瘤 DNA 合成致使腫瘤凋亡。然而極大多數的患者 在 治療後都 會 過度表現 O<sup>6</sup>-methylguanine-DNAmethyltransferase (MGMT),此酵素會移除 DNA 上被修 飾的甲基,而產生對蒂盟多的抗藥性[1]。此外,復發腫 瘤的 MGMT 表現量明顯高於原發者[2],顯示實有必要 開發針對復發多形性膠質母細胞瘤復發或是已產生抗 藥性患者的治療手段。

腫瘤為了進行免疫逃脫(immune escape),表面會特 化出與免疫細胞上免疫檢查點受體結合的物質,目的是 藉由與免疫細胞表面特定位置結合,而抑制免疫細胞 (如:T細胞)的活性。近年免疫檢查點抑制療法(immune checkpoint blockade)被視為末期癌症患者的救星,即是 利用單株抗體降低免疫檢查點受體與腫瘤特化物質結 合的可能性,使腫瘤無法釋放壓制免疫細胞活性的信號, 讓免疫細胞能順利攻擊腫瘤。目前機制比較明確的免疫 檢查點包括 CTLA-4 及 PD-1 兩種,其配體分別為抗原 呈現細胞上的 CD80/86 及腫瘤細胞上的 PD-L1。現今 美國食品藥物局已核准 Pembrolizumab、Nivolumab、 Atezolizumab 及 Ipilimumab 等數種免疫檢查點抑制劑 的抗體藥物,前兩者的標的為 PD-1, Atezolizumab 標的 為 PD-L1,後者則為 CTLA-4。因此,此計書目標原先 為建立 anti-PD-L1 抗體核醫影像平台以動態觀測腫瘤 anti-PD-L1 的表現量,俾便以非侵入影像預測化療合併 免疫治療的療效。然而,近期 Lee 等人已發表概念類似 的研究結果於國際期刊[3],經與核能研究所研究團隊 討論,緊急將研究目標更改為利用建立之影像平台評估 硼中子捕獲治療合併免疫治療的可行性。

硼中子捕獲治療(boron neutron capture therapy, BNCT)是一種標靶放射治療,將含硼<sup>10</sup>B(佔天然硼元素 的 20%)的藥物送到腫瘤細胞內,再照射熱中子,利用 硼容易與中子產生核反應之特性,放出具高線性轉移能 量(linear energy transfer, LET)但射程範圍短(5-9 µm)之 氦核(<sup>4</sup>He, α)及鋰核(<sup>7</sup>Li), 達到顯著的殺傷效應, 由於射 程小於細胞大小(10-100µm),因此不造成周圍組織損傷 的目的。若細胞僅攝取含硼藥物或是僅接受熱中子射束 照射,都不會擁有此殺傷效應,因此最理想的情況是將 <sup>10</sup>B 原子選擇性地送至腫瘤病灶,即可以達到夢想中只 治療腫瘤而不造成正常組織傷害的目的,完美詮釋精準 醫療。即使硼中子捕獲治療擁有如此優勢,限於早期中 子源多來自核反應爐,於醫院設置核反應爐不切實際, 全世界最多曾有 10 座可提供適合熱中子的反應爐,但 現今只剩 3-4 座反應爐仍在執行臨床治療(台灣、日本、 阿根廷及中國),是我國享譽全球的特色醫療。

#### II. 主要內容

國立清華大學開放式水池反應器(Tsing Hua open pool reactor, THOR)於 2010 年與台北榮民總醫院癌病中 心合作正式執行國內第一位復發性頭頸癌患者的臨床 試驗,目前已完成 280 餘名患者的治療,其中包含 120 餘名多形性膠質母細胞瘤患者,甚至有多名國外患者經 由外交管道至台治療,由整體存活率來看,治療效果頗 佳[4,5]。我國目前是除日本之外仍持續進行臨床治療 的國家,而日本已於今年將硼中子捕獲治療列為復發性 頭頸癌患者的正式醫療選項治療,但多形性膠質母細胞 瘤並不在適應症之列,是一個可擴大領先優勢的研究方 向。

Anti-PD-L1 免疫檢查點抑制療法最重要的就是免疫點的表達程度(expression level),若患者腫瘤完全不表現 PD-L1 或表現量太低,則可預期藉由抑制 PD-1/PD-L1 路徑的治療效果也不會太理想,這可能是臨床上並非每位患者都適合 Atezolizumab 的原因之一。本計畫擬利用放射性標誌之 anti-PD-L1 抗體以非侵入性之核子醫學影像動態觀察多形性膠質母細胞瘤 PD-L1 的表現量,此影像平台可供腫瘤治療預後評估,同時可做為免疫檢查點抑制療法篩選平台,讓患者更早地接受有效的治療方式,不致勞民傷財。

#### III. 結果與討論

本研究為減少 Zr-89 所費不費且國外貨源供應問題, 經實驗結果證明得以使用 In-111 標誌取代 Zr-89 標誌 抗體之相關實驗安排,以減輕計畫經費負擔,亦不會造 成研究上的停擺。此外,與計劃標題出入,未使用 TMZ 之原因為目前已有相關文獻發表,故將治療方針轉而探 討於台灣針對末期腦瘤患者行之有年的硼中子捕獲治 療。

因傳統標誌方式存在著缺乏化學計量控制及位點 特異性的問題,產生之異質混合物可能表現非最佳的藥 物動力學,亦可能降低對目標的結合力,因此本研究嘗 試以還原雙硫鍵方法進行專一性標誌(圖1),純化後 皆獲得放射化學純度高於95%之產物,可用於後續細胞 與動物實驗。



圖 2 A 為傳統隨機與特異性標誌抗體於 GBM8401 人類腦神經膠質母細胞瘤細胞之細胞攝取,可見其趨勢 相近,皆於培養後 24 小時攝取量達到最高值,其中又 以傳統隨機標誌(<sup>111</sup>In-SCN-anti-PD-L1)為最。而將 1 mCi<sup>111</sup>In-anti-PD-L1 抗體由尾靜脈注射於荷原位 GBM8401人類神經膠質母細胞瘤之裸鼠,24小時後進 行小動物單光子斷層攝影,隨後立即犧牲進行生物分佈 分析(圖二B和C),結果吻合,皆顯示放射活性主要 積聚於肝臟及脾臟,而腦部及腫瘤種植處於注射後未見 活性積聚,但電腦斷層掃描影像卻可看出腫瘤的輪廓, 故推測是因為原位腦腫瘤未能如同過往文獻所述破壞 血腦障壁,致使放射性抗體無法到達腦腫瘤處,因此決 定於第二年研究目標設立於開發放射性氣-18標誌小分 子示蹤劑。



圖 2 放射性標誌 anti-PD-L1 抗體於人類神經膠質母細 胞瘤之細胞攝取與原位腫瘤模型之生物分佈。

有鑒於放射性抗體無法通過血腦障壁,後續即以皮 下腫瘤模型進行前期可行性研究。圖三 A 為傳統隨機 標誌 In-111 或 Zr-89 的抗體於 GL261 鼠源腦神經膠質 母細胞瘤細胞之細胞攝取,可見兩種放射性同位素標誌 抗體的結果相似,攝取至 24 小時近乎持平,然延長至 72 小時會造成攝取量大幅下降。並且無論將 1 mCi In-111 或 Zr-89 標誌的 anti-PD-L1 抗體由尾靜脈注入荷皮 下 GL261 神經膠質母細胞瘤之小黑鼠,24 小時後進行 小動物單光子斷層攝影,影像皆可見抗體高度積聚於腫 瘤中(圖三 B 和 C,紅色箭頭所指處),顯示放射性標誌 抗體的專一性。



圖 3 放射性標誌 anti-PD-L1 抗體於鼠源神經膠質母細 胞瘤之細胞攝取與皮下腫瘤模型之生物分佈。

根據前述建立之核醫影像以及同位素供應問題,後續主要以<sup>111</sup>In標誌 anti-PD-L1 抗體之 SPECT 影像進行

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

動態觀察硼中子捕獲治療之腫瘤 PD-L1 表現量變化。 結果顯示,荷皮下鼠源腦神經膠質母細胞瘤小鼠經 BNCT後,抗體於腫瘤積聚增加,透過Amide 定量結果 可見大約提升 1.3倍,說明 BNCT後腦瘤之 PD-L1 表 現量有所提升。PD-L1 表現量又以西方墨點法進行驗證, 確實可見其於 BNCT後大約提高 1.5倍左右的表現量。 推測 BNCT 合併 anti-PD-L1 治療可帶來良好的效果。 荷皮下鼠源腦神經膠質母細胞瘤小鼠之控制組,於第 10 天腫瘤即開始進入劇增狀態,僅能存活至最多 15 天, 而 BNCT 單一治療組雖然抑制腫瘤到 20 天左右,但後 續仍然無法達到良好的腫瘤控制。合併治療組則是無論 抗體或小分子藥物,皆有二分之一的完全治癒率,其中 又以 JQ1 整體的腫瘤抑制效果最理想。

# IV. 結論

本研究成功製備放射性標誌抗細胞程式死亡配體-1 抗體,雖造影顯示放射性抗體無法通過血腦障壁評估 原位腦腫瘤的細胞程式死亡配體-1 表現量,但皮下腫瘤 模式顯示腫瘤經硼中子捕獲治療治療後其細胞程式死 亡配體-1 表現量明顯上升,暗示合併免疫檢查點抑制的 可行性。實際治療效果亦指出硼中子捕獲治療無論合併 anti-PD-L1 抗體或小分子藥物,皆可有效延長荷腫瘤小 鼠存活期,兩組有將近一半的小鼠達完全治癒,顯見合 併治療不日或可嘉惠臨床患者。

#### 參考文獻

- Moon BS, Cai M, Lee G, Zhao T, Song X, Giannotta SL, et al. Epigenetic modulator inhibition overcomes temozolomide chemoresistance and antagonizes tumor recurrence of glioblastoma. J Clin Invest. 2020;130:5782-99. doi:10.1172/JCI127916.
- [2] Wang J, Cazzato E, Ladewig E, Frattini V, Rosenbloom DI, Zairis S, et al. Clonal evolution of glioblastoma under therapy. Nat Genet. 2016;48:768-76. doi:10.1038/ng.3590.
- [3] Lee GA, Lin WL, Kuo DP, Li YT, Chang YW, Chen YC, et al. Detection of PD-L1 Expression in Temozolomide-Resistant Glioblastoma by Using PD-L1 Antibodies Conjugated with Lipid-Coated Superparamagnetic Iron Oxide. Int J Nanomedicine. 2021;16:5233-46. doi:10.2147/IJN.S310464.
- [4] Lin KH, Chen YW, Lee RC, Wang LW, Chou FI, Chang CW, et al. Nuclear Theranostics in Taiwan. Nucl Med Mol Imaging. 2019;53:86-91. doi:10.1007/s13139-019-00576-z.
- Chen YW, Lee YY, Lin CF, Pan PS, Chen JK, Wang CW, et al. Salvage Boron Neutron Capture Therapy for Malignant Brain Tumor Patients in Compliance with Emergency and Compassionate Use: Evaluation of 34 Cases in Taiwan. Biology (Basel). 2021;10. doi:10.3390/biology10040334.

# 職業、民眾及環境輻射防護管制措施精進研析(II)

# The study on the Occupational, Public and the Environment Radiation Protection (II)

計畫編號:111-2623-E-182-002-NU 計畫主持人:趙自強 e-mail:chaot@gap.cgu.edu.tw 計畫共同主持人:林倩伃 執行單位:長庚大學醫學影像暨放射科學系(所)

#### 摘要

IAEA 於 2018 年發布 GSG-8 安全指引,針對公眾 及環境的輻射防護提出建議,今年的工作重點包括:5. 研析 IAEAGSG-8,公眾及環境防護安全指引;6.檢視 我國公眾及環境防護管制作法,並提出相關精進管制措 施之具體建議;7. 研析國際間對非典型輻射從業人員 之輻射曝露與防護管理機制;8.檢視我國現行輻防法規 於非典型輻射從業人員管制實務面上面臨的問題,並提 出精進管理作法。

**關鍵詞:**公眾及環境曝露、計畫性曝露、既存性曝露、 緊急性曝露、劑量約束、劑量指引。

#### Abstract

IAEA issued GSG-8 safety guides in 2018 for public and environmental radiation protection. The tasks of this year includes: 5. Analyzing IAEA GSG-8, public and environmental protection safety guidelines; 6. Inspecting Taiwan's public and environmental protection control methods, and proposing specific suggestions for improving control measures; 7. Analyzing radiation exposure and protection management mechanisms for special radiation workers internationally; 8. Examining the problems in the current radiation protection laws and regulations in Taiwan's special radiation worker control practices, and proposing improved management measures and impact evaluations.

**Keywords**: Public and environmental exposure, Planned exposure situation, Existing exposure situation, Emergency exposure situation, Dose constraint, Reference Level.

# I. 前言

輻射作業必須確保安全,因為安全是保護公眾和環境的前提。IAEA於2007年發表GSR-3<sup>[1]</sup>國際基本安全標準,以幫助世界各國建立其國內安全法律法規。安全本身不是目的,而是保護公眾與環境的前提。

(一) 本計畫為二年期計畫, 前一年的重點為:

- 研析國際輻防組織就職業輻射防護管制建議 (IAEAGSG-7<sup>[2]</sup>),檢視我國職業輻射防護管制作法, 並提出相關精進管制措施之具體建議。
- 研析國際間對輻射工作人員之定義、分級管理法規,檢視我國現行輻防法規於管制實務面上面臨

的問題,並提出精進管理作法及影響評估。

- (二) 本年度(111年)研究重點為:
  - 研析國際輻防組織就公眾及環境輻射防護管制建 議(IAEAGSG-8<sup>[3]</sup>),檢視我國公眾及環境輻防管制 作法,並提出相關精進管制措施之具體建議。
  - 研析國際間非典型輻射從業人員之輻防管制與輻射監測,檢視我國現行輻防法規於管制實務現況, 並提出可行之建議。

## II. 主要內容

過去輻射防護主要關注保護人類,為此,通常將人 員曝露分為三種基本類別,包括職業曝露、醫學曝露和 公眾曝露(§1.3<sup>[3]</sup>)。近年來,ICRP<sup>[4]</sup>也開始考慮環境的輻 射防護。先進國家的監管框架已經開始關注環境是否受 到游離輻射影響,不論此輻射是否與環境中的人類有關 (§1.5<sup>[3]</sup>)。ICRP-103<sup>[4]</sup>提出了三種不同的輻射曝露情境, 分別為計畫性曝露、緊急性曝露和既存性曝露。公眾曝 露定義為由計畫性曝露、緊急性曝露及既存性曝露引起 之曝露,不包括任何職業曝露或醫學曝露<sup>[1]。</sup>GSR-3<sup>[1]</sup>定 義「公眾成員」為「除受職業曝露或醫學曝露者之外的 人口中的任何個體,此為公眾代表人,為接受劑量人口 中較高曝露劑量的個體。」(§1.4<sup>[3]</sup>)

IAEA GSG-8<sup>[3]</sup>只討論公眾曝露,不涉及職業曝露 和醫療曝露,職業曝露和醫療曝露相關的建議可見 IAEA GSG-7<sup>[2]</sup>號和 SSG-46<sup>[5]</sup>。(§1.10<sup>[3]</sup>) 根據這些情境 的分類,在計畫性曝露下,必須先向主管機關申請(正 當化 justification),撰寫輻射防護計畫經過主管機關審 核之後(最適化 optimization),同意後才能實施。之後, 必須按照計畫進行例行性的輻射作業與防護,以確保公 眾不超過劑量限制(限制化 dose limit), 並合理抑低 (ALARA)。在緊急性曝露情境下,如果出現意外事故導 致公眾接受緊急性或短時間曝露,需要立即採取緊急應 變措施來降低緊急性曝露(正當化),同時確保公眾在採 取此應變措施時其劑量合理抑低(最適化)。既存性曝露 可透過適當防治措施降低公眾劑量。採取緊急性曝露應 變措施和既存性曝露防治措施可能會增加工作人員的 職業曝露,但不進行這些措施的話,公眾的緊急性曝露 和既存性曝露可能無法降低,主管機關就必須進行正當 化和最適化的衡量來決定是否採取這些措施。

計畫性曝露	緊急性曝露	既存性曝露
(§2.3-5)	(§2.6)	(§2.7)
輻射作業(§2.5)	事故、惡意行為	需要做出決定
可以在開始作	或意外事件。	時已經存在的
業之前就做好	需要迅速採取措	曝露。
防護和安全措	施以避免或减少	天然輻射
施。	不利後果。	過去豁免/排
可以開始作業	可於事前規劃預	除的放射性物
之前就限制相	防措施和緩解措	質。
關的曝露及其	施。	緊急性曝露之
發生的可能性。	然而,一旦真正	後仍然存在的
良好的設施、設	發生,必須採取	殘餘曝露。
備和操作程式	補救措施才能减	
設計、教育訓	少曝露。	
練(§2.3)		

# 表1 公眾曝露與三情境(§2.1-7<sup>[3]</sup>)

#### 2.1 劑量約束與劑量指引

ICRP-103<sup>[4]</sup> 推廣劑量約束到公眾輻射防護最適化 的過程,以確保所有曝露達到 ALARA 的要求。ICRP-103<sup>[4]</sup>和 IAEA GSG-7<sup>[2]</sup>進一步強調,劑量約束不是劑量 限制,而是一個劑量限制的百分比,應根據各領域專家 的經驗評估可採取的措施來制定。即使在所有情況下, 都需要最適化以確保個人低於劑量限制並滿足風險分 配的公平性。

IAEA GSG-8<sup>[3]</sup>針對不同曝露情境的具體情況調整 輻射防護措施,包括醫學、工業和研究中輻射源的使用, 緊急應變以及放射性廢棄物的管理。在 IAEA GSG-8<sup>[3]</sup> 附錄表格 1(下表 2)總結了既存性曝露、計畫性曝露和 緊急性曝露的劑量約束和劑量指引。

#### 2.2 公眾曝露分級管理

除了劑量約束和劑量指引,IAEAGSG-8<sup>[3]</sup>也強調 了實施公眾曝露分級管理的重要性,並建議主管機關以 分級管理調整管制強度與曝露輻射風險的平衡 (§2.49<sup>[3]</sup>)。尤其針對計畫性曝露,建議與輻射源的強度 相稱。目前國內依據「放射性物質與可發生游離輻射設 備及其輻射作業管理辦法」分為三或四個等級(影3.6<sup>[3]</sup>):豁免(Exemption and clearance)、通 知備查、許可和(高強度)。而 IAEAGSG-8<sup>[3]</sup>建議則分 為四個等級(§3.6<sup>[3]</sup>):豁免(Exemption and clearance)、通 知(Notification)、註冊(Registration)和許可(Licensing), 詳見表 3。

豁免的定義是主管機關確定某輻射作業或輻射源 因所造成的曝露或產生的風險太小、無需通知、註冊和 許可,有關豁免的指引可見 IAEARS-G-1.7<sup>[6]</sup>(§3.16<sup>[3]</sup>)。

另外,如果預期的輻射曝露明顯低於主管機關所設 定的相關限值,並且該曝露的潛在曝露和風險可以被忽 略不計,輻射作業申請人可以向主管機關發出通知並開 始進行操作,無需註冊或許可 (§3.17<sup>[3]</sup>)。因為通知類輻 射源的風險很小,所以通常不需採取額外的輻防措施來 確保公眾和環境的保護(§3.18<sup>[3]</sup>)。

如果輻射作業超過通知限度,但其操作流程頗為固 定且沒有顯著變化,輻射作業申請人應向主管機關申請 註冊。若無法符合上述條件,則申請人必須向主管機關 申請審查並獲得許可方可進行輻射作業。

表 2 輻射源相關的劑量約束和劑量指引<sup>[3]</sup>

劑量約束和劑 量指引範圍	曝露類別		
20 至 100 毫西	緊急性曝露下公眾曝露劑量指引		
弗(mSv) <sup>a,b,c</sup>			
每年1至20毫	<ul> <li>●計畫性曝露下職業曝露劑量約束</li> </ul>		
西弗(mSv)	<ul> <li>●計畫性曝露下醫護人員和陪伴者</li> </ul>		
	劑量約束		
	●計畫性曝露下由醫護人員使用醫		
	療放射設備進行的非醫學人體成		
	像者(例如健檢或保險因素)的劑		
	量約束		
	●既存性曝露下工作人員的劑量指		
	弓		
	<ul> <li>●特定既存性曝露下公眾曝露劑量</li> </ul>		
	指引,例如住宅中的氡曝露,殘留		
	放射性材料區域		
每年不超過1	<ul> <li>●計畫性曝露下公眾曝露劑量約束</li> </ul>		
毫西弗(mSv)	<ul> <li>●特定既存性曝露下公眾曝露劑量</li> </ul>		
	指引,例如食品、飲用水或建築材		
	料中放射性同位素的曝露		
<sup>a</sup> 急性劑量或年劑量。			
<sup>b</sup> 在特殊情況下,	<sup>b</sup> 在特殊情況下,知情同意的工作人員可能會接受高於		
此範圍值的劑量	此範圍值的劑量,以挽救生命,防止嚴重確定性健康		
效應或防止災難性情況的發生。			
° 在有可能超過相關器官或組織確定性效應的劑量閾			
值的情況下,始終需要採取行動。			

表 3: ICRP-103<sup>[4]</sup>、IAEA-GSR-3<sup>[7]</sup>、及 IAEA-GSG-8<sup>[3]</sup>所建議之分級管理。

豁免(<10 微	輻射風險太低導致無法監控,或者
西弗/年)	監控不會產生任何淨收益(正當化)
Exemption	
and clearance	
通知	預期輻射作業的曝露不太可能超過
Notification	主管機關規定的相關限值的一小部
	分,並且潛在曝露和任何其他潛在
	有害影響的可能性和幅度後果可以
	忽略不計。
登記	超過通知限度,應向主管機關申請
Registration	授權,適合那些操作沒有顯著變化
	的輻射作業
	● 設施和設備的設計大部分可以確
	保安全
	● 操作程式易於遵循
	● 最低的安全教育訓練要求

	● 在過去很少出現操作安全問題
許可	輻射作業申請人應向主管機關申請
licensing	審查合格,取得許可後才能開始作
	業。申請人須提供必要資訊,包括:
	● 輻射源在正常操作下造成曝露的
	性質、可能性和大小,以及所有必
	要的輻射防護措施的描述
	● 根據主管機關的要求進行的安全
	評估
	● 根據主管機關的要求的設施或作
	業相關輻射風險相稱的事先輻射
	環境影響評估

#### 2.3 環境輻射安全

環境輻射安全的目的是防止或減少對植物和動物 的有害輻射效應,使其對生物多樣性的維護、物種的保 護以及自然棲息地、聚落和生態系統的健康影響可以忽 略不計。IAEA SF-1<sup>[8]</sup>指出目前的輻射防護系統通常可 以在人類環境中提供適當的生態系統保護,以免受輻射 曝露的有害影響,但對於環境保護免受有害的輻射曝露 部分仍有許多未明瞭的部分(§4.1<sup>[3]</sup>)。

IAEA-GSR-3<sup>[7]</sup>指出,輻射對環境的影響僅是諸多 影響因素之一,且通常不是主要影響,因此,輻射對環 境影響的評估需要與其他影響因素整合考量,在制定法 規時,也必須採取整合的觀點,以確保農業、林業、漁 業和旅遊業以及自然資源的永續性,包括現在和將來。 是否對輻射對環境的影響評估可由各國視自己國情決 定(§4.2-4<sup>[3]</sup>)。

針對計畫性曝露,IAEA-GSR-3<sup>[7]</sup>及 IAEA-GSG-8<sup>[3]</sup> 要求設施經營者或雇主應當對他們獲得授權的輻射源 向主管機關進行事前放射性環境影響評估,並保持其更 新(§4.5-6<sup>[3]</sup>) (§4.2-4<sup>[3]</sup>)。此評估框架,包括對正常經營期 間和通過安全評估確定的事件和事故的放射性釋放進 行評估和控制。評估方法可參考 IAEAGSG-10<sup>[9]</sup>,包括 對植物和動物的保護,應與其輻射作業風險相稱。

至於既存性曝露和緊急性曝露的環境管理,應將環 境影響視為緊急應變、補救、管制措施正當化和最適化 的一個要素,特別要考慮為減少公眾曝露而採取防護與 補救措施之行動對環境的影響,以免對環境產生不可逆 轉的影響(§4.5-7<sup>[3]</sup>)。

#### 2.4 環境輻射健康一體

在環境監測方面,國內現有「行政院原子能委員會 輻射偵測中心組織條例」,掌理環境輻射偵測計畫、環 境中天然輻射之偵測、放射性落塵之偵測、食物及飲用 水放射性含量之偵測、核設施及放射性物質使用單位周 圍環境之監測、放射性產品與廢料處理、貯存、運輸及 最終處置等場所周圍環境輻射之監測、核設施意外事故 之環境輻射偵測及放射性分析、國民輻射劑量之評估、 環境輻射偵測技術之研究發展、輻射偵測結果異常情形 之立即發布事項,並應定期公佈輻射偵測、監測及評估 之相關結果、其他有關輻射偵測、監測及評估事項。

我國輻射環境偵測除全台設置的 63 座輻射監測站 執行輻射環境即時偵測外,亦對核一廠、核二廠、核三 廠、核能研究所、清華大學及蘭嶼低放貯存場等核設施 周圍環境執行各項環境監測,包括直接輻射、落塵試樣、 環境試樣之分析與監測,並每季出版環境監測報告,提 供外界瞭解。

近年來,ICRP<sup>[4]</sup>指出,環境輻射防護的討論日益活 躍。歐洲先進國家已經認識到環境也需要輻射防護,並 開始研究環境輻射防護評估的方法和標準,強調環境輻 射安全與永續發展的緊密關聯,這已經成為現今國際社 會關注的焦點。在確保公眾和輻射工作人員安全的同時, 輻射管理方案需要關注對環境的影響,並採取永續發展 的措施。只有將環境因素納入輻射防護的考慮範圍,才 能實現對永續發展的承諾。不限於輻射防護,One Health -健康一體的概念也逐步為國際接受。

One Health 概念最早可以追溯至 20 世紀初期。當時,人類和動物疾病之間的聯繫就已經引起了科學家和 政策制定者的注意。在 1918 年,西班牙流感在人類和 動物之間流行,導致數百萬人死亡。該病毒最初在豬隻 中發現,此後,許多病毒和細菌仍會在人類和動物之間 交換。

健康一體<sup>[10]</sup>的概念在 20 世紀 50 年代開始得到進 一步探索,當時出現了重要傳染病,例如狂犬病和口蹄 疫等,這些疾病對人類和動物健康產生了重要影響。20 世紀 70 年代以後,隨著人口遷移和現代農業的興起, 病原體在人類和動物之間的傳播變得更加嚴重。其中, 現代農牧業的發展引起了一定的作用,因為它增加了人 類和動物之間接觸的可能性,同時也導致了更多人類和 動物健康問題的發生。

One Health 是一種綜合性的健康概念<sup>[11]</sup>,強調人類、 動物和環境的健康是相互關聯和相互影響的,需要從全 面的角度來看待和管理全球公共衛生問題。One Health 強調對不同健康衝擊因素的瞭解,並實現更好的健康結 果。基於 One Health 的概念,全球許多健康問題需要跨 國合作才能夠有效解決。例如,全球範圍內疫苗接種的 規劃和提供、全球傳染病的監測和流行病學調查、農業 生產和動物健康的監管規範等等,都涉及到不同國家和 領域之間的協調和合作。此外,One Health 還需要進行 有關動物和人類健康的跨學科和跨部門研究,例如研究 環境輻射對人和動物的影響、肉類食品和水源的污染對 人類健康的影響、農藥、抗生素及其使用的公共衛生問 題等。這些研究需要不同的領域專家及協調合作,以 確保研究結果有效,並能夠直接應用於公共衛生和疾病 控制。

在這樣的背景下,保持人類、動物和環境之間的健 康關係是至關重要的。這需要各個領域的專家和政策制 定者繼續努力,充分實施 One Health 的理念,加強國際 合作,以更好地應對各種全球危機。

#### 2.5 檢視我國公眾及環境防護管制作法,並提出相關精 進管制措施之具體建議

在研析 IAEA GSG-8 報告之後,我們應進一步檢討 我國輻防管制體系在公眾及環境防護管制措施是否有 精進之必要,以強化輻防管制效能,並確保公眾及環境 之輻射安全。IAEA GSG-8<sup>[3]</sup>提出許多公眾及環境防護 相關的新概念,包括曝露情境之劑量約束或劑量指引; 採取輻防行動對環境的影響、及環境防護以參考動物與

參考植物評估等方面,建議未來持續關注後續發展情形, 以了解國際輻射防護趨勢,作為國內現有法規未來精進 之參考。

2.6 研析國際間對輻射工作人員之定義、分級管理法規 歐洲許多國家已經揚棄以教育、考試、資格來鑑別 輻射工作人員,而是以是否接受到曝露,來區分其是否 為曝露工作人員,也就是在計畫性曝露、緊急性曝露、 既存性曝露下,接受職業曝露的人員,也因此,在懂傳 中教授「游離輻射防護法修正研析成果報告」<sup>[12]</sup>與本計 畫去年報告<sup>[13]</sup>皆建議以職業曝露人員取代過往法規中 規定之輻射工作人員。

# 2.7 檢視我國現行輻防法規於非典型輻射從業人員管制 實務面上面臨的問題,並提出精進管理作法

有關輻射工作人員之鑑別,我國亦非以教育、考試、 資格來判斷,而是以是否有可能接受超過一般人劑量限 值來區分。

流動人員經常面臨多種問題,包括:體檢項目可能 不符合工作場所需求、教育訓練和實際操作不相符或未 能應對風險、劑量計的讀數和紀錄可能因設施經營者和 雇主的不同背景值而產生爭議,甚至流動人員可能有多 份輻射相關工作,導致其總劑量超過劑量限值,但無人 注意到。因此,歐盟強調實施重複監管(overlapping management)和劑量護照(dose passport)以應對流動人員 跨國問題。這些經驗可以供我國參考。

# III. 結果與討論

本計畫藉由研析國際輻防組織就公眾及環境輻射 防護管制建議(IAEA GSG-8<sup>[2]</sup>)、國際間對非典型輻射從 業人員之輻射曝露與防護管理機制,並提出相關精進管 制措施之具體建議,主要研究成果說明如下:

- (一) IAEA GSG-8[2]重點在於公眾及環境輻射防護安 全指引,涉及正當化、最適化、限制化三原則在計 畫性曝露、既存性曝露、緊急性曝露等相關輻射防 護措施,摘要如下:
  - 曝露情境:公眾曝露之定義為公眾成員在計劃性 曝露、緊急性曝露和既存性曝露下受到的劑量,不 包括職業曝露或醫療曝露。
  - 正當性:對於計畫曝露而言,其正當性在於輻射作 業是否預期為個人和社會帶來利益,並考慮經濟、 社會和環境因素、潛在曝露及其輻射風險;對於緊 急性曝露和既存性曝露方面,其正當性係指所採 取的應變行動和補救措施具有淨利益,除考慮輻 射危害外,也要考慮對公眾健康、經濟、社會和環 境產生的危害。
  - 最適化:最適化過程除考量經濟和社會因素,並適 度納入環境保護,所以選擇的劑量數值不一定是 風險或劑量最低。
  - 4. 計畫曝露之劑量限制:公眾曝露的年劑量限制應 於公眾代表人評估,年有效劑量為1毫西弗;眼 球水晶體等價劑量為每年15毫西弗;皮膚等價劑 量為每年50毫西弗。
  - 5. 劑量約束或劑量指引:計畫性曝露之公眾曝露劑量約束、既存性曝露(例如:食品、飲用水或建材) 之公眾曝露劑量指引,建議每年劑量不超過1毫

西弗;計畫性曝露(例如:職業人員、醫護人員和 陪伴者)之劑量約束、既存性曝露之工作人員劑量 指引、既存性曝露(例如:住宅氡氣、殘留放射性 區域)之公眾曝露劑量指引,建議每年劑量介於1-20 毫西弗;緊急性曝露之公眾曝露劑量指引,建 議每年劑量介於20-100 毫西弗。

- 6. 環境輻射安全:針對計畫性曝露,設施經營者或雇 主應執行設施或輻射作業之環境影響評估;至於 既存性曝露和緊急性曝露的環境管理,應將環境 影響視為緊急應變、補救、管制措施正當化和最適 化要素,並考量採取相關行動對環境產生的影響。
- (二) 非典型輻射從業人員之輻射曝露與防護管理機制
  - 非典型輻射從業人員稱為流動工作人員(Itinerant workers)或流動人員,例如:管制區內工作的臨時 人員。歐盟強調實施重複監管(overlapping management)和劑量護照(dose passport)以應對流動 人員跨國問題,相關經驗可以供我國參考。
  - 歐洲國家(例如:德國)已經揚棄以教育、考試、 資格來鑑別輻射工作人員,而是以是否接受到曝 露,來區分其是否為曝露工作人員。目前我國對於 輻射工作人員之鑑別,是以是否可能接受超過一 般人年劑量限值區分。

#### IV. 結論

針對精進管制措施,我們有以下具體建議:

- 分級管理:針對輻射源之安全管制,IAEA GSG-8 建 議採分級管理,分為豁免(Exemption)、通知 (notification)、註冊(registration)、許可(licensing)等四 類。目前國內依據放射性物質與可發生游離輻射設 備及其輻射作業管理辦法,將輻射源分為豁免、登 記備查、許可等三類,若目前業務運作良好,應無 更改必要。
- 2. 參考動物與參考植物(Reference Animals and Plants, RAPs)概念: ICRP 提出 RAPs 概念,將生態系統中 輻射水準與生物學效應聯繫起來,評估參考物種的 生態學行為和生理特徵,並利用參考物種的敏感性 來推導其他物種和生物群體的生態風險,用於環境 影響評估(EIA)或環境監測。本項建議適時關注國際 發展趨勢。
- 3. 空間與時間的考量:IAEA 基本安全原則(SF-1)提出,現在和未來的公眾與環境都必須受到保護,免受輻射風險。空間和時間是評估輻射風險和制定輻射防護措施的重要因素,在制定輻射防護措施時考慮到輻射風險的時間跨度,以確保對未來世代的充分保護。

## 參考文獻

- IAEA, Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. 2014, Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.
- [2] IAEA, Occupational Radiation Protection : General Safety Guide. 2018.
- [3] IAEA, Radiation Protection of the Public and the Environment. 2018, IAEA: Vienna.
- [4] ICRP, The 2007 recommendations of the International Commission on Radiological Protection. 2007, Oxford, England: Published for the International Commission on Radiological Protection by Elsevier.
- [5] IAEA, Radiation Protection and Safety in Medical Uses of Ionizing Radiation. 2018, IAEA: Vienna.
- [6] IAEA, Application of the Concepts of Exclusion, Exemption and Clearance, IAEA RS-G-1.7. 2004.
- [7] IAEA, Radiation protection and safety of radiation sources : international basic safety standards. 2014.
- [8] IAEA, Fundamental Safety Principles. IAEA Safety Standards Series No. SF-1. 2006.
- [9] IAEA, Prospective Radiological Environmental Impact Assessment for Facilities and Activities. 2018, IAEA: Vienna.
- [10] Bidaisee, S. and C.N. Macpherson, *Zoonoses and* one health: a review of the literature. Journal of parasitology research, 2014. **2014**.
- [11] Lebov, J., et al., A framework for One Health research. One Health, 2017. **3**: p. 44-50.
- [12] 董傳中, 游離輻射防護法修正研析成果報告. 2022.
- [13] 趙自強, 職業、民眾及環境輻射防護管制措施 精進研析(I). 2022.

## 運用物聯網技術及大數據分析於輻射源安全管制之研究 The study on applications of IoT-related and big data techniques for Radiation source safety control

計畫編號:111-2623-E-035-001-NU 計畫主持人:簡儀欣 e-mail:yhchien@fcu.edu.tw 計畫共同主持人:葉俊良 計畫參與人員:劉子瑜、詹皓宇 執行單位:逢甲大學材料科學與工程學系

摘要

近年物聯網(IoT)與人工智慧(AI)的技術蓬勃發展, 物聯網的技術可以從設備、輻射源或作業人員中 (Things)獲取有用的資訊(Data),再透過網路(Internet)將 大量的資訊與使用者/管理者建立連結,其中可以即時 獲得移動性輻射源的位置資訊(運送車輛位置、輻射源 於車內位置)、固定型輻射源的即時資訊、工作人員被 動式劑量臂章配戴情況等,再將巨量資訊統計或透過 AI 運算處理,提供異常警示、非結構化數據(輻射源、 工作人員監看畫面)分析、輻射源管制之研判及決策參 考。因此本計畫將進行物聯網與人工智慧技術應用於輻 射源安全管制之研究,評估合適於輻射源工作場域之解 決方案,並以網站頁面設計的方式呈現移動性輻射源監 控平台的研究結果與軟硬體建議,可作為導入後續期程 計畫之研究基礎,協助輻射安全管制主管機關減少不可 控因素以降低輻射源危害風險、保障作業人員健康、加 速數位轉型、落實輻射源管制。

**關鍵詞:**物聯網、輻射源、輻射安全管理、人工智慧與 數據運算分析

## Abstract

In recent years, the technology of IoT (Internet of Things) and AI (Artificial Intelligence) is booming. The information of equipment, devices and instruments could be collected and transmitted to the online platform to monitor and tracking the position of nuclear and radioactive materials to prevent illicit trafficking and the failure of nuclear facilities or containment units. In this proposal, the present development of the IoT techniques applied in the nuclear safety is studied. The feasibility in application of IoT, big data and AI on the tracking of nuclear and radioactive materials in movable radiation source will be studied. In order to evaluate the regulatory process that may be required for the research on the mobile radiation source monitoring platform, the investigation of platform-related functions and software and hardware will also be studied.

**Keywords** : Internet of things (IoT), nuclear materials, nuclear safety, Artificial Intelligence and Data computing analysis.

## I. 前言

輻射的應用隨著社會經濟的進步與科技發展顯著 增加,包含核能發電、醫用放射治療、工業放射照相、 農業照射品種改良、測井以及採礦等等應用,影響範圍 廣大,因此相關安全管制機制須確實,才能保障工作人 員安全及有效增進經濟效益。隨著輻射源已逐漸應用在 許多行業,運輸及使用機會因此增加,若丟失將會造成 許多問題,此時僅依靠傳統的人工管理方式,已很難滿 足對輻射源的安全管制要求。然而目前國內在放射源監 管的領域內,並沒有針對輻射源識別、定位與追蹤的物 聯網應用與完善的整套流程,亦無針對輻射安全相關資 訊的收集與資料應用。因此本研究研析 IoT 與大數據技 術於輻射源安全管制應用,並提出實際使用情境之業務 功能建議,作為後續計畫之研究基礎,以及輻射捉的評估 依據。

### II. 主要內容

#### 2.1 示範場景篩選

進行示範場景的篩選是評估過程中的關鍵步驟。選 擇合適的示範場景需要考慮到各項因素,才能確保選擇 出具有代表性和可行性的示範場景,為後續的技術應用 和創新提供堅實基礎。原能會的輻射源管制需求目前可 以分為移動性輻射源、固定型輻射源、人員監管與排放 監測等四大項目。其中,移動式輻射源相對於其他需求 具有一些特殊的特點和風險,使其需要更加嚴格的監控: (一)移動性:移動式輻射源的主要特點是可以輕易地

- (一) 移動性·移動式輻射源的主要行為走可以輕勿地 在不同地點之間運送,這使得對其進行跟踪和監 控變得相對困難,並增加了潛在的安全隱患。
- (二) 潛在的惡意使用:由於移動式輻射源易於運輸,它 們可能成為恐怖分子或其他犯罪分子的目標。這 些人可能會企圖獲取輻射源並將其用於非法或危 險的活動,例如製造輻射污染武器。
- (三)意外事故風險:與固定型輻射源相比,移動式輻射 源在運輸過程中可能會面臨較高的意外事故風險, 例如交通事故、火災等。這些事故可能導致輻射泄 漏,對人員和環境造成損害。
- (四) 監管合規:移動式輻射源可能涉及跨國運輸,需要

遵守國際間的輻射安全和監管要求。對這些輻射 源進行嚴格監控有助於確保各國能夠遵守國際標 準,降低潛在的法律和經濟風險。

綜上所述,移動式輻射源相對於其他類型的輻射源 具有更高的風險和挑戰,需要更加嚴格的監控和管理, 因此選擇移動式輻射源作為示範場景並進行後續的監 控平台研究是必要的。

#### 2.2 使用情境細節確認

研究將會以網站頁面設計的方式進行評估,與主管 機關進行示範場景業務監管流程、架構與功能模組討論 與確認,可作為導入後續期程計畫之研究基礎,協助輻 射安全管制主管機關進行數位轉型與管制落實。

平台需求規格主要分成三個功能架構:輻射源追蹤 管理系統、警示系統與統計分析系統。輻射源追蹤管理 系統目標在輻射源管理結合已有廠商施工通報平台,加 強對廠商持有輻射源的安全管制,並讓廠商與原能會可 以進行輻射源的追蹤;警示系統主要目標是確認輻射源 沒有使用時是否於存放區域放置與廠商施工時輻射源 沒有使用時是否於存放區域放置與廠商施工時輻射源 沒有使用時是否於存放區域放置與廠商施工時輻射源 淺動是否有在目標場所,其功能可以分為電子圍籬與異 常警報,電子圍籬系統可以控管各輻射源上 RFID 的圍 籬點,而異常警報則是顯示電子圍籬、輻射源劑量與移 輸車輛震動異常的通報;統計分析系統主要目標是讓原 能會可以利用圖表快速了解輻射源現況並進行判斷,其 中分為以廠商為單位的分析圖表與全國概況的分析圖 表,並希望透過智能分析功能優化警報的錯誤次數與頻 率。

將這些需求依照權限進行區分後結果如圖 1,原能 會可以使用輻射源追蹤管理系統來追蹤所有輻射源的 歷史軌跡、即時追蹤、施工通報功能,以及輻射源的警 示系統與統計分析,而廠商只能透過輻射源追蹤管理系 統看到各自管理輻射源追蹤。後續將依照此架構進行頁 面設計,將各項目功能與結果以圖像化的方式呈現出來。



圖 1 平台權限功能區分與呈現結果建議

## 2.3 RFID 應用於輻射源環境之影響與壽命變化

為了確認 IoT 物聯網裝置是否會受到輻射場域的 高強度輻射產生劣化的情況並影響其訊號傳輸能力,因 此對 IoT 裝置中的無線射頻識別系統(RFID)進行先期 研究,評估其在高強度輻射源環境下的訊號傳輸能力表 現,同時建立一套驗證流程(如圖 2)。



圖 2 數據收集與分析流程

#### III. 結果與討論

#### 3.1 欲監管之業務流程

(一) 輻射源追蹤管理系統

輻射源追蹤管理系統依照需求不同可分為即時位 置與歷史路徑查詢,依此分開從這兩項需求做頁面設計: 即時位置功能是為了快速掌握輻射源分布狀況,因此需 要有複數射源定點位置顯示,搜尋條件可以依照廠商、 型號與輻射源名稱條件作範圍限縮,並呈現圖資定位畫 面、基本資訊和射源資訊等,圖資定位畫面可以快速判 斷位置的分布,基本資訊可以判斷該射源證照管理狀態, 射源資訊則是顯示當下射源的資訊,如輻射劑量、震動 狀況、傳輸速度...等等,了解其使用狀況。歷史紀錄功 能是在發生事件後可以快速為了瞭解輻射源以前時間 點的狀態,在條件搜尋時會比即時位置系統需要多開始 時間、結束時間與時間區間欄位,而且在搜索結果可以 呈現各時間點的經緯度以及其相對應的GPS圖資路徑。

## (二) 警示系統

由於人不可能隨時隨地都在平台上觀察各輻射源 狀況,因此需要有警示系統透過程式條件協助人員判斷 出有沒有發生異常事件,提前發出警訊通知。警示系統 可以透過廠商、型號、輻射源與時間區間欄位進行快速 篩選,並在呈現結果欄位找出發生事件的分類、原因、 對應廠商、型號、輻射源名稱與位置,提供操作者快速 判斷與處理。

(三) 統計分析系統

輻射源產生的數據量會以驚人的速度成長,而為了 能夠從此龐大的數據量獲得有用的資訊並產生效益,就 需要以大數據分析技術來解決,將這些技術透過視覺化 圖表呈現,提供操作者可以快速分析與解決問題。統計 分析系統依照原能會目標平台需求規格中主要分成三 大功能:

1. 異常統計

異常統計主要是指系統對輻射源異常事件的 統計分析。這包括輻射源在運輸、使用和存儲過程 中可能出現的意外、失竊、遺失等情況。異常統計 的目的是確保對輻射源的實時監控,以便在異常 事件發生時及時採取應對措施,降低輻射源對環 境和人員的危害。此外,異常統計分析還有助於找 出輻射源管理中的潛在風險,從而改進管理策略 和流程。

2. 斷線統計

斷線統計是指對輻射源與追蹤管理系統之間 通訊失聯的情況進行統計分析。這可能是由於設 備故障、通訊干擾或其他原因導致的。斷線統計的 重要性在於及時發現和排除通訊問題,確保輻射 源的實時監控。通過對斷線情況的統計分析,管理 人員可以優化通訊設施,提高系統穩定性和可靠 性。

#### 3. 智能分析

智能分析是指對輻射源追蹤管理系統中的大 量數據進行深入挖掘,找出輻射源使用和管理中

的規律和趨勢。這可以通過機器學習、數據挖掘等 技術實現。智能分析的重要性在於提高輻射源管 理的智能水平,實現預測性維護和風險評估。通過 智能分析,管理人員可以提前識別潛在問題,進行 更準確的決策和預防措施。

#### 3.2 功能模組評估調查

## (一) 資料庫管理系統

資料庫簡單來說就是儲存資料的地方,但比較正式 的定義為:資料庫是由一群相關資料的集合體。就像是 一本電子書,資料以不重覆的方式來儲存許多有用的資 訊,讓使用者可以透過檢索、排序、計算、查詢等方法, 來有效率的管理並轉換成有用的資訊。一般平台會藉由 資料庫管理系統儲存與管理資料,依據資料管理的方式 可以分為階層式資料庫、網狀式資料庫、關聯資料庫與 NoSQL 資料庫。其中階層式與網狀式資料庫由於已經 算久遠的技術,因此無法管理大量數據,而 NoSQL 雖 然是可以處理大量資料,但由於是較新的技術,其系統 還不穩定,建議以較穩定且成熟的關聯資料庫類型作為 輻射源追蹤系統的資料庫管理。除此之外也比較市面上 常見的資料庫產品(如圖 3),其中 MS SQL Server 具有 較低的操作複雜性與成本,安全性也具有一定的水準, 做為未來實際導入產品建議。

	Oracle	MariaDB	MS SQL Server	
開源/商業用	商業用軟體	開源軟體	商業用軟體	
操作複雜度/介面操作性	複雜度/介面操作性 高 中		低送	
安全性	高	低	ф	
維護性	不易	ф	易举	
價錢	高	免費	ф	
建議程式設計	Java	PHP	C#	

圖 3 市面上常見資料庫產品

#### (二) 地理資訊系統

一般地理資訊需要具備三個技術,分別為遙測、全 球定位系統和地理資訊系統。通過全球定位系統和地理 資訊系統,即可實現監控輻射源的功能。由於去年研究 成果已評估過 GPS 模組產品,因此以 GIS 軟體端進行 評估建議。常見的地理資訊系統軟體如圖 4 所示, ArcGIS 和 QGIS 是功能強大的地理資訊系統,具有高 靈活性,能呈現高質感的地圖,但需要專業人員操作; 相較之下,Google Map 和 TGOS 的性能較為簡單,但 因具有簡單的操作複雜度和快速的開發時間,因此會傾 向選擇這兩個產品快速導入實地應用測試。TGOS 是由 內政部開發的政府平台,同時免費提供,因此建議選擇 此產品作為實際導入的產品建議。

	Google map	ArcGIS	QGIS	TGOS
	💡 Google Maps Platform	ArcGIS	QCIS	TGOS
開源/商業用	商業用	商業用	開源	商業用
操作複雜度 / 介面操 作性	低 👺	高	高	低
安全性	高 🖐	高	ф	高 🎸
開發時間	低 🖐	高	高	ф
價錢	每個月200美金使用 額度,提供每個月 28000次載人 (超過每1,000次收費7 美金)	個人版 100美金/ 年 企業版需與業務洽 荻	免費	免費(需要申請) (特殊國資需另外付費)
優/缺點	優點:已有整合資源, 可簡單快速開發 缺點:彈性有限,分析 能力低	優點:彈性度高,性能 強大 缺點:需要專業人員操 作	優點:彈性度高,成本 低 缺點:需要專業人員操 作	優點:已有整合資源, 可簡單快速開發 缺點:彈性有限,分析 能力低

圖 4 市面上常見地理資訊系統

#### 3.3 RFID 應用於輻射源環境之影響與壽命變化

(一) 實際場域 RFID 安裝與檢測

目前常見的移動式輻射源類型包括 IR-100 (INC) 和 880 Delta (SENTINEL)。為了能觀察不同輻射源型 號對 RFID 標籤的影響,依照廠商擁有的型號選擇了三 間廠商,分別是汎 O、精 O 和祥 O。汎 O 同時擁有 IR-100 和 880 Delta, 精 O 則擁有 880 Delta, 而祥 O 則擁 有 IR-100。

RFID 安裝方式如圖 5 所示,主要需要避開操作人 員拿取手把區域以及輻射源攜帶過程中容易碰撞的正 面和側邊區域。因此選擇了手把正下方的區域進行安裝, 並在每一台輻射源上安裝了 4 個 RFID 標籤(2 個陶瓷 天線材質標籤和 2 個鋁天線材質標籤),分別位於出口 與入口兩側。這樣在未來 RFID 訊號量測出現明顯劣化 時,可以進一步判斷出入口與出口之間的差異。檢測方 式是將 RFID 讀取器固定在量測治具的凹槽後,即可靠 近輻射源旁邊,以固定的距離和角度進行 RFID 訊號偵 測。



圖 5 不同型號移動式輻射源 RFID 安裝方式

## (二) 數據統計結果分析

本研究進行了三個月的數據收集(每個月收集一次, 共三次),並進行訊號的數據收集與分析。在量測 RFID 標籤訊號時,每個動作需重複三次以觀察其重複性。收 集完成後,對數據進行品質控管,刪除三次重複測量中 標準差大於 10 的數據,並取平均值作為代表,以提升 數據的可靠度。最後利用可視化圖表進行數據分析(如 圖 6),分析的結果可分為以下三點:

- 將祥 O 廠商的數據排除在不同地點量測(8月)的 值後,輻射源平均標準差從21.42 降至2.31,與同 樣在室內量測的汎 O 廠商(2.91)相似。由此推測, 不同環境因素對 RFID 訊號強度的影響很大。
- 目前明顯訊號衰退的 RFID 是精 O 廠商的一個銘 材質天線 RFID 標籤。其 8 月的訊號強度相比衰減 了 32%,但其他銘天線的訊號強度衰減變化不大。

研判可能是個案性質,衰減原因可能是施工時的 撞擊受損或量測時的室外環境變化影響。為了進 一步了解 RFID 是否損壞,後續於12月再次於精 O廠商進行量測。如圖7所示,鋁天線3的最新訊 號並反而回到前兩次正常的訊號水準,因此可以 確定並非發生 RFID 劣化或損壞的情況。10月的 結果很可能是環境變動導致訊號干擾,因此未來 若要導入 RFID 進行輻射源識別,較適合在室內或 密閉空間的場所。

 整體來看,RFID 陶瓷天線材質與鋁天線材質的衰 減幅度並不大,顯示 RFID 與輻射接觸三個月並未 讓天線產生劣化而導致訊號弱化。因此,可以確認 產品的生命週期至少為三個月。



#### 圖 6 量測訊號可視化圖表分析



#### RFID天線材質

圖 7 精○廠商 12 月量測訊號可視化圖表

## IV. 結論

本研究進行運用物聯網技術及大數據分析於輻射 安全管制之研析,蒐集相關資訊與評估建議可行性方案, 包含示範場景篩選、使用情境細節確認、欲監管之業務 流程、功能模組評估調查,以提出具有可行性的規劃等, 協助支援移動式輻射源之管制措施。

#### (一) 主要成果:

- 提出射源追蹤管理系統、警示系統和統計分析系 統作為主要業務功能,並以視覺化方式呈現。
- 端網雲架構建議,包括網路層的資料庫、API 整合 到應用服務層的輻射源追蹤、施工通報、警示系統 和統計分析等。
- 3. RFID 通訊技術達到移動式輻射源監管的基本需求, 如輻射源是否離開儲藏室、運送車輛等。並進行 RFID 產品在輻射源環境影響與壽命變化測試,確 認陶瓷或鋁材質天線具有三個月以上的輻射耐受 性,建議在穩定場域如室內或密閉空間導入應用。

- (二)後續規劃:
  - 針對輻射源序號、儲藏室位置、運送位置、碰撞等 需求,進行數據整合的可行性評估、初步設計、測 試和可行性驗證。
  - 提出國內輻射源數位化管制模組可行性評估與初步設計,建立管制平台用模組單元測試流程,並在 示範場景進行初步數位化系統管制模組可行性驗 證。
  - 3. 進行感知層原件整合評估。
  - 本研究成果具有管制支援價值,可以作為後續期 程計畫之研究基礎,並協助輻射安全管制主管機 關進行數位轉型與管制落實。步設計,建立管制平 台用模組單元測試流程,並在示範場景進行初步 數位化系統管制模組可行性驗證。

本研究成果具有管制支援價值,可以作為後續期程 計畫之研究基礎,並協助輻射安全管制主管機關進行數 位轉型與管制落實。

## 參考文獻

- [1] Kurt Silvers (Pacific Northwest National Laboratory), Mobile Source Tracking Projects (Global Threat Reduction Initiative)
- [2] Ki-Won Jang, KINS-IAEA Workshop on Radiation Safety and Emergency Response in the Medical or Industrial Use of Radiation, 10-14 Jun. 2019
- 〔3〕韓國 KINS-IERNET 網站 :: https://iernet.kins.re.kr/second\_index.asp?sido=1& ke\_flag=E
- [4] Sok Chul KIM (Ph.D), Response Supporting System for Deterring Illicit Trafficking of Nuclear and Radioactive Materials, Korea Institute of Nuclear Safety
- [5] MicroStep-MIS 公司網頁: https://www.microstepmis.com/web/frontpage
- [6] 平台建置流程: https://www.cadiis.com.tw/blog/web-designworkflow-process
- 〔7〕輻射源頻段對應: https://www.met.nps.edu/~psguest/EMEO\_online/ module2/module\_2\_5.html

## 建置「輻射作業正當性之審查機制」研究

# Research on the Establishment of "the Review Mechanism for the Justification of Radiation Practices"

計畫編號: 111-2623-E-040-001-NU 計畫主持人:陳拓榮 e-mail:trchen@csmu.edu.tw 計畫共同主持人:許芳裕 計畫參與人員:賴南谷、黃妮妮、陳亮臻、張雅禎、黃柏予 執行單位:中山醫學大學醫學影像暨放射科學系

## 摘要

國際放射防護委員會(ICRP)及國際原子能總署 (IAEA)等國際組織對於游離輻射作業正當化管理,建議 主管機關應建立正當性審查機制,而國內游離輻射主管 機關原子能委員會(簡稱原能會)對於輻射作業正當性 審查,係參考 ICRP 報告正面表列之商品,訂有「商品 輻射限量標準」進行管理。為確保國人之輻射安全,原 能會須師法國際,建置輻射作業正當性之審查機制。本 研究將蒐集、研析相關文獻,撰寫與提出國內可行之輻 射作業正當性審查機制建議,作為原能會後續精進輻防 管制法規之參考。

**關鍵詞:**正當性、輻射作業、輻射防護、輻防管制、輻 射管理審查

### Abstract

International organizations such as the International Commission on Radiological Protection (ICRP) and the International Atomic Energy Agency (IAEA) suggest that the competent authority should establish a review mechanism for the justification management of practices involving ionizing radiation. In Taiwan, the competent authority of ionizing radiation is the Atomic Energy Council (AEC). For the review of the justification of ionizing radiation practices in Taiwan, AEC currently established a regulation, radiation limited standards for commodities, for management, in which the commodities are referred to the list in the ICRP report. However, in order to ensure the radiation safety of the Taiwanese people, it is urgent for AEC to follow the international community and establish a review mechanism for the justification of ionizing radiation practices. This project collected and studied relevant documents, and proposed a feasible domestic review mechanism for the justification of ionizing radiation practices, and serve as a reference for AEC in the follow-up advancements of radiation protection and control regulations.

**Keywords**: justification, radiation practices, radiation protection, radiation control, radiation management review.

## I. 前言

國際放射防護委員會(ICRP) 2007 年提出的 103 號 輻防建議書[1],所闡述之正當性、最適化、劑量限值, 亦為輻防管制核心價值。游離輻射防護安全標準第6條 即明定輻射作業應符合利益須超過其代價。國際原子能 總署(IAEA)於其 2014 年提出之"輻射防護和輻射源安 全:國際基本安全標準(GSR Part 3)"[2],在說明計畫 曝露情況的要求時指出:"政府或主管機關應酌情確保 任何類型的輻射作業均需符合正當性,並在必要時對其 正當性進行審查,且應確保只有符合正當性的輻射作業 才會得到授權或批准。現行國內主管機關對於輻射作業 正當性審查,係參考 ICRP 報告正面表列之商品,訂有 「商品輻射限量標準」進行管理[3]。但隨著科技快速進 步,輻射應用日益廣泛,國際間對於輻射作業正當化管 理,從國際文獻(IAEA GSG-5)[4]與 IAEA、歐盟、英國 安全技術指引[5-8],都建議主管機關應建立正當性審查 機制,以快速因應複雜多元之輻射應用管理。

為確保國人之輻射安全,國內游離輻射主管機關 (行政院原子能委員會,以下簡稱原能會)亟須師法國際, 建置輻射作業正當性之審查機制,審查範圍可能涉及人 造、天然放射性物質的添加或使用於消費性產品、非醫 療用途之人體攝影等。

## II. 主要內容

本研究蒐集、研析相關文獻,撰寫與提出我國可行 之輻射作業正當性審查機制建議,作為原能會後續輻防 管制法規精進之參考。規劃之工作項目與內容說明如下:

## 2.1 蒐集研析國際組織對正當性審查之管制建議與技術指引等相關文獻

現行國內主管機關對於輻射作業正當性審查,訂有 「商品輻射限量標準」進行管理[3]。但許多國際文獻對 於輻射作業正當化管理,都建議主管機關應建立正當性 審查機制,以快速因應複雜多元之輻射應用管理。

相關文獻中, ICRP 103 輻防建議書指出正當性是 對於計畫曝露情況,確定輻射作業是否整體而言是有益 的過程;而 IAEA GSR Part 3 安全標準對計畫曝露情況 的要求闡述時指出:政府或主管機關應儘可能確保任何 類型的輻射作業均屬正當化,並在必要時對其正當性進 行審查,且應確保只有正當性的輻射作業才會得到授權 或批准。此外,IAEA 在 2014 年發布之一般安全指引 (GSG-5)(Justification of Practices, Including Non-Medical Human Imaging)報告中,亦對政府或主管機關在確定新 的或現有類型的輻射作業是否是符合正當性的決定過 程提出指導建議[4]。歐盟及英國則在 2004 年提出輻射 作業正當性法規(The Justification of Practices Involving Ionising Radiation Regulations 2004)[5],並於 2018 年提 出更新的修訂版(The Justification of Practices Involving Ionizing Radiation (Amendment) Regulations 2018)[6],又 於 2019 年提出對應輻射作業正當性之申請與管理指引 (Guidance on their application and administration)[7]。本 研究蒐集上述 IAEA、歐盟、英國等之正當性審查之管 制建議與技術指引等相關國際文獻,進行研析與重點彙 整。

上述文獻中,IAEA GSG-5 安全指引的目的是向政 府和主管機關提供指導,說明在考慮在計畫曝露情況下 採用特定類型的作業是否正當化時應採用的方法。它旨 在協助政府和主管機關在進行決策過程中,當面臨需要 或請求授權一種新型的做法或需要審查已經建立的輻 射作業類型的做法。IAEA GSG-5 涵蓋了應該考慮的因 素以及在決定引入特定類型的輻射作業是否正當化應 採用的過程,還為那些希望向政府或主管機關證明特定 類型的輻射作業是正當化的人提供了一些指引。

## 2.2 蒐集研析並彙整國際上對正當性審查與決定之案 例

除了蒐集研析國際對正當性審查之管制建議與技術指引等相關文獻外,本研究亦蒐集、研析並彙整國際 上對正當性審查與決定之案例,目前初步搜尋到 IAEA 有提供之案例如,包括「航空公司乘客使用 X 射線掃 描檢測武器的案例」、「關於使用 X 射線或加馬輻射掃 描檢測人們在車輛或貨櫃中非法進入國家的案例」、「使 用 X 射線掃描進行年齡確定的案例」、「使用氚的緊急 出口標誌的使用案例」等。

## 2.3 提出我國可行之輻射作業正當性審查機制建議

本計畫彙整 ICRP、IAEA 等國際組織對輻射作業 正當性的相關管制建議與技術指引等作法、撰寫與提出 我國可行之輻射作業正當性審查機制建議,包含送審文 件、正當性要件、審核分工、審核標準等,提供主管機 關原能會作為後續法規精進之參考。

## III. 結果與討論

## 3.1 國際組織對正當性審查之管制建議與技術指引相關 文獻彙整

## 3.1.1 ICRP 103 及 IAEA GSR Part 3 報告正當性相關 建議

ICRP 103 (2007) 明確提出關於輻射防護正當化 的原則要求:因引入的活動(輻射作業或應用)而產生 新的輻射曝露時,活動帶來的利益應大於輻射曝露帶 來的損害。IAEA General Safety Requirements (GSR) Part 3 報告(2014)亦提出對輻射作業與應用(practices) 之正當化(採行輻射作業或應用之利益須超過其代價) 要求作法:政府主管機關必須確保只有具正當化的輻 射作業或應用才能獲得授權同意。

## 3.1.1 針對使用天然放射性物質作為負離子原料使用 於民生產品之相關說明或建議

雖然 ICRP 103 及 IAEA GSR Part 3 的報告中, 未直接針對使用天然放射性物質作為負離子原料使 用於民生產品作說明或建議,而負離子民生產品亦屬 於消費性產品,因此適用於 ICRP (2007)及 IAEA(2014) 的報告中關於應具正當性之建議。IAEA GSR Part 3 報 告(2014)中有針對添加放射性物質之消費性產品要求 (要求 33)提出建議說明,其要點彙整如下:

- 添加放射性物質之消費性產品供應商應確保: 除非使用該消費性產品對公眾是具正當化的, 或它們的使用已被列為豁免管制,或該產品已被 主管機關授權同意可向公眾提供使用,否則不得 向公眾提供或販售添加放射性物質之消費性產品。
- 2. 在收到向公眾提供消費性產品授權的申請後,主 管機關應:
- (1)要求消費性產品的供應商提供證明符合要求的 文件;
- (2) 核實授權請求中提出的評估和參數選擇;
- (3) 確定是否可以豁免消費性產品的最終用途;
- (4) 在適當情況下,應依據具體的條件授權申請者向 公眾提供消費性產品。
- 3. 消費性產品供應商應:
- (1) 遵守授權條件,向公眾提供消費性產品;
- (2) 確保消費性產品符合 IAEA GSR Part 3 的要求(包括正當化要求);
- (3)制定消費性產品維修,保養,回收或處置的適當 安排計畫。
- 4.考慮到在正常操作、運輸和使用中以及在錯誤操 作、錯誤使用、事故或處置情況下可能影響曝露的 特點,消費品的設計和製造必須遵循防護和安全 的最適化(optimization)。消費性產品設計者、製造 商和其他提供商必須考慮到以下方面:
- 在消費性產品中可能使用的各種放射性物質及 其輻射類型、能量、活度和半化期;
- (2)在消費性產品中可能使用的放射性物質的化學和物理狀態及其在正常條件和異常條件下對防護和安全的重要性;消費性產品中放射性物質的容器和屏蔽,以及在正常和異常條件下對這些放射性物質的接觸;
- (3) 消費性產品服務或維修的需要以及可能進行服務或維修的方式;
- (4) 類似消費性產品方面的相關經驗。
- 5. 消費性產品供應商還應確保:
- 在實際可行的範圍內,在每件消費性產品可見的 表面上牢固地貼上一個清晰可讀的標籤以:
  - (A)說明消費性產品含有放射性物質,並標識放射 性物質種類及其活度;
- (B)說明向公眾提供消費性產品已得到主管機構的 授權同意;

(C)提供有關回收或處置的必要或建議選項的資訊。

(2) 將上述(1)項中規定的訊息也清晰地印在消費性 產品的零售包裝上。

6. 消費性產品供應商應向零售商提供有關消費性產品安全性的適當訊息,以及其關於運輸和儲存的說明。

3.1.2 IAEA GSG-5 安全指引之正當性相關建議

- IAEA GSG-5 安全指引,係就政府或主管機關在擬 議新的或現有類型計畫曝露情況下的輻射作業, 確定其是否為正當化的決定過程提供方法指導。 其目的是通過應用此安全指引中提出的方法,政 府或主管機關將能夠更好地就特定類型輻射作業 的正當化達成一致和透明的決定。
- 正當化的原則是簡單和合乎邏輯的:輻射作業必須對曝露的個人或社會產生積極的淨利益。
- 3. 在討論涉及增加輻射曝露或潛在曝露的活動時, ICRP 指出"要考慮的後果不僅限於與輻射相關的 後果;也包括其他風險以及活動的成本和收益。 有時,輻射損害是總傷害的一小部分。因此,正當 化考量遠遠超出了輻射防護的範圍,也涉及考慮 經濟,社會和環境因素。
- 4. 判斷正當化的責任通常由政府或國家當局決定, 以確保在最廣泛的意義上對社會的總體利益。
- 6. 確定正當化的過程和對某一做法達成的決定可能 因國而異。
- 6. 政府與主管機關的責任
- (1) 政府的責任
  - (A)政府應建立並維持適當法律和監管框架,以便 在其中明確分配責任。
  - (B)政府通過法律制度,應建立和維持一個主管機關,並賦予其法律權威,並為其提供履行其對設施和活動的管制的法定義務所需的能力和資源。
  - (C)政府應確保主管機關在其安全相關決策中有效 地獨立,並且與具有可能不當地影響其決策的 責任或利益的實體具有功能分離。
  - (D)政府對將合法和公認的利益納入其決策具有最終的政治責任。然而,主管機關必須在其規定設施和活動的法定義務範圍內作出決定,並且必須履行其監管職能,而沒有不當的壓力或限制。
  - (E)政府應建立機制,確保主管機關的活動可與其他政府機關的活動以及有相關責任的國家或國際組織協調。
- (2) 主管機關的責任
  - (A)主管機關的目標是根據管制要求驗證和評估安 全性。
  - (B)主管機關應獲得必要的技術或其他專家專業意見或服務,以支持其監管職能。
  - (C)主管機關可決定給予由專家提供之意見和建議 所建立的程序正式地位,此外,應確保向主管 機關提供諮詢或服務的組織不存在利益衝突問 題。
  - (D)如果主管機關認為該類型的輻射作業不正當,因此決定不發布授權或延續授權,主管機關應向申請人提供其決定的聲明。
  - (E)主管機關應建立適當的機制,包括建立一個反

映各種利益的個人的主管機關的諮詢機構。

(F)政府或主管機關(視情況而定)應明確說明被認為正當的作業類型。

7. 決定正當化的一般處理程序

如果政府決定某種特定類型的輻射作業是正 當的,即應對該類型的輻射作業行使其正常的監 管職權。

□在主管機關負責決定某種類型的做法的正 當性的情況下,應正式組建和諮詢諮詢機構。主管 機關應確保向諮詢機構提供足夠的資訊,以便其 成員能夠了解與輻射曝露相關的風險,並能夠將 這些風險與其他風險進行透視。

如主管機關有責任確保某種類型的作業是正 當的,則申請人向主管機關提供的資料與訊息應 包括以下內容:

- (1) 申請人姓名及聯繫方式。
- (2) 輻射作業類型的描述, 附圖和圖表。
- (3)將使用的輻射源的全面特性,以及確保安全和減 少放射性後果將採取的措施。
- (4)評價輻射作業類型的利益和損害,包括輻射損害。 評價應包括經濟、社會、健康和安全、廢物管理、 回收、環境影響和除役方面。輻射損害的評估應 涵蓋預期曝露的程度和可能性,以及對潛在曝露 的評估。
- (5) 指明預期的輻射作業類型的使用程度。
- (6) 主管機關應先確定申請人是否提供了所有必要的資料與訊息。如有必要,主管機關應請申請人 澄清;還應與任何預先確定的標準進行初步比較。 之後,主管機關應尋求諮詢機構的建議。
- (7) 諮詢機構:
  - (A)應審查與評估對這類作業要求的利益,如有必要,應與有關各方協商;
  - (B)應審查與評估預期由這種類型的做法產生的所述損害,包括輻射損害,並在必要時,應就申請人損害評估的充分性做進一步的資料提供和說明;
- (C)應向主管機關提交報告,其中應提供關於作業 類型是否正當的建議。
- (8) 輻射作業的利益可為不同類型,包括可能的保存 生命、預防傷害或疾病、技術利益、防止財產損 失或安全改進;預期效益應盡可能量化。
- (9) 在評估擬議類型的輻射作業時,應考慮包括正常 使用,運輸,事故和其他事件,誤用,回收和廢 物管理的輻射劑量和風險等。在評估事故的劑量 時,應考慮發生事故的機率。
- (10) 輻射安全評估的重點應該是對受最多曝露的個 體的劑量。
- (11)由於採用某種輻射作業而造成曝露的所有人之 集體劑量可能是決定某些類型輻射作業的正當 化的決定因素;集體有效劑量是最適化和比較 放射技術和輻射防護程序的工具。
- (12)效益的評估往往是非常主觀的。為了限制諮詢 機構在利益評估中的偏見,諮詢機構應當在可 行的情況下,在審議某種特定類型做法的正當 化之前確立標準,以協助向主管機關提出建議。

- (13) 諮詢機構應審查和評估所有提供的資料與訊息, 並考慮到已確立的任何標準。評估過程應該全 面記錄,報告應列出主要證據、評估的不確定 性、諮詢機構建議的基礎和正當化。
- (14)如果諮詢機構認為需要與非使用游離輻射的替 代方案進行比較,則應適當謹慎地進行。替代 方案也可能有損害。
- (15) 主管機關應審查諮詢機構的報告,在與諮詢機構進行任何進一步必要的協商後,主管機關應當就提出申請類型輻射作業的正當化做出決定。 一旦作出決定,應將其結果通知申請人。

## 3.2 蒐集研析並彙整國際上對正當性審查與決定之案 例

本研究蒐集研析國際上對正當性審查與決定之案 例,彙整 IAEA 及英國提供之案例[4,11]簡要描述如下: (礙於篇幅,本精簡報告僅呈現六個案例中之二案例的 簡要說明)

案例 1: 航空公司乘客使用 X 射線掃描檢測武器的案例 (IAEA)

航空公司使用 X 射線對乘客進行安檢目的之掃描, 在一些國家可進行,在其他國家則被禁止。這種 X 射 線掃描的目的是檢測是否可能攜帶到飛機上的任何隱 藏的武器或炸彈。但是,似乎沒有任何公開的研究,證 明這種做法的正當性;儘管如此,該程序曾在幾個機場 試行。歐洲議會授權歐洲委員會在美國 2001 年 9 月 11 日的恐怖襲擊事件之後為民航安全制定共同規則,但由 於對健康,隱私和資料保護的關注,歐洲議會拒絕委員 會實施關於 X 射線掃描身體安檢技術的更具體的規則。 歐洲機場的 X 射線回散射人體掃描設備在 2012 年底全 面暫停使用。

案例2:使用X射線掃描檢測人體中毒品藥物的案例 走私毒品的一種方法是將它們運送到人類運載體 的體內,在一些國家對邊境和其他地方的人進行 X 射 線掃描以進行此項走私檢查。在英國,2005年的"毒品 法"規定警察有權對懷疑吞服藥物的人進行 X 光或超聲 掃描。根據該法案,除非書面同意並且 X 射線只能由 醫院或其他醫療機構的合格人員進行,否則不得進行 X 射線。

案例 3: 關於使用 X 射線或加馬輻射掃描檢測人們在車 輛或貨櫃中非法進入國家的案例

在英國,隱藏在車輛或貨櫃中的偷渡率非常高,英 國移民局計畫在英國港口和控制區部署 X 射線或γ輻 射掃描儀,以檢測企圖避開英國移民管制的人。這種做 法將與其他搜索技術相結合,以提供一個平衡和有效的 搜索制度。在大多數情況下,掃描儀將用作檢查的第二 階段檢測方式(第一階段使用非輻射源的 CO2 感測器 檢測),提供第一階段不確定結果的確認。本案例描述 了使用 X 射線或γ輻射掃描來檢測偷渡者的情況,包 括成本效益分析。

#### 3.3 提出我國可行之輻射作業正當性審查機制建議

本計畫彙整國際相關管制建議與技術指引等作法、 撰寫與提出我國可行之輻射作業正當性審查機制建議 (列於完整報告之附件二),包含送審文件、正當性要件、 審核分工、審核標準等,提供主管機關原能會作為後續 法規精進之參考。

## IV. 結論

ICRP 及 IAEA 等國際文獻對正當化相關審查之建 議要點如下:

- 在主管機關負責決定某種類型的做法的正當性的情況下,應正式組建諮詢機構。主管機關應確保向諮 詢機構提供足夠的資訊。
- 主管機關應先確定申請人是否提供了所有必要的資料與訊息。如有必要,主管機關應請申請人澄清。
   之後,主管機關應尋求諮詢機構的建議。
- 輻射作業的利益可以是許多不同類型,包括可能的 保存生命、預防傷害或疾病、技術利益、防止財產 損失或安全改進。預期效益應盡可能量化。
- 諮詢機構應審查和評估所有提供的資料與訊息,並 考慮到已確立的任何標準,評估過程應該全面記錄。 報告應列出主要證據、評估的不確定性、諮詢機構 建議的基礎和正當化。
- 如果諮詢機構認為需要與非使用游離輻射的替代方 案進行比較,則應適當謹慎地進行。替代方案也可 能有損害。
- 主管機關應審查諮詢機構的報告。在與諮詢機構進 行任何進一步必要的協商之後,主管機關應當就這 種類型的做法的正當化做出決定。一旦作出決定, 應將其通知申請人。

本計畫蒐集研析國際上對正當性審查與決定之案 例,亦彙整國際相關管制建議與技術指引等作法、撰寫 與提出我國可行之輻射作業正當性審查機制建議,提供 主管機關原能會作為後續法規精進之參考。整體而言, 本計畫依原規劃進度執行,並達成原規劃之計畫目標。

## 参考文獻

- [1] ICRP, The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103, 2007.
- [2] IAEA, Safety Standards Series No. GSR-Part3: Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, General Safety Requirements. International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 2014.
- 〔3〕行政院原子能委員會,「商品輻射限量標準」, 2016年6月。
- [4] IAEA, Safety Standards Series No. GSG-5: Justification of Practices, Including Non-Medical Human Imaging, General Safety Guide. International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 2014.
- [5] European Communities, Health and Safety Environmental Protection: The Justification of Practices Involving Ionising Radiation Regulations 2004, 2004 No. 1769, 2004.
- [6] European Communities. Health and Safety Environmental Protection: The Justification of Practices Involving Ionising Radiation (Amendment) Regulations 2018, 2018 No. 430, 2018.
- [7] Department for Business, Energy & Industrial Strategy (DBES), The Justification of Practices

Involving Ionising Radiation Regulations 2004: Guidance on their application and administration, DBES, UK, 2019.

- [8] The Department of Environment, Food and Agriculture, Ionising Radiation (Basic Safety Standards and Justification of Practices) Regulations 2019, Statutory Document No. 2019/0283, UK, 2019.
- [9] ICRP, The Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 26, 1977.
- [10] IAEA Safety Standards Series No. SSG-36: Radiation Safety for Consumer Products, Specific Safety Guide. International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna, 2016.
- [11] Department for Business, Energy and Industrial Strategy, The Justification of Practices Involving Ionising Radiation Regulations 2004: Guidance on their application and administration, Department for Business, Energy and Industrial Strategy, 2019.

## 國內不同地區醫院地下室工作場所氣氣之量測及人員劑量評估 Measurement of Radon Gas Levels and Personnel Dose Assessment in the Basement Workplaces of Hospitals in Different Regions of Taiwan

計畫編號:MOST 111-2623-E-343-001 -NU 計畫主持人:林群智 教授 e-mail:cclin@nhu.edu.tw 計畫共同主持人:丁健益 助理教授 計畫參與人員:林世榮、李佩穎 執行單位:南華大學自然生物科技系

## 摘要

本研究針對國內不同區域大型醫院地下室工作環 境之氣氣濃度進行調查,探討不同地質條件與氣氣濃度 之關係,推算該工作環境中工作人員之輻射劑量。研究 以校正後矽半導體偵檢器 RAD-7 校正掌上型 MR107+ 半導體氣氣偵檢器,建立校正曲線,並依氣氣量測作業 規範 MAH-2019 儀器擺置建議放置 MR107+偵檢器於 量測地點。結果顯示,所有醫院的濃度均低於美國 EPA 訂定的行動標準。濃度最高的一家醫院之平均濃度為 121.22 Bq/m<sup>3</sup>,其工作人員的年有效劑量為 1.62 mSv, 未超過工作人員之年劑量限度,且發現環境氣氣濃度與 溫度、濕度與地質條件無顯著相關性,受空氣流通之有 無影響較大,故藉由通風換氣以降低地下室之工作環境 中氣氣濃度尤為重要。

**關鍵詞:**醫院、地下室、放射性、氣氣、背景輻射、天 然放射性物質

#### Abstract

This study investigated the radon concentrations in the basement working environments of large hospitals in different regions of Taiwan, aiming to explore the relationship between geological conditions and radon concentrations and estimate the radiation dose received by the working staff. The calibrated RAD-7 silicon semiconductor detector and the portable MR107+ semiconductor radon detector were used in the study, and a calibration curve was established. The MR107+ detector was placed at the measurement locations in accordance with the MAH-2019 instrument placement recommendations for radon measurement. The results showed that the concentrations in all hospitals were below the action level established by the US EPA. The highest average concentration was 121.22 Bq/m<sup>3</sup>, and the annual effective dose received by the working staff was 1.62 mSv, which did not exceed the annual dose limit for workers. The study also found that the environmental radon concentration had no significant correlation with temperature, humidity and geological conditions, but was greatly influenced by air circulation. Therefore, ventilation is particularly important for reducing radon concentrations in basement working environments.

**Keywords:** hospital, basement, radioactivity, radon, background radiation, Naturally Occurring Radioactive Materials

## I. 前言

氦氣為具放射性之惰性氣體,在自然界中主要來自 地殼、土壤和水中鈾系和針系天然放射性物質 (Naturally Occurring Radioactive Materials; NORM)衰變 所產生,主要之同位素為<sup>222</sup>Rn [半衰期(T1/2) 3.8 d)、 <sup>220</sup>Rn (T1/2=55.6 s )和 <sup>219</sup>Rn (T1/2=3.96 s ),其中以 <sup>222</sup>Rn 最重要,可釋出 5.49 MeV 之 α 射線,其衰變之後子核 為金屬,均為具有高 LET 之 α 射源,其中,<sup>214</sup>Po 及 <sup>218</sup>Po 貢獻 90%以上之劑量,因此,氦氣進入肺部後對組織之 傷害甚大,主要來自氡的短壽命子核放射的α粒子對肺 的敏感組織之曝露,在全球人口所受天然輻射劑量中, 室內氡氣之貢獻占約一半,WHO 與英國 AGIR 的流行 病學調查均顯示氡氣為僅次於吸菸的致肺癌環境因子, 而且抽煙具有加乘作用[1,2]。大部份建築內都含有少量 的氡氣,一般的住家氡氣平均濃度會低於 100 Bq/m<sup>3</sup> (1.3 pCi/L),在一些歐洲國家,住宅氣氣濃度範圍可 低至 10 Bq/m<sup>3</sup> 以下,高至 100 Bq/m<sup>3</sup> 以上[3]。室內氡氣 有多種來源,主要來自建築物地基層的土壤及岩石中所 含之天然放射性物質釋放出之氣氣經建築物的裂縫和 結合處擴散到室內,以及建築物內部使用的天然石材 (例如:磚塊、花崗岩及水泥等)所含天然放射性物質釋 出之氡氣。因此,2009 年 WHO 即在其公佈之 Handbook on Indoor Radon 中呼籲世界各國重視,制定氦氣行動計 畫,並以100 Bq/m<sup>3</sup>為室內氡活度改善目標之建議值, 目前已陸續有國家及國際組織研擬下修室內氣氣標準 以符合 WHO 的建議。而對於了解並降低公共場所、工 作場所和住宅之氦氣曝露也受到國際的重視。

由於<sup>222</sup>Rn 的半衰期只有 3.8 天,故改善房屋的通 風可減少室內氡氣濃度。一般而言,通風越差,室內氡 氟濃度就越高[4],通風良好的住宅,室內外氡氣水平應 為一致。在多數大型醫療院所的空間幾乎都是密閉空間, 主要依賴中央空調進行室內空氣的調節,Vaupotič 和 Kobal 在斯洛伐尼亞 26 個醫院的研究[5]發現,有 7 個 病房的氡氣濃度超過 400 Bq/m<sup>3</sup>。日本在東京五個醫院 地下室的氡氣量測發現,其四季平均值約 20 Bq/m<sup>3</sup>,最

高值為 55.6 Bq/m<sup>3</sup> [6]; Mnich 等人在波蘭對過去 40 年 構築的醫院之室內氡氣濃度的研究中發現,在 40 年前 建構的醫院,其地下室氡濃度為  $38.4\pm36.7$  Bq/m<sup>3</sup>,較高 樓層為  $17.1\pm10.3$  Bq/m<sup>3</sup>,在 16 年前建構的醫院,其地 下室氡濃度為  $45.5\pm47.2$  /m<sup>3</sup>,較高樓層為  $20.1\pm12.5$ Bq/m<sup>3</sup>,在 3 年內新建的醫院,其地下室氡濃度為  $32.3\pm27.4$  /m<sup>3</sup>,較高樓層為  $20.4\pm12.6$  Bq/m<sup>3</sup> [7]。

由前可知,醫院地下室的氣氣濃度高於較高樓層。 國內大型醫院頗多,且其所屬的地下室空間與一般大樓 不同的是,除了可能用做停車場所之外,也常用來作為 放射影像、核子醫學等需隱蔽性以降低公眾曝露風險科 別的工作場所,其氣氣濃度之累積可能高於其他區域, 特別在於空調關閉之後,但國內對於大型醫療院所地下 室工作環境之氣氣濃度及曝露劑量之研究付之闕如,基 於了解在地下室工作之醫護人員所受氣氣濃度的影響, 探討該場所之氣氣濃度並評估其人員所受劑量實有其 必要。本研究之目的擬針對國內不同區域大型醫院地下 室工作環境之氣氣濃度進行調查,並就其工作人員的工 作時數推斷其曝露劑量,以提供醫院了解其地下室工作 場所人員之劑量曝露以及採取相關改善措施之依據。

## II. 主要內容

#### 一、 儀器與校正

室內氦氣量測常用的方法主要有主動式與被動式 兩類,本研究考量儀器取得之難易、數量、經費及量測 時間等因素採用主動式氦氣量測法,以掌上型 MR107+ 半導體偵檢器為主要量測儀器。

對於儀器校正,以氡射氣標準射源(活度為  $A_{Ra}$ =501.1±6.2 Bq)、RAD-7 半導體偵檢器以及氣密腔體, 將 RAD-7 偵檢器置入氣密腔體中,以矽膠管接上氡射 氣標準射源(活度為  $A_{Ra}$ =501.1±6.2 Bq),利用氣密腔體 內置風扇和外部幫浦引入標準射源產生之氡氣,利用衰 變法校正,由聚乙烯膠囊內氡的逸出分率( $\alpha$ =0.013)、 氡氣射源在聚乙烯膠囊內之累積時間( $t_a$ ),及式(1)、(2) 可推算氣密腔體內之原始活度( $A_{ref}(0)$ )。

 $A_{\rm ref}(0) = A_{Ra}[f_0 x + \alpha(1 - x)]$ (1)

$$x = 1 - e^{-\lambda t_a} \tag{2}$$

由氣密腔體之桶身容積(Vc=0.2105 m<sup>3</sup>)和儀器所占 容積(Vm=0.0111 m<sup>3</sup>),可由式(3)得知氣密腔體內部體積 (Vc-Vm)及原始活度濃度(Cref(0))。由原始活度濃度之理 論衰變曲線與 RAD-7 偵檢器實測數據,可建立理論與 實測數據之校正曲線。

$$C_{ref}(0) = \frac{A_{ref}(0)}{V_c - V_m} \tag{3}$$

以校正後之矽半導體偵檢器 RAD-7 可進一步校正 掌上型 MR107+半導體氣氣偵檢器,以建立 MR107+偵 檢器與 RAD-7 偵檢器之數據校正曲線。

#### 二、 氡氣量測

校正後之 MR107+偵檢器依氦氣科學家和技術人 員美國協會(American Association of Radon Scientists and Technologists; AARST)氦氣量測作業規範 MAH-2019 之量測建議置放於國內本島、澎湖及金門等不同 區域大型醫院地下室之工作環境中,經測量6日後,紀 錄所測得之氣氣濃度、溫度、濕度及量測點建材與地質, 並參考美國環保署氣氣量測作業規範 MAH-2019[9],採 用建議用於短期單次量測的延伸協定(Extended protocol)作業規範,以便對量測結果偏高的量測點進 行復測,且後續探討不同地質條件與濃度之關係,進而 以所測得之濃度推算該環境中工作人員之輻射劑量。

#### 三、 劑量推算

根據 ICRP 137 號報告,吸入氡氣所導致之有效劑 量可以式(4)表示。

 $\mathbf{E} = \mathbf{C} \times \mathbf{t} \times \mathbf{f}_{\mathbf{c}} \quad (\mathbf{mSv}) \tag{4}$ 

其中,E:有效劑量(mSv),C:氦氣濃度(Bq/m<sup>3</sup>);t:時間(h); f<sub>c</sub>:修正後之劑量係數(dose coefficient;每單位體積 Rn-222 之活度所導致之有效劑量)。

(5)

對於建築物和地底礦區,f的建議值為3 mSv/(mJ·h·m<sup>3</sup>),劑量係數對多數室內的狀況而言,標 準假設為EF = 0.4,則修正後之劑量係數( $f_c$ ):

 $f_c=3 mSv/(mJ\cdot h\cdot m^{-3}) \times 0.4 =6.7 \times 10^{-6} mSv/(Bq\cdot h\cdot m^{-3})$ 

將 fc代入式(4)可求得有效劑量。

#### III. 結果與討論

#### 一、 半導體偵檢器校正

氡射氣標準射源理論衰變曲線與 RAD-7 半導體偵檢器實際量測之活度曲線如圖 1 所示。兩者之衰減曲線 呈現差異,但若將兩者在同一時間所測得之濃度作圖 (圖 2)可發現存在良好的線性關係。



圖 1 氡射氣標準射源理論衰變曲線與 RAD-7 半導體 偵檢器實際量測之活度曲線



圖 2 RAD-7 在活度濃度 20999 Bq/m<sup>3</sup>以下之校正曲線

將校正後之 RAD-7 偵檢器與掌上型 MR107+半導 體偵檢器(圖 3)於氣密腔體中量測 850 Bq/m<sup>3</sup>以下之地 下氡氣,建立 MR107+偵檢器與 RAD-7 偵檢器之數據 校正曲線,仍可發現 MR107+偵檢器與 RAD-7 偵檢器 所測得之氡氣濃度存在良好的線性關係。相較於過去使 用回推半衰期歸因於校正系統洩漏,並找出各濃度區間 校正因子的方式更為簡單、線性範圍更寬廣,可降低濃 度依持性的影響。由 MR107+偵檢器之校正曲線及原始 活度濃度與 RAD-7 偵檢器之校正曲線,可得各大醫院 之氡氣濃度。



係

二、 醫院氣氣濃度

本研究結果發現所測得各醫院氡氣之濃度如表 1 所示。

表 1 各醫院實測之氣氣濃度與估算之工作人員年有效 劑量

				氧氨濃度			評估工作人員
暑院	地區	温度(*C)	温度(%)			樓層	之年有致鬱量
				[pCi/L]	[Bq/m <sup>3</sup> ]		(mSv/y)
1	新店	18.4	65	0.31	11.57	地下一樓	0.16
2	永和	24.8	54	0.11	4.24	地下一樓	0.06
3	土城	26.5	62	0.22	8.17	地下一樓	0.11
4	台 中-1	26.2	43	0.36	13.36	地下一樓	0.18
5	彰化-1	22.0	59	3.28	121.22 (Max 3404)	地下一樓	1.63
6	嘉義-1	20.6	80	0.49	18.28	地下一樓	0.24
7	全門	29.2	77	0.06	2.25	地下一樓	0.03
8	澎湖-1	22.2	71	0.50	18.40	地下一樓	0.25
9	澎湖-2	21.3	82	0.79	29.25	地下一樓	0.39
10	台中-2	21.3	59	0.20	7.52	地下一樓	0.10
11	嘉義-2	22.1	53	0.48	17.60	地下一樓	0.24
12	嘉義-3	26.4	68	0.36	13.31	地下一樓	0.18
13	萬芳	23.2	72	0.15	5.40	地下一樓	0.07
14	嘉義-4	23.1	60	0.12	432	地下一樓	0.06
15	台中-3	22.0	58	0.12	4.38	地下一樓	0.06
16	花建-1	23.4	67	0.39	14.33	地下一樓	0.19
17	台南-1	25.1	55	0.06	2.25	地下一樓	0.03
18	板橋	20.4	81	0.39	14.33	地下一樓	0.19
19	北投	23.6	47	0.24	8.94	地下一樓	0.12
20	彰化-2	22.7	49	0.06	2.25	地下一樓	0.03
21	彰化-3	22.8	63	0.31	11.38	地下一樓	0.15
22	宜蘭	25.1	72	0.38	14.24	地下一樓	0.19
23	花蓮-2	22.3	48	0.47	17.46	地下一樓	0.23
24	台南-2	21.7	59	0.12	4.60	地下一樓	0.06
25	高雄-1	22.8	64	0.32	11.81	地下一樓	0.16
26	台南-3	23.5	71	0.39	14.32	地下一樓	0.19
27	桃間	22.9	69	0.43	15.75	地下六樓	0.21
28	新竹	22.1	57	0.01	0.49	地下一樓	0.01
29	台南-4	24.0	57	0.10	3.71	地下一樓	0.05
30	高雄-2	25.4	64	0.27	9.86	地下一樓	0.13

本研究共量測 30 家醫院地下室之工作環境之氣氣 濃度,其量測地點位於其建築之地下 1~6 層,濃度最高 的一家醫院之平均濃度為 121.22 Bq/m<sup>3</sup> (3.28 pCi/L),主 要因為該場所於下班期間將空調系統關閉。其工作人員 之年有效劑量經推算為 1.62 mSv,未高於輻射工作人員 之年劑量限度。其餘 29 家醫院之平均濃度為 0.49~29.25 Bq/m<sup>3</sup> (0.01~0.79 pCi/L),推算其工作人員之年有效劑量 為 0.01~0.39 mSv。

所有醫院之氣氣濃度均低於美國 EPA 訂定之行動 標準(action level) 150 Bq/m<sup>3</sup>(即 4 pCi/L),而濃度最高 的量測點主要因為該場所於下班期間關閉空調系統,關 閉期間最高濃度可達 3404 Bq/m<sup>3</sup>(92.00 pCi/L),可見醫 院地下室之工作環境之氣氣濃度受空調之影響甚大,但 氣氣濃度之變化與溫度及濕度則無顯著關係。

## 三、 醫院實測之氣氣濃度與所屬地質

本研究由各區域醫院之氣氣濃度與其地質之分布 (圖 4)並未發現氣氣濃度與地質存在顯著相關性。除了 量測點「彰化-1」受空調影響之外,澎湖玄武岩地質上 量測點的氣氣濃度稍高,但欲釐清空調或地質之真實貢 獻則須進一步在空調關閉之情形下測量氣氣濃度。金門

的量測點並未處於花崗岩質上,可能與醫院興建時地基 挖掘難易的考量有關。



圖 4 各醫院實測之氦氣濃度與其所屬地質

## IV. 結論

本研究於國內本島、澎湖及金門等不同區域大型醫院地下室之工作環境測量氣氣濃度、溫度及濕度,結果發現該環境氣氣濃度與溫度、濕度與地質條件無顯著相關性,受空調之影響較大,而所測得之濃度及該環境中工作人員之輻射劑量均低於美國 EPA 訂定之濃度標準150 Bq/m<sup>3</sup>(即4 pCi/L),故通風換氣對於抑低大型醫院地下室之工作環境中氣氣濃度之影響甚為重要。

## 参考文獻

- [1] WHO (2009), WHO Handbook on Indoor Radon: A Public Health Perspective. Geneva, World Health Organization. Available at www.who.int/en/.
- [2] AGIR (2009), Radon and Public Health, Report of the independent Advisory Group on Ionising Radiation, Doc HPA, RCE-11, 1–240. Available at www.hpa.org.uk
- [3] Annex E., 2008. Sources to effects assessment for radon in homes and workplaces, Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (2006) (United Nations), 2: 209–211.
- [4] Agency for Toxic Substances and Disease Registry, 1990. U.S. Public Health Service, In collaboration with U.S. Environmental Protection Agency.
- [5] Vaupotič J., Kobal I., 2006. Radon survey and exposure assessment in hospitals, Radiation Protection Dosimetry 121(2), 158–167.
- Mika S., Koichi I., Susumu Y., Takao I., Michikuni S. (Ed.), 1998. On the long term indoor radon concentration measurements the basement of Japanese hospitals. Singapore: World Scientific Publishing Co Pte Ltd.
- [7] Mnich Z., Karpińska M., Kapała J., Kozak K., Mazur J., Birula A., Antonowicz K., 2004. Radon

concentration in hospital buildings erected during the last 40 years in Białystok, Poland. Journal of Environmental Radioactivity 75(2), 225-232.

- [8] DURRIDGE Company, 2016. DURRIDGE Radon Capture and Analytics.
- [9] EPA, 2019. Protocols for Measuring Radon and Radon Decay Products in Homes (MAH 2019). https://standards.aarst.org/MAH-2019/10/#zoom=z
- 〔10〕行政院原子能委員會輻射偵測中心,2017。「國際與國內氡氣量測評估與國民輻射劑量評估先期研究計畫」期末報告。

## 飛航劑量評估程式的認證與飛航劑量測量實驗設計(2/2) Validation of flight dose calculator and design of measurement experiments (2/2)

計畫編號:MOST 111-2623-E-007-006-NU 計畫主持人:許榮鈞 e-mail:rjsheu@mx.nthu.edu.tw 計畫參與人員:林佳盈、楊子毅 執行單位:國立清華大學核子工程與科學研究所

## 摘要

基於自主開發的飛航劑量評估程式 NTHU Flight Dose Calculator,本團隊完成了台灣重要國際航線的劑 量分析以及華航與長榮機師年劑量的評估。延續此一發 展,未來最重要的工作有二面向:飛航劑量評估程式的 認證與飛航劑量測量的實驗。有鑑於此,本研究以二年 的時間深入探討程式認證與測量實驗相關重要工作的 準備與研發。第一年的重點在於程式的比對認證,重要 工作包括收集與評估文獻上飛航實驗的量測數據、分析 數據並建立程式驗證的比較標的、執行程式預估與文獻 測量值的比對、以及參加國際飛航劑量評估程式的比對 試驗。上述工作皆順利完成。本年度(第二年)的重點在 於飛航劑量的量測規劃與儀器測試,我們完成了重要實 驗文獻的回顧,選擇特別適用於民航機上進行輻射度量 的二種偵檢器(組織等效比例計數器 TEPC 與固態核徑 跡偵檢器 CR-39)進行實驗室測試,同時透過蒙地卡羅 模擬探討飛機本體對於宇宙射線輻射場的擾動效應分 析,做好未來執行飛機上測量的準備。本研究亦研析各 國飛航輻射相關的管制規範與經驗,彙整提供主管機關 參考。

關鍵詞:宇宙射線、飛航劑量、程式認證、實驗設計。

## Abstract

According to the self-developed NTHU Flight Dose Calculator, we have investigated aircrew and frequent flyers exposure to cosmic radiation for popular international flight routes from Taiwan. In addition, annually collective and average effective doses received by pilots of China Airlines and EVA Air were determined from 2006 to 2018. The next step in continuing this development is mainly two-folded: accreditation of the flight dose calculator and direct comparison with on-board measurements. In response to this demand, the two-year research plan aimed to prepare our team for future code validation and in-flight measurements. In the first year, we have established good references for code benchmark and, accordingly, conducted code-to-code and code-toexperiment comparisons. We also participated in code comparison exercise organized by EURADOS. In this year, we focused on necessary preparation works towards inflight measurements, including quantifying the effect of aircraft-induced perturbations of secondary cosmic rays at aviation altitudes, selecting suitable detectors for on-board measurements, and performing detector tests in laboratories. The results of this study have paved the way for future on board dose measurements, and facilitate related management and regulation in aircrew dosimetry in Taiwan. **Keywords :** galactic cosmic rays; aviation dose assessment; accreditation; measurement.

## I. 前言

宇宙射線在典型民航機飛航高度造成的輻射劑量 率約在 2-10 Sv/h 左右,劑量率的變化主要受飛航高度、 地磁緯度與太陽活度的影響,詳細輻射場特性的定量描 述非常複雜,通常必須仰賴費時的蒙地卡羅粒子追蹤等 計算工具搭配特殊偵檢器的應用與校正。近年國際上關 於宇宙射線飛航劑量的研究與相關的建議或規範越來 越受關注,國際輻射防護組織 ICRP 在 2016 年出版了 最新的 132 號報告[1],主題是 Radiological Protection from Cosmic Radiation in Aviation。該報告收集彙整過 往文獻相關研究,提出飛航劑量評估、管理與管制的建 議。

## II. 材料與方法

NTHU Flight Dose Calculator (以下簡稱 FDC)為本 團隊自行開發的飛航劑量評估程式[2]。第一年有關飛 航劑量評估程式認證的部分,我們主要完成二件工作: 一是參加歐盟 EURODOS 主辦的 2020 國際飛航輻射劑 量評估程式的比對試驗,二是完成與文獻實驗測量數據 的比較驗證,二者確認了 FDC 的分析與預測能力。 EURODOS 比較測試結果的正式報告尚未發布,圖 1 則 呈現 FDC 預估的周圍等效劑量率與文獻實驗測量結果 的比值,實測值包含 ICRU-84 的參考值[3]及一些近期 文獻的結果,包含 Wissmann et al (2010) [4]、Mertens et al. (2013) [5]、Kubancak et al. (2014) [6]、及 Mertens et al (2016) [7]等團隊發表的測量結果,整體符合程度良好, 差異落在比對規範所要求的範圍之內。



圖 1 FDC 預估的周圍等效劑量率與眾多文獻實驗測量 結果的比較

當然,只有程式預測能力是不夠完備的,建立國內 自主的飛航劑量實驗量測能力亦不可或缺,這也是本年 度計畫的重點。宇宙射線在大氣層引發之二次輻射場非 常複雜,不但輻射種類多而且能量範圍廣,不易直接測 量與定量。對於如何選擇要帶上飛機的輻射偵檢器?如 何執行偵檢器校正?如何解讀混合場的量測數據?這 些問題都必須仔細思考與特別處裡。嚴謹飛航劑量的測 定需要特殊的實驗設計與計算分析的搭配,因為飛航高 度的輻射場包括中子、質子、牟子、正負電子、以及其 它介子。在典型飛行高度和中緯度條件下,作為一個初 略的近似,中子對總周圍等效劑量的貢獻約為 50%、質 子約貢獻 15%、正負電子約貢獻 20%,光子約貢獻 10 %、牟子約貢獻 5%[1]。另外,實驗時還必須考量飛機 結構與酬載對於各式輻射成分的擾動情況,這也是本年 度必須處理的重要研究議題之一。本研究由簡單到複雜 設計不同飛機模型逐步探討其對宇宙射線各種粒子在 不同條件下的能譜與劑量變化,目標是建置合理的飛機 幾何模型,近似完整機體外型、尺寸、材質以及艙體內 裝與乘載等,探討飛機結構對飛航高度下的宇宙射線輻 射场能譜以及機組人員有效劑量率評估之影響。

## III. 結果與討論

#### 3.1 文獻研析彙整

針對宇宙射線飛航劑量的測量,本團隊收集了數篇 相關的國際論文,藉以探討不同團隊量測實驗設計的優 缺點及其偵檢系統的限制,做為規劃未來國內執行飛航 劑量測量實驗的參考。根據文獻研析的結果[3-7],這些 團隊使用的偵檢器包含了組織等校比例計數器(TEPC)、 Liulin 型式偵檢器(Liulin type detector)、矽基總游離偵 檢器(Silicon-based Total Ionizing Detector, TID)和 RaySure 偵測器。

## 3.2 輻射偵檢器的選擇與測試

根據文獻回顧的結果,考量各種偵檢器的特性與飛 機上進行測量的客觀限制(外接電源、尺寸大小、設備 固定與震動敏感度等問題),我們決定選擇以下二種偵 檢器進行進一步的探討與實驗測試,分別是(1)組織等 效比例計數器 TEPC 與(2)固態核徑跡偵檢器 CR-39,二

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

種偵檢系統相關的準備與測試說明如下。

本團隊使用的是由美國 Far West Technology 公司 組裝生產的 Hawk TEPC 型號,該系統亦屬於充氣式偵 檢器的一種類型。Hawk TEPC 是機載輻射量測工作的 理想選擇之一,因其設計可將整個儀器裝入一個手提箱 中,可置放在機艙內乘客座位上的置物櫃或行李艙(圖 2)。CR-39 固態核徑跡值檢器最大的優勢在於可被動式 偵測輻射且外形小巧方便携帶(圖 3),是未來航空人員 個人劑量監測的偵測器可能選項之一。相較其他各式輻 射偵檢器, CR-39 較爲繁瑣的計讀過程正是其應用最大 的缺點。本團隊使用的是 Intercast 廠牌供應的 25 x 25 x 1.5 mm<sup>3</sup> 的 CR-39 底片,其化學成分 C<sub>12</sub>H<sub>18</sub>O7 與人體 組織相似且對 high-LET 粒子敏感,因此 CR-39 十分適 合模擬和表現人體組織對 high-LET 粒子輻射的反應。 TEPC 與 CR-39 在做度量之前皆須先做校正與測試,我 們在實驗室中先利用校正射源進行測試,再透過核能研 究所中子照射室與清大水池室反應器 THOR-BNCT 進 行度量實驗,測試結果確認儀器規格與性能,並建立實 驗步驟與使用經驗(詳細內容與描述請參考計畫期末報 告),透過一系列測試準備,我們有信心建立國內自主 的飛航劑量測量能力。



圖 2 置放在行李箱中的 TEPC 以及 TEPC 量測數據的 顯示面板



圖 3 (左)CR-39 底片與量尺,(中) mixed 射源的外殼, 以及(左)射源緊貼與 CR-39 進行曝露

## 3.3 飛機本身對宇宙射線各成分的擾動影響分析

本團隊透過建置合理的飛機幾何模型,近似完整機 體外型、尺寸、材質以及艙體內裝與乘載等,搭配蒙地 卡羅輻射遷移計算以探討飛機結構對飛航高度下的宇 宙射線輻射場能譜以及機組人員有效劑量率評估之影 響。在這項研究中,本團隊以蒙地卡羅運輸模擬構建了 波音 777-300ER 飛機的複雜幾何模型,針對一般商業 航空飛航高度(約 10 km)中的二次宇宙射線各成分的能 譜和有效劑量的擾動進行了系統性的研究,考量的輻射 成分包括中子、質子、光子、電子、正電子、正負渺子、 和正負π介子。本研究的模擬中考慮了接近極小極大兩 個地磁截止剛度和兩個太陽活度的影響,據以評估在機 上六個不同位置的各種宇宙射線成分的能譜和有效劑 量,並與大氣中未受干擾的輻射場進行比較。

如圖 4 所示,本研究使用 MCNP 程式定義了一個 複雜詳細的飛機模型(共有 2249 個幾何單元),包括整 個飛機的結構和酬載安排的重要細節。有關輻射遷移計 算的射源設定,若將此飛機模型放置在給定的飛航高度, 並考慮大氣層上空的原始銀河宇宙射線來啟動輻射遷 移計算,距離與空間的規模將導致計算效率極低且不切 實際。因此,本研究採如下近似方案:在感興趣的地理 位置先使用本團隊自行開發之 FDC 程式產生飛航高度 的次級宇宙射線各種分量的強度和能譜,以此資訊在進 行 MCNP 射原定義中重新采樣,進行包括飛機模型在 內的輻射遷移模擬,其中並先假設在飛機外部的二次字 宙射線入射以各均向性分佈來簡化射源設定。MCNP 模 擬後,我們將沿機身的六個位置所記錄的輻射通量進行 分析,如圖中標記為#1~#6的顏色所示。位置#1代表駕 駛艙空間,位置#2代表商務艙,位置#3代表長榮航空 的客艙,位置#4~#6代表位於機翼上方和後端的經濟艙。 上述每個位置都有不同的結構和材料組成,可能會在飛 機內部的輻射場中引起不同程度的擾動。因此,將每個 位置的計算結果與沒有飛機影響的結果逐一進行比較, 我們即可量化飛機本體引起的能譜擾動效應以及對於 飛機內部人員有效劑量的影響。



圖 4 本研究中使用的飛機模型的橫截面圖,顯示了座 位、乘客、燃料、貨物等的佈置。彩色區域標示六個 本研究最感興趣的機艙位置(標記為#1~#6)



圖 5 在太陽活度極小期條件下(\$=430 MV),台灣上空 10 公里高度(Rv=15.53 GV)二次宇宙線各種成分造成的 有效劑量率

針對太陽活度極小期條件下,在台灣上空 10 公里 高度的位置,圖 5 總結了蒙地卡羅模擬人員有效劑量的 結果,除了在自由大氣中估計的劑量率外,還顯示了沿 機身的六個位置的有效劑量率。對於每個位置,由二次 宇宙射線(中子、質子、光子、電子、μ子和π介子)的 各種成分引起的劑量率也顯示在同個堆疊長條圖中,以 便於比較這些成分的貢獻。與使用 FDC 飛行劑量程式 估算的有效劑量率(無飛機擾動的自由大氣中)相比,我 們可以觀察到飛機不同位置有不同程度的自屏蔽效應, 根據在機身中的不同位置有不同程度的自屏蔽效應, 根據在機身中的不同位置有從 2% 到 32% 不等的衰 減。駕駛艙位置#1 的劑量衰減很小(~2%);然而,在位 於客艙中部和中央機翼油箱正上方的經濟艙位置#4 處, 人員有效劑量顯著減少了約 32%,這些結果證實且量化 了飛機的結構和酬載對飛機內部輻射場產生不可忽視 的複雜影響。

本研究亦比較了各種宇宙射線成分在相同條件下 的未擾動和飛機擾動能譜,圖6彙整並展示了宇宙射線 各成分的能譜計算結果。對於每個宇宙射線成分,自由 大氣中和沿機身受影響最嚴重的位置(#4)的能譜一起 顯示以供比較。當考量飛機的存在時,飛機內部的中子 能譜會受到擾動而呈現不同的形狀,主要差異是在熱中 子能區多了一個額外的能峰。超熱中子、快中子和高能 中子通過與飛機結構和酬載的作用會產生不同程度地 减速與衰減,特別是很多區域其中有大量富含氫的材料, 因此導致熱中子大量產生而明顯呈現於能譜中。另一方 面, 飛機內部不同位置的質子能譜被觀察與自由大氣中 的能譜相似,但其強度有不同程度的衰減。與自由大氣 中的光子能譜相比, 艙內的光子能譜衰減了大約三分之 一的比例。在圖 6 中,機艙內的光子能譜顯示出一個突 出的峰值,這是由氫的熱中子捕獲反應引起的,導致2.2 MeV 的光子積累突出於能譜中。關於其他電磁成分, 電子和正電子在本研究被歸為一類,此類的能譜在大約 20 MeV 的能量處達到峰值;與在自由大氣中相比,機 艙內的電子能譜衰減幅度與光子情況下的大致相同。



圖 6 台灣上空 10 公里高度下太陽活動活度極小期各 種宇宙射線分量的飛機擾動能譜(將客艙中間部分#4 位 置的能譜與在自由大氣中的能譜進行比較)

#### 3.4 飛航輻射管制國際經驗的彙整

國際上一些飛航劑量評估與管制建議以及經驗彙 整如下:

1996 年歐洲原子能共同體(EURATOM)推出了第 29 號理事會指令[8],並將歐盟飛航人員所受輻射劑量 納管為職業曝露,所有歐盟航空公司被要求必須依法管 控與記錄飛航人員所受的輻射劑量。自2006 年以來, 所有歐盟國家一直遵循此指令,且爲了能精準計算飛航 人員劑量,許多飛航劑量評估程式也陸續成功開發,例 如 EPCARD、SIEVERT 和 AVIDOS 等程式。目前在飛 航輻射的評估與管制上,歐盟屬於先行者並在相關領域 纍積了較多的經驗。

1990 年加拿大採納了 ICRP-60 中的建議並要求 對飛航人員進行輻射監測,而這也促進了 PCAIRE 評 估程式的發展。另外,日本輻射委員會於 2006 年發布 了對飛航人員劑量的監測和管理指南,並強烈敦促國內 各大航空公司要自行保存所有人員的輻射曝露記錄,在 這期間日本也成功開發了飛航劑量評估程式 EXPACS 和 JISCARD 應用於相關分析。

美國則是利用美國聯邦航空總署(FAA)所擬定的 輻射曝露教材和其推薦的輻射劑量限值來督導該國航 空公司執行對於飛航人員輻射安全的業務。相同的飛行 計劃參數被用於開發 CARI 系列的程式,鼓勵航空公司 執行飛航人員個人劑量監測和作為個人曝露評估的參 考工具,但不強制執行正式的航空公司劑量監測計劃。

飛航劑量評估程式的開發使得其劑量評估變得簡 單易於操作,在宇宙射線相關輻射防護與管制是一重大 的進步關鍵。2016 年發布的 ICRP-132 號報告[1]再次肯 定了宇宙射線所造成的飛航人員曝露是職業性的,因此 雇主即使在有限的防護選擇下,對於員工輻射劑量的監 測依舊具有一定的責任。雖然宇宙射線暴露屬於天然輻 射,而且實務上能夠進行輻射屏蔽與防護的手段不多, 這兩者並沒有矛盾,職業曝露可以發生於一直持續存在 的曝露環境中,而這並不代表相對的防護措施不能被提 前規劃與合理抑低,例如對於懷孕飛航人員的職務班表 的調整。

根據 Euratom 96/29 中第 42 條規定,歐盟成員國的 航空公司應針對每年可能受到超過 1 mSv 曝露劑量的 飛航人員擬定相對應的管制。航空公司應採取適當輻射 防護措施,其中必須包含以下四項:一、評估相關機組 人員的個人曝露劑量;二、在未來訂定班表時需將評估

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

後的個人曝露納入考量,以避免高曝露機組人員的輻射 劑量超標;三、告知有關人員其工作涉及的健康風險; 四、該規定中第10條說明了適用於女性機組人員的劑 量防護標準檢測。1997年的 Radiation Protection 88 提 供了歐盟成員國航空公司對於飛航劑量管制的技術指 導[9]。

飛航人員所受的曝露量通常不直接使用劑量計量 測,而是透過計算評估機組人員的劑量並監控在建議範 圍內。Eberbach (2014)認為歐盟所擬定的基本安全標 準是合理監管框架中一個很好的例子:將飛航人員歸類 為職業曝露並強制將其所受曝露作為計劃性的輻射曝 露。很遺憾的是,目前並沒有一個全球性具有法律約束 力的框架。Shonka (2015)也表示歐盟法規的實施計劃是 一項簡單明瞭的工作。當隸屬歐盟航空公司運營的航班 降落時,該航班的數據 (例如高度、速度、航路點、飛 航時間)會被下載並直接發送到負責執行劑量計算的政 府機關,進而提供該特定航班的宇宙射線所造成的劑量 估算。飛行常客的雇主和運營商必須將劑量結果納入該 僱員飛行工作輻射曝露紀錄中,以確保符合劑量監管的 要求。

## IV. 結論

配合本計畫的執行,我們順利完成程式認證與測量 實驗相關重要工作的準備與研發。第一年的重點在於程 式的比對認證,重要工作包括收集與評估文獻上飛航寶 驗的量測數據、分析數據並建立程式驗證的比較標的、 執行程式預估與文獻測量值的比對、以及參加國際飛航 劑量評估程式的比對試驗。上述工作皆按規劃時程順利 完成,預期將直接產出國內第一套經過國際比對與文獻 測量驗證的飛航劑量評估程式,可在未來國內推動飛航 職業暴露管制時可扮演重要角色。本團隊預期未來此自 主開發之軟體有機會成為國內航空公司管理個人職業 飛航暴露的工具選項之一,以及扮演管制單位評估或審 查相關資料的技術支援,或是協助一般民眾對於飛航劑 量有興趣或疑慮時的諮詢與科普展示。本年度(第二年) 的重點在於飛航劑量的量測規劃與儀器測試。準確地直 接測量飛航劑量非常困難,因為飛航高度的宇宙射線包 含多種成分(主要有中子、質子、牟子與電磁輻射成分) 且能量範圍廣,每種輻射成分對於偵檢器有明顯不同的 響應,再加上飛機結構對輻射場的擾動影響,偵檢器讀 值的判斷與校正都需要特別考量。本年度的成果完成了 大量實驗文獻的回顧,選擇適用於民航機上進行輻射度 量的二種偵檢器(組織等效比例計數器 TEPC 與固態核 徑跡偵檢器 CR-39)進行探討與實驗測試,同時透過蒙 地卡羅模擬深入飛機本體對於宇宙射線輻射場的擾動, 做好未來執行飛機上測量的準備。本研究並蒐集各國飛 航輻射之管制規範,彙整提供主管機關參考。

## 參考文獻

- [1] ICRP, "Radiological protection from cosmic radiation in aviation", ICRP Publication 132, Ann. ICRP, vol. 45, 2016.
- [2] Z.Y. Yang, P.C. Lai, R.J. Sheu, "Update and New Features of NTHU Flight Dose Calculator: a Tool for Estimating Aviation Route Doses and

Cumulative Spectra of Cosmic Rays in Atmosphere", IEEE Trans. Nucl. Sci., 66, 1931-1941, 2019.

- [3] ICRU, "Reference Data for the Validation of Doses from Cosmic-Radiation Exposure of Aircraft Crew", ICRU Report 84, 2010.
- [4] F. Wiseemann et al., "The ambient dose equivalent at flight altitudes: a fit to a large set of data using a Bayesian approach," J. Radiol. Prot., 30, 513 (2010).
- [5] J. Kubancak et al., "Measurement of dose equivalent distribution on-board commercial jet aircraft," Radiat. Prot. Dosim., 162, 215 (2014).
- [6] C.J. Mertens et al., "NAIRAS aircraft radiation model development, dose climatology, and initial validation," Space Weather, 11, 603 (2013).
- [7] C.J. Mertens et al., "Cosmic radiation dose measurements from the RaD-X flight campaign," Space Weather, 14, 874 (2016).
- [8] EURATOM, 2006. Council Directive 96/29/Euratom of 13 May 1996 Laying Down Basic Safety Standards for the Protection of the Health of Workers and the General Public Against the Dangers Arising from Ionizing Radiation.
- [9] Protection, Radiation. 88. Recommendations for the Implementation of Title VII of the European Basic Safety Standards Directive Concerning Significant Increase in Exposure due to Natural Radiation Sources (1997).

## 既存曝露情境之工業及民生應用調查與輻防管制措施精進研析 Investigation on existing exposure situations in industrial and people's livelihood applications and research on advanced radiation control measures

計畫編號: 111-2623-E-007-008-NU 計畫主持人:許芳裕 e-mail:fyhsu@mx.nthu.edu.tw 計畫參與人員:許皓翔、林俊廷 執行單位:國立清華大學原子科學技術發展中心

## 摘要

近年國際輻射防護組織對天然放射性物質(NORM) 問題日益重視,對從事 NORM 相關行業工作人員或可 能受影響之公眾、環境之輻射曝露進行全面檢視及調查 研究;國內原能會近年亦對 NORM 議題極為重視。為 了解國際組織對 NORM 之輻防與管理做法,以及掌握 國內 NORM 相關行業之現況及影響程度,有必要對國 內進行市場調查。本計畫規劃分二年期進行,本年度為 第一年,蒐集與彙整國際組織及各國對可能導致工作人 員、公眾和環境的輻射曝露的 NORM 相關行業的輻防 與管理作法,並對國內進行 NORM 相關行業調查,並 評估後續建築材料等產品之輻射影響。

**關鍵詞:**天然放射性物質、既存輻射、輻射防護、輻射 管制

## Abstract

In recent years, the International Radiation Protection Organization has paid more and more attention to the issue of naturally occurring radioactive materials (NORM). It has conducted comprehensive inspections and investigations on the radiation exposure of workers in NORM-related industries or the public and the environment that may be affected; in Taiwan, the Atomic Energy Council has also been concerned with NORM issues and attached great importance. In order to understand the measures of radiation protection and management of international organizations on NORM, and to grasp the current status and degree of influence of domestic NORM related industries, it is necessary to conduct domestic market research. This project is planned to be carried out in a two-year period (2022-2023). It is planned to collect and compile the information and measures of radiation protection and management of international organizations and countries on NORM-related industries that may cause radiation exposure to workers, the public and the environment. In this year (2022), the domestic investigations on NORM-related industries were conducted, and the radiation effects of subsequent building materials and other products were assessed.

**Keywords** : exited radiation, radiation protection, radiation control

## I. 前言

近年國際輻射防護組織對天然放射性物質(NORM) 問題日益重視,對從事 NORM 相關行業工作人員或可 能受影響之公眾、環境之輻射曝露進行全面檢視及調查 研究(UNSCEAR, 1982, 2008; EC, 1999a; IAEA, 2006; EURATOM, 2013), 國際放射防護委員會(International Commission on Radiological Protection, ICRP)發佈第 142 號報告,探討 NORM 工業(礦石的開採、加工;油氣回 收過程;金屬的生產與加工;化石燃料(主要是煤炭)的 燃燒;水處理;水泥生產和熟料爐的維護以及建築材料 等)之輻射防護,亦包括花崗岩、混凝土、磁磚、黏土磚、 高爐礦渣石和水泥等副產品或產品,並建議相應的參考 基準(reference level)作法及管理作法。我國對於游離輻 射之主管機關為行政院原子能委員會(簡稱原能會),原 能會近年亦對 NORM 議題極為重視,遵循國際輻射防 護組織建議,規劃深入研析 NORM 之輻防管制,並擬 就民生應用進行調查,以確保人員與環境之輻射安全。

為了解國際放射防護委員會(ICRP)及國際原子能 總署(International Atomic Energy Agency, IAEA)等國際 組織對 NORM 之輻防與管理做法,以及掌握國內 NORM 相關行業之現況及影響程度,有必要對國內進 行市場調查。因此本計畫擬蒐集、研析與彙整國際組織 之相關報告、管制作法建議等文獻資料,提出具體建議, 作為後續原能會法規精進之參考。

## II. 主要內容

本計畫規劃分二年期進行,本年期為第一年(111 年),主要工作為蒐集與彙整國際組織及各國對可能導 致工作人員、公眾和環境的輻射曝露的 NORM 相關行 業的輻防與管理作法,並對國內進行 NORM 相關行業 調查,並評估後續建築材料等產品之輻射影響;相關之 研究方法說明如下:

## 2.1 蒐集與彙整國際組織及各國對可能導致工作人員、 公眾和環境的輻射曝露的 NORM 相關行業的輻防與管 理做法

許多國際組織對可能導致工作人員、公眾和環境受 到 NORM 相關輻射照射的行業進行了全面審查 (UNSCEAR, 1982, 2008; EC, 1999a; IAEA, 2006; EURATOM, 2013 等),亦有相關國際文獻已列出可能 導致工作人員、公眾和環境受到 NORM 相關輻射照射的行業(ICRP 142,2019; EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM,2013);此外,以前的工業設施亦可能涉及 NORM,而這些遺留設施可能也需要注意。 當工業副產品包含在建築材料中並且有理由懷疑它們 含有高水平的天然放射性核種時,最終產品中這些核種 的活度濃度應從所有成分的活度中可靠地測量或評估 材料。必要時,還應考慮 226Ra、232Th 和 40K 以外 的其他核種。對建築材料的放射性進行控制的目的是限 制由於天然放射性核種水平增強或升高的材料造成的 輻射曝露。

#### 2.2 對國內進行 NORM 相關行業調查

本計畫參考國際文獻所列出可能導致工作人員、公 眾和環境受到 NORM 相關輻射照射的行業 (如表 1), 逐一檢視與查詢國內是否有相關行業,並藉由網路搜尋 及透過原能會協助,對國內 NORM 相關行業進行市場 調查,並定期與原能會討論協調,共同至相關業者單位 進行訪查。初步評估國內建築材料(包括天然石材、磁 磚業),以及煤粉煤灰、鋼鐵熔爐業者所產生之高爐礦 渣等副產品之應用等,均為與能 NORM 相關導致的行 業,將進行市場調查,並探討其工作人員、公眾和環境 受到輻射之影響程度。

#### 2.3 評估後續建築材料等產品之輻射影響

國內常以天然的石材作為建材,這些建材也自然含 有鈾、針系列及鉀40等天然放射性核種。不同產地的 石材與石礦製品,可能含有的天然放射性核種的活度濃 度分布也不盡相同。本研究團隊曾於109年進行建築材 料輻射劑量調查及輻防管理研究(計畫編號:MOST 109-2623-E-007-009-NU),對國內之天然石材建材進行 劑量調查,掌握國內石材建材輻射之影響程度。本計畫 規劃針對建築材料等產品,包括磁磚、混凝土及磚材等 建材進行產品之輻射影響評估。

本計畫針對建築材料,包括磁磚、混凝土及磚材等 建材可能造成之輻射劑量影響評估方法,分為建材樣品 輻射劑量率實測、樣品放射性核種檢測分析等。執行方 法說明如下:

#### (一) 輻射劑量率實測:

透過主管機關(原能會)協助,與相關業者公會聯繫, 取得建材樣品或至業者等建材倉庫實測,利用經校正之 手提式塑膠閃爍偵檢器(AT1121)進行石材樣品輻射劑 量率現場實測,分別檢測距石材表面10公分等不同位 置之劑量率,檢測結果將依據國內於106年9月修訂之 天然放射性物質管理辦法(原能會,2017),其第九條規 定,經主管機關公告納管之建材,應實施活度濃度分析, 其活度濃度指數及使用範圍依其附表一規定。但建材表 面 0.1 公尺處之輻射劑量率每小時 0.2 微西弗以下者 (不含背景值),不在此限。

#### (二) 活度濃度分析:

天然放射性物質管理辦法亦提及,經主管機關公告納管之建材,如應實施活度濃度分析,使用於建築物主 體結構之建材活度濃度指數(I)須小於1,使用於建築物 室內裝飾之建材活度濃度指數(I)須小於3,使用於建築 物室外裝飾及公路、橋樑或機場跑道等室外設施主體結 構之建材活度濃度指數(I)須小於4。本計畫亦將透過主 管機關(原能會)協助,與相關業者公會聯繫,取得建材 樣品帶回清華大學原子科學技術發展中心之放射性核 種分析實驗室,進行放射性核種檢測,分析其所含之鈾 (<sup>238</sup>U)、針(<sup>232</sup>Th)及鉀(<sup>40</sup>K)等天然放射性元素活度濃度。 建材活度濃度指數(I)計算公式如下(單一材料):

$$\mathbf{I} = \frac{C_U}{300^{\parallel \frac{1}{2}}/_{\&f}} + \frac{C_{Th}}{200^{\parallel \frac{1}{2}}/_{\&f}} + \frac{C_K}{3000^{\parallel \frac{1}{2}}/_{\&f}}$$

上述式中(i) I為建材活度濃度指數,其中 $C_U$ 、  $C_{Th}$ 、 $C_K$ 分別代表材料中之鈾、針系列及鉀之核種活度 濃度,單位為貝克/公斤(Bq/kg),而活度濃度因子於鈾 系列核種為 300 貝克/公斤、針系列核種為 200 貝克/公 斤、鉀核種為 3000 貝克/公斤。(ii) 如建材使用混合材 料時,應考量第 i 種材料在建材之重量百分比(fi);如 材料中所佔的重量百分比無法確定時,其fi 以1計算。

依據所測得之建材活度濃度結果,考量使用石材/ 石礦製品作為居家建材或裝潢材料、物品之可能情況, 以 Microshield 進行情境模擬計算,合理評估使用該建 材可能造成之人員劑量率及年劑量。

依據核種活度濃度分析結果,考量不同種類之建材 樣品用於室內,作為客廳牆面之裝飾板、地板、電視牆、 檯面桌板,亦用於廚房、廁所作為檯面桌板,用於餐廳 做為吧檯桌板及客廳玄關地坪等情境時,造成之人員劑 量。假設室內房間(客廳)尺寸為420 cm×420 cm×300 cm,用途1為假設四面牆壁均採用含天然輻射之花崗 岩石板,石板厚度為2 cm。用途2 為假設四面牆壁以 及地板均採用含天然輻射之花崗岩石板,石板厚度為2 cm。

#### (三) 年有效劑量之評估:

室內空間之年有效劑量之評估可以下列式計算: •E(居室) = ∑(H(位置i)×W(位置i)], (公式1) 位置i = 經常占用,部分占用,偶爾占用

年有效劑量E=8760×
$$\sum_{\mathbb{R}^{(2)}} (E(居 \Sigma j) \times W(B \Sigma j)],$$
 (公式 2)  
居  $\Sigma j = 8$ 廳, 臥  $\Sigma$ , 其他房間

其中之(居室)為個別居室之有效劑量率, (位置 i) 為個別居室內不同位置點之劑量, W(位置 i)為不同位 置 i 之位置佔用因數(經常佔用區: 11/16,部分佔用區: 1/4,偶爾佔用區: 1/16); W(居室 j)為不同居室 j 之居室 佔用因數(客廳: 1/2,臥室: 1/3,其他: 1/6)。

本計畫使用評估不同使用情境下,考量使用石材/ 石礦製品作為居家建材或裝潢材料、物品之可能情況, 合理評估使用該建材可能造成之人員劑量率及年劑量。 方法為利用取樣之建材樣品核種活度濃度分析的結果, 代入 MicroShield 程式計算不同使用情境時,距離石材 樣品等建材不同位置處的劑量率結果,並考量居室佔用 因數與位置佔用因數,代入公式1及公式2以評估不同 使用情境之年劑量結果。

### III. 結果與討論

3.1 彙整國際組織及各國對可能導致工作人員、公眾和 環境的輻射曝露的 NORM 相關行業的輻防與管理做法

#### (一) ICRP 142 報告

ICRP 142 報告(ICRP 142) 於 2019 年出版,其目 的是為涉及天然存在的放射性物質 (NORM) 的行業 提供輻射防護指引。 這些行業可能會產生多種危害, 放射性危害不一定占主導地位。 這些行業多種多樣, 可能涉及需要考慮採取防護措施的人員和環境曝露。

ICRP 142 提及在某些情況下,如果不考慮採取適 當的控制措施,工作人員和公眾可能會出現大量的日常 曝露,大量 NORM 的釋出也可能導致放射性和非放射 性成分而對環境產生有害影響。一般而言,NORM 行 業通常不會出現導致人體組織反應或生命直接危害的 輻射緊急情況。涉及 NORM 工業的輻射防護可以根據 採取行動的合理性和使用參考基準(reference level)之最 適化防護原則來執行。

NORM 可能會因轉移或技術增強以導致工作人員 或公眾曝露的工業包括:採礦、金屬提取、水處理、磷 酸鹽、化肥和能源(例如煤炭、石油和天然氣)等。考 量 NORM 所涉及的輻射曝露相對較低,因此 ICRP 建 議主管機關和受影響的行業採用綜合分級方法來保護 工作人員、公眾和環境,其中將非放射性危害與放射性 危害的考慮相結合,並最適化(分級)防護方案。對於工 作人員,根據曝露情況的特點和危害程度,選擇相應的 參考基準,採取適當的集體或個人防護措施。

ICRP-142 之建議重點如下:

- 採取防護行動的正當性和防護最適化,則涉及天 然放射性物質 (NORM) 的工業活動造成的照射 是可控的。
- 對工作人員和公眾的防護行動應考慮長期體外曝 露、放射性物質攝入以及氦氣吸入的情形。
- NORM 不存在導致人體組織反應或立即危及生命的緊急情況;。
- ICRP 建議採用分級方法(包括表徵曝露情況和最 適化輻射防護行動)來保護工作人員、公眾和環境。
- 5. ICRP 建議各國依各自情況設定參考基準(不包括 氣氣造成的體內曝露),一般建議工作人員的參考 基準約為數毫西弗(mSv)的年有效劑量(如 5 mSv), 保護公眾所設定的參考基準則建議為低於幾 mSv 的年有效劑量(如<1 mSv/y)。</p>
- 6. NORM 行業的氡曝露亦建議應使用分級方法進行管理,可另參考 ICRP 126 號報告有關氣氣的輻射防護管理建議。 ICRP 對於 NORM 之其他相關建議:
- 於既存曝露情境下對工作人員之參考基準為年有 效劑量1~20 mSv, ICRP 期望針對參考基準其年 有效劑量應該儘量不要超過10 mSv;對公眾之參 考基準年有效劑量小於1 mSv 可能是最合適的。
- (ICRP-103)
  2. 在大多數情況下,加工材料中所含之 NORM 是天然存在的,並沒有故意添加其放射性,因此涉及NORM 的行業中工作人員的曝露通常不被認為是職業性曝露;但仍應該注意及了解他們可能接受的曝露。(ICRP-142)
- 在塵土飛揚的 NORM 工作場所中,可能已經有一 個粉塵監測程序,可用於評估吸入粉塵引起的體 內曝露,或是如果體內劑量很高,則需要考慮安排

合適的體內曝露測定。而應注意的是,這種曝露不 太可能被認為是最適化的,適當的保護措施應該 能夠減少體內曝露。(ICRP-142)

4. 針對氡氣的相關管理,合理的推導參考基準為 100~300 Bq/m3,如可能超過時,則以最適化的方 式做評估,造成之年有效劑量應該要小於每年 10 mSv。(ICRP-126)

#### (二) RP112 報告

歐盟於 1999 年即制定了關於建築材料天然放射性 的 放 射 防 護 原 則 (EU RP112 報 告) Radiological Protection Principles concerning the Natural Radioactivity of Building Materials (EU, 1999b) 供其會員國參考, RP 112 報告建議,管制應考慮總體國情而建立劑量標準。 在歐盟範圍內,從輻射防護的角度來看,只有在一些非 常特殊的情況下,年有效劑量超過才會超過 1 mSv。如 果源自建築材料的加馬輻射使公眾成員的體外曝露年 有效劑量最多增加 0.3 毫西弗,則建築材料應免於對 其放射性所有限制,即可予以豁免管制。年有效劑量之 限值應參酌各國天然放射性物質使用之現況及影響範 圍,該原則建議年輻射劑量率限值為 0.3~1 mSv/y (不 含背景值)。

RP 112 也建議可以為實際監測目的推導出調查水 平:由於超過一種放射性核種對劑量有貢獻,因此以活 度濃度指數(I)的形式呈現調查水平是可行的。活度濃度 指數應考慮建築物中使用材料的典型方式和數量。活度 濃度指數以下列方式推導,以確定是否滿足劑量標準:

#### $I=C_{Ra}/300+C_{Th}/200+C_{K}/3000$

其中 $C_{Ra}$ 、 $C_{Th}$ 、 $C_{K}$ :建築材料中鐳、釷、鉀之活度濃度 (Bq/kg)。

#### (三) IAEA SSG-32 報告

國際原子能總署(IAEA)亦於 2015 年提出 SSG-32 報告,對室內建材輻射安全防護及管制作法提出建議 (IAEA, 2015)。SSG-32 使用與 RP 112 相同的活度濃度 指數(I)計算公式,並指出如果對於散裝材料(例如混凝 土和磚塊)的活動濃度指數 I 小於 1,或對於諸如瓷磚 這樣的表層材料的活動濃度指數 I 小於 6,則建築材料 中放射性核種曝露於加馬射線的年有效劑量為小於約 1 mSv 的參考基準。此類建築材料不應受到使用限制。 SSG-32 表明,對於大多數建築材料,活度濃度指數的 相應值均未超過。對於分別超過 I=1 或 I=6 的建築材 料,需要進一步評估後才能使用。

## (四)歐盟 EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/ EURATOM 指引

歐盟於 2013 年提出之 EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM 指引適合建立室內氡濃度和建築 材料發出的室內加馬輻射的參考基準,並引入對將天然 存在的放射性物質加工成建築材料的工業殘留物進行 回收的要求。此指引特別適用於:

- 放射性物質的製造、生產、加工、處理、處置、使用、儲存、持有、運輸、向共同體進口和從共同體出口;
- 發射游離輻射且包含在超過 5 千伏 (kV) 的電勢
   差下運行的組件的電氣設備的製造和操作;

- 涉及存在天然輻射源的人類活動導致工作人員或 公眾的曝露顯著增加,特別是:
- (1) 飛機和航空器的運行,與機組人員的曝露有關;(2) 處理含有天然放射性核種的材料;
- 工作人員或公眾曝露於室內氡、建築材料的外部 曝露以及緊急情況或過去人類活動的後遺症造成 的持久曝露案例。
- 被認為需要採取措施保護公眾或工作人員健康的 緊急曝露情況的準備、應變計畫和管理。

EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM 指 出,應考慮以下涉及天然放射性物質(NORM)的工業部 門清單,包括研究和相關二次加工:(1)從獨居石中提取 稀土、(2)釷化合物的生產和含釷產品的製造、(3)加工鈮 /鉭礦石、(4)石油和天然氣生產、(5)地熱能生產、(6)TiO2 顏料生產、(7)熱磷生產、(8)鋯石及鋯業、(9)磷肥生產、 (10)水泥生產、熟料爐維護、(11)燃煤電廠、鍋爐維護、 (12)磷酸生產、(13)原鐵生產、(14)錫/鉛/銅冶煉、(15)地 下水過濾設施、(16)鈾礦石以外的礦石開採等。

EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59/EURATOM 建 議除室外體外曝露外,建築材料加馬輻射室內體外曝露 的參考基準應為每年 1mSv。且要求對於已確定類型的 建築材料,應確定原始放射性核種 Ra-226、Th-232(或 其衰變產物 Ra-228)和 K-40 的活度濃度。活度濃度 指數 I 之計算仍與 RP 112 相同,I 指數與加馬輻射劑量 有關,該指數適用於建築材料,而不適用於其成分,除 非這些成分本身就是建築材料並單獨評估。為將 I 指數 應用於此類成分,特別是將天然存在的放射性物質加工 成建築材料的工業殘留物,需要應用適當的分配因子。 活度濃度指數值為1 可用作保守篩選工具,用於識別可 能導致超過參考基準(每年 1mSv)的材料。劑量的計算 需要考慮其他因素,例如材料的密度、厚度以及與建築 物類型和材料的預期用途(散裝或表面)相關的因素。

## 3.2 檢視我國符合既存性曝露管理行業之範疇

本計畫彙整國內列涉及 NORM 工業之行業,檢視 與調查國內符合既存性曝露管理行業之初步概況,國內 可能涉及 NORM 之工業行業如下:(1)礦石的開採與加 工(包括石油/天然氣開採)、(2)化石燃料(煤炭)的燃燒、 (3)水泥熟料生產、(4)稀土元素提取、(5)鋯石(zircon)和 氧化鋯(zirconia)工業、(6)二氧化鈦(titanium dioxide)顏 料的製造、(7)金屬生產、(8)水處理、(9)地熱能生產、 (10)涉及天然放射性既存性曝露之建材業者。

## 3.3後續建築材料等產品之輻射影響評估

#### (一) 輻射劑量率實測

透過主管機關(原能會)協助,與相關業者公會聯繫, 至業者等建材倉庫實測,利用經校正之手提式塑膠閃爍 偵檢器(AT1121,如圖1)進行石材樣品輻射劑量率現場 實測,分別檢測距石材表面10公分等不同位置之劑量 率,建測結果依據國內於106年9月修訂之天然放射性 物質管理辦法(原能會,2017),其第九條規定,建材表 面0.1公尺處之輻射劑量率為0.2 [Sv/h以下者(不含 背景值),即表示無安全疑慮:如大於0.2 [Sv/h以上 者,則應實施活度濃度分析,其活度濃度指數及使用範 圍依天然放射性物質管理辦法之附表一規定。

本計畫於 111 年對國內北部及東部天然石材業者

進行建材倉庫石材實測劑量率,總計六家業者、42件天 然石材樣品之劑量率實測結果,其建材表面 0.1 公尺處 之輻射淨劑量率(已扣除背景)之結果均小於 0.2 μSv/h, 符合國內天然放射性物質管理辦法之規定。

#### (二) 活度濃度分析與劑量評估

本計畫雖已對國內六家天然石材業者、42 件天然 石材樣品進行劑量率實測,且淨劑量率結果均小於 0.2 µSv/h,符合國內天然放射性物質管理辦法之規定;但 因廠商表示無法提供已檢測石材樣品之剩餘角料供作 活度濃度分析。故本計畫另行取得其他有剩餘角料之花 崗石天然石材三件、市售紅磚一件、市售磁磚三件、市 售石膏粉即混凝土各一件,及從鋼鐵業者取得之氧化爐 渣及還原爐渣各二件,總計 13 件;對每件樣品進行活 度濃度分析。若僅考量其活度濃度指數 I 之結果均小於 3,符合國內天然放射性物質管理辦法"使用於建築物室 內裝飾之建材活度濃度指數(I)之規定。

## (三) 劑量評估

除了對前節之樣品進行活度濃度分析外,本計畫亦 依據所測得之建材活度濃度結果,考量除爐渣外,其他 9件樣品可能被使用作為居家建材或裝潢材料、物品之 可能情況,以 Microshield 進行情境模擬計算,合理評 估使用該建材可能造成之人員劑量率及年劑量。整體而 言本計畫公式1及公式2所評估之合理年劑量結果均 小於1mSv/y(最大年劑量分別約0.0735 mSv/y,建材樣 品:花崗石天然石材1於「四面牆(客廳)+地板」情境)。

#### IV. 結論

本研究於 111 年彙整了國際組織及各國對可能導 致工作人員、公眾和環境的輻射曝露的 NORM 相關行 業的輻防與管理作法,包括 ICRP 142、EU RP112、IAEA SSG-32 及 EU COUNCIL DIRECTIVE 2013/59 /EURATOM 等文獻;對國內可能涉及 NORM 相關行業 進行初步調查,並評估建築材料等產品之輻射影響。整 體而言,本計畫依原規劃進度執行,並達成原規劃之計 畫目標。

## 参考文獻

- 行政院原子能委員會,天然放射性物質管理辦法, 2017年9月。
- [2] EC, 1999a. Establishment of Reference Levels for Regulatory Control of Workplaces where Materials are Processed which Contain Enhanced Levels of Naturally Occurring Radionuclides. Radiation Protection 107. European Commission, Brussels.
- [3] EC, 1999b. Radiological Protection Principles Concerning the Natural Radioactivity of Building Materials. Radiation Protection 112. European Commission, Brussels.
- [4] EURATOM, 2013. Council Directive 2013/59/EURATOM of 5 December 2013 laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation and repealing Directives 89/618/Euratom, 90/641/Euratom, 96/29/Euratom, 97/43/Euratom and 2003/122/Euratom. Off. J. Eur. Union. 13: 1–73.

- [5] IAEA, 1996. International Basic Safety Standards for the Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. Safety Series No 115. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [6] IAEA, 2003. Radiation protection and the management of radioactive waste in the oil and gas industry. No. SRS 34. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [7] IAEA, 2006. Assessing the Need for Radiation Protection Measures in Works Involving Minerals and Raw Materials. Safety Reports Series No. 49. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [8] IAEA, 2010. Proceedings of Naturally Occurring Radioactive Material Symposium (NORM VI). STI/PUB/1497, Marrakech, Morocco, March 2010. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [9] IAEA, 2012. Radiation protection and NORM residue management in the titanium dioxide and related industries. No. SRS 76. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [10] IAEA, 2013.Radiation protection and management of norm residues in the phosphate industry. No. SRS 78. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [11] IAEA, 2014. Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards. General Safety Requirements No. GSR Part 3. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [12] IAEA, 2015. Protection of the Public against Exposure Indoors due to Radon and Other Natural Sources of Radiation. Specific Safety Guide No. SSG-32. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [13] ICRP, 1977. Recommendations of the ICRP. ICRP Publication 26. Ann. ICRP 1(3).
- [14] ICRP, 1983. Cost-benefit analysis in the optimization of radiation protection. ICRP Publication 37. Ann. ICRP 10(2/3).
- [15] ICRP, 1984. Principles for limiting exposure of the public to natural sources of radiation.
- [16] ICRP Publication 39. Ann. ICRP 14(1).
- [17] ICRP, 1990. Optimization and decision making in radiological protection. ICRP Publication 55. Ann.

ICRP 20(1).

- [18] ICRP, 1991. 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. Ann. ICRP 21(1– 3).
- [19] ICRP, 2007a. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. Ann. ICRP 37(2–4).
- [20] ICRP, 2019. Radiological protection from naturally occurring radioactive material (NORM) in industrial processes. ICRP Publication 142.
- [21] Miller, H.T., Bruce, E.D., Cook, L.M., 1991. Management of Occupational and Environmental Exposure to Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM). 1991 SPE Annual Technical Conference and Exhibition, Pt. 2, Production Operations and Engineering. Society of Petroleum Engineers of AIME, 6–9 October 1991, Richardson, TX, USA, pp. 627–636.
- [22] Monicard, R., Dumas, H., 1952. Radioactivite'des Roches Se'dimentaires, du Pe'trole Brut et des Eaux de Gisements. Institut Franc, ais du Pe'trole, Paris, pp. 96–102.
- [23] Schmidt, A.P., 2000. Naturally Occurring Radioactive Materials in the Gas and Oil Industry. Origin, Transport and Deposition of Stable Lead and 210Pb from Dutch Gas Reservoirs. Department of Geochemistry, Utrecht University, Utrecht.
- [24] UNSCEAR, 1977. Report to the General Assembly. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York. UNSCEAR, 2008.
- 〔25〕 (韓國) Korea Act on Protective Action Guidelines against Radiation in the Natural Environment
- 〔26〕 (美國) Texas https://www.dshs.texas.gov/radiation/ram/norm.a spx
- [27] (澳洲) Arpansa Guide for Radiation Protection in Existing Exposure Situations (2017)
- 〔28〕 (英國) HSE Working with ionising radiation. Ionising Radiations Regulations 2017

## 診斷 X 光與核子醫學成像系統的基本輻射安全規範和設備必要測試之研究 Radiation Protection and Safety of Diagnostic Radiological Imaging And Nuclear Medical Imaging System

計畫編號: MOST 111-2623-E-007-009-NU 計畫主持人: 蔡惠予 e-mail:huiyutsai@mx.nthu.edu.tw 計畫參與人員:陳昱瑄、練蒙恩、何俊逸 執行單位:國立清華大學核子工程與科學研究所

## 摘要

隨著放射診斷影像與核子醫學影像的普及與興盛, 用以產生該影像之醫療器材診斷用可發生游離輻射設 備的輻射安全議題顯得重要,故此,在可產生具有良好 臨床診斷價值的前提下,合理控管相關設備的輻射輸出 效能,才可確實維護病患及臨床工作人員的輻射安全。 因此,本計畫全面盤點相關於醫療器材診斷用可發生游 離輻射設備之輻射安全規範的報告,依據四種層級標準 分別為國際標準、區域標準、專業學協會機構的建議報 告、歐盟正式報告等層級,已篩選出最相關的46份報 告,分析各報告之間的關係,發現多數建議都源自國際 電工組織(IEC)的標準,因此本計畫深入研析 IEC 最 新的九份報告,並建立適合現行醫療器材診斷用可發生 游離輻射設備之輻射防護安全規範、規劃相關測試方法 以評估其效能。本計畫已透過以下四個步驟來達成目標: (a) 收集並研析國際最新醫療器材診斷用可發生游離 輻射設備之輻射安全標準規範;(b) 彙整輻射安全標準 規範之類別及檢測項目;(c)研擬國內可行之輻射安全 標準規範與檢測方法;(d) 對現行安全查項目及輻射安 全測試報告內容,提出適用修正建議。本計畫依據其內 容完整性區分出四大基本要求,包含輻射管理、輻射源 (品質與量)、機械性要求、輻射防護等,此外,可依據 其儀器性質分為通用性標準與特定性標準,通用性標準 為所有診斷 X 光設備皆須符合的項目,特定性標準則 是依據儀器設備的特徵差異而有所區別,並可歸納至上 述四大基本要求,本計畫所建議的項目,包括探討正常 使用情境,以確保儀器設備合乎正常使用,另外因應多 項新型設備有操作者會曝露於輻射場的情形,也建議規 範需納入散逸輻射分布圖供操作者參考。本計畫的報告 可提供原子能委員會,針對醫用X光系統之基本輻射安 全規範和設備必要測試的建議,此建議亦適合新型醫用 X光相關設備。

**關鍵詞:**基本輻射安全、診斷 X 光成像系統、核子醫 學成像系統、規範與測試

## Abstract

The widespread use of radiological and nuclear imaging in diagnostic medical equipment has brought radiation safety issues to the forefront. It is crucial to control the radiation output of the equipment to maintain the safety of patients and clinical workers while producing clinically valuable images. This project comprehensively reviewed 46 reports on radiation safety standards for diagnostic X-Ray medical equipment that generates ionizing radiation, based on four levels of standards: professional international. regional, association recommendations, and EU official reports. The majority of recommendations were found to originate from the International Electrotechnical Commission (IEC) standards. As a result, the project conducted an in-depth analysis of the latest nine IEC reports to establish suitable radiation protection safety standards and to plan relevant testing methods to evaluate their effectiveness for current diagnostic medical equipment that generates ionizing radiation. The project achieved its objectives through four steps: (a) collecting and analyzing the latest international radiation safety standards for diagnostic medical equipment that generates ionizing radiation; (b) categorizing and compiling the types and testing items of radiation safety standards; (c) developing feasible domestic radiation safety standards and testing methods: and (d) proposing applicable modification suggestions for current safety check items and radiation safety test report content. The project identified four basic requirements based on the completeness of its content, including radiation management, radiation source (quality and quantity), mechanical requirements, and radiation protection. Furthermore, the project proposed general and specific standards based on the nature of the equipment. The general standards applied to all diagnostic X-ray equipment, while the specific standards varied depending on the differences in equipment characteristics and could be summarized into the above four basic requirements. The project's proposed items included discussing normal usage scenarios to ensure that the equipment meets normal usage standards. Additionally, since multiple new devices expose operators to radiation fields, the project recommended that standards include a scatter radiation distribution map for operator reference. The project report provides the Atomic Energy Commission with recommendations for basic radiation safety standards and necessary equipment testing for medical X-ray systems, which are also suitable for latest medical X-ray related equipment.

**Keywords** : basic radiation safety, Diagnostic X-Ray Imaging Systems, Nuclear Imaging Systems, requirements/testing

## I. 前言

台灣自 1997 至 2008 年間執行放射診斷的頻次以 平均每年 5% 的比例逐年增加 (Chen. 2011: Hung. 2014),隨著醫療器材診斷用可發生游離輻射設備科技 的進步,使得放射診斷成為當今臨床診斷非常仰賴的技 術。對於醫療器材診斷用可發生游離輻射設備需要制定 輻射防護安全規範以確保其在執行造影時,儀器設備的 輻射劑量輸出、影像品質等層面能符合國際上的標準規 範,在足以產出具有良好醫學診斷價值之影像的前提下, 可確實維護病患及臨床工作人員的輻射安全。放射診斷 用醫療器材診斷用可發生游離輻射設備可分為:一般診 斷型X光機、移動型X光機、透視攝影X光機、電腦斷 層掃描儀、乳房攝影X光機、牙科型X光機、骨質密度 儀、震波碎石攝影 X 光機等八類,不同種類的設備在 產生影像上將涉及不同的物理參數 (physical parameters),故針對不同種類的設備及其物理參數皆有 相應的國際規範以限制之。本計畫系統性篩選國際文獻 報告共46份,並篩選出最關鍵的9份報告進行回顧、 分析與探討。

#### II. 主要內容

隨著放射診斷影像的普及與不斷興盛,用以產生該 影像之醫療器材診斷用可發生游離輻射設備的輻射安 全議題顯得重要,故此,在可產生具有良好臨床診斷價 值的前提下,合理控管 X 光設備的輻射輸出效能,才 可確實維護病患及臨床工作人員的輻射安全。因此,各 國需建立醫療器材診斷用可發生游離輻射設備之輻射 防護安全規範並規劃相關測試方法以評估其效能。建立 相關規範與測試方法可依據醫療器材診斷用可發生游 離輻射設備之輻射防護安全規範的體系架構(圖 1), 參考架構內各層級所提出的規範、建議或研究成果以建 構之。



圖1醫療器材診斷用可發生游離輻射設備之輻射防護 安全規範的體系架構

為因應國際上對於醫療器材診斷用可發生游離輻 射設備之輻射安全規範的更新,以確實維護病患及臨床 工作人員的輻射安全,本計畫擬針對醫療器材診斷用可 發生游離輻射設備之輻射防護安全規範及相應測試方 法進行研究,包含(一)收集並研析國際最新醫療器材診 斷用可發生游離輻射設備之輻射安全標準規範;(二)彙 整輻射安全標準規範之類別及檢測項目;(三)研擬國內 可行之輻射安全標準規範與檢測方法;(四)對現行安全 審查項目及輻射安全測試報告內容,提出適用修正建議。

## III. 結果與討論

收集並彙整國際電工委員會(International Electrotechnical Commission, IEC)發布之醫用輻射設備 標準報告,並取得最新的 IEC 報告進行研析。本研究參 考的 IEC 報告共計9份,皆採用 IEC 60601 系列標準, 這系列標準是用於指導健康設備的安全要求的標準,依 據其內容性質分類為通用性規範與特性規範,見圖 2 與 圖 3:

通用性標準涵蓋了醫療電子設備和系統的不同面 向。這些標準確定了醫療電子設備和系統的設計、構造、 測試、性能、輻射管理的要求,以確保它們在醫療設施 中使用時的安全性,在圖2與圖3中可見,所有的游離 輻射設備皆須遵守通用性標準。當診斷儀器設備有專用 用途時,除了需遵守通用性標準之外,也衍生出特定性 標準,主要用於醫療器械的特定技術性要求。每個報告 都著重於某種特定種類的醫療器械。

當診斷儀器設備有專用用途時,除了需遵守通用性 標準之外,也衍生出特定性標準,主要用於醫療器械的 特定技術性要求。它包括許多獨立的部分,每個報告都 著重於某種特定種類的醫療器械,如圖與圖所示,一般 醫用X光機、移動式醫用X光機、骨質密度儀需遵守 通用性標準的三份報告(a,b,c),而其他設備,體外震 波碎石X光機需遵守通用性標準的三份報告(a,b,c) 與特定性要求的報告(d),以此類推。



圖 2 IEC 規範性質分類圖

儀器種類	適用規範
一般診斷型X光機、移動型X光機	A
、骨質密度儀	a + b + c
震波碎石定位用X光機	A B a + b + c d
透視攝影 X 光機 (含傳統透視攝影 X 光	A B
機及介入性透視攝影 X 光機)	a + b + c e
電腦斷層掃描儀(含一般電腦斷層儀、單光	A B
子電腦斷層掃描儀、正子電腦斷層造影)	a + b + c f
乳房X光攝影儀	A B a + b + c g
牙科型X光機	A B
(含口內與口外牙科型X光機)	a + b + c h or i

#### 圖 3 醫用輻射儀器適用規範表

通用性標準包含以下一到四點基本要求,特定性標 準則依據儀器種類分類與四大基本要求做補充: (一) 輻射管理

為了確保輻射的使用是安全且有效的,醫療機構須 提供儀器的廠牌型號與操作手冊,以便專業人員能夠正 確評估儀器的性能和安全性。醫療機構還必須保存相關 於儀器的使用和維護記錄,以便在出現問題時能夠快速 解決,明定用途是否涵蓋成人和小兒的照射,已保證醫 療設備的安全和有效使用,從而確保醫院提供的醫療服 務的質量。

(二) 輻射源(X光的品質與量)

為保證 X 光機輸出的穩定性和高精度, 需對有效 曝露面積、X 光管電壓 (kVp)、強度 (mA)、曝露時間 (sec)等、曝露與管電流時間乘積呈線性關係、曝露的 再現性、輻射品質(半值層)、透視時照射檯面之空氣 克馬率、畫面顯示延遲時間、電腦斷層劑量指標與劑量 長度乘積、代表性檢查的病人劑量、平均乳腺劑量、限 制電流曝露時間乘積曝露等要求,其中輻射品質是非常 重要的,如果輻射品質不佳,可能會導致輻射曝露過多, 造成額外的輻射傷害。因此使用鋁等效半值層(Half Value Laver, HVL), 用於確認輻射射束品質。HVL 是指 在輻射源和被照射物質之間,將輻射強度减半所需的厚 度,在醫療X光源則是指曝露量減少一半所需的厚度。 使用鋁作為測量 HVL 的媒介時,需要將高純度的鋁板 放在輻射源和檢測物之間,且靠近輻射源,使用游離腔 測量輻射曝露,並逐漸增加鋁板的厚度,直到輻射曝露 降低一半為止。當輻射曝露降低一半時, 鋁板的厚度即 為 HVL。HVL 可以反映出輻射射束的品質,因為 HVL 越大,輻射射束的穿透能力就越高。因此根據 IEC 標準 的建議, X 光機的X光射束需依據不同的 kVp 條件, 具備對應的最小鋁有效半值層,請參見表1,用於確認 輻射射束品質。

表 1 X 光設備的 X 光管電壓所應具備的最小鋁有效 半值層 (60601-1-3, 2021, p. Table 3)

X-RAY TUBE VOLTAGE	Minimum permissible first HALF-VALUE LAYER mm Al		
50	1,8		
60	2,2		
70	2,5		
80	2,9		
90	3,2		
100	3,6		
110	3,9		
120	4,3		
130	4,7		
140	5,0		
150	5,4		
- HALF-VALUE LAYERS for other voltages shall b	e obtained by linear interpolation or extrapolation		
These HALF-VALUE LAYER values correspon EQUIDMENT, operating at constant potential x	nd to a TOTAL FILTRATION of 2,5 mm AI for X-		

#### (三) 機械性要求

為保證 X 光機於拍攝影像時設備的穩定性和高精 度,機械性要求包括安全連鎖裝置、輻射管制區標誌、 靶至照射檯面距離、射束準直儀、準直儀光闌指示燈光、 透視累積時間警示功能、切片位置與厚度準確性、曝露 狀態與預備狀態指示器等。

- (四) 輻射防護
  - 1. 剩餘輻射 (residual radiation)

當 X 光機攝影時,輻射經過影像接收器後, 仍會有一定量的剩餘輻射,為保障輻射安全,在 X 光管運作時,剩餘輻射的量應使其空氣克馬率小 於 150 μGy/h,若曝露時其他病患可能站立於 X 光機旁,則需小於 1 μSv/h。

2. 滲漏輻射 (leakage radiation)

X 光機的滲漏輻射是當 X 光管在運作時,有 些輻射會穿過 X 光機機頭的屏蔽,仍有一部分的 數量穿透,造成輻射滲漏。為保障輻射安全,在 X 光管運作時,空氣克馬率應小於 1 mGy/h。

## 3. 散逸輻射 (stray radiation)

散逸輻射是指不能使用於任何用途的輻射, 包括滲漏與二次(散射)輻射。當輻射曝露時,若 操作者需處於緊要佔用區(Significant Zone of Occupancy, SZO),即位於X光機旁的立方空間, 此空間的面積大於 3600 cm<sup>2</sup>,單一邊不小於 60 cm,高度不小於 200 cm,則須提供該儀器在緊要 佔用區的空間劑量分布情形,以確保輻射安全並 提供給操作者使用,如,另(圖4)外若登記使用 為移動式設備則需確認延伸控制面板與靶距離是 否可相隔 2 m 以上。



圖 4 IEC 的緊要佔用區示意圖與輻射劑量分布情 (60601-1-3, 2021)

4. 防護用具 (protective device)

為可發生游離輻射設備之人員提供必要的輻 射防護,醫療機構應提供適當的輻射防護用具,包 含:鉛衣、鉛圍裙、鉛手套、鉛眼鏡、移動式屏蔽 等,並定期檢查其破損與標示之鉛當量。

## IV. 結論

關於診斷 X 光與核子醫學成像系統的基本輻射安 全規範,現行的規範內容未隨 IEC 等國際文獻更新而 進行全面的盤點與設計,目前僅著重於輻射管理與射束 品質的基礎規範,尚缺乏對於剩餘輻射、滲漏輻射、散 逸輻射的相應規範。故此,本計畫彙整與研析國際最新 規範與期刊建議,依據其內容完整性,分為四大基本要 求類別,分別是輻射管理、輻射源(品質與量)、機械 性要求、輻射防護。

此外,再依據適用儀器性質分為應遵循通用性標準 與特定性標準,通用性標準為所有診斷 X 光設備皆須 符合的項目,而特定性標準則依據儀器的設計特性而有 所差異,並可歸納至上述四大基本要求。本計畫所建議 的項目,包括探討正常使用情境,以確保儀器合乎正常

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

使用,另外因應多項新型設備有操作者會曝露於輻射場 的情形,也建議規範需納入散逸輻射分布圖供操作者參 考。本計畫的報告可提供原子能委員會,針對醫用X光 系統之基本輻射安全規範和設備必要測試的建議,此建 議亦適合新型醫用X光相關設備。

## 参考文獻

- [1] IEC 60601-1-3., 2021. Medical electrical equipment-Part 1-3: General requirements for basic safety and essential performance-Collateral Standard: Radiation protection in diagnostic X-ray equipment.
- [2] IEC 60601-2-28., 2017. Medical electrical equipment-Part 2-28: Particular requirements for the basic safety and essential performance of X-ray tube assemblies for medical diagnosis.
- [3] IEC 60601-2-36., 2014. Medical electrical equipment-Part 2-36: Particular requirements for the basic safety and essential performance of equipment for extracorporeally induced lithotripsy.
- [4] IEC 60601-2-43., 2019. Medical electrical equipment-Part 2-43: Particular requirements for the basic safety and essential performance of X-ray equipment for interventional procedures.
- [5] IEC 60601-2-44., 2016. Medical electrical equipment-Part 2-44: Particular requirements for the basic safety and essential performance of X-ray equipment for computed tomography.
- [6] IEC 60601-2-45., 2015. Medical electrical equipment-Part 2-45: Particular requirements for the basic safety and essential performance of mammographic X-ray equipment and mammographic stereotactic devices.
- [7] IEC 60601-2-54., 2022. Medical electrical equipment-Part 2-54: Particular requirements for the basic safety and essential performance of X-ray equipment for radiography and radioscopy.
- [8] IEC 60601-2-63., 2021. Medical electrical equipment-Part 2-63: Particular requirements for the basic safety and essential performance of dental extra-oral X-ray equipmen.
- Chen, T.-R., Tyan, Y.S., Teng, P.S., Chou, J.H., Yeh, C.Y., E, T.W., Shao, C.H., Tung, C.-J., 2011. Population dose from medical exposure in Taiwan for 2008. Medical physics 38, 3139–3148. https://doi.org/10.1118/1.3592936
- 〔10〕 Hung, M.-C.,2014. The longitudinal trends in the utilization and population dose of medical radiological procedures in Taiwan. 慈濟技術學 院學報,第二十二期,47-62。

# 跨域合作與風險溝通(I)

## 開發遠端麥卡納姆輪自主機器人與軌跡控制器以輔助核電廠輻射作業 Development of a Remote Mecanum-Wheeled Autonomous Robot and a Trajectory Controller to Assist Radiation Operations in a Nuclear Power Plant

計畫編號:MOST 111-NU-E-002-001-NU 計畫主持人:陳湘鳳 e-mail:ssmith@ntu.edu.tw 計畫參與人員:石耘碩、謝子傑、莊東叡 執行單位:國立臺灣大學機械工程學系暨研究所

## 摘要

為降低輻射帶給人類的傷害,遠端機器人可代替人 類,在輻射污染的環境中工作。本研究的目的為開發一 自主機器人,在核電廠內部能自行對自身位置進行軌跡 控制。本研究提出一個中介系統輸入項,作為一個3自 由度的向量,可視為麥克納姆輪平台在世界坐標系的外 力,該輸入項能讓控制器的設計更加輕易。本研究提出 一個基於超扭曲(Super twisting)演算法的控制器與觀測 器,並用數學分析的方式證明其受控系統的穩定性。為 了解提出控制器的有效性,同時打造一台麥克納姆輪平 台,該平台搭載視覺同時定位與建圖 (Simultaneously Localization and Mapping, SLAM) 。本研究實作提出的 控制器在打造的麥克納姆輪平台上,並對其控制進行實 驗。結果顯示提出的控制器能有效的控制麥克納姆輪平 台,並維持一定的穩態誤差。

**關鍵詞:**麥克納姆輪、回授控制、系統觀測、超扭曲 (Super twisting)演算法

## Abstract

In order to reduce the harm of radiation to humans, remote robots can replace humans to work in environments contaminated with radiation. The objective of this research is to develop an autonomous robot that can autonomously control its own position trajectory inside a nuclear power plant. This research proposes an intermediate system input, which is a 3-degree-of-freedom vector that can be considered as an external force of a Mecanum wheel platform in the world coordinate system. This input makes the controller design easier. This research proposes a controller and observer based on the Super Twisting algorithm, and proves the stability of the controlled system through mathematical analysis. In order to validate the effectiveness of the proposed controller, a Mecanum wheel platform with simultaneous localization and mapping (SLAM) capability is also constructed. The proposed controller is implemented on the constructed Mecanum wheel platform, and experiments are conducted to evaluate its performance. The results show that the proposed controller can effectively control the Mecanum wheel platform and maintain a certain steady-state error.

**Keywords** : Mecanum wheels, feedback control, system observation, Super Twisting algorithm.

## I. 前言

麥克納姆輪平台(MWPs)已應用於許多工業場景, 包括倉庫管理、物流、生產和裝配等。其中一家知名的 MWP 製造商 KUKA AG. 麥克納姆輪由一個主軸和許 多從屬軸組成,如圖 1 所示。車輪本體圍繞主軸旋轉, 每個滾輪圍繞其相應的從屬軸旋轉。從屬軸通常是被動 的。從屬軸不與主軸平行,並且每個從屬軸通常是被動 的。從屬軸不與主軸平行,並且每個從屬軸通常相對於 主軸有 45 度的角度。在典型的使用中,該機構約束車 輪的 1 個自由度,可以通過繞主軸旋轉來確定。普通車 輪沒有附著在其邊緣的被動滾輪,任何橫向移動或轉向 都會導致打滑。與普通車輪不同,麥克納姆輪可以在沒 有打滑的情況下橫向移動或自由轉向。這一特點使其成 為許多應用中普通輪子的更好替代品[1]。



圖1 麥克納姆輪

要控制 MWP 在平面上移動,一種好的方法是定義 一條軌跡讓 MWP 跟隨。不斷監測 MWP 的位置和速度, 並反饋控制馬達力矩。通過不斷調整驅動 MWP 的力矩, MWP 逐漸接近軌跡並理想地與其重合。問題在於如何 根據監測到的 MWP 狀態決定馬達力矩。這種方法稱為 "軌跡追蹤控制"。軌跡是時間的函數。更具體地說,軌 跡定義了每個時刻的期望狀態。

由於 MWPs 的非線性動力學和輪子帶來的擾動 [1,2], MWPs 的控制是困難的。先前研究嘗試提出不同 的方法來實現精確的軌跡追蹤控制,包括模糊邏輯控制 [3], 滑動模式控制[4-7]。然而,他們可能會基於不正確 的動態模型[5、6、8]提出控制器,或者使問題變得複雜 [4-6、8]。除了實現高精度外,一些其他研究專注於控 制的其他方面,例如物體避免[9]和對一組 MWPs 的控 制[8]。一些研究專注於 MWP 的整體設計和開發[10-13]。

本研究的主要目標是探討 MWP 的軌跡追蹤控制。 為此,本研究提出了一個簡化的 MWP 動態模型,該模型的結構易於設計控制器。本研究還提出了一個超扭矩 觀測器和控制器,用於 MWP 的控制。為了研究控制器 的有效性,進行了基於物理的模擬,並將所提出的控制 器與 PID 控制器進行了比較。

## II. 超扭曲控制器

對於像 MWP 這樣的機械系統,其狀態變量可以 分為兩類。一種是位置,另一種是速度。許多定位系統 可以測量設備的位置,但不能測量速度。為了從位置估 計速度,需要一個狀態觀測器。本研究提出了一個用於 MWP 之超扭曲觀測器。假設在任何時候都可以測量 MWP 的位置Z<sub>1</sub>,但速度Z<sub>2</sub>是未知的。狀態觀測器的工 作是從Z<sub>1</sub>的測量值中估算Z<sub>2</sub>。要控制 MWP 沿軌跡移動 必須根據 MWP 的當前狀態調整扭矩輸入,以便可以補 償 MWP 的狀態和期望狀態之間的任何偏差。

超扭矩控制器是一種滑模控制器。它根據系統狀態 的一個函數來確定系統輸入。在本研究中,我們定義滑 模變量為:

$$\sigma = ce + \dot{e} \tag{1}$$

其中 $e = Z_d - Z_1$ ,表示控制誤差, $e \in \mathbb{R}^3, c \in \{P \in diag(3) | P > 0 \}$ 。

因為滑動變數取決於速度Z<sub>2</sub>,而該速度無法被直接 測量且被視為未知,因此無法直接測量和獲得滑動變數。 因此,基於觀測值的滑動變數估計被定義為:

$$\hat{\sigma} = ce + \left(\dot{Z}_d - \hat{Z}_1\right) \tag{2}$$

圖 2 顯示了整個控制流程。其中  $k_3$  和  $k_4$  是控 制系統響應性的參數,  $k_5$ 是決定輸入界限的參數。圖 2 顯示一個 MWP 輸出其位置  $Z_1$  和速度  $Z_2$ 。位置被回 授用來計算估計誤差ê,用於觀測  $Z_2$ 。觀測到的速度 $Z_2$ , 即 $\dot{Z}_1$ ,與 $Z_1$ , $Z_d$ ,和  $\dot{Z}_d$ 一起用來計算滑模變量的估計值  $\hat{\sigma}$ 。控制器使用 $\hat{\sigma}$ 來計算中介系統輸入 u,進而計算扭矩 輸入  $\tau$ 。最後,馬達生成由控制器決定的扭矩  $\tau$ ,並驅 動 MWP 沿著由  $Z_d$ ,和  $\dot{Z}_d$ 指定的期望軌跡運動。



圖 2 超扭曲控制流程

## III. 模擬

為了進一步了解所提出的控制器的效果,我們建立 了一個擬真的模擬環境,並在其中測試了所提出的控制 器。為了確定結果是否滿意,並將所提出的控制器與一 個 PID 控制器進行比較。結果表明,所提出的控制器優 於比較的 PID 控制器。

本研究使用 Unity 2020.2 來模擬 MWP。Unity 使用

的底層物理引擎是由 Nvidia 開發的 PhysX SDK 4.1,可 以提供工業級的模擬[14]。控制器則是在機器人作業系 統(ROS)中實現。因此,控制器中的底層計算可以輕鬆 檢查,參數可以實時調整,數據可以輕鬆收集。

在將四個輪子導入 Unity 後,這些模型被用來創建 GameObject。每個輪子都對應多個 GameObject。首先 創建一個 GameObject 作為輪子的主體,然後為每個輪 子的 滾 子 創 建一 個 子 GameObject 。將輪子的 GameObject 放置在它們的軸承下,軸承是不可見的 GameObject。軸承放置在基本鏈接下方。圖 3 顯示代表 MWP 的 GameObject 的結構。在 Unity 中製作的模擬 MWP 如圖 4 所示。





圖 4 在 Unity 中模擬的 MWP

## IV. 超扭曲控制器的執行

提出的觀測器和超扭曲控制器將為 ROS 節點。控 制器可以被視為一個管道,它將 MWP 的姿態作為輸入 並輸出用於 MWP 的輪轉矩。觀測器使用 MWP 的姿態 來觀測 MWP 的位置和速度,並以較高的速率輸出估計 的狀態,該狀態被輸入到控制器和力導向器中。控制器 使用估計的狀態和期望的狀態來確定一個通用的力u。 力導向器實現  $\Psi(\varphi)$ ,而扭矩恢復器實現矩陣 $(T^*)^T$ 。模 擬中使用的參數如表 1 所示。

衣 I 起扭曲	狂的品丨使用的多数
Parameter	Value
$k_1$	$[2.32  2.32  3.07]^T$
$k_2$	$[5.0  5.0  7.0]^T$
С	$[5.5  5.5  2.4]^T$
$k_3$	$[0.438  0.438  0.15]^T$
$k_4$	$[0.325  0.325  0.4]^T$
$k_5$	$[1.0 \ 1.0 \ 1.0]^T$

表1 超扭曲控制器中使用的參數

## V. PID 控制器的執行

將所提出的控制器與 PID 控制器進行比較,其表 達式為:

$$(u)_{i} = (k_{6})_{i}(e)_{i} + (k_{7})_{i} \int (e)_{i} dt + (k_{8})_{i} \left( \dot{Z}_{d} - \dot{Z}_{1} \right)_{i} (3)$$

控制如圖 5 所示。PID 控制器被整合到所提出的觀測器中,並使用 $e, \int edt, \ \pi \dot{Z}_d - \dot{Z}_1$ 決定中間系統輸入u。

PID 控制器的參數k<sub>6</sub>,k<sub>7</sub>,k<sub>8</sub>是使用 Ziegler-Nichols 方法[14]進行調整的,該方法可以為 PID 控制器選擇合 適的參數。PID 控制器的參數如表 2 所示。



圖 5 PID 控制圖

表	2	PID	控制	器	中使	用	的参	數
---	---	-----	----	---	----	---	----	---

Parameter	Value
$k_6$	$[3.0  4.6  1.2]^T$
$k_7$	$[8.5  13.1  1.71]^T$
$k_8$	$\begin{bmatrix} 0.263 & 0.4 & 0.21 \end{bmatrix}^T$

## V. 模擬結果

模擬的 MWP (機器人移動平台)軌跡和期望軌跡 的前 10 個軌跡如圖 6 顯示。如圖 6 所示,兩個控制器 都能收斂到期望軌跡。然而,所提出的控制器,即超扭 曲控制器,產生了較低的誤差。結果顯示,與 PID 控制 器相比,所提出的控制器更具有優越性。



VI. 實驗

根據模擬的 MWP,建立了一個實體 MWP,並將 模擬 MWP 中選擇的參數應用於實體 MWP 中。MWP 包括四個直流馬達,用於為其對應的四個輪子產生扭矩。 在底盤上,有四個馬達驅動器、一個 STM32 Nucleo-F446ZE 微控制器和一個使用 Nvidia Jetson TX2 開發套 件 的 嵌入式系統。嵌入式系統連接到一個 Intel Realsense D435i RGBD 相機,用於感測環境。建立的 MWP 如圖 7 所示。



圖 7 實體 MWP

為了對 MWP 進行反饋控制,需要測量其姿態。我 們使用了視覺同時定位與建圖 (SLAM) 方法。除了相 機姿態外,還需要系統的完整狀態,即 MWP 的位置和 速度。我們使用的視覺 SLAM 算法只提供位置測量。 建議的超扭曲觀測器用於從位置估計速度。

整體軟體架構如圖 8 所示。Nvidia Isaac SDK 和 ROS 被整合在 Nvidia Jetson TX2 中。Nvidia Isaac SDK 提供了許多現成的機器人控制算法和模塊。例如,作為 定位工具,我們選擇了 Elbrus,並使用 Isaac 遠程控制 來提供網絡上的圖像編碼和串流傳輸。由於控制器是在 ROS 中實現的,定位工具給出的位置首先被發送到 ROS 環境並提供給觀測器。然而,與為馬達生成扭矩不 同,控制器決定了馬達的輸入電壓。添加了一個生成正 弦信號的軌跡生成器節點作為期望狀態。



## VI. 實驗結果

實體 MWP 在前 5 個周期內,隨時間變化的 x 軸和 y 軸位置分別在圖 9 和圖 10 中顯示。僅繪製了前 5 個 周期,因為繪製全部 29 個周期會使圖形變得雜亂。研 究發現,實體 MWP 長時間內沿著預定的期望軌跡移動, 並且沒有故障。定位系統持續提供 MWP 的位置信息, 控制器持續調整馬達的電壓以實現期望的軌跡。實驗中 的 RMS 位置誤差在圖 11 中顯示。研究發現,在每個周 期內,位置誤差可以控制在 0.04 厘米以下。



圖 9 實體 MWP 前 5 個周期內隨時間變化的 x 軸位置



圖 10 實體 MWP 前 5 個周期內隨時間變化 y 軸位置



圖 11 RMS 位置誤差

## VII. 討論

本研究的目的為開發一自主機器人,在核電廠內部 能自行對自身位置進行軌跡控制。由於 MWP 的非線性 動態行為,控制 MWP 是一個具有挑戰性的問題。為了 解決這個問題,本研究設計了一個超扭曲控制器和觀測 器。為了進一步了解所提出的控制器的效果,除了數學 分析外,還進行了模擬。在模擬中,將所提出的控制器 與 PID 控制器進行比較。結果顯示,所提出的控制器優 於 PID 控制器。為了了解所提出的控制器在實際應用 中的效果,進行了實驗。結果顯示,超扭曲控制器的穩 定性和可靠性。

然而,實驗中存在一些限制。因為實驗場地是一個 會議室,地面有肉眼可見的不平整,實體 MWP 有時會 滑動並卡住。此外,地面和 MWP 之間的摩擦很低,使 得 MWP 難以移動。與模擬相比,實驗有兩個不同之處。 一個是模擬 MWP 不需要物理傳感器來測量位置。這意 味著實體 MWP 接收到了模擬 MWP 不會接收到的干 擾。另一個不同之處是,在模擬中,控制器確定了馬達 的扭矩,而在實驗中,控制器確定了電壓。這可能是實 驗結果和模擬結果差異的原因。

## 参考文獻

- F. Adăscăliței and I. Doroftei, "Practical applications for mobile robots based on Mecanum wheels-a systematic survey," *The* Romanian *Review Precision Mechanics, Optics and Mechatronics,* vol. 40, pp. 21-29, 2011.
- S. L. Dickerson and B. D. Lapin, "Control of an omni-directional robotic vehicle with Mecanum wheels," in NTC'91-National Telesystems Conference Proceedings, Atlanta, GA, USA, 1991: IEEE, pp. 323-328.
- [3] C.-H. Kuo, "Trajectory and heading tracking of a Mecanum wheeled robot using fuzzy logic control," in 2016 International Conference on Instrumentation, Control and Automation (ICA), Bandung, Indonesia, 2016: IEEE, pp. 54-59.
- [4] V. Alakshendra and S. S. Chiddarwar, "Adaptive robust control of Mecanum-wheeled mobile robot with uncertainties," *Nonlinear Dynamics*, vol. 87, no. 4, pp. 2147-2169, 2017.
- [5] Z. Yuan, Y. Tian, Y. Yin, S. Wang, J. Liu, and L. Wu, "Trajectory tracking control of a four Mecanum

wheeled mobile platform: An extended state observer-based sliding mode approach," *IET Control Theory and Applications*, vol. 14, no. 3, pp. 415-426, 2020.

- [6] C. C. Tsai and H. L. Wu, "Nonsingular terminal sliding control using fuzzy wavelet networks for Mecanum wheeled omni-directional vehicles," in 2010 IEEE World Congress on Computational Intelligence, WCCI 2010, Barcelona, Spain, 2010, doi: 10.1109/FUZZY.2010.5584223.
- [7] Z. Sun, H. Xie, J. Zheng, Z. Man, and D. He, "Pathfollowing control of Mecanum-wheels omnidirectional mobile robots using nonsingular terminal sliding mode," *Mechanical Systems and Signal Processing*, vol. 147, p. 107128, 2021.
- [8] C.-C. Tsai, H.-L. Wu, F.-C. Tai, and Y.-S. Chen, "Adaptive backstepping decentralized formation control using fuzzy wavelet neural networks for uncertain Mecanum-wheeled omnidirectional multivehicles," in 2016 IEEE International Conference on Industrial Technology (ICIT), Taipei, Taiwan, 2016: IEEE, pp. 1446-1451.
- [9] M. R. Azizi, A. Rastegarpanah, and R. Stolkin, "Motion planning and control of an omnidirectional mobile robot in dynamic environments," *Robotics*, vol. 10, no. 1, p. 48, 2021.
- [10] J. S. Keek, S. L. Loh, and S. H. Chong, "Comprehensive development and control of a path-trackable Mecanum-wheeled robot," *IEEE Access*, vol. 7, pp. 18368-18381, 2019.
- M. Takahashi, T. Moriguchi, S. Tanaka, H. Namikawa, H. Shitamoto, T. Nakano, Y. Minato, T. Ihama, and T. Murayama, "Development of a mobile robot for transport application in hospital," *Journal of Robotics and Mechatronics*, vol. 24, no. 6, pp. 1046-1053, 2012.
- M. Y. Naing, A. San Oo, I. Nilkhamhang, and T. Than, "Development of computer vision-based movement controlling in Mecanum wheel robotic car," in 2019 First International Symposium on Instrumentation, Control, Artificial Intelligence, and Robotics (ICA-SYMP), Bangkok, Thailand, 2019: IEEE, pp. 45-48.
- [13] J.-T. Huang, J.-Y. Hu, J.-W. Lo, and Q.-D. Cai, "Development and design of AIV using hub motor embedded in Mecanum wheel," in 2018 *IEEE/ASME International Conference on Advanced Intelligent Mechatronics (AIM)*, Auckland, New Zealand, 2018: IEEE, pp. 658-663.
- [14] J. G. Ziegler and N. B. Nichols, "Optimum settings for automatic controllers," *Transactions of the ASME*, vol. 64, no. 11, pp. 759–768, 1942.
應用於低軌道衛星之抗輻射類比/數位混合晶片電子設計自動化開發(III) Project name: A radiation hardening analog-to-digital mixed-signal circuit and electronic design automation development for low orbit satellites applications III

> 計畫編號:MOST 111-NU-E-002-002-NU 計畫主持人:陳信樹 e-mail:hschen@ntu.edu.tw 計畫共同主持人:蔡坤諭 計畫參與人員:蔡佳勳技術專員、蔡孟智、梁淳皓 執行單位:國立台灣大學電子所

### 摘要

本計畫目標為改善類比數位訊號轉換器(analog-todigital converters)電路在輻射環境下之性能表現,以此 為基礎發展低軌道衛星所需使用之抗輻射晶片技術,並 完善相關電性模擬軟體設置與實驗流程,以此模擬並驗 證晶片抵抗輻射影響之能力,為台灣太空產業發展奠定 基礎。

為瞭解輻射對於電晶體之影響,本計畫將不同布局 之電晶體整合之單一晶片中進行輻射照射實驗,並以此 了解輻射對於電晶體電性之影響,並且使用模擬軟體建 構電晶體模型模擬輻射影響。

此外本計畫設計 analog-to-digital converters 所需使 用之比較器,並使用模擬軟體驗證其抗輻射性能,本計 畫未來將針對此比較器進行輻射實驗,並將需輻射防護 設計之電路進行修改,令電路達到抵抗輻射影響之功效。 **關鍵詞:**抗輻射、類比/數位轉換器、混合訊號晶片、電 性模擬

### Abstract

The goal of this project is to improve the performance of ADC (analog-to-digital converters) circuits in radiation environments, based on this to develop anti-radiation chip technology for low-orbit satellites, and to improve related electrical properties Simulate software setup and experiment process to simulate and verify the chip's ability to resist radiation effects, laying the foundation for the development of Taiwan's space industry.

In order to understand the influence of radiation on transistors, this project integrates transistors with different layouts into a single chip to conduct radiation exposure experiments to understand the influence of radiation on the electrical properties of transistors, and use simulation software to construct transistor models for simulation radiation effects.

In addition, this project designs the comparators required for analog-to-digital converters, and uses simulation software to verify its anti-radiation performance. In the future, this project will conduct radiation experiments on this comparator, and modify the circuit that sensitive to radiation, so that the circuit can resist the influence of radiation. **Keywords** : Radiation harden, analog-to-digital converter, mixed-signal circuit, electronic design automation.

## I. 前言

應用於低軌道衛星之晶片,由於暴露於太空輻射環 境之下,須具備容錯與減緩性能衰減之功能,以抵抗輻 射對於晶片功能之影響,輻射對於晶片之影響主要分為 單事件效應(Single Event Effect, SEE)與總劑量效應 (Total Dose Effect, TDE)。

單事件效應(SEE)是由於輻射粒子撞擊材料時,輻 射能量轉移至材料產生電子電動對,並被電路節點吸收 影響電路運作,根據其影響形式及規模,多數發生單事 件效應時由於規模較小,可藉由重啟、多數決等方法解 決,並未破壞電路元件產生不可逆的損壞,因此又稱為 軟錯誤(soft error),而較大規模的單事件效應,會導致 電路部分元件損毀,無法藉由任何方法回復功能,因此 又稱為硬錯誤(hard error)。[1]

總劑量效應(TDE)則能細分為(一)位移損傷 (Displacement Damage, DD);和(二)總電離劑量(Total Ionized Dose, TID),位移損傷起因為輻射撞擊材料造成 材料晶格結構改變,導致電晶體電性改變,而總電離劑 量是當電晶體經過輻射照射後,輻射游離介電質導致電 洞殘留於在介電質中,當閘極氧化層捕獲電荷達到一定 值時,將令開啟電晶體的臨界電壓改變,導致電晶體無 法順利開啟與關閉,而當淺溝槽絕緣捕獲電荷時,捕獲 的電荷將導致漏電流產生[3]。由於總劑量效應,電晶體 經過輻射照射後會改變電晶體特性,減少電晶體使用壽 命。

本計畫使用鈷 60 作為輻射源,測試輻射對於不同 布局方式之電晶體性能影響,並利用量測儀器 B1500A 量測輻射照射前後電晶體電性特性,以此了解輻射對電 性之影響。

本計畫使用 in-house 的最佳化 tool,使用曲線擬合 功能建立 SPICE 的電性模型,並以此建立最佳化 Technology Computer Aided Design (TCAD)電晶體電器 特性。使用正規化方均根差(Normalized mean square error, NMSE)作為最佳化之指標,使 TCAD 電晶體電 性能夠符合 SPICE 模型的電性,並利用模擬軟體模擬 不同偏壓與輻射劑量下電晶體電性之變化,以此了解模 擬之結果。

比較器設計方面,設計無輻射防護之比較器與兩種 不同輻射防護設計之比較器,使用 virtuoso 軟體進行模 擬與驗證其功能,並在未來進行輻射實驗測試其抗輻射 性能。

## II. 主要內容

本計畫對 T18 製程晶片進行測試,並藉由給予電 晶體不同偏壓了解偏壓對於輻射效應之影響,並以此確 認未來輻射照射實驗設置,詳細實驗流程如圖1。



圖1 電晶體輻射實驗流程

本計畫先將一個基本 TCAD 電晶體模型建立,並 將其部分物理量進行參數化,並利用調整參數的方式令 模型參數達到最佳化。最佳化的過程中,調整電晶體參 數,完成參數設定並執行 TCAD 元件模擬。模擬後,使 用 NMSE 公式來計算 TCAD 及 SPICE 模型的電性誤 差,調整參數直到電性誤差小於特定的容忍值,詳細實 驗流程如圖 2。



### 圖 2 電晶體模型建立流程

將電路架構中傳統電晶體改為封閉式佈局電晶體 (Enclosed layout transistors, ELT),是目前最常使用抵抗 總電離劑量(Total Ionized Dose, TID)效應的方法,其原 理是 TID 效應主要由於介電質中累積電荷,使 STI 與 通道接面處因累積之電荷反轉,導致漏電流增加,利用 封閉幾何結構避免 STI 與通道接觸將會有效抑制因 TID 產生之漏電流[4],如圖 3 所示。[5]



圖 3 不同佈局之電晶體(a)傳統電晶體,(b)封閉式佈局 電晶體平面圖(c)封閉式佈局電晶體 3D 圖

本計畫藉由模擬軟體預測電晶體在不同布局方式 下,對於輻射效應的抵抗能力,並以此為基礎建立抗輻 射電晶體模型,目前優先測試封閉式佈局電晶體,做為 未來相關軟體發展之基礎。

使用三模組冗餘(Triple Module Redundancy, TMR), 是抵抗單事件翻轉(Single Event Upset, SEU)常使用的方 法,其原理是由於不同電路間鮮少同時發生錯誤,因此 將相同電路複製三份並使用投票機選出多數電路產生 之輸出,以達到避免受輻射影響之電路錯誤影響輸出之 結果,另外電阻解偶(Resistive Decoupling)也是一種抵 抗單事件瞬態(Single Event Transient, SET)常用的方法, 其原理為在一路徑上增加電阻,另路徑兩端電壓發生擾 動時另一端受到的擾動減少,並以此緩解 SET 現象, 如圖 4 所示。









在比較器設計部分,設計一不具備任何抗輻射功能 之比較器、具有 TMR 功能之比較器與具有電阻解偶功 能之比較器,模擬其功能並下線量測實際晶片功能,未 來將針對比較器進行輻射相關試驗,比較不同抗輻射功 能之比較器對於輻射影響抵抗之能力,詳細流程如圖 5 所示。



圖 5 比較器晶片設計流程

# III. 結果與討論

## 3.1 電晶體照射實驗結果:

圖 6 為輻射實驗照射結果,總劑量為 118.4krad, 其照射期間偏壓為所有腳位接地、gate 端接 VDD 其餘 接地兩種,測試晶片在 Vd=1.8V 下, Vg 0V 至 1.8V 之 IdVg 電性圖。





圖 6 測試晶片 NMOS 照射前後電性圖(a)傳統電晶體 gate 端接 VDD 其餘接地照射結果 (b)ELT gate 端接 VDD 其餘接地照射結果 (c)傳統電晶體 全腳位接地照 射結果 (d)ELT 全腳位接地照射結果

由實驗結果能夠觀察到,Vg 連接至 VDD,其餘腳 位接地之偏壓情形能夠觀察到明顯輻射導致之漏電流 增加,以此總結偏壓會大幅影響輻射漏電流量,未來進 行相關輻射實驗將以此偏壓情形做為偏壓設置標準。

#### 3.2 電子設計自動化結果:

本計畫模擬之電晶體 Gate Length 為 180nm, Gate Width 為 5um, VDD 為 1.8V, 將 NMSE(A, B) =  $\sum_{i=1}^{n} |a_i - b_i|^2$ 做最佳化指標,其中 $a_i$ 是 TCAD model 電性,  $b_i$ 是 T18 SPICE model 電性, NMSE 的誤差約在 1%, 圖 7 呈現最佳化後的結果。



### 圖 7 電晶體模型建立最佳化

輻射照射模擬部分如圖 8 所示,能夠觀察到 ELT 相較於傳統電晶體有接近免疫的漏電流抵抗能力,與文 獻描述相符[4]。



圖 8 不同布局電晶體照射模擬比較(a) ELT 照射模擬結 果 (b) 傳統電晶體照射模擬結果

### 3.3 比較器設計與模擬結果:

本計畫採用之比較器架構為 pre-amplifier 結合 dynamic comparator 架構,並利用三模組冗餘(Triple Module Redundancy,TMR)技巧與電阻解偶(Resistive Decoupling)技巧達到抗輻射功能,圖9為本計畫設計之 比較器。





圖 9 比較器架構(a)傳統比較器 (b)三模組冗餘功能之 比較器 (c)電阻解偶功能之比較器

三模組冗餘功能之比較抗輻射性能模擬結果如圖 10所示,當其中一個模組發生錯誤時,三模組冗餘功能 之比較器(黃線與白線)可以有效的抵擋錯誤影響輸出, 錯誤容忍度提高,提高比較器抗輻射性能。



圖 10 三模組冗餘功能抗輻射性能模擬

電阻解偶功能之比較器模擬如圖 11 所示,當錯誤 電荷注入時,一般的比較器功能受干擾出錯,如圖中橘 線、綠線模擬結果,而提出的電阻解偶功能之比較器可 以有效的抵擋注入電荷產生錯誤,錯誤容忍度提高,提 高比較器抗輻射性能,如圖 11。



圖 11 電阻解偶功能抗輻射性能模擬 藍線與紫線:電阻解偶功能之比較器(正常) 橘線與綠線:傳統比較器(錯誤發生) 黃線:模擬輻射影響之注入電流紅線:取樣時脈

## IV. 結論

經過本次實驗歸納出以下幾點作為本次實驗的結 論:

- 電晶體實際量測部分,實驗結果表明偏壓情況極大 影響漏電流的產生,在gate端接上VDD,其餘腳位 接地的情況下,輻射會導致電晶體產生較多之漏電 流,全腳位接地的情況則是無法有效觀察到漏電流 的產生,未來進行相關輻射實驗將採用gate端接上 VDD,其餘腳位接地的偏壓。
- 2. 輻射模擬軟體部分,模擬 ELT 與傳統電晶體接受輻射照射後電性之變化,觀察到 ELT 確實相較於傳統 電晶體不易產生漏電流,未來將設計 ELT 並進行輻射實驗,檢驗並改進模擬結果準確性。
- 比較器設計部分,從模擬中能得知,在傳統比較器 架構中加入三模組冗餘功能與電阻解偶功能確實能 夠增加比較器電路抵抗輻射影響之能力,未來將在 進行相關輻射測試定量其抗輻射能力。

## 参考文獻

- (1) http://eip.iner.gov.tw/msn.aspx?datatype=YW5hbH lzaXM%3D&id=MTk3#\_ftn2
- [2] Marc Poizat, "TID Total Ionizing Dose Radiation", Radiation Environment and its Effects in EEE Components and Hardness Assurance for Space Applications, CERN-ESA-SSC workshop, 2017.
- C.-M. Zhang, F. Jazaeri, G. Borghello, S. Mattiazzo,
  A. Baschirotto, F. Faccio, and C. Enz,
  "Characterization and Modeling of Gigarad-TID-Induced Drain Leakage Current of 28-nm Bulk MOSFETs," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 66, no. 1,

pp. 38-47, Jan. 2019.

- [4] R. N. Nowlin, S. R. McEndree, A. L. Wilson, and D. R. Alexander, "A New Total-Dose-Induced Parasitic Effect in Enclosed-Geometry Transistors," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 52, no. 6, pp. 2495– 2501, Dec. 2005.
- [5] N. Nowlin, J. Bailey, B. Turfler, and D. Alexander, "A Total-Dose Hardening-By-Design Approach For High-Speed Mixed-Signal Cmos Integrated Circuits," International Journal of High Speed Electronics and Systems., vol. 14, no. 2, pp.367-378, 2004
- [6] He Baoping, Wang Zujun, Sheng Jiangkun, and Huang Shaoyan, "Total Ionizing Dose Radiation Effects On NMOS Parasitic Transistors In Advanced Bulk CMOS Technology Devices," Journal of Semiconductors, vol. 37, no. 12, pp. 124003-1 -124003-6, Dec. 2016
- [7] R. C. Lacoe, "CMOS Scaling Design Principles And Hardening By Design Methodology," NSREC Short Course, 2003.
- [8] H. J. Barnaby,, "Total-Ionizing-Dose Effects in Modern CMOS Technologies", IEEE Trans. Nucl. Sci, VOL. 53, NO. 6, DEC. 2006
- [9] He Baoping, Wang Zujun ,Sheng Jiangkun and Huang Shaoyan, "Total Ionizing Dose Radiation Effects on NMOS Parasitic Transistors In Advanced Bulk CMOS Technology Devices", Journal of Semiconductors, Vol. 37, No.12, Dec.2016
- [10] D. Johns and K. Martin, Analog Integrated Circuit Design, New York, USA: Wiley, 1997.
- [11] Alan C. Tribble, The Space Environment Implication for Spacecraft Design, Princeton University Express, 2003.

# 地下屏蔽環境無人飛船與地面機器人通訊與遠端遙控技術研究(II) Communication-aware Unmanned Blimp and Ground Vehicles for Inspection, Search and Rescue Missions in Subterranean Environments

計畫編號:110-NU-E-009-001-NU 計畫主持人:王學誠 e-mail:hchengwang@nycu.edu.tw 計畫參與人員:陳懿、呂旺全 執行單位:國立陽明交通大學電控所

### 摘要

本研究探討輻射影響電子電路損壞或表現下降程度 評估低成本電子元件於高輻射區輻射可行性,本研究已 實作系統開發,搭載了可在地下環境探索的感測器,整 合至前期的無人載具,測試於輻射環境。為因應在短時 間內進行探索,開發操作員與機器人間協同合作,與操 作人員溝通開發完整通訊技術,本計畫採用多模態之通 訊設備達系統強健性與多重保障,包括:高頻寬傳輸即 時影象的 WiFi 及低頻寬但高穩定的 XBee,可以網狀架 構延長通訊距離,以接收訊號強度與通訊與否作為通訊 節點部設的指標,在屏蔽環境下,讓無人載具機器人依 然能夠通訊、遠端遙控並回傳輻射量。

### Abstract

This study investigates the extent to which radiation affects electronic circuits by causing damage or decreased performance. It evaluates the feasibility of low-cost electronic components in high-radiation areas. The study has developed and implemented a system that integrates sensors capable of exploring underground environments into an unmanned vehicle developed in the previous phase of the project. This system has been tested in a radiation environment. To facilitate exploration within a short time frame, the project has developed communication technology that enables collaborative cooperation between operators and robots. This includes developing a complete communication technology that adopts multi-modal communication devices to ensure system robustness and multiple safeguards. These devices include WiFi, which has high bandwidth and can transmit real-time images, and XBee, which has low bandwidth but high stability and can extend communication distance in mesh architecture. The signal strength and communication status are used as indicators for the communication node, allowing the unmanned vehicle robot to communicate, perform remote control, and return radiation levels in a shielded environment.

**Keywords** : teleoperation, robotics, simulation, radiative environment.

## I. 前言

In radiation patrol, inspection, search and rescue missions, robots play a crucial role in exploring potentially hazardous areas and providing effective information to remote operators. The need for operator monitoring of the robot's mission and timely intervention to provide control commands is also essential. Search and rescue robots are commonly used to assist in understanding situational awareness and exploring dangerous areas with potential disaster occurrences. In a literature review, [1], groundoperated search and rescue robots, unmanned ground vehicles and quadcopter drones were used in Japan in 2011 to perform collaborative mapping of damaged buildings after the Tohoku earthquake [2], while quadruped robot systems were used to perform complex tasks in particularly uneven terrain. Low-altitude unmanned aerial vehicles provide wide-angle reconnaissance [3]. Unmanned aerial vehicles are faster, more maneuverable on rough terrain, and smaller than unmanned ground vehicles [4], allowing for better planning of potential ground routes [5], assisting unmanned ground vehicles in navigation in unknown environments [6,7], or providing power to unmanned ground vehicle platforms through cable connections [9], extending working time. However, unmanned aerial vehicles have limited flying time [8] and are prone to damage during collisions. NASA JPL has developed a hybrid unmanned aerial and ground vehicle [10], which can perform both ground and aerial operations, thereby increasing operating time and travel distance. In 2020, the United States Defense Advanced Research Projects Agency (DARPA) held the DARPA Subterranean Challenge Urban Circuit at a nuclear power plant in Oregon, USA, where teams of participants used multiple ground and aerial vehicles to perform their missions. Different types of robot payloads were used in conjunction with various robot sensing systems, including cameras, optical radar, thermal imaging, millimeter-wave radar, and ultra-wideband ranging fusion to perform missions in smoke, low-light, or featureless geometric environments [11-15], and to estimate the robot's trajectory relative to the map [16]. However, due to the challenges of the environment and the complexity of the task, fully autonomous mode is often unreliable and requires a human supervisor to perform highlevel task scheduling assignments, target detection confirmation, or low-level remote operation tasks to overcome the limitations and difficulties of the full autonomous mode [17]. In the DARPA SubT Challenge, a team successfully executed a remote operation strategy for moving robot exploration, mapping, and search strategies, and achieved partial target area detection scores [17].

However, the full remote operation strategy has several critical limitations. Because the competition rules only allow one supervisor, it is impossible to operate multiple robots and search for targets simultaneously using images, and switching between different robots requires the supervisor's time, which affects overall search capability and range.

## II. 主要內容

This study proposes a remotely controlled robotic arm system using virtual reality (VR) technology. Users can immerse themselves in the experience of controlling a remote, real robotic arm. The system streams data from sensors in the real environment and uses virtual objects to reconstruct the posture of the real robotic arm and the position of the target object in the environment in VR. This system offers an immersive control experience and rich information, allowing users to remotely control the robotic arm with dexterity using VR devices. The study also tests the network latency conditions and compares the proposed method with image streaming and traditional keyboard control methods.

Radiation can affect electronic circuits by causing damage or decreased performance. The aim of this study is to assess the feasibility of low-cost electronic components in high-radiation areas, particularly in the context of wireless communication. In order to allow remote personnel to monitor internal conditions and perform remote control, various communication devices can be relied upon. This work uses the high-bandwidth communication module TVL (provided by K-Best Technology), which is responsible for transmitting emergency messages. While WiFi can transmit real-time images, its stability is lower. These two communication strategies have different positioning, and TVL is used for the development of remote sensing technology in this project. To ensure more stable communication quality, the signal round-trip time (RTT) is expected to be used as the basis. The signal round-trip time is when party A sends an image to party B, and party B records and returns the time it takes to send the image, which party A receives as the signal round-trip time indicator. This indicator can detect the speed of signal transmission. When the signal round-trip time indicator increases, it means that the signal transmission speed is slowing down, and vice versa.

In real unmanned vehicle navigation missions, unmanned vehicles may be exposed to radiation environments during operations. In order to evaluate whether the relevant parts can operate normally in a radiation environment, the relevant hardware devices used in unmanned vehicle navigation missions need to undergo radiation dose testing. This is very important for robots working in radiation environments and is used to confirm whether the system we have developed can still operate normally in a radiation environment. The hardware devices undergoing cobalt-60 irradiation testing in this experiment are the communication modules developed in this research, which we have named Tower. They include the computing unit NX, the 360-degree camera DreamVU, the TVL communication module, motors, and power supply system.In this study, we used TVL to deploy the network. TVL is a wireless communication module manufactured by Full Wave Technology with data acquisition capabilities. It supports point-to-point, point-to-multipoint, star, and mesh architectures in the network topology. We deployed two Sensor Towers in the experimental field, and the TVL in each Tower was used as a communication node to establish a point-to-point network architecture. We had the TVLs in both Towers detect the RTT every fifteen minutes with the TVL in another Tower, analyzing the reliability of TVL communication in a radiation field. In this experiment, the underwater chamber of the Lungtan Nuclear Energy Research Institute was used for irradiation. The irradiation method involved raising the Co-60 source from the water into the air to expose the test object to the radiation environment. The dose rate at the irradiation location was set at 100 Gy/h, and the accumulated dose was directly proportional to the irradiation time.

The communication beacon module was tested using a hardware loop during the experiment, while continuously accumulating radiation dose and operating the equipment of the unmanned vehicle to simulate real-world mission scenarios.

## III. 結果與討論

During this experiment, the RTT value was measured every 15 minutes, and the motor operation was confirmed through the dreamVU camera. The camera has a resolution of 891x1819, a frequency of 2 Hz, and a bandwidth of 3.6 Mbps. A total of 200 data points were collected in 100 seconds and divided into average (AVG), maximum (MAX), and minimum (MIN) values for comparison. Before the radiation exposure, the average RTT value was 264 milliseconds, with a maximum value of 395 milliseconds and a minimum value of 208 milliseconds.

During the experiment, after 120 minutes of radiation exposure, the images could still be transmitted normally, indicating that the DreamVU camera and TVL communication system were functioning smoothly. However, as the radiation exposure time increased, the RTT time also increased, indicating that the TVL communication ability continued to decline. In addition, the motor stopped operating after 60 minutes and could not be restarted even after leaving the radiation area, indicating that the motor parts could not function properly under radiation exposure. The experiment results, as shown in Figure 6, show a periodic increase and decrease every 15 minutes, reaching the highest value at 105 minutes with an average RTT of 413 milliseconds, an increase of 56% compared to the 264 milliseconds before radiation exposure, indicating that the radiation effects were significant.

## IV. 結論

This study developed an unmanned vehicle system with autonomous mobility and evaluated the communication beacon module for radiation detection. All electronic components can operate continuously for up to 2 hours in a radiation field, meeting the mission requirements. Despite 120 minutes of radiation exposure, the images could still be transmitted normally, indicating the successful functioning of the DreamVU camera and TVL communication system. However, as the duration of radiation exposure increased, so did the RTT time, signifying a gradual decline in the TVL communication ability. Therefore, in this study, a laboratorydeveloped power supply system was used to further test the high-bandwidth communication module and remote control mechanism, allowing the robot to assist in decommissioning work in more dangerous and uncertain areas. This enables operators to remotely control the robot in radiation-exposed areas from a safe location, reducing the risk and pressure on workers and increasing their safety.

## 参考文獻

- J. Delmerico, S. Mintchev, A. Giusti, B. Gromov, K. Melo, T. Horvat, C. Cadena, M. Hutter, A. Ijspeert, D. Floreano *et al.*, "The current state and future outlook of rescue robotics," *Journal of Field Robotics*, 2019.
- [2] N. Michael, S. Shen, K. Mohta, Y. Mulgaonkar, V. Kumar, K. Nagatani, Y. Okada, S. Kiribayashi, K. Otake, K. Yoshida, K. Ohno, E. Takeuchi, and S. Tadokoro, "Collaborative mapping of an earthquake damaged building via ground and aerial robots," *Journal of Field Robotics*, vol. 29, no. 5, pp. 832–841, 2012. [Online]. Available: https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/rob. 21436
- [3] A. Gawel, Y. Lin, T. Koutros, R. Siegwart, and C. Cadena, "Aerial ground collaborative sensing: Third person view for teleoperation," in *Safety, Security and Rescue Robotics (SSRR), IEEE International Symposium on*, 2018.
- [4] T. Stentz, A. Kelly, H. Herman, P. Rander, O. Amidi, and R. Mandelbaum, "Integrated air/ground vehicle system for semiautonomous off road navigation," in *Proceedings of the AUVSI Unmanned Systems Conference*, 2002.
- [5] F. Guérin, F. Guinand, J.F. Brethé, H. Pelvillain *et al.*, "Uav-ugv cooperation for objects transportation in an industrial area," in 2015 IEEE International Conference on Industrial Technology (ICIT). IEEE, 2015, pp. 547–552.
- [6] A. Kelly, A. Stentz, O. Amidi, M. Bode, D. Bradley, A. Diaz Calderon, M. Happold, H. Herman, R. Mandelbaum, T. Pilarski *et al.*, "Toward reliable off road autonomous vehicles operating in challenging environments," *The International Journal of Robotics Research*, vol. 25, no. 56, pp. 449–483, 2006.
- [7] T. Dang, M. Tranzatto, S. Khattak, F. Mascarich, K. Alexis, and M. Hutter, "Graph based subterranean exploration path planning using aerial and legged robots," *Journal of Field Robotics*, vol. 37, no. 8, pp. 1363–1388, 2020.
- [8] I. Sa, M. Kamel, M. Burri, M. Bloesch, R. Khanna, M. Popović, J. Nieto, and R. Siegwart, "Build your own visual inertial drone: A cost effective and opensource autonomous drone," *IEEE Robotics & Automation Magazine*, vol. 25, no. 1, pp. 89–103, 2017.
- [9] T. S. Richardson, C. G. Jones, A. Likhoded, E. Sparks, A. Jordan, I. Cowling, and S. Willcox, "Automated

vision based recovery of a rotary wing unmanned aerial vehicle onto a moving platform," *Journal of Field Robotics*, vol. 30, no. 5, pp. 667–684, 2013.

- D. D. Fan, R. Thakker, T. Bartlett, M. B. Miled, L. Kim, E. Theodorou, and A. Aghamohammadi, "Autonomous hybrid ground/aerial mobility in unknown environments," in 2019 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems (IROS), 2019, pp. 3070–3077.
- [11] S. S. Shivakumar, N. Rodrigues, A. Zhou, I. D. Miller, V. Kumar, and C. J. Taylor, "Pst900: Rgb thermal calibration, dataset and segmentation network," in 2020 IEEE International Conference on Robotics and Automation (ICRA), 2020, pp. 9441–9447.
- M. Broome, M. Gadd, D. De Martini, and P. Newman, "On the road: Route proposal from radar self-supervised by fuzzy lidar traversability," *AI*, vol. 1, no. 4, pp. 558–585, 2020.
- [13] A. Kramer, K. Harlow, C. Williams, and C. Heckman, "Coloradar: The direct 3d millimeter wave radar dataset," *arXiv preprint arXiv:2103.04510*, 2021.
- [14] V. Mai, M. Kamel, M. Krebs, A. Schaffner, D. Meier, L. Paull, and R. Siegwart, "Local positioning system using uwb range measurements for an unmanned blimp," *IEEE Robotics and Automation Letters*, vol. 3, no. 4, pp. 2971–2978, 2018.
- [15] W. Zhen and S. Scherer, "Estimating the localizability in tunnel like environments using lidar and uwb," in 2019 International Conference on Robotics and Automation (ICRA), 2019, pp. 4903–4908.
- Y. Song, M. Guan, W. P. Tay, C. L. Law, and C. Wen, "Uwb/lidar fusion for cooperative range only slam," in 2019 International Conference on Robotics and Automation (ICRA), May 2019, pp. 6568–6574.
- [17] J. T. Isaacs, K. Knoedler et al., "Teleoperation for urban search and rescue applications," Field Robotics, 2: 239, 2022.
- [18] L.-S. Yim, Quang TN Vo, C.-I. Huang, C.-R. Wang, Wren McQueary H.-C. Wang\*, Haikun Huang, and L.-F. Yu "WFH-VR: Teleoperating a Robot Arm to set a Dining Table across the Globe via Virtual Reality" Accepted by IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems (IROS 2022).



Figure 1: The system is configured with consumer-grade virtual reality equipment (Oculus Quest 2) and a low-cost mobile robotic arm (LoCoBot). The VR interface designed in this study can overcome network latency and limited bandwidth in cross-border environments, enabling the completion of tasks effectively. Published in [18].



Figure 2 A virtual environment of the experiment site was built using the Matterport device.



Figure 3 Communication modules were meshed and placed (red dots) in the environment.



Figure 4 The communication module developed in this study consists of a TVL communication module and a power supply system for testing in a radiation environment. Based on the experience gained from the previous experiment, commercial power banks were not used in this experiment. Instead, self-made batteries developed in the laboratory were utilized.

# 微電漿輔助發光特性可調控量子點合成技術(1/3) Microplasma-Enabled Synthesis of Emission-Tunable Quantum Dots (1/3)

計畫編號:MOST-111-NU-E-011-001-NU 計畫主持人:江偉宏 e-mail:whchiang@mail.ntust.edu.tw 執行單位:國立台灣科技大學化工系

# 摘要

近年來矽量子點(silicon quantum dot; SiQD)因具備優 異的物理及化學特性,已被報導可應用於光電元件、感測 材料、能源、催化與生醫相關技術等領域。然而目前矽量 子點的主要製備方式製程所需時間長、前驅物成本高、操 作温度高等因素不利於工業化大量生產,加上反應機制 不清楚,不易控制量子點的發光波長及控制產物結構及 材料特性,尚無法實現產業應用。本計畫為三年期計畫第 一年計畫,主要目的為建立利用高能量密度常壓微電漿 合成發光波長可調控矽量子點,並研究合成反應機制及 反應動力學。本計畫內容包括(1).利用親水型矽烷分子為 前驅物,以高能量密度大氣常壓微電漿進行液態化學反 應合成矽量子點,並研究製程参數如何影響產物發光波 長,材料奈米晶體結構及光學性質; (2).利用臨場光譜 (OES, Raman, UV-Vis)研究電漿反應過程中矽量子點合成 的化學機制及反應動力學,研究反應参數效應以提升產 物產率。本研究計畫所開發的成果將提供學術界研究矽 量子點基礎研究的平台,以及產業界矽量子點未來產業 應用的重要基石。

**關鍵詞:** 矽量子點; 大氣常壓電漿; 合成; 光致發光光譜

### Abstract

In recent years, silicon quantum dots (SiQD) have attracted much attention due to their superior physical and chemical characteristics, making them useful for the applications of optoelectronics devices, sensing, energy and catalysis. In addition, they are non-toxic and biocompatible and potentially applicable in biosensing and bioimaging. However, the current conventional methods to synthesis SiQD usually involve high temperature, toxic chemicals, and expensive and time-consuming procedures, hampering their commercialization. Moreover, it is still challenging to synthesize emission-tunable SiQD due to the unclear synthesis mechanism. Consequently, the development the scalable synthesis of SiQD with controlled emission property is critical for both fundamental study and applications. The proposed project is the first year project for a three-year project. The goal of our study is to develop a scalable method to synthesize SiOD with controlled emission wavelength using atmospheric-pressure microplasmas. To achieve this goal, hydrophilic silicon precursors will be used to prepare SiQD by microplasma. Moreover the growth mechanism and kinetics of SiQD by microplasmas will be studied by in situ spectroscopies including OES, Raman, and UV-vis. We will study the effect of process parameters on the synthesis yield of SiQD, emission wavelength, the nanocrystalline structures and optical properties. The results obtained from this project should provide an important platform for fundamental

research and industrial applications.

**Keywords :** Silicon quantum dot ; Atmospheric pressure ; Synthesis ; Photoluminescence.

## I. 前言

利用電漿技術應用於具生物醫學感測能力之半導體 材料製程開發為近年電漿技術研發的新研究方向,因應 Covid-19 後疫情時代來臨,學術研究及產業應用正積極 推動生物醫學快篩及感測器相關研究,而高靈敏性及高 選擇性生物感測技術及相關化學材料開發正是其中重要 的一環。開發生物醫學快篩及感測器有助於癌症及重大 疾病預防偵測, 毒品快速偵測降低犯罪率, 環境毒化物監 控避免人體傷害等對社會永續有重大影響。開發電漿技 術應用於具生物醫學感測能力之半導體材料製程科技已 成為近年世界各國學術界及產業界重大目標之一,其中 量子材料研發與應用為加速具感測特性之半導體材料製 程實用化的關鍵一步。量子點材料可以應用於國防軍事, 顯示器、LED、太陽能電池、催化、藥物輸送、及生醫顯 影(bioimaging)及感測應用等。目前已有研究文獻指出半 導體量子點具有優異的材料特性,可應用於催化、能源、 電子元件、及生物醫學應用等。量子點因具有優異的表面 電漿子光物理特性,可應用於表面增強拉曼光譜感測技 術(surface-enhanced Raman scattering; SERS),有助於生 物感測器及相關生醫快篩應用開發。量子點具良好的化 學與物理穩定性,獨特的光學、物理與化學特性,加上與 生物系統可相容無毒的特性,可應用在光電元件、感測與 生醫應用。SERS 具操作簡單、快速、高靈敏度等特點, 具有高應用價值,可應用於環境汙染檢測(如重金屬,農 藥,毒化物殘留),生物及化學分子快篩,應用範圍涵蓋 化學、材料、物理、高分子、生物、醫藥、地質等领域。 產業經濟面上,各國企業如安捷倫(Agilent Technologies)、 日立(Hitachi Technologies)及 Thermo Fisher Scientific 正 積極開發 SERS 於毒品檢測及生醫快篩應用。其中生醫 快篩相關之生物感測器市場在 2025 年時預期可達到 343 億美元(KBV Market Research Report, 2019)。產業經濟上, 根據市場調查報告(工研院 IEK 報告, 2016/12 月)預估, 2026年全球量子元件應用市場可達 100 億美元以上,因 此全球企業紛紛投入量子材料技術開發,例如韓國三星 正積極開發量子點顯示器。社會福祉面上,快速且準確的 生物感測器及快篩技術普及化,可以有效地監控傳染病 的疫情,避免大規模地快速擴散,促進個人健康狀況及降 低社會福利的支出,增進社會安定及人類福祉。

大氣常壓微電漿與傳統電漿相比更能衍生出高密度 的電子與能量,進行液態化學製程時,可使得更多的高能 自由基與電荷於電漿-液面界面進行電化學氧化還原反應

與非電化學反應,可加速化學反應,有助於量產製程開發。 大氣常壓微電漿為非熱平衡反應,具高反應動力學可應 用於合成超小奈米(ultrasmall nano structure)/量子材料合 成。本研究將以親水性矽烷分子為前驅物(提升矽前驅本 計畫目的利用高能量密度常壓微電漿合成發光波長可調 控矽量子點(silicon quantum dot; SiQD),計畫示意圖如下 圖1所示。本計書研究電漿氣體化學(提升電漿游離電漿 氣體產生高能量電子與氣體離子效率)以及前驅物液體化 學對矽量子點合成產率的影響。本研究利用有機矽烷分 子: 3- 氨基丙基三甲氧基矽烷 [3-(2-Aminoethyl)aminopropyl]trimethoxysilane (AEAPTMS)、無 機矽酸鹽類: 矽酸鈉 sodium metasilicate (Na2SiO3)與電解 質(抗敗血酸 (Ascorbic acid; A. A.)作為合成前驅物,藉 由調控不同前驅物的種類與電解質的濃度,經由微電漿 系統反應後,生成可調控發光波長的矽量子點。此外,本 計畫更進一步探討大氣常壓微電漿系統下,如何將前驅 物經化學途徑轉換成矽量子點奈米結構,並利用調控電 浆的物理參數與反應系統的化學參數達到控制矽量子點 的表面結構、尺寸大小及發光特性等。



圖 1 計畫研究構想示意圖。本計畫以微電漿反應器,在 常溫常壓且不需要強酸鹼、還原劑及有毒的化學溶劑的 條件下,以獨特的電漿化學合成為具發光波長可調控的 SiQD 材料。

### II. 主要內容

本研究將根據之前的研究經驗設計大氣常壓微電漿 反應裝置如圖 2,主要部件包括直流電 DC 高壓電源,氣 體流率控制器(MFC),化學耐高溫耐酸鹼玻璃反應槽,電 子電路控制裝置及數據紀錄/控制用電腦,經組裝後進行 反應測試。以下簡單扼要介紹反應流程:首先,分別以2 毫升 0.74 M 的 AEAPTMS 與 1.75 公克矽酸鈉 Sodium metasilicate (Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>) 作為矽的前驅物來源與 0.1M 抗敗 血酸(A.A.)作為電解質,並加入超純水配置總體積為 10 毫升前驅物溶液,接著進行大氣常壓微電漿反應(請参考 **圖**2)。電漿反應系統的陽極為白金片(platinum),經由160 kΩ 的電阻連接到電流供應器; 陰極則是對氫氣施以高電 壓產生的自由電子和帶電離子及中性分子所組成的氣體, 通過內徑為 180 微米的不銹鋼毛細管導入到溶液界面。 氫氣氣體流率約為 25 sccm (standard cubic centimeter per minute),電漿電流約為 5~9 毫安培,兩電極間距離為 1.5 公分,經過 30~90 分鐘的電漿反應。在完成反應器架設 且完成初步反應之後。本計畫將有系統的研究電漿合成

矽量子點過程中,影響產率及產物結構的基礎原因。我們 研究電漿參數對產物產率及材料結構及特性的影響。物 理參數為時間、電流。本研究將進一步探討不同實驗參數 設置對產物產率,結構,及發光性質的影響。本計畫將利 用 PL 光譜研究合成矽量子點之發光特性。透過調整機台 參數激發光 300~600 nm,接收的放射光為 300~700 nm, 積分時間 0.1 秒、累積次數 1 次,得到的圖譜來探討其發 光位置的改變。



圖 2 微電漿反應器示意圖(左圖)。微電漿反應器進行反 應示意圖(中及右圖)。

### III. 結果與討論

矽量子點通常在紫外光範圍存在吸收带,因此,我們 可以根據此微小的特徵峰加以定性分析所合成出來的產 物是否為矽量子點。同時可以利用此吸收峰進行產率估 算,將以 UV 吸收光譜量測並根據標準品檢量線定量電 浆反應產物矽量子點之濃度及產率。光致發光光譜描述 物質吸收電磁波躍遷到較高能階的激發態後返回基態且 放出螢光的過程。主要是半導體材料受到光子激發後產 生電子電洞對,因處於激發態的電子電洞對非常不穩定, 所以會釋放能量(電磁波)回到基態。其發光過程包括激發、 熱平衡、復合三個過程。首先,入射光子入射至半導體材 料,因為給予價帶上的電子足夠能量,使電子可以跨越能 隙躍遷至導帶形成電子電洞對,再經過非輻射熱平衡過 程後復合,其釋放能量會以光子的形式放射。經由這些步 驟,我們可以透過光致發光光譜了解材料能隙的結構及 大小。從光致發光光譜不僅可以了解產物的光致發光性 質,並依據不同的激發能量加以判斷光致發光穩定性及 波長和光致發光強度的關係。

本研究結果顯示可得發光波長為 475 奈米的矽量子 點。亦可從 UV 可見光吸收圖譜中觀察到明顯的矽量子 點  $n \rightarrow \pi^*$ 吸收峰,此外,利用 PL mapping 可觀察電漿前 後任兩者前驅物發光位置的比較(圖 3、4)。



圖 3 有機矽烷(AEAPTMS)、無機矽烷(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)與抗敗血 酸製程所得(a)發光矽量子點之 PL 光譜(b)前驅物進行電 漿反應後之 UV 可見光吸收圖譜 (內圖為矽量子點在電 漿不同反應時間之 UV 吸收圖譜)。



圖 4 有機矽烷(AEAPTMS)、無機矽烷(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)與抗敗血 酸製程所得 (a)-(c)未進行電漿反應之 PL mapping 圖 (d)-(f)不同前驅物之矽量子點 PL mapping 圖。

拉曼光譜儀主是用來研究晶格與分子的振動模式, 原理是利用特定波長的雷射光激發樣品,當雷射的激發 光與樣品中的分子產生作用力時,光子會與分子產生非 彈性碰撞,進而導致能量的交換,光子會將一部份能量傳 遞給分子,因而改變光的頻率,此現象稱之為拉曼位移 (Raman shift)。而在典型的塊材矽晶材料中,矽的原子振

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

動會在拉曼光譜的 520 cm<sup>-1</sup> 的位置產生 Si-Si 的特殊鍵 結,但當材料受到量子侷限效應時,隨著粒子尺寸縮小, 位移的大小也會隨之縮減,因此我們可以利用拉曼光譜, 觀察矽量子點的量子侷限效應,並估算其粒子大小。矽的 原子振動會在拉曼光譜的 520 cm<sup>-1</sup> 的位置產生 Si-Si 的 特殊鍵結,但當材料受到量子侷限效應時,隨著粒子尺寸 縮小,位移的大小也會隨之縮減,因此我們可以利用拉曼 光譜,觀察矽量子點的量子侷限效應(圖 5)。



圖 5 矽量子點之拉曼光譜圖譜。

TEM 電子顯微鏡提供材料內部的形態及原子的晶格 排列,利用高能電子束加速穿透厚度非常薄的樣品上,和 樣品中之原子碰撞產生不同角度之散射,此不同角度之 散射和樣品密度、厚度有關,散射後之電子以不同的路徑 通過透鏡光圈,形成明暗對比的影像,並藉由螢光板來呈 現此明暗對比之微結構影像。因使用 TEM 可以觀察樣品 之精細結構,常被用於材料、物理及生物學之分析方法。 電子顯微鏡通常用來分析產物其粒子大小、粒徑分布、形 貌、分散狀態及結晶度,因此,本研究利用掃描式以及穿 透式電子顯微鏡對矽量子點做進一步分析,圖 6 為以有 機矽烷(AEAPTMS)和無機矽酸鈉與抗敗血酸作為電解質 合成之矽量子點之電子顯微鏡影像(晶格面距 0.19 nm 對 應於 220 晶格面、晶格面距 0.22 nm 對應於 200 晶格 面 ),結果顯示本研究經由大氣常壓微電漿處理後成功將 有機矽烷與無機矽前驅物合成出矽量子點,並均勻分散 在溶液中。我們亦利用影像分析及電腦軟體代入高斯函 數,並建立趨勢線以計算出粒徑大小約為 8.714 ± 1.434 nm (圖 6)。



圖 6 有機矽烷(AEAPTMS)、無機矽酸鈉(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)與抗敗 血酸(A.A.)製程所得(a)矽量子點之表面形貌(b)矽量子點 之 TEM 影像分析和粒徑大小分析。

利用 X 射線光電子能譜儀檢測,可以分析矽量子點 的元素組成以及表面官能基的種類。利用 X 射線光電子 能譜儀 (X-ray photoelectron spectroscopy : XPS),以X射 線激發原子表層的電子或價電子進而產生光電子訊號, 藉由此訊號進而分析材料表面的元素組成與化學鍵結, 因此可以利用 XPS 檢測,分析矽量子點的元素組成以及 表面官能基的種類。在上述 PL 光譜儀分析中,已提到隨 著改變電解質抗敗血酸以及無機矽酸鈉的濃度可利用微 電漿系統合成發光波長增加的矽量子點,由文獻回顧可 以得知矽量子點表面含氧官能基的增加,會使量子點放 光產生紅移現象,為了更進一步對其分析,我們進行的 XPS 的檢測,由圖 7 可分析各個矽量子點在 Cls 的表面 化學鍵結,分別對應 Si-C (282.9 eV)、C-C/C=C (284.3 eV)、 C-N (285.2 eV) C-OH/C-O-C (286.3 eV) C=O (287.7 eV) 可以從各元素比例分析,氧的比例佔了44.71%,因此我 們可以了解到含氧官能基對其發光波長影響的重要性。 FTIR 與分子的振動有關。每個官能團都有自己離散的振 動能量,可用於通過所有官能團的組合來識別分子。這使 得 FTIR 成為樣品鑑定、多層膜表徵和顆粒分析的理想 選擇。電磁波頻譜由對應於不同能量(E)、頻率(v)和波長 (λ)範圍的不同區域組成。近紅外、中紅外和遠紅外的單 位是波數 (cm<sup>-1</sup>), 是從波長和頻率之間的反比關係推導 出來的。FTIR 利用紅外光如何改變與特定振動能量相對 應的分子中的偶極矩。由於每個官能團都由不同的原子 和鍵強度組成,因此振動對於官能團和官能團類別是獨 特的 (像是 OH 和 CH 伸展分別出現在 3200 cm<sup>-1</sup> 和 2900 cm<sup>-1</sup> 左右)。由於分子的所有官能團的振動能帶的集 合對於每個分子都是唯一的,因此這些峰可用於使用綜 合樣本數據庫的庫搜索進行識別。利用紅外光譜譜檢測, 可以用來分析矽量子點上紛紛子的振動,透過這些振動 可以對應其是屬於哪兩個元素間所造成的振動,在對應 數據庫進而分析。為了更加證明矽量子點的存在,也更加 證明具有含氧官能基團。由圖 8 可以分析出 O-H(3487 cm 1)、Si-O-Si(1093 cm<sup>-1</sup>)這兩個峰,因此由這兩個峰也更加 證明有成功合成出矽量子點並且具有大量的含氧官能基。



圖 7 有機矽烷(AEAPTMS)、無機矽酸鈉(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)與抗敗 血酸(A.A.)製程所得矽量子點之 X 射線光電子能譜 C1s、 N1s、O1s 和 Si2p 鍵結分析。



圖 8.有機矽烷(AEAPTMS)、無機矽酸鈉(Na<sub>2</sub>SiO<sub>3</sub>)與抗敗 血酸(A.A.)製程所得矽量子點之紅外光譜分子振動鍵結 分析。

### IV. 結論

為提升矽前驅物與水溶液中之溶解性或分散性, 3-(2-氨基乙基氨基)丙基三甲氧基矽烷(AEAPTMS) 作為矽 的前驅物來源(圖 2 所示),為進一步調控產物發光波長及 光學特性,利用極性可水溶抗壞血酸(ascorbic acid; ASA), 抗壞血酸鈉 (sodium ascorbate),兒茶酚 (catechol),檸檬 酸钠 (sodium citrate)為輔助電解液,研究對調控產物發光 波長及光學特性的影響,接著進行大氣常壓微電漿反應。 目前研究成果可完成矽量子點合成反應,矽量子點發光 波長可調控於 400~700 nm 區間。轉換率經計算後約為 90%,利用 2.6 克前驅物進行一小時反應約可得到 2.5 克 產物,成效良好已達成本年度計畫目標。

本年度計畫成果有以下重要性:1.研究產物發光波 長機制,提供未來研究矽量子點發光特性基礎學術研究 之重要資訊。2.計劃成果未來可延伸至與國內半導體產 業結合,開發前瞻半導體/量子材料合成製程技術,未來 可應用於奈米半導體材料合成。本計畫成果具高度學術 創新性,進行前瞻電漿技術合成半導體量子點材料學術 研究,可發表高品質高影響力學術論文,提升我國於電漿 及量子材料研究的國際能見度。本計畫具高產業價值性, 開發電漿技術及量子材料合成技術,可以加強我國產業 於電漿及量子材料的研發能量。本計畫具重大社會價值, 前瞻半導體量子點材料可以應用於癌症及重大疾病預防 偵測, 毒品快速偵測降低犯罪率,環境毒化物監控增進國 家社會安定及人類福祉永續發展。 使用太空環境下之半導體元件及相關電路輻射驗證平台培育前瞻原子科學人才 Using the radiation verification platform of semiconductor devices and related circuits for space environment to cultivate and educate the talents of atomic science

> 計畫編號:111-NU-E-002-003-NU 計畫主持人:李佳翰 e-mail:jiahan@ntu.edu.tw 計畫共同主持人:陳信樹、朱旭新 計畫參與人員:廖培凱、余世博、陳頌恩、馬裕齊、張佳瑜、 翁維得、許宇成、吳彥廷 執行單位:臺灣大學工程科學及海洋工程學系 共同執行單位:臺灣大學電子工程學研究所、中央大學物理學系

## 摘要

本研究計畫利用研究半導體元件及相關電路之輻射 驗證平台,透過對質子束等高能粒子與高能脈衝雷射之 使用,來達到培育前瞻原子科學人才之目的。在21世紀, 太空科技已經成為全球競爭的一個新場域,不論是傳統 太空強權還是新興太空國家,都卯足全力發展太空科技 與產業,因此更多的衛星和航天器將會進入太空中。而在 太空中,充满了各種輻射線及高能粒子,若這些輻射線及 高能粒子穿透過半導體元件,會產生主要兩種輻射破壞: 總游離劑量效應及單事件效應,分別會對半導體元件和 積體電路造成永久性破壞與暫時失效等情況,因此,急需 要培育相關的前瞻原子科學人才以因應未來抗輻射科技 所需。本研究計畫藉由高能短脈衝雷射模擬質子束等高 能粒子來對半導體元件造成輻射影響,藉由雷射相對於 輻射線或高能粒子之安全性與便利性,達成快速對半導 體元件輻射驗證,同時,本研究計畫不僅可以對質子束等 高能粒子及高能脈衝雷射等設施進行科學探索及基本原 理探討,也能夠對這些粒子束之設施、束線、樣本環境、 數值分析等儀表研究有所了解,達成培育前瞻原子科技 人才之目的。

**關鍵詞:**輻射驗證、加馬射線、質子束、高能脈衝雷射、 單事件效應、總游 離劑量效應

## Abstract

In this research, we use the radiation verification platform for researching semiconductor components and related circuits, through the use of high-energy particles such as proton beam and high-energy pulsed laser, to achieve the purpose of cultivating forward-looking atomic science talents. In the 21st century, space technology has become a new field of global competition. Many countries are making every effort to develop space technology and industries, more and more satellites and spacecraft will enter space in the future. In space, it is full of radiation sources and high-energy particles. If these radiation or high-energy particles penetrate through semiconductor components, two main types of radiation damage will be produced: the total ionizing dose effect and the single-event effect. Components and integrated circuits cause either permanent damage or temporary failure. Therefore, it is needed to cultivate relevant forward-looking atomic science talents to meet the needs of future radiation

hardening technology. This research uses high-energy shortpulsed laser to simulate radiation particles such as protons to cause radiation effects on semiconductor components. By virtue of the safety and convenience of lasers compared to radiation particles, rapid radiation hardening testing of semiconductor components can be achieved. At the same time, this research can not only carry out basic principle discussion on facilities such as proton beam or high-energy pulsed laser, but also conduct the learning on the facilities, beamlines, sample environments, and numerical analysis of these quantum beams. To achieve the goal of cultivating forwardlooking atomic science and technology talents.

**Keywords** : radiation test, gamma ray, proton beam, high energy short pulse laser, single event effect, total dose effect

## I. 前言

目前在國外,使用脈衝雷射來進行半導體元件及電路的輻射驗證研究已經持續了一段時間,美國國家航空暨太空總署 (National Aeronautics and Space Administration, NASA)除了使用 Gamma 射線、質子束以及重離子,也在半導體元件的輻射驗證中使用脈衝雷射進行測試[1]、[2],我國的國家太空中心 (Taiwan Space Agency, TASA)目前使用質子束進行晶片抗輻射驗證,國內對於輻射驗證相關的研究也相當少,因此本計畫希望可以透過對質子束與高能脈衝雷射進行相關半導體材料分析及工程應用之研究,不僅可以使參與之學生對粒子束設施、射束、樣本環境、數值分析等研究有所了解,也能促進未來運用脈衝雷射光進行輻射驗證測試,更可培育粒子束設施方面之前瞻原子科技人才。

### II. 主要內容

本計畫在研究的部份分別從五種不同的內容切入, 分別是模擬、射束實驗、雷射實驗、理論分析、人才培育 五個層面,最主要的目的則是要透過此研究方法達到培 育前瞻原子科學人才的效果,詳細的研究方法將會在接 下來的內容中逐一敘述。

(一)利用時域有限差分法進行雷射光在半導體材料中之 模擬:本研究計畫將利用時域有限差分法模擬雷射 光束照射常見的半導體材料矽,如此一來則可以了 解到所模擬的物體受到電磁輻射時,電場以及磁場

在該半導體材料內的分布情形,並且可以透過此模擬結果來輔助分析雷射光射入半導體材料時所會發 生的吸收、反射以及電場磁場之分布狀況。

- (二)質子束或高能粒子對半導體元件或電路之單事件效 應實驗規劃:本研究計畫預計使用質子束進行半導 體元件或電路之單事件效應之研究。
- (三)高能脈衝雷射對半導體元件或電路之單事件效應實驗規劃:本研究計畫預計使用鎖模 (mode-locking) 雷射進行半導體元件或電路之單事件效應之研究。
- (四)高能脈衝雷射與質子束或高能粒子對半導體元件或 電路單事件效應之等效理論研究:本研究計畫將進 行更多理論研究,並配合雷射光在半導體材料中之 相關模擬,以及高能脈衝雷射對半導體元件或電路 之單事件效應實驗,嘗試分析現有的高能脈衝雷射 與質子束或高能粒子對半導體元件或電路單事件效 應之線性能量轉移等效模型。
- (五)培育前瞻原子科學人才:本研究計畫預計透過執行使用太空環境下之半導體元件及相關電路輻射驗證 平台用以培育前瞻原子科學人才,規畫相關設施之 參訪,使對於應用於未來科技之原子科學有興趣的 大學生、研究生、博士生等前瞻原子能科技人才參 觀相關粒子束設施與環境,如高能脈衝雷射、質子 束或加馬射線等高能粒子束,透過介紹和參觀相關 粒子束設施,讓前瞻原子能科技人才對於相關粒子 束設施有所了解。

## III. 結果與討論

本計畫中執行的事項以及結論將會依序列出如下。

(一)利用時域有限差分法進行雷射光在半導體材料中之 模擬:本計畫目前已經利用此模擬軟體模擬不同光 點大小之雷射光照射在矽材料上,其結果如圖一所 示,模擬結果可以用來輔助判斷實際實驗時的雷射 光照射情形,以便瞭解其電場之分布以及矽材料吸 收雷射能量的情況,供後續建立物理模型分析參考。



圖 1 (a) 脈衝雷射打入矽材料之後的電場分布,紅色方 框處為半導體材料矽,(b) 該脈衝之光點大小以及能量 分佈。

(二) 質子東或高能粒子對半導體元件或電路之單事件效 應實驗規劃:本計畫目前已經有了解過不同醫院射 源的質子束照射環境,圖2為本團隊嘗試在長庚醫 院質子射束的實驗設備架設以及實驗規劃,這些規 畫將可提供未來在相同的實驗環境時做為架設參考。



圖2 質子束實驗之實驗架設規劃。

(三)高能脈衝雷射對半導體元件或電路之單事件效應實驗規劃:本計畫在中央大學的強場物理與超快雷射技術實驗室之脈衝雷射實驗也已經有完成波長800nm高能脈衝雷射之實驗規劃,其內容為利用800nm波長之近紅外光照射於含有抗輻射電路之晶片上,並且以示波器顯示出受到雷射光照射時晶片受影響之波型並紀錄下來,相關之實驗架設如圖3所示。



圖 3 中央大學之脈衝雷射實驗架設規劃。

(四)高能脈衝雷射與質子束或高能粒子對半導體元件或 電路單事件效應之等效理論研究:在此部分目前也 已經調查過相關的高能粒子及脈衝雷射在單事件效 應方面之等效理論的相關文獻, Joseph 等人使用了 Rectangular Parallelepiped (RPP)法來計算脈衝雷射 在半導體元件內產生電荷[3],該方法指出若一發脈 衝雷射打入半導體元件時,會因為光子的激發使半 導體材料產生電荷,其產生的電荷密度可以由下式 (1)表示

$$\frac{dN(x,y,z,t)}{dt} = \left(\frac{\lambda\alpha}{hc}\right)I(x,y,z,t)$$
(1)

此時在電路敏感節點的半導體材料處假設一長 方體,並且也假設該長方體內因電離所產生的電荷 全部被敏感節點收集,電荷被敏感節點蒐集的量如 下式(2)所示

$$Q_{Col} = \frac{q_A}{hC} [1 - e^{-\alpha l}] \int \int I(x, y, t) \, dA \, dt \tag{2}$$

如此一來假如吸收的電荷足夠造成單事件效應

的話,則可針對此入射的重離子來推算其對於半導 體所造成的線性能量轉移(linear energy transfer, LET) 並與重離子實驗之數據做比對。

Buchner 等人也提出相同的 RPP 概念[4],不過 他們提到在電荷密度產生的公式中也要考慮到非線 性吸收的因素在,因此電荷密度的產生公式則可表 示如下式(3)

RPP 假設,則可計算每一發雷射所累積的電荷量, 並且與重離子實驗所產生的結果做比對。

- (五)培育前瞻原子科學人才:上述之每一項執行內容皆 培養了執行計畫人員在對於相關粒子束以及高能雷 射設施方面的知識,此外本計畫執行期間也有參訪 及使用了國內不少高能粒子束等設施,目前參訪以 及使用過的設施如下列出
  - 核研所質子束設施做實驗 實驗日期:2022年4月8日 參加之學生人數:5人
  - 清華大學原科中心參觀
    參觀日期:2022年8月9日
    參加之學生人數:7人
  - 台大癌醫質子治療中心参訪 參訪日期:2022年8月19日 參加之學生人數:6人
  - 清大鈷 60 實驗 實驗日期: 2022 年 8 月 29 日 參加之學生人數: 3 人
  - 長庚質子束参訪
    參訪日期:2022年8月31日
    參加之學生人數:5人
  - **北醫質子中心參觀** 參訪日期:2022年9月17日
    參加之學生人數:3人
  - 長庚質子束實驗 實驗日期:2022年9月26日 參加之學生人數:5人
  - 隨核研所至太空中心訪問 訪問日期:2022年11月9日 參加之學生人數:6人

## IV. 結論

本年度規劃之研究項目已進行利用時域有限差分法 進行雷射光在半導體材料中之模擬,可以透過此模擬結 果來輔助分析雷射光射入半導體材料時所會發生的吸收、 反射以及電場磁場之分布狀況;已完成質子束或高能粒 子對半導體元件或電路之單事件效應實驗規劃,以利使 用質子束進行半導體元件或電路之單事件效應之研究; 探討高能脈衝雷射對半導體元件或電路之單事件效應實 驗規劃,規劃使用鎖模雷射進行半導體元件或電路之單 事件效應之研究;探討高能脈衝雷射與質子束或高能粒 子對半導體元件或電路單事件效應之等效理論研究;透 過上述研究項目並達到培育前瞻原子科學人才之目的, 並參訪多個研究單位和射束實驗室。本計畫在執行人才 培訓的過程中,於參訪相關的部分皆有順利進行,在實際 進行質子束照射的部分透過射束實驗室的研究員協助, 如長庚 220 MeV 質子束,培育科學人才在器材保護、遠 端連線 以及實驗數據量測等皆是從文獻中開始鑽研到 進行研究,也讓受培訓之學生對於輻射環境有更深入的 瞭解,有利於培養人才利用輻射技術於前瞻原子科學之 研究。

# 参考文獻

- [1] O'Bryan, Martha V., et al. "NASA Goddard Space Flight Center's Compendium of Recent Single Event Effects Results." Nuclear and Space Radiation Effects Conference (NSREC). 2018.
- [2] Topper, Alvson D., et al. "NASA Goddard Space Flight Center's Compendium of Total Ionizing Dose, Displacement Damage Dose, and Single-Event Effects Test Results." 2019 IEEE Radiation Effects Data Workshop. IEEE, 2019.
- [3] Melinger, Joseph S., et al. "Pulsed laser-induced single event upset and charge collection measurements as a function of optical penetration depth." *Journal of Applied Physics* 84.2 (1998): 690-703.
- Buchner, Stephen P., et al. "Pulsed-laser testing for single-event effects investigations." IEEE Transactions on Nuclear Science 60.3 (2013): 1852-1875.

# 以電漿濺鍍製程進行透明氧化物薄膜太陽能電池之研製 Research and development of transparent oxide-based thin-film solar cells with a plasma sputtering process

計畫編號: MOST111-NU-E-155-001-NU 計畫主持人:劉維昇 e-mail:wsliu@saturn.yzu.edu.tw 計畫參與人員:陳子雋、黃立丞、廖永濬、陳冠儒 執行單位:元智大學電機工程學系

### 摘要

本計畫旨在使用金屬氧化物半導體以製造透明太陽 能電池。計畫中使用磁控濺鍍沈積技術,沉積 NiO 與 ZnO 金屬氧化物薄膜使其成為 P-NiO/N-ZnO 的 P-N 結構,並 做為太陽能電池的光吸收層。研究中透過 XRD 及 UV-VIS-NIR 吸收穿透光譜等量測儀器優化薄膜品質後,製 備成透明光伏元件,並改善太陽能電池光電轉換效率。 **關鍵詞:**透明薄膜太陽能電池、金屬氧化物薄膜、透明導 電膜、電漿處理

### Abstract

This project aims to use metal oxide semiconductors to manufacture transparent solar cells. This project uses magnetron sputtering deposition technology to deposit NiO and ZnO metal oxide thin films to form a P-NiO/N-ZnO P-N structure, which serves as the light absorption layer of the solar cell. Through the use of measurement instruments such as XRD and UV-VIS-NIR absorption and transmission spectra, the thin-film quality is optimized in the research. Transparent photovoltaic devices are prepared, and the photoelectric conversion efficiency of the solar cell is measured and improved.

**Keywords** : Transparent thin-film solar cells, metal-oxide thin films, transparent conductive films, plasma treatment

## I. 前言

近年來,能源危機與溫室效應等議題影響加劇,使各 國紛紛致力研究於再生能源的開發與環境保護,其中太 陽能電池更扮演著關鍵角色,太陽能為一種取之不盡用 之不竭的能源,擁有乾淨、無汙染、方便獲取等優勢,吸 引各國研究團隊投入開發,而台灣能源長期仰賴進口,無 法自給自足,若能加以提升太陽能電池的應用,便能降低 對能源進口的依賴性與溫室氣體的排放。

傳統的薄膜太陽能電池需吸收近紅外光、可見光及 紫外光來產生高轉換效率,所以元件呈現黑色,且可見光 無法穿透元件,又因目前有大量建築採用大面積玻璃幕 牆作為建築特色,促使研究人員設計新的太陽能電池,將 具有高可見光穿透度的透明薄膜太陽能電池,即代典型 具有普通玻璃(如:建築窗戶和電子設備)轉變為具有發電 功能的能源裝置,並整合於建築物和車輛窗戶吸收太陽 光以提供電力,進而有效的減少傳統太陽能電廠空間,且 不改變原本的外觀和工作方式,進而使降低對能源依賴 性。

透明光伏(TPV) 電池在光伏研究中引起了莫大的興

趣,好比 TPV 技術可以幫助能源消費端轉變為如發電廠 的存在。以往在傳統太陽能電池中,可見光的吸收將助於 電子及電洞結合形成激子並產生光電流,相較之下,TPV 則允許可見光穿透並藉由吸收紫外(UV)光子產生光電 流。而 TPV 的 Shockley-Queisser 最大理論效率極限約在 20%,對於傳統光伏(CPV)的極限 32%低了不少,但是 他們的高可見光透明性、現場發電、大面積、簡易製程、 對紫外線等高能光子的防護以及高柔韌性等特性仍為 TPV 的廣泛應用開闢了新徑。

### II. 主要內容

#### 2.1 P-NiO 實驗方法

本計畫藉由 3 英吋的圓形氧化鎳靶材(純度為 99.99%)並利用射頻磁控濺鍍在玻璃基板上生長 NiO 薄 膜。首先利用去離子水清洗基板並分別使用丙酮及異丙 醇進行超音波震盪處理約10分鐘,最終利用氮氟吹拂使 其乾燥,隨後放至濺鍍腔體中並使沉積室內壓力保持約 5×10<sup>-6</sup> Torr。沉積條件隨後續成果依序調整,如為找尋最 適當晶向成長而調整基板溫度、濺鍍功率、沉積時間、氩 氟流量及工作壓力等參數。透過X射線繞射儀(XRD)、 UV-VIS-NIR 吸收穿透光譜儀;原子力顯微鏡(AFM)、 霍爾量測等儀器來確認 NiO 的結構、光學及電學性質。

#### 2.2 N-ZnO 實驗方法

本計畫藉由射頻磁控濺鍍法在氫氣環境中將 ZnO 薄 膜沉積在玻璃基板上。首先在沉積薄膜前,先將基板放至 裝有電子級丙酮的燒杯中,以超音波震盪機清洗5分鐘, 再以異丙醇(IPA)去除基板上殘留之丙酮,最終用去離 子水除去基板表面上之有機溶液並且使用氮氣槍將其吹 乾。此實驗中所採用的靶材為直徑3 英吋且厚度3mm的 氧化鋅(ZnO)。靶材與基板之間的距離為10mm。在濺 鍍前,先以80W 功率對靶材進行400秒的預濺鍍以清潔 靶材表面。基礎壓力、工作壓力、濺鍍功率和沉積時間分 別保持在5×10<sup>-6</sup> Torr、2 mTorr、80W及100分鐘,另 外,反應氣體為高純度 Ar(99.9999%),流速為50 sccm。 在濺鍍過程中,基板之旋轉速度保持在10 rpm,並在濺 鍍開始前將基板從 100-400°C的預期沉積溫度下預熱 10 分鐘。

### III. 結果與討論

#### 3.1 P-NiO/Glass substrate

本實驗主要使用射頻磁控濺鍍進行氧化鎳(NiO)薄

膜之生長,期間運用較低瓦數沉積後並透過 X 射線繞射 儀(XRD)觀察得知該薄膜呈現非晶態,推測原因為低功 率下其濺射產率較低,故從氧化鎳靶中濺鍍出的鎳原子 量較少,而低功率生長薄膜將缺少足夠的動能使 Ni<sup>2+</sup>及 O<sup>2</sup>離子在基板上重新排列以形成所需之晶體結構。



圖1 不同氧氣流量生長 NiO 薄膜之 XRD 繞射圖。

經本團隊調整最佳濺鍍參數後,可得到最適合之射 頻功率為90W,且搭配200℃之基板加溫後即發現特定 晶向之成長,為強化薄膜晶向強度故提升氫氣流量,希望 透過更多的氫離子轟擊能促使更多的元素離子沉積於基 板上並奠定良好晶體質量,而圖1即為透過改變氫氣流 量從40至80 sccm所觀測之氧化鎳XRD 繞射圖。

經量測後得知當氫氣流量在40 sccm 時發現在36.94° 及 62.03°處顯示出對應 NiO (111)和 Ni (220)取向的繞 射峰,可表明其立方結構結晶之 NiO 層屬多晶態。隨著 流量增加至50 sccm後額外顯示出(200)之微弱繞射峰, 並在氫氣流量持續提升至60 sccm後其峰值消失,取而代 之的則是該薄膜具有(111)擇優取向,表明良好結晶度。 然而,隨著氫氣流量的提升如70及80 sccm,可觀察到 其(111)繞射峰值強度逐漸降低,推測其原因可能為過 多的 Ar 原子,造成濺射粒子碰撞,降低了濺鍍原子動能, 導致晶體品質降低。

經由固定濺鍍功率 90 W、生長溫度 200 ℃以及氫氣 流量 60 sccm 下,調整不同工作壓力之 NiO 薄膜之 XRD 圖如圖 2 所示。在工作壓力為 2 mTorr 時可以看到在 36.78 °處形成(111)優先取向,並且於壓力提升後在約 78°處 觀察到(222)弱繞射峰,可表明所屬材料為面心立方 NiO 相。隨後發現(111)強度在 7 mTorr 時最高,並於 10 mTorr 時降低,原因可能為在高沉積壓力下其結晶劣化,這與原 子被濺射的能量降低有關。因 7 mTorr 時其結晶品質最為 優良故可在晶向(111)處擬和出其 FWHM 值為 0.493°, 經由 Scherrer 公式(Eq.(1))可得知該氧化鎳薄膜之晶 粒尺寸為 16.9 nm。

 $D = \frac{0.9\lambda}{\beta\cos\theta} \text{ (Eq. (1))}$ 

在這裡,D 是晶粒尺寸,λ 是 X 射線波長(0.154 nm), β 是 XRD (002) FWHM 值, θ 是布拉格角。



2 theta (degree)

圖 2 不同工作壓力所成長氧化鎳薄膜之 XRD 圖案。



圖 3 表示 NiO 樣品表面型態之 2D AFM 圖像(a) 2 mTorr (b) 5 mTorr (c) 7 mTorr (d) 10 mTorr。

原子力顯微鏡 (AFM) 可用於研究基板溫度對 NiO 沉積薄膜表面型態的影響。圖 3 顯示了面積為  $1.0 \times 1.0 \, \mu m^2$ 的氧化鎳薄膜樣品之 2D AFM 圖樣,根據觀察在 2 mTorr、 5 mTorr、7 mTorr 和 10 mTorr 下生長的 NiO 薄膜其表面 粗糙度 RMS 值分別為 0.38 nm、1.11 nm、1.32 nm 和 1.09 nm,其中晶粒於 7 mTorr 下快速生長,這與 XRD 量測結 果一致。



圖 4 不同氫氣流量之氧化錄 UV-VIS-NIR 穿透光譜。



圖 5 不同工作壓力之氧化鎳 UV-VIS-NIR 穿透光譜。

圖 4 顯示了在相同濺鍍功率但不同氫氣流量下 NiO 薄膜在 300-1100 nm 波長範圍的穿透光譜。量測結果觀察 到所有試片其平均可見光穿透率皆高於 51.8%,甚至當氫 氣流量為 60 sccm 時其平均可見光穿透率達 83.8%,這可 能是因為更好的晶體結構中缺陷所引起的光散射減少, 使得薄膜的透明度提高,並藉由圖 1 的 X-ray 繞射儀 (XRD)亦可證實。另外,觀察圖 5 不同工作壓力對 NiO 之 UV-VIS-NIR 穿透光譜後發現透過提高壓力其平均穿 透率有增加的趨勢,並發現在 10 mTorr 條件下其可見光 穿透率有增加的現象,這可能歸因於點缺陷減少所致。另 外,對於小於 370 nm 的波長其光穿透率之驟降是對應 NiO 薄膜的吸收,這是由於價帶和導帶之間的載子躍遷 所造成。



圖 6 不同工作壓力下沉積之 NiO 薄膜之 PL 圖案。

根據圖 6 所有 NiO 薄膜的 PL 光譜都受到約 420 nm (2.95 eV)的深能級發射 (DLE),其造成原因可能為載 子的輻射複合結果。另外在 365 nm (3.39 eV)處發出紫光 則為 Ni<sup>2+</sup>離子從導帶(CB)的底部到價帶(VB)的頂部之電 子躍遷。透過沉積壓力的改變造就氧化鎳薄膜產生激子 發射表明其結晶質量已獲得提升。

射頻功率	沉積壓力	電阻率	電洞濃度	遷移率
(W)	(mTorr)	(ohm-cm)	(cm <sup>-3</sup> )	(cm <sup>2</sup> /V-s)
90	7	$4.3 \times 10^{-3}$	$8.02\times10^{19}$	17.7

表1 最佳濺鍍參數下 NiO 薄膜之霍爾量測數據。

表 1 顯示出 NiO 薄膜在厚度約 150 nm 時的電學特 性。在生長溫度 200 °C 且氫氣流量 60 sccm 的成長條件 下 NiO 薄膜生長呈現了 P 型的導電特性,而電阻率、電 洞濃度及電洞遷移率分別為 4.3×10<sup>-3</sup> ohm-cm、8.02×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup> 以及 17.7 cm<sup>2</sup>/V-s, 說明了結晶品質對於 NiO 薄膜的

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

電性改善。其中因電洞濃度的增加從而使電阻率隨著生 長溫度上升而降低,這是因為富鎳成分 NiO 透過基板升 溫成長,部份分解所致。

### 3.2 N-ZnO/Glass substrate



圖7 不同生長溫度下沉積的 ZnO 薄膜之 XRD 圖案。

基板温度	峰值(002)	晶粒尺寸	FWHM
(°C)	(20)	[nm]	(2°)
100	34.01		
200	34.08	11.23	0.740
300	34.33	9.54	0.872
400	34.37	11.18	0.744

表 2 XRD 分析之計算結果: 晶粒尺寸、FWHM。

圖 7 顯示出具有不同基板成長溫度的氧化鋅之 X 射 線繞射(XRD)圖。可以看到當溫度升高時其 XRD 峰的 半高寬縮減並且 XRD 強度增加。在 300 °C-400 °C下沉積 的薄膜在 20~34°處有一個強峰,並且發現 400 °C之薄膜 在 72°處伴隨著一個弱峰,分別確定為六方氧化鋅的(002) 及(004) 繞射,並說明較強的 XRD(002) 峰為 c 軸方 向成長。最高強度峰(002)的氧化鋅薄膜之晶粒尺寸可 透過使用 Scherrer 公式如表 2 所示。將 XRD 光譜 FWHM 值插入該方程式並顯示出對於 200、300 和 400°C的基板 溫度,晶粒尺寸分別為 11.23 nm、9.54 nm 以及 11.18 nm。 圖 5 揭示了(002)峰的位置隨基板溫度變化,由 100 °C 沉積薄膜的 34.01°移動到 400 °C沉積薄膜的 34.37°,後者 是非常接近 ZnO 的相應值 34.467°(JCPDS 文件 No.75-1526)。



圖 8 表示 ZnO 樣品表面型態之 2D AFM 圖像(a) 100°C (b) 200°C (c) 300°C (d) 400°C。

圖 8 顯示了面積為 2.0×2.0 μm<sup>2</sup> 的氧化鋅薄膜樣品之 2D AFM 顯微照片。根據觀察,這些樣品的表面粗糙度 RMS 值對於 100 ℃、200 ℃、300 ℃和 400 ℃成長之 ZnO 薄膜,分別為 1.53 nm、2.67 nm、3.12 nm 和 2.01 nm。圖 中可得知薄膜粗糙度隨基板溫度升高而增加。而粗糙度 之所以會增加是由於在高溫下再結晶,其中小的微晶會 聚結在一起形成更大的微晶,然而有趣的是,當基板溫度 提升至 400 ℃時其 RMS 值顯示出與低溫沉積時相似的均 勻特徵。而藉由原子力顯微鏡量出的結果可以發現其晶 粒尺寸和藉由 XRD 結果所計算出的大小趨勢相同。

UV-VIS-NIR 光譜用於發現沉積的 ZnO 薄膜在不同 基板溫度下的光學穿透率,並針對 300-1100 nm 的波長範 圍進行繪製。從圖 9 可以清楚看出,在可見光區域的光 穿透率為 88.23-90.33%,並且在~380 nm 附近觀察到一個 尖銳的吸收邊緣。另外,隨著基板溫度的上升其能隙值亦 會增加,有助於提高光穿透率。透過計算可以觀察能隙值 具些微藍移,其隨著基板溫度增加從 3.20 增加到 3.25 eV。 一般而言,藉由基板溫度提升進而讓能隙從 3.20 增量至 3.25 eV,這與 Burstein-Moss 效應有關 (由於傳導能帶中 電子濃度的增加導致費米能級提高)。

圖 10 顯示了 100 °C-400 °C下沉積之氧化鋅薄膜的光 致發光光譜 (PL)。根據觀察,所有 ZnO 薄膜在 382-388 nm (3.20-3.25 eV) 處顯示出弱峰值,其發射峰歸因於近 帶邊緣 (NBE),這是由於從導帶下方的局部區域到價帶 底部的激子偏移。而氧間隙 (O<sub>i</sub>)、鋅間隙 (Zn<sub>i</sub>)、氧空缺 ( $V_o$ )、鋅空缺 ( $V_{Zn}$ )和氧對位缺陷 ( $O_{Zn}$ )等各種缺陷 則被認為是在可見光範圍內觀察到深能級發射 (Deep level emission)的可能原因。另外,由於沉積的薄膜厚度 及溫度不足,未能提供足夠的能量使薄膜內的應力鬆弛, 故直到溫度升至 400 °C時其壓應力才逐漸轉變為張應力, 如此藉由 PL 量測即能發現其差異。



圖 9 不同生長溫度沉積的 ZnO 薄膜之 UV-VIS-NIR 穿透光譜。



圖 10 不同生長溫度沉積之 ZnO 薄膜之 PL 圖案。

表3 最佳濺鍍參數下 NiO 薄膜之霍爾量測數據。

射频功率	基板温度	電阻率	電子濃度	遷移率
(W)	(mTorr)	(ohm-cm)	(cm <sup>-3</sup> )	(cm <sup>2</sup> /V-s)
80	300	$3.7 \times 10^{-3}$	$2.04\times10^{20}$	8.31

表 3 說明 ZnO 薄膜在厚度 100 nm 時的電學特性。 在濺鍍功率 80W 且生長溫度 300 °C的成長條件下 ZnO 薄膜生長呈現了 N 型的導電特性,而電阻率、電子濃度 及電子遷移率分別為 3.7×10<sup>-3</sup> ohm-cm、2.04×10<sup>20</sup> cm<sup>-3</sup> 以 及 8.31 cm<sup>2</sup>/V-s, 說明了結晶品質對於 ZnO 薄膜的電性改 善。

### 3.3 AgNW Coating



圖 11 在 7000RPM 下旋塗且不同退火溫度之 AgNW 的 UV-VIS-NIR 穿透光譜。

本計畫採用旋塗式之銀奈米線 (AgNW)作為透明太陽能電池之透明導電層。圖 11 顯示了退火溫度在 100-300 °C 範圍內並使用旋塗法沉積的 AgNW 樣品的穿透光譜。 觀察到所有樣品的平均透射率大於 60%。然而,對於某 些在較高溫度下退火的樣品,奈米線(NW)可能已經退化 導 致 某 些 波 長 的 穿 透 率 降 低 。 使 用 公 式 Transmittance^10/R 計算品質因數(FOM),其中 R 是薄膜 電阻。基於 FOM 計算和電性能的考慮,在 200°C 退火的 樣品獲得最佳 FOM 值為 3.18 × 10<sup>-2</sup>。

### 3.4 TPV Device I-V characteristic



圖 12 所製備之透明太陽能電池元件在有/無照射 UV 下 之 I-V 特性圖。



圖 13 透明太陽能電池於 UV 照射下之 I-V 特性圖。

圖 12 為本計畫所製作之 AgNW/NiO/ZnO/FTO 元件 於黑暗及 UV 光源 (λ=325 nm)條件下所紀錄之 I-V 特性 並以半對數尺度下呈現。其光電流與暗電流之比率在有 無 UV 光源條件下所表現之差異說明元件確實具備 UV 光子的使用能力,然而因強烈光源的照射及長時間的量 測下來將導致過高載子的生成狀態,這將使得元件趨於 崩潰及損壞。由於正電壓值(+)和負電流值(-)使整體功率 乘積為負並屬於第四象限,因此太陽能電池可以向外部 電路提供電力,如圖 13 所示可看到其開路電壓(Voc)為 0.349 V,短路電流密度(Jsc)為-5.92×10<sup>-1</sup> mA/cm<sup>2</sup>。

### 3.4 TPV Device EQE



圖 14 AgNW/NiO/ZnO/FTO 元件之 IPCE 效率圖。

外部量子效率(EQE)說明已知的光子數藉由單光儀 入射進太陽能電池後經過光子吸收、光生載子、電子電洞 傳輸以及電荷收集等過程,即代表入射光子轉換為電子 的能力,我們藉由量測發現在波長 260 及 296 nm 處其 IPCE 分別具 25.4 %和 56.85 %的效率。說明在紫外光區 域,氧化物薄膜太陽能電池確實對於紫外光具有光吸收 並具有光伏效應,同時於可見光區域呈現高透明度,因此

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

無光吸收效率,如圖15所示。



圖 15 AgNW/NiO/ZnO/FTO 透明光伏電池元件照片

### IV. 結論

透過射頻磁控濺鍍技術成功沉積 NiO 以及 ZnO 薄膜,本實驗研究了濺鍍參數如濺鍍功率、基板溫度、氫氣流量及沉積壓力等對薄膜結構的品質好壞,並發現其對於薄膜光學和電學特性的影響。研究出最佳製程參數並進行元件上的製作。

藉由上述研究得知 NiO 和 ZnO 薄膜確實具有較好的 化學穩定性以及優異的光電特性,其具備寬能隙能量並 於可見光區具有高穿透率,雖說元件之太陽能發電效率 仍然算低,但針對電極塗佈的改善以及薄膜異質介面處 的優化皆會使載子輸送、電子電洞對的分離產生良好改 善,故總結來說本計畫所提之 TCO 材料對於 TPV 元件 研製可說是深具潛力的優良材料。

## 參考文獻

- [1] S. Elmassi et.al, Physica B: Condensed Matter, Volume 639, 2022
- [2] F. Senaslan et.al, Applied Physics A 127, 739, 2021
- [3] M. S. Jamal et.al, Results in Physics, Volume 14, 2019
- [4] H.-L. Chen et.al, Volume 198, pp.138-142, 2005
- [5] P. Salunkhe et.al, Applied physics. A 127, 390, 2021
- [6] Y. M. Lu et.al, Thin Solid Films, Vol.420–421, 54-61, 2002
- [7] X. Gao et.al, Physica B: Condensed Matter, Volume 650, 414540, 2023
- [8] K. S. Usha et.al, Journal of Materials Science: Materials in Electronics , Volume 33, 16136-16143, 2022
- [9] B. H. Baby et.al, Applied Science and Convergence Technology, 2022
- [10] T. T. Nguyen et.al, Journal of Power Sources, Volume 481, 228865, 2021
- [11] T.-H. Chuang et.al, Ceramics International, Volume 46, Issue 17, pp.27695-27701, 2020
- [12] N. Jain et.al, Materials Today: Proceedings, Volume 30, Part 1, pp.93-99, 2020
- [13] S. Singh et.al, Thin Solid Films, Volume 515, Issue 24, pp.8718-8722, 2007
- [14] N. Ekem et.al, International Journal of Hydrogen Energy, Volume 34, Issue 12, pp.5218-5222, 2009
- [15] R Ondo-Ndong et.al, Materials Science and Engineering: B, Volume 97, Issue 1, pp.68-73, 2003
- [16] S. H. Ribut et.al, Results in Physics, Volume 13, 2019
- [17] X. Li et.al, Materials, 14, 2219, 2021

X 光、電子等量子束於氧化亞銅異質奈米結構光電化學產氫膜層之材料分析研究

# 與人才培育

# Material Analysis Research and Talents Cultivation of Using X-ray and Electron Beams to Analyze Cu<sub>2</sub>O Heterogeneous Nanostructures Films for Photo- electrochemical (PEC) Hydrogen Generation Application

計畫編號:NSTC111-NU-E-214-001-NU 計畫主持人:劉文仁 e-mail:jurgen@isu.edu.tw 計畫參與人員:張弘霖、呂國榮、陳冠銓、胡冠毅、張力文 執行單位:義守大學/材料科學與工程學系

### 摘要

本研究採用低成本、低毒性和易合成的方式,在銅箔 上利用不同製程製備出一維方向成長之高表面積的氧化 亞銅(Cu2O)奈米線薄膜型態,根據實驗結果在 300℃(1h) 的電漿與熱氧混合製程之光電流密度在 0V(vs. RHE)量測 出單層最大值為-2.92 mA/cm<sup>2</sup>。後續為了進一步提升整體 光電化學產氫效率,分別透過常壓電漿系統搭配化學氣 相沉積法製備氧化鋅奈米顆粒與二氧化鈦奈米顆粒附著 於氧化亞銅奈米線表面,形成 PN 異質結構,在電極表面 有效快速分離電子電洞對及增進對水的氧化還原反應, 實驗結果顯示:在200℃(20sccm)沉積10s氧化鋅奈米顆 粒下,光電流密度在 0V(vs. RHE)量测出雙層可達到-7.72 mA/cm<sup>2</sup>, 並且在 ZnO/Cu<sub>2</sub>O 的太陽能產氫效率最大可到 1.73%;在350°C(30sccm)沉積9s二氧化鈦奈米顆粒下, 光電流密度在 0V(vs. RHE)量測出雙層可達到- $6.37 \text{mA/cm}^2$ , 並且在 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>2</sub>O 的太陽能產氫效率最大 可達 1.1%。

**關鍵詞:**光電化學產氫、異質結構、氧化亞銅、氧化鋅、 二氧化鈦、奈米線

## Abstract

In this study, low-cost, low-toxicity and convenientoperation atmospheric pressure (AP) plasma and thermal oxidation systems were used to synthesize cuprous oxide (Cu<sub>2</sub>O) films, and the application of photo-electron-chemical (PEC) hydrogen generation was also assessed. Cu<sub>2</sub>O nanowires (NWs) with high specific surface area were grown on the pre-etching treatment of copper foil by adopting thermal oxidation, AP plasma oxidation and hybrid processes. According to the results, the Cu<sub>2</sub>O NWs grown by the hybrid process of AP plasma oxidation at 300°C for 10 min and thermal oxidation at 300°C for 50min, revealed the optimal photocurrent density was -2.92 mA/cm<sup>2</sup> measured at 0 V (RHE). To improve the overall PEC hydrogen production efficiency, the deposition of zinc oxide (ZnO) and titanium dioxide (TiO<sub>2</sub>) nanoparticles (NPs), respectively, on the surface of Cu<sub>2</sub>O NWs by AP plasma system was adopted. Due to the formation of PN hetero-structure junctions, the effective and rapid separation of electron-hole pairs occurred on the electrode surfaces and enhanced the redox reactions. The deposition of ZnO NPs on the surface of Cu<sub>2</sub>O NWs with the precursor flow rate of 20sccm at 200°C for 10s indicated

that the photocurrent density can reach -7.72 mA/cm<sup>2</sup> at 0 V (RHE). The solar-to-hydrogen (STH) conversion efficiency is up to 1.73% for ZnO/Cu<sub>2</sub>O photocathode. At the same time, the maximum photocurrent density value of the P-N hetero-structure film was -6.37 mA/cm<sup>2</sup> at TiO<sub>2</sub>-9s (PT-300 + TiO<sub>2</sub> nanoparticle deposition for 9s) at 0 V (vs. RHE), and the maximum solar hydrogen conversion efficiency is about 1.1%.

**Keywords**: Photo-electro-chemical hydrogen generation, Hetero-structure, Cuprous oxide, Zinc oxide, Titanium dioxide, Nanowire

# I. 前言

銅氧化物可分為氧化亞銅(Cu<sub>2</sub>O)和氧化銅(CuO),兩 者主要屬於 P 型光陰極,並具有合適的氧化還原電位。 在此材料上生長出一維(1D)奈米結構,如奈米線和奈米 棒,本身表現出獨特的光電特性,特別是利於電荷傳輸。 本實驗室採用不同的製程(電漿、加熱、電漿/加熱混合等 製程)方式,在銅箔上直接成核出高比表面積的銅氧化物 奈米線結構。基於半導體和電解質的界面產生電荷積聚 的現象,導致 P 型半導體與電解質接觸發生電荷分離效 率變差,所以光電性質不會有太好的表現,為了有效解決 這個問題,後續使用常壓電漿在 P 型半導體奈米線上沉 積氧化鋅奈米顆粒與二氧化鈦奈米顆粒,建立一個 PN 異 質結構,在電極表面促進電荷分離效率並傳輸到表面以 驅動氧化還原反應,有效提升整體光電化學分解水產氫 之效率。

在材料研究中,顯微結構係指探討材料在不同尺度 (微米或奈米)之細微結構及原子排列缺陷等;材料性質係 指探討材料本身所表現物理或化學性質;材料應用:不同 材料在不同工程領域之應用。而獲取正確的材料結構與 成份,取決於正確的製程並影響後續在光、電、機、磁等 性質的應用,因此,學習材料分析技術的理論與實作應用 至為重要。本計畫鍍製之 Cu<sub>2</sub>O/TiO<sub>2</sub>、Cu<sub>2</sub>O/ZnO 光電化 學產氫異質膜層材料的主要分析技術可以概分為結構分 析(物性)與成份分析(化性)兩大類,包含 X 光繞射分析儀 (X-ray Diffractometer, XRD)、X 射線光電子能譜儀(X-ray Photo-electron Spectrometry, XPS)、掃描式電子顯微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM)、能量色散 X 射線分 析儀(Energy-dispersive X-ray spectroscopy, EDX)、穿透式 電子顯微鏡(Transmission Electron Microscope, TEM)等。

## II. 實驗方法

### 2.1 基材清洗

本實驗以銅箔(ASTM C11000)為基材,基板大小為 3x1 cm,將基板分別依序浸泡至丙酮、異丙醇、乙醇之溶 液內,經超音波震盪機震盪時間依序為 20 min、5 min 及 5 min 後取出,最後以氮氟噴槍去除表面殘存溶液後便可 使用。

### 2.2 銅氧化物製作

先在銅箔上使用硫酸在表面進行蝕刻處理,讓銅原 子游走在晶界上作為擴散路徑,與環境氧氣做結合,以利 快速成長出奈米線,並且採用不同的製程方式,探討生長 奈米線之間的差異性。製備出最佳高比表面積的銅氧化 物奈米線結構後,並用來沉積氧化鋅奈米顆粒結構。

### 2.3 沉積氧化鋅結構

前驅物硝酸鋅濃度為 2 M,在霧化與空氣電漿進行 反應時,在 200°C 基板溫度下,氫氣流量為 20sccm,反 應時間做為實驗的變化參數,示意圖如圖 2.1 所示。每一 實驗變化參數完成後皆會進行形貌分析且搭配線性掃描 伏安法,選出最佳參數條件,以利於後續實驗進行。

#### 2.4 沉積二氧化鈦結構

二氧化鈦前驅物為 TTIP 溶液,由氫氣通入 DI Water 將水氣帶入加熱的前驅物溶液當中來產生蒸氣並導入電 漿火焰進行反應,在 350℃ 基板溫度下,氫氣流量為 30sccm,沉積二氧化鈦奈米顆粒到銅氧化物奈米線膜層。

### 2.5 材料及光電化學性質分析

實驗所製備之膜層透過 FE-SEM、XRD、TEM、XPS、 UV-Vis、EIS 等儀器,分別進行膜層表面型態、微觀結構、 鍵結、能隙、阻抗等材料分析。研究期間將利用太陽能模 擬器與三極式電化學分析儀進行光電化學反應,及太陽 能轉氫效率(STH)之評估,實驗所使用電化學儀器為 CHI614D、電解液為 0.5 M 硫酸鈉水溶液、太陽光模擬器 AM 1.5G (100 mW/cm<sup>2</sup>),示意圖如圖 2.2 所示。





圖 2.2 光電化學分析儀示意圖

### III. 結果與討論

#### 3-1 人才培育方面

本年度完成目前所屬碩士研究生9人及大專生33人 (共計42人)每週二天進行前述材料分析設備理論、應用、 實作等教育訓練,並指導進行Cu<sub>2</sub>O 奈米線異質膜層組合 鍍膜技術開發與其膜層在 PEC 領域的應用研究。

### 3-2 銅氧化物成長方面

根據氧化亞銅生長範圍為 200~400℃,氧化銅在 400℃的退火溫度之上形成的,而奈米線在 300~600℃範 圍生長出來<sup>[1]</sup>。通過三種製程比較奈米線差異性,基本優 異的奈米線密度與長度能夠使電子可沿著奈米線與電解 質接觸縮短擴散距離,設定實驗參數如表 3-1 與圖 3-1 所 示。

在三種不同製程之 XRD 分析比較,繞射峰值和 JCPDS 比對後皆呈現氧化亞銅結構,此奈米線的生長方 向為[111],而氧化鋅因鍍膜時間較少所以未明顯呈現。然 而透過 XPS 與 UV-Vis 分析,可確實得知銅氧化物與氧 化鋅結構的存在。

表 3-1 製備銅氧化物之參數表(<mark>黃色</mark>為最佳參數)

Cu <sub>2</sub> O Nano-Wires (NWs)	P300 (10 min)	TH300 (60 min)	<mark>PT300</mark> (60 min)
Average density (x 10 <sup>8</sup> /cm <sup>2</sup> )	52.0	14.4	36.2
Average length ( $\mu m$ )	0.40	0.44	1.23
Average diameter (nm)	30	38	50



圖 3-1 不同製程在 300℃ 生長氧化亞銅奈米線之 FE-SEM 上視圖

利用前面成長最佳的混和製程(PT300)奈米線來鍍覆 氧化鋅奈米結構,在200°C(20sccm)以不同時間沉積氧化 鋅,如圖 3-2 所示。隨著沉積時間拉長,表面部分奈米線 和氧化層會被氧化鋅結構覆蓋,導致奈米線平均密度和 長度會下降,而直徑會變得更大,沉積過多的氧化鋅會讓 光電流下降,造成整個光電化學產氫效能降低<sup>[2]</sup>,所以在 沉積 10 s顯示出較佳奈米線狀態,設定實驗參數如表 3-2 所示。

### 

	2 XX)		
ZnO/Cu <sub>2</sub> O NWs	5 s	<mark>10 s</mark>	20 s
Average density (x 10 <sup>8</sup> /cm <sup>2</sup> )	26.4	27.8	18.4
Average length (µm)	0.65	0.61	0.55
Average diameter (nm)	56.0	73.5	80.3



圖 3-2 (a-c)在 200 ℃ (20 sccm)沉積氧化鋅於氧化亞銅之 FE-SEM 上視圖

### 3-3 ZnO/CuxO 異質膜層之各項實驗分析

此為氧化鋅奈米顆粒沉積在氧化亞銅奈米線上之 TEM 分析,圖 3-3(a)、(b)分別為明視野及暗視野影像, 在影像中可看到奈米線其長度為 0.4~0.8 µm,在奈米線上 沉積些奈米顆粒,為了證明此顆粒元素利用 EDS 分析, 由此得知此為鋅元素。圖 5-3(c)、(d)分別為繞射點及高解 析分析,根據晶面間距與 JCPDS 對應為:氧化亞銅結構 之(111)與(200)平面;氧化鋅結構之(101)與(002)平面。



圖 3-3 顯示最佳製程條件下 ZnO/Cu<sub>2</sub>O 奈米線之(a)明視野 圖;(b)暗視野圖;(c)繞射圖;(d)高解析圖(HRTEM)

本 實驗 選用 (PT300) 與 (ZnO-10 s) 通 過 在 0.5 M Na<sub>2</sub>SO4 電解質和太陽光模擬器(AM 1.5G 100 mW/cm<sup>2</sup>)照 明下選擇線性掃描伏安曲線,通過開關燈評估光電極的 光電化學性能。圖 3-4(a)在單層成長的氧化亞銅奈米線最 大光電流密度為-2.92 mA/cm<sup>2</sup>,再添加氧化鋅後最大光電

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

流密度為-7.72 mA/cm<sup>2</sup>;圖 3-4(b)量測不同電壓下所測得 的光電流密度狀況;圖 3-4(c)結果明顯沉積氧化鋅於氧化 亞銅奈米線上形成的異質結構降低了電荷轉移電阻,最 終避免了電子電洞對復合現象,從而達到最低電阻值;圖 33-4(d)在不同外加電壓下計算太陽能轉氫效率  $\eta$ =[I(1.23-Ebias)/Jlight\*100%] (Solar to hydrogen, STH), STH 在 0 V (vs. RHE)單層 Cu<sub>2</sub>O NWs 為 0.48%,異質結構 ZnO/Cu<sub>2</sub>O NWs 為 1.73%,結果顯示沉積氧化鋅在氧化亞銅奈米線上提高 了整體光電化學產氫性能 3.6 倍。



圖 3-4 顯示最佳製程條件下 Cu<sub>2</sub>O NWs 與 ZnO/Cu<sub>2</sub>O NWs 之(a)I-T; (b) I-V; (c) EIS; (d) STH

氧化亞銅結構的能帶位置於水的氧化還原電位,適 合在太陽能產氫領域廣泛應用,缺點在於後續會因電解 質的侵蝕而快速衰弱,所以穩定性較差。因此,透過異質 結構方式,讓電子-電洞遷移防止復合的現象,並進一步 當作保護層防止氧化亞銅受光腐蝕影響。由於篇幅的關 係,僅列出較相近膜層之代表論文的光電流密度進行比 較,如3-3及3-4所示,顯現本研究之成果優於代表國際 期刊發表之效率。其中表 3-4 為蒐集整理文獻資料之異質 結構所量測出的最大光電流,可看出如果先沉積 N 型氧 化鋅再沉積 P 型氧化銅的 NP 異質結構,其光電流密度 值會很低,主要原因是照光下產生之電子需經由外線路 傳輸抵達 Pt 陰極進行氫氣還原作用,期間損耗不少電子 所致。因此,先製作P型半導體再沉積N型半導體的PN 異質結構,其光電流密度值會較高,主要是照光下產生之 電子直接在膜層進行氫氣還原作用。同時有些研究人員 沉積抗光腐蝕的金屬材料於膜層最外層,促進光生電荷 移動性,避免在薄膜表面產生電荷積聚的現象。透過 PN 異質結構方式,除了讓電子-電洞於遷移過程中避免復合 的現象,同時可當作保護層防止 P 型氧化亞銅受到光腐 蝕之影響,有效提升整體光電化學分解水產氫之效率。

表 3-3 銅氧化物對於在 0 (V vs. RHE)位置的光電流密度

	比較	
銅氧化物	Current Density (mA/cm <sup>2</sup> )	References
CuO NWs	-1.40	[3]
Cu <sub>x</sub> O nanoflake	-1.50	[4]
CuO/Cu2O NFs	-1.90	[4]
Cu <sub>2</sub> O films	-2.10	[5]
Cu <sub>2</sub> O NWs	-2.10	[6]
Cu(OH) <sub>2</sub> /CuO/Cu <sub>2</sub> O	-2.30	[7]

銅氧化物	Current Density (mA/cm <sup>2</sup> )	References
NWs Cu <sub>2</sub> O NWs	-2.92	This work

表 3-4 異質結構對於在 0 (V vs. RHE)位置的光電流密度 比較

	Current	
異質結構	Density	References
	$(mA/cm^2)$	
CuO/ZnO	0.06	[8]
Cu <sub>2</sub> O/Cx	-2.70	[9]
Pt/Ti <sub>2</sub> O/AZO/Cu <sub>2</sub> O	-4.30	[10]
CuS/CuO/Cu <sub>2</sub> O	-5.70	[11]
CuO/Cu <sub>2</sub> O (N-P)	-7.42	[12]
Pt/Ti2O/AZO/Cu2O/Au	-7.60	[13]
ZnO/Cu <sub>2</sub> O	-7.72	This work

## 3-4 TiO2/CuxO 異質膜層之各項實驗分析

將前述銅氧化物奈米線最佳化參數固定,改變二氧 化鈦沉積時間並進行 SEM 觀察。此沉積時間鍍膜實驗再 搭配電化學量測,找出具有最佳光電流密度之沉積時間。 由下圖 3-5(a)觀察到沉積時間 3s 時,奈米線上並沒有明 顯二氧化鈦顆粒,隨著沉積時間增加到 9s 及 18s 時,如 圖 3-5(b)、(c)發現原先光滑的奈米線表面已有明顯的二氧 化鈦奈米顆粒沉積,詳細實驗參數如表 3-5 所示。沉積時 間 9s 具有最佳的電化學量測性能,故後續實驗將由 TiO<sub>2</sub>-9s 進行探討。



圖 3-5 (a) TiO<sub>2</sub>-3s; (b) TiO<sub>2</sub>-9s; (c) TiO<sub>2</sub>-18s 之 FE-SEM 上視圖。

表 3-5 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O 異質膜層實驗之參數表(黃色為最佳參 對)

Substrate	Plasma	Precursor	Deposition	Plasma
temperature	flow	flow	time	Power
(°C)	(slm)	(sccm)	(s)	(W)
250	20	20	3	750
350	30	30	<mark>9</mark>	750
			18	

藉由 XRD 分析 TiO2 沉積 3s、9s、18s 後並未發現 TiO2 之繞射峰,推測可能結果為沉積時間過短導致,如 圖 3-6(a)所示,故進行 UV-VIS-NIR 來進一步確認得知其 中氧化銅能隙(約為 1.40eV),氧化亞銅能隙(約為 1.72eV), 二氧化鈦能隙(約為 3.19eV)確認二氧化鈦有確實鍍覆於 奈米線上,如圖 3-6(b)、(c)所示。XPS 分析結果如圖 3-7 所示,在 TiO2 2p<sub>3/2</sub> 軌域中有兩個鍵結能分別是對應到 458.6eV 的二氧化鈦以及 458.3eV 的三氧化二鈦,並證 實有二氧化鈦沉積於奈米線表面。TEM 分析結果如圖 3-8 所示,沉積二氧化鈦奈米顆粒時間為 9 s 之 TEM 明視 野及暗視野,此時可以發現奈米線表面已經有明顯的二 氧化鈦顆粒吸附於其表面,透過量測奈米線的晶面間距 為 0.246 nm 以及 0.213 nm,分別為氧化亞銅的(111)及 (220)結晶面及二氧化鈦奈米顆粒的晶面間距為 0.238 nm,為二氧化鈦(Anatase)之(004)結晶面。

最後進行電化學量測來分析單層銅氧化物奈米線 (PT300)及形成異質結構(TiO2-9s)兩者之光電性能。由圖 3-9(a)為 I-t 分析,其異質接面於開/關燈下所量測之光電 流密度均顯示出比原本銅氧化物奈米線之光電流密度更 高,最大光電流密度-6.37 mA/cm<sup>2</sup>,說明鍍覆二氧化鈦奈 米顆粒於銅氧化物奈米線上,因為其內部電場(IEF)建立 PN 異質接面,促進有效的電荷轉移和分離,抑制電荷重 組率,故能提高其光電流密度。二氧化鈦奈米顆粒/銅氧 化物奈米線於長時間下均顯示出良好的穩定性,說明其 膜層浸泡在電解液(硫酸鈉溶液)中不容易受到腐蝕,而鍍 覆二氧化鈦奈米顆粒能充當銅氧化物奈米線之保護層, 故不容易被腐蝕而呈現較佳的穩定性,使得電子進行傳 輸的壽命更長,不易受到損耗而造成電子-電洞對復合。 EIS 曲線的半圓弧表示阻抗,其半圓弧半徑越小,電阻越 低使得電荷載子分離性能更好,電子也較容易傳遞。由於 篇幅的關係,僅列出較相近膜層之代表論文的光電流密 度進行比較,如3-6所示,顯現本研究之成果優於代表國 際期刊發表之效率。



圖 3-6 (a)TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O 異質膜層時間序列 XRD 結果; (b)Cu<sub>x</sub>O-9 s; (c)TiO<sub>2</sub>-9 s 之 Tauc-plot 圖。



圖 3-7 TiO<sub>2</sub>-9 s 製程條件下 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O NW : (a)Cu 2p; (b) O 1s ; (c) Ti 2p 之 XPS 分析。



圖 3-8 顯示 TiO<sub>2</sub>-9 s 製程條件下 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O NW 之(a)明 視野圖;(b)暗視野圖;(c)高解析圖(HRTEM);(d)繞射 圖。



圖 3-9 顯示 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O NW 之(a)0 V(vs. RHE)下量測之 I-T 圖;(b)EIS 圖

表 3-6 TiO<sub>2</sub>/Cu<sub>x</sub>O 在 0 V (vs.RHE)下測得光電流密度比較

	衣	
異質結構	光电流密度	參考文獻
	$(mA/cm^2)$	
Cu <sub>x</sub> O/TiO <sub>2</sub> (NWs)	-2.43	[14]
Cu <sub>2</sub> O/TiO <sub>2</sub> (NFs)	-7.60	[15]
Cu <sub>2</sub> O/CuO(NPs)	-1.9	[16]
TiO <sub>2</sub> /Cu <sub>x</sub> O(NWs)	-6.37	This work
· /		

本研究是先沉積 P 型半導體再沉積 N 型半導體來形 成 PN 異質結構,在光照及外加偏壓下,生成的熱電子會 從 P 型半導體轉移到 N 型半導體上,最後電子會直接在 半導體與電解液接觸面發生產氫反應,如下圖 3-10 所示; 反之若先沉積 N 型半導體再沉積 P 型半導體,在光照及 外加偏壓下,生成的熱電子會從 P 型半導體轉移到 N 型 半導體上,再額外透過外部電路將電子傳輸到白金對電 極,最後在對電極發生產氫反應,如下圖 3-11 所示,相 比前者的 PN 異質結構,後者的 NP 異質結構所產生的熱 電子需要額外透過外部電路到達對電極發生產氫反應, 在外部電路傳輸過程中會有額外的傳輸損耗,額外的電 子損耗會造成量測到的光電流密度不理想,進而影響產 氫效率不佳等問題。



 $\begin{array}{c|c} e^{\bullet} & e^{\bullet} \\ \hline N-TiO_2 & P-Cu_2O & Electrolyte & p_1 \\ \hline e^{\bullet} & e^{\bullet} \\ \hline H^{+} & H^{+} \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\ \hline H_2 \\ \hline H_1 \\ \hline H_2 \\$ 

圖 3-10 光照下 TiO2/Cu2O 中電子-電洞轉移示意圖

圖 3-11 NP 異質結構電子-電洞轉移示意圖

0.5M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>

h+) h+

vs. NHE

本實驗利用常壓電漿噴流系統和先前對銅箔的蝕刻 處理成功在低溫 300℃ 短時間內生長出奈米線,並進一 步的結合長時間的退火處理達到高比表面積的氧化亞銅 奈米線結構。後續為了進一步提升整體光電化學產氫效 率,透過常壓電漿系統搭配化學氣相沉積法製備氧化鋅 奈米顆粒附著於氧化亞銅奈米線表面,形成 PN 異質結 構,在電極表面有效快速分離電子電洞對及增進對水的 氧化還原反應,實驗結果在 200℃ (20sccm) 的 10 s 下光 電流密度在 0 V (vs. RHE)量測出雙層可達到-7.72 mA/cm<sup>2</sup>, 約為純銅氧化物奈米線之光電流密度的 3.6 倍,並且在 ZnO/Cu<sub>2</sub>O的太陽能產氫效率最大可到 1.73%。本實驗還 使用常壓電漿噴流系統搭配化學氣相沉積法,在既有的 銅氧化物奈米線上沉積二氧化鈦奈米顆粒來形成(PN)異 質結構,沉積二氧化鈦的最佳參數為TiO2-98,沉積上去 的二氧化鈦奈米顆粒可以有效減緩奈米線在進行光催化 時被電解液腐蝕的速度,也可進一步提升其光電性能,並 在 0 V(vs. RHE)時有最佳的光電流密度約為-6.37 mA/cm<sup>2</sup>, 約為純銅氧化物奈米線之光電流密度的2.2倍,太陽能轉 氫效率最佳為1.1%。

### 參考文獻

- [1] Akira Fujishima and Kenichi Honda, "Electrochemical Photolysis of Water at a Semiconductor Electrode", Nature, 238(1972) 37–38.
- [2] Lin, Y. G., Hsu, Y. K., Chen, S. Y., Chen, L. C. and Chen, K. H., "Microwave-activated CuO nanotip/ZnO nanorod nanoarchitectures for efficient hydrogen production", Journal of Materials Chemistry, 21(2011) 324-326.
- [3] J. Li, X. Jina, R. Li, Y. Zhao, X. Wang, X. Liu and H. Jiao, Copper oxide nanowires for efficient photoelectrochemical water splitting, Applied Catalysis B: Environmental, 240 (2019) 1-8.
- [4] S. John and S. C. Roy, CuO/Cu<sub>2</sub>O nanoflake/nanowire heterostructure photocathode with enhanced surface area for photoelectrochemical solar energy conversion, Applied Surface Science, 509 (2020) 144703, 1-10.
- [5] W. Shi, X. Zhang, S. Li, B. Zhang, M. Wang and Y. Shen, Carbon coated Cu<sub>2</sub>O nanowires for photoelectrochemical water splitting with enhanced activity, Applied Surface Science, 358(2015) 404-411.
- A. Kargar, S. S. Partokia, M. T. Niu, P. Allameh, M. Yang, S. May, J. S. Cheung, K. Sun, K. Xu and D. Wang, Solution-grown 3D Cu<sub>2</sub>O networks for efficient solar water splitting, Nanotechnology, 25(2014) 205401, 1-10.
- [7] Y. J. Seo, M. Arunachalam, K. S. Ahn and S. H. Kang, Integrating heteromixtured Cu<sub>2</sub>O/CuO photocathode interface through a hydrogen treatment for photoelectrochemical hydrogen evolution reaction, Applied Surface Science, 551(2021) 149375, 1-12.
- [8] Y. Lv, J. Liu, Z. Zhang, W. Zhang, A. Wang, F. Tian, W. Zhao and J. Yan, Green synthesis of CuO nanoparticles-loaded ZnO nanowires arrays with enhanced photocatalytic activity, Materials Chemistry and Physics, 267(2021) 124703, 1-8.
- [9] Q. Ma, J. P. Hofmann, A. Litke, E. J. M. Hensen, Cu<sub>2</sub>O photoelectrodes for solar water splitting: Tuning photoelectrochemical performance by controlled

IV. 結論

faceting, Solar Energy Materials and Solar Cells, 141(2015) 178-186.

- T. Wang, Y. Wei, X. Chang, C. Li, A. Li, S. Liu, J. Zhang and J. Gong, Homogeneous Cu<sub>2</sub>O p-n junction photocathodes for water splitting, Applied Catalysis B: Environmental, 226(2018) 31-37.
- [11] A. A. Dubale, A. G. Tamirat, H. M. Chen, T. A. Berhe, C. J. Pan, W. N. Su and B. J. Hwang, A highly stable CuS and CuS-Pt modified Cu<sub>2</sub>O/CuO heterostructures as an efficient photocathode for the hydrogen evolution reaction, Journal of Materials Chemistry A, 6(2016) 2205-2216.
- [12] A. Paracchin, V. Laporte, K. Sivula, M. Gratzel and E. Thimsen, Highly active oxide photocathode for photoelectrochemical water reduction, Nature Materials, 10(2011) 456-461.
- [13] 陳彥儒,電化學沉積之鎮參雜與熱處理製程 N 型氧化亞銅薄膜應用於光電化學產氫之研究,國 立東華大學光電工程學系碩士論文,2017年。
- [14] Y. Zeng, J. Xue, M. He, C. Li, W. Zhu and S. Li, Investigation of interfacial charge transfer in Cu<sub>x</sub>O@TiO<sub>2</sub> heterojunction nanowire arrays towards highly efficient solar water splitting, Electrochimica Acta, 367(2021) 137426, 1-8.
- [15] A. Paracchin, V. Laporte, K. Sivula, M. Gratzel and E. Thimsen, Highly active oxide photocathode for photoelectrochemical water reduction, Nature Material, 10(2011) 456-461.
- A. Dey, G. Chandrabose, L. A. O. Damptey, E. S. Erakulan, R. Thap, S. Zhuk, G. Kumar Dalapati, S. Ramakrishna, N. St. J. Braithwaite, A. Shirzadi and S. Krishnamurthy, Cu<sub>2</sub>O/CuO heterojunction catalysts through atmospheric pressure plasma induced defect passivation, Applied Surface Science, 541(2021) 148571, 1-13

# 以電漿輔助製程與磊晶鍺層提升鐵電記憶體之多位元操作可靠度與抗輻射能力 Enhanced Multi-Level Cell Reliability and Anti-Radiation Capability for FeFET Memory by Plasma Enhanced ALD and Epitaxy Ge Film

計畫編號:111-NU-E-007-001-NU 計畫主持人:巫勇賢 e-mail:yunhwu@mx.nthu.edu.tw 計畫參與人員:彭皓楷、陳建智、李凱旋、黃凱揚、鄭聖諺、高唯甯 執行單位:國立清華大學工程與系統科學系

## 摘要

為了進一步提升 FeFET 鐵電記憶體介面品質以提 升可靠度,本計畫使用鍺(Ge)作為基板,搭配本團隊開 發之微波退火(MWA)和快速熱退火(RTA)製程,製作基 於氧化鋯鉿(HfZrOx、HZO)之p型通道 Ge p-FeFET 鐵 電記憶體,並以此為平台研究<sup>60</sup>Coγ-ray 輻射效應對元 件的影響。研究結果顯示,當元件照射總游離輻射劑量 達1 Mrad後,記憶視窗(MW)由2.5 V降至2.0 V,推 測此輻射效應造成的特性衰退主要是因為閘極介電層 與源/汲極之間界面品質較容易受到輻射效應而產生破 壞,導致更加嚴重的電荷捕獲所致。經過輻射照射後, Ge p-FeFET 會呈現較差的讀取延遲,這是因為在施加 正電壓脈衝進行寫入操作時,介面中所捕獲的大量電 子將會屏蔽極化電荷,使通道中載子無法在短時間內 產生變化,需要等待一段時間等電子移除後才能讀取 正確的臨界電壓(threshold voltage, V<sub>TH</sub>)。儘管如此,與 過去文獻所發表的 HZO FeFET 鐵電記憶體相比,本研 究所採用的 Gep-FeFET 仍具備具競爭力的抗輻射特性, 在低電壓操作下資料維持性預測可長達10年之久,經 過105次雙極性脈衝(±4 V/1 µs)對元件進行反覆寫入/抹 除,仍可維持 1.5V 的記憶視窗。而本研究是首度以 Ge p-FeFET 鐵電記憶體進行輻射相關測試,研究成果顯示 Ge p-FeFET 鐵電記憶體在經過輻射照射後仍保有低操 作電壓以及相關記憶體特性,有利於未來太空產業進 一步降低元件之功率消耗。

**關鍵字**:γ射線輻射、鐵電材料、鐵電記憶體、讀取延 遲、資料保存時間、耐久度

### Abstract

Zr-doped HfO<sub>2</sub> (HZO)-based germanium (Ge) pchannel ferroelectric FET (p-FeFET) memory devices with microwave annealing (MWA) followed by rapid thermal annealing (RTA) are employed as the platform to investigate the impact of  $\gamma$ -ray radiation on the device performance. With a radiation dose of 1 Mrad, the memory window (MW) degrades from 2.5 V to 2.0 V accompanied by the significantly increased off-state current. The deleterious radiation effect is ascribed to the susceptible quality of the interface between the gate dielectric and source/drain region due to exacerbated charge trapping for the Ge substrate. These trapped charges also screen the polarization charges after applying a voltage pulse and lead to increased read-after-write latency. Nevertheless, compared with the irradiated HfO<sub>2</sub>-based FeFET memories in the literature, the Ge p-FeFET in this work demonstrate competitive anti-radiation capability in terms of a large MW of 1.5 V even after  $10^5$  cycles by bipolar stress (±4 V/1µs) and desirable retention up to 10 years under low voltage operation.

**Keywords:**  $\gamma$ -rays radiation, HfZrO<sub>x</sub>, ferroelectric material, FeFET memory, read-after-write latency, retention, endurance

## I. 前言

當 Space X 公司開始佈建 Starlink 系統後發射火箭 搭載小型低軌衛星(low earth orbit, LEO, 距地球約 160-2000 公里)成為常態、當美國毅力號探測車成功登陸火 星、中國嫦娥號探月器順利著陸月球後太空探索成為 各國競逐的場域、當軌道組裝公司 OAC (Orbital Assembly Corporation)宣佈太空旅館計畫後太空旅行程 成為人們夢想的旅程,這些近幾年發生的變化正逐漸 改變人們對於太空活動的想像,已由軍事與科學研究 延伸到人們的生活日常。尤其是進入後疫情時代,全球 5G 網路的建置速度將更勝以往,然而 5G 訊號為 24 GHz-100 GHz 的毫米波,比起 4G 的訊號其波長更短, 更容易受到地貌環境的干擾,故以低軌衛星來提升其 訊號覆蓋率(覆蓋範圍達 4000 公里),解決某些地形無 法建構基地台的困擾成為了 5G 通訊的必要方案。採用 低軌衛星的優點在於距地球距離較近,訊號傳遞之延 遲時間(latency)較小,且允許地面每個基地台擁有多個 頻道波長可以使用,故與同步軌道衛星相較之下具有 較高頻寬。由近期在太空活動上所發生的主要事件可 以觀察到未來低軌衛星輔助無線通訊以及頻繁的太空 探索將會是個不可避免的趨勢,而隨之而來的就是對 於衛星與飛行器上電子產品運算與記憶效能的高度需 求。

儘管如此,自美國太空總署 NASA 早期的任務至 今,如何在極端的環境(極端溫差、低壓與輻射)下維持 記憶體元件效能一直是重要的課題。在極端溫差方面, 雖然在太空中的溫差變化極為劇烈,但目前衛星與飛 行器內溫度約可維持在-10~20 °C 之間,因此溫差不會 是太大的問題。低壓環境造成的困難則是在缺乏大氣 的情況下要以對流的方式散熱幾乎不可能,因此採用 低功耗的記憶體是唯一的選擇。前述的問題都有解決 方案,但唯獨輻射所造成的記憶體可靠度問題仍然是 嚴苛的挑戰。低軌道衛星所承受的輻射主要源自每天 通過數次的內層 Van Allen 輻射帶。內層 Van Allen 輻

射帶最大的質子與電子流量(flux)大約出現在距地球約 3000 公里之處,中軌衛星的佈署即屬於這個範圍。儘 管低軌道衛星最高僅 2000 公里,但其輻射劑量估計可 達 30 krad/年或更高。

簡而言之,5G 通訊技術中佈署了大量採用非太空 應用等級零件的小型衛星,而這種採用便宜商用元件 的小型衛星雖然成本上具有優勢,但如何整合新世代 半導體技術與電漿製程提升記憶體的抗輻射性是絕對 必要的。除了衛星的應用,核能產業與醫學物理相關的 醫療電子系統也有對於抗輻射元件有高度需求,也凸 顯了相關研究的重要性。

傳統快閃記憶體是以電荷儲存於浮動閘極 (floating gate)或電荷儲存層(charge trapping layer)與否 作為判斷邏輯 0 與 1 的依據。然而這樣的儲存機制易 受到α粒子(alpha particles)、宇宙射線、重離子、γ 射 線或 x-rays 等因素之影響導致電荷流失與資料反轉。 有別於快閃記憶體以電荷儲存與否決定邏輯訊號,鐵 電記憶體(Ferroelectric Memory,包括 FeRAM 與 FeFET),電偶極(dipole)極化方向判斷邏輯訊號,這樣 的特性可以避免快閃記憶體電荷流失的風險,預期對 於抵抗輻射的能力會高於快閃記憶體。

## II. 主要內容

鐵電材料應用於記憶體主要分為兩種結構,包括(1) 一個電晶體搭配一個鐵電電容的 FeRAM 與(2)單一電 晶體形式的 FeFET。FeFET 在結構上比 FeRAM 更為簡 化,屬於非破壞讀取。此外,由於 FeFET 鐵電記憶體 其多位元實現能力(multi-level cell, MLC)、權重調整的 對稱性、精準性、元件均勻性、操作速度與功率消耗均 優於其他新形態的記憶體,加上與現有積體電路製程 相容的 HfOx 鐵電層已於 2011 年問世,因此近年來 FeFET 鐵電記憶體不論在實現高密度的資料儲存或創 新運算架構的 In-Memory Computing 應用均受到高度 的議程討論。考量 FeFET 記憶體在元件效能、製程整 合性與抗輻射等優勢,FeFET 將是應用於未來太空產 業極為重要的選項,相當值得投入資源進行進一步的 開發。

FeFET 作為非揮發記憶體應用最大的挑戰為可靠 度表現仍有待加強,其中包括❶ 資料保存隨時間流失 效應(retention loss effect)、❷ 極化量隨操作次數劣化的 疲乏效應(fatigue effect)與8 印記效應(imprint effect)。 事實上,上述 FeFET 的挑戰的根源來自於鐵電層沉積 於半導體介面所形成的介面層,而這層介面層的效應 在金屬/鐵電層/金屬 (M-F-M)結構較不明顯,因此欲評 估 FeFET 記憶體的抗輻射效應,金屬/鐵電層/半導體 (M-F-S)結構是絕對必要的。這層介面層與氧空缺 (oxygen vacancy)及電荷捕獲(charge trapping)有關,是實 現高可靠度操作最重要的考量。以上為未照射輻射下, FeFET 記憶體面臨的挑戰,而照射輻射下鐵電層可能 會受到離子化而產生電子/電洞對,而這些被產生出來 的電子/電洞很容易受到多晶(poly-crystalline)鐵電層晶 界(grain boundary)缺陷的捕獲(因電子遷移率較大,故 以電洞為多數),或因為鐵電層鍵結斷裂產生以氧空缺 為主的缺陷,進而影響鐵電層的特性,甚至會因為電洞

遷移過程釋放出氫離子(質子)造成介面品質惡化,這些 效應均導致輻射下的 FeFET 記憶體面臨更加嚴峻的挑 戰。

感謝國科會與原能會的計畫支持,本團隊 2022 年 採用 HZO 鐵電層搭配 AION 緩衝層之 n-FeFET 及 p-FeFET 鐵電記憶體,並探討照射不同程度之總游離劑 量對鐵電記憶體其特性和可靠度的影響,其研究結果 順利發表於 IEEE Electron Device Letters 期刊。由結果 可知不論是 n-FeFET 或 p-FeFET 鐵電記憶體,在照射 游離輻射之後其記憶體視窗幾乎沒有改變,且資料保 存能力在延長十年預估線仍能維持 3 個數量級的電流 開關比。相較 n-FeFET 鐵電記憶體,本團隊最大的貢 獻為首次探討 p-FeFET 鐵電記憶體讀取延遲受輻射劑 量的影響,儘管 p-FeFET 鐵電記憶體視窗較小,然而 因其具有更好的耐久度及可靠度,在高輻射環境下依 舊可以保持更為優異的讀取延遲,故 p-FeFET 鐵電記 憶體比起 n-FeFET 鐵電記憶體更適合在高輻射環境下 進行高速應用,有望在太空環境實現高速度操作下的 低延遲通信。上述研究成果從實驗驗證以 HZO 鐵電層 製作之 p-FeFET 鐵電記憶體具備更為優異抗游離輻射 之特性,本年度將進一步採用 Ge 晶圓整合介面工程, 以 Ge p-FeFET 鐵電記憶體實現低操作電壓、高記憶視 窗與高可靠度之抗輻射元件。

為了提升鐵電記憶體的抗輻射能力,本計畫將以 本團隊開發之微波退火(MWA)和快速熱退火(RTA)製 程為基礎,從(1)材料、(2)製程與(3)元件結構等三個面 向進一步強化 FeFET 記憶體之抗輻射性。

- (1) 材料方面,本計畫將採用 Ge 晶圓取代 Si 作為基板 材質製作元件,根據本團隊 2018 年 Symp. VLSI Technology 提出研究數據可以推測 Ge FeFET 因為 更為優異的介面品質故可獲得更好的可靠度。
- (2) 製程方面,本計畫將於 ALD 製程中採用 O2 電漿先 對 Ge 晶圓進行處理並沉積 Al<sub>2</sub>O3 進一步鈍化表面, 降低缺陷密度。
- (3) 元件結構方面,本計畫將採用 p-FeFET 取代 n-FeFET 記憶體以抑制 fatigue 效應。

整體而言,本計畫主要的研究工作是以Ge 晶圓為 基板,並搭配高介電常數介面層,製作基於 HZO 之 FeFET 鐵電記憶體。藉由製程、材料與元件結構提升 HZO 鐵電層品質、抑制 HZO/Ge 間介面層之缺陷密度 並降低反覆操作下載子注入被捕獲的機率,用以強化 元件可靠度與抗輻射性。<u>主要的成果已被 2023 IEEE</u> Electron Device Letters 接受(Investigation of Radiation Effect on Ge P-Channel Ferroelectric FET Memory, Early Access-https://ieeexplore.ieee.org/document/10097859)

## III. 結果與討論

### 3.1 輻射照射對鐵電薄膜剩餘極化量影響

首先,針對 TEM 影像局部進行快速傅立葉變換衍射圖 案(FFT),如圖 1 的 HZO 層虛線方框,可確認 HZO 層 具有常見的正交晶相(orthorhombic phase)繞射點,證實 具有鐵電結晶特性。透過能量色散 X-射線光譜(EDX) 對各層之間進行掃描,可確認 Ge 元素訊號僅介於 Ge 基板與 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 介面中,證實額外生長的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 層可有效 防止退火後來自基板的 Ge 元素擴散。圖 2 和圖 3 分別

為照射輻射與未照輻射的元件(<sup>60</sup>Coγ-ray、1 Mrad),在 反覆循環操作後的磁滯曲線變化,此量測是透過直接 將 FeFET 鐵電記憶體的源極、汲極和基板相連,可避 免元件進入深空乏(deep depletion)區而影響磁滯曲線 結果[1]。在反覆循環操作後,照射輻射的元件其磁滯曲 線明顯向正電壓方向平行移動,而未照輻射的元件則 幾乎沒有變化。如圖 4 所示,儘管輻射對於反覆循環操 作下的 Pr 值並無明顯影響,從圖 5 所示的負矯頑電壓 (coercive voltage, V<sub>c</sub>)和內建偏壓(internal bias, V<sub>bias</sub>)[2] 的變化可發現,經過輻射照射的元件具有更大的負V。, 且 Vbias 在反覆操作後有更大的變化。根據文獻指出, 由於 <sup>60</sup>Co γ-射線的輻射能量並不足以誘發晶體結構變 形[3],因此負 Vc和 Vbias 在輻射照射後的差異,可推論 為輻射導致氧空缺在 Ge/HZO 界面附近增生使鐵電疇 發生釘札(domain pinning)[4], [5], 一般而言氧空缺帶 有正電荷,可作為載子傳輸的電荷陷阱[6],透過施加正 三角脈衝和負三角脈衝來測量遲滯曲線。在正三角脈 衝週期,需使鐵電疇形成向下的偶極。然而,當 Ge/HZO 介面具有帶正電荷的氧空缺時,首先必須將固定向上 的偶極去釘札後,才能使其餘的偶極進行極化反轉,在 此過程中會使用更高的電壓來形成向下的偶極,使正 Vc上升。當正三角脈衝電壓下降至0V時,由於部分 電子仍困於氧空缺中,使氧空缺帶負電。在施加負三角 脈衝週期,困住的電子將被移除,使氧空缺回復成帶正 電。隨著反覆操作次數增加,氧空缺的數量會越來越多, 且經過輻射照射的元件具有較大的增幅,使 V。朝向正



方向移動的情況更加嚴重。

圖 1 Ge p-FeFET 鐵電記憶體之結構示意圖、TEM 影 像局部進行 FFT 與 EDX 分析



圖 2 無輻射照射之 p-FeFET 其極化值-電壓(P-V)圖與 操作次數之關聯性



圖 3 輻射照射之 p-FeFET 其極化值-電壓(P-V)圖與操 作次數之關聯性



圖 4 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其極化值隨操作次 數之關聯性



圖 5 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其矯頑電壓偏移關 係圖

#### 3.2 輻射照射對 Ge p-FeFET 鐵電記憶體基本特性影響

為了進一步研究輻射對 FeFET 鐵電記憶體的影響, 圖 6 顯示施加±4 V 脈衝下, Ge p-FeFET 之脈衝 IDs-VGs 曲線在輻射照射後的變化。在施加+4 V 脈衝電壓下, 經過輻射照射後的元件其寫入態(program state, PGS)之 IDS-VGS 曲線向右偏移,而元件在施加-4 V 脈衝後,抹 除態(erase state, ERS)之 IDs-VGs 曲線則幾乎維持不變, 輻射照射前後之記憶視窗(MW)大小如長條圖所示。在 寫入熊中,當 Ge/HZO 介面具有一定量的被捕獲電子 (trapped electrons)時,會形成向下的偶極,值得注意的 是,由於輻射會導致 Ge/HZO 界面會產生更多的界面 陷阱[7],因此輻射照射之元件中 trapped electrons 的數 量會比未經輻射的元件來得更高。這些界面陷阱可歸 因為能帶受體(acceptor level)附近的懸鍵(dangling bond) 以及氧空缺易於捕獲電子[8]。對於經過輻射的元件,氧 空缺增加導致更多的 trapped electrons 形成, 並且在 p-FeFET 的通道中引起更多的電洞,造成 VTH 向正電壓 方向偏移,而過去亦有相關文獻指出 trapped electrons 會引發記憶視窗縮減[9]。此外,經輻射照射之 Ge p-FeFET 在關閉狀態的汲極漏電流和次臨界擺幅(subthreshold swing)皆發生明顯劣化,如圖1所示,這些劣

化源自於閘極與源極/汲極區域之間介面品質破壞。圖 7 顯示不同寬度的-4 V 電壓脈衝對 Ge p-FeFETs 切換 特性的影響。與未照射輻射的元件相比,經過輻射照射 後的 Ge p-FeFET 展現出相近的切換速度。



圖 7 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其操作速度比較

### 3.3 輻射對 Ge p-FeFET 鐵電記憶體讀取延遲之影響

讀取延遲時間是非揮發性記憶體的另一個重要性 能指標,代表記憶體在施加寫入電壓,需等候多久的時 間方能讀取出正確的 VTH。圖 8 顯示施加+4 V 寫入電 壓後,進行連續脈衝 ID-VGS 曲線掃描,而每條曲線掃 描所花費的時間約為 50 us,而隨著延遲時間增加,則 ID-VGS 曲線逐漸向左位移,以抹除態之 VTH 作為基準, 考量到照射輻射前後 Ge p-FeFET 記憶視窗不同,讀取 延遲以正規化(normalized)之記憶視窗變化結果表示, 如圖 9。與未照射輻射元件相比,經過輻射照射後的 Ge p-FeFET 在 40 us 間隔時間下進行讀取會有較小的記憶 視窗,並需要 0.01 秒才能達到未照輻射元件相同的水 準。由此結果明顯可看出,輻射對於 Ge p-FeFET 鐵電 記憶體讀取延遲具有相當程度的影響,其背後的原因 可能源自於輻射會破壞 Ge/HZO 介面品質,當施加+4 V脈衝後,較差的介面將發生顯著的電荷捕獲,同時屏 蔽部分的極化電荷使通道無法及時感應出載子,需要 等一段時間使介面中的 trapped electrons 隨時間排除後 才能讀取正確的 V<sub>TH</sub> [10], 導致 p-FeFET 喪失快速讀取 能力,由此結果顯示,儘管已採用先微波後快速熱退火 的混合方案來大幅提升 Ge/HZO 介面品質,然而讀取 延遲仍會受輻射照射而有明顯的記憶視窗衰減,未來 將嘗試更多的介面工程來抑制輻射能量所造成的介面 特性衰减。



圖 9 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其讀取速度之比較

### 3.4 輻射對 Ge p-FeFET 鐵電記憶體可靠度之影響

圖 10 顯示經過輻射照射的 Ge p-FeFET 鐵電記憶 體,寫入態和抹除態 IDs-VGs 曲線在移除外加脈衝後隨 資料保存時間增加的變化。隨著時間上升至 104 秒其 IDS-VGS 曲線,照射輻射前後元件 VTH 隨時間變化則整 理於圖 11。隨著時間增加,儘管輻射照射後 VTH 在抹 除態與未照輻射元件相比有更快的退化趨勢,然而在 10 年預測線下 Ge p-FeFET 無論是否照射輻射皆能維 持兩個狀態,照射輻射後仍可維持明顯的 1.4 V 記憶視 窗。圖 12 顯示 Ge p-FeFET 耐久度在經過輻射照射後 之變化,測試過程中採用寬度為 1 us 的 ±4 V 雙極性 脈衝對元件進行反覆寫入/抹除。在未照輻射前,元件 可反覆操作高達 10<sup>7</sup> 次、記憶視窗仍維持 1.8 V, 而經 過輻射照射後之 Ge p-FeFET 僅可操作 105次,且記憶 視窗只剩 1.5 V。為了探討耐久度衰退的原因,圖 13 萃 取反覆操作過程中次臨界擺幅的變化,經輻射照射後, Ge p-FeFET 反覆操作前即有較高的次臨界擺幅,代表 輻射照射會使 Ge/HZO 介面變差,在反覆施加電壓後 靠近源/汲極與閘極介面會發生嚴重破壞,導致大量的 電荷捕獲發生[11]。此外,鐵電層極化亦會使能帶彎曲 變大並增強穿隧電荷的能量,導致介面發生劣化[12]。 儘管 Ge p-FeFETs 在輻射照射特性有所劣化,與 Si FeFET 元件相較,操作電壓、記憶視窗與可靠度仍具有 競爭優勢。



圖 10 Ge p-FeFET 照射輻射後汲極電流-電壓(I-V)與保存時間之關聯性



圖 11 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其資料保存能力之 比較



圖 12 有無照射輻射之 Ge p-FeFET 其耐久度之比較



圖 13 Ge p-FeFET 輻射前後之次臨界擺幅變化圖

## IV. 結論

本計畫探討輻射效應對於 Ge p-FeFET 記憶體效能 之影響。在<sup>60</sup>Co γ-ray 1 Mrad 的累計輻射總劑量下,由 於輻射造成的介面破壞,Ge p-FeFET 記憶視窗下降為 2.0 V 以及些微增加的讀取延遲,儘管耐久度表現也有 些許劣化,與Si 作為基板的 FeFET 相比,無論是初始 或是反覆操作後的 Ge p-FeFET 仍保有許多競爭優勢。

# 参考文獻

- [1] H. K. Peng et al., *IEEE Electron Device Lett.*, 43, 494 (2022).
- [2] P. D. Lomenzo et al., J. Appl. Phys., 117, 1340105 (2015).
- [3] F. Huang et al., *IEEE Electron Device Lett.*, 38, 330 (2017).
- [4] W. L. Zhang et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 22, 21893 (2020).
- [5] Q. Sun et al., *J Mater Sci: Mater Electron*, 31, 2049 (2000).
- [6] D. R. Islamov et al., *Acta Mater.*, 166, 47 (2019).
- [7] C. X. Zhang et al., *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 57, 3066 (2010).
- [8] G. A. Boni et al., *Phys. Status Solidi A*, 218, 200500 (2020).

- [9] K. Toprasertpong et al., *IEEE Trans. Electron Devices*, 69, 7113 (2022)
- [10] Z. Wang et al., *IEDM Tech. Dig.* 19.3.1 (2021).
- [11] E. Yurchuk et al., *IEEE Trans. Electron Devices*, 63, 3501 (2016)
- [12] N. Gong et al., *IEEE Electron Device Lett.*, 39, 15 (2018).

# 高溫離子佈植及氮電漿製程應用於氮化鎵功率元件特性改善研究 Performance Improvement of GaN Power Devices by High-Temperature Ion Implantation and Nitrigen Plasma Treatment

計畫編號:111-NU-E-007-004-NU 計畫主持人:梁正宏 e-mail:jhliang@ess.nthu.edu.tw 計畫共同主持人:趙得勝 計畫參與人員:林亞勳、余岳倫、王湲媛 執行單位:國立清華大學核子工程與科學研究所

## 摘要

在元件結構設計開發中,離子佈植被廣泛使用於基 板內形成異質摻雜區域,然而,離子佈植所誘發的輻射 損傷則將導致元件性能下降。本計畫藉由 SRIM 電腦 計算程式,根據實驗規劃預測鎂離子佈植於氮化鎵基板 深度。以新穎的高溫離子佈植技術,採用雙重能量且製 程溫度 300°C 的條件進行鎂離子佈植於 GaN on Si 基板,並提出以氮電漿製程進行表面處理,並探討電漿 製程條件(如:功率、時間)對材料特性的影響,並以此 製程促進表面缺陷修復並改善金屬電極與基板的附著 性。在退火製程中,先行沉積 40 nm Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 保護層,在 氦氣氛圍中於傳統快速熱退火製程中 1150°C 持溫 20 秒,進行缺陷修復。藉由二次離子質譜儀分析,可以得 知鎂濃度約1×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>且佈植層厚度約 100 nm,與 SRIM 預期結果高度吻合。TLM method 的 I-V 特性顯 示電流值上升,可以證明氮電漿表面處理後,其接觸電 阻能夠獲得大幅改善。經由拉曼光譜分析,研究結果指 出增加氮電漿製程時間有助於修復佈植引入的輻射損 傷及移除壓應力,說明能夠有效地補償氮空位(V<sub>N</sub>)缺陷。 關鍵詞:寬能隙半導體、氮化鎵、鎂離子佈植、輻射損 傷。

### Abstract

The ion implantation technology used for device design and development to form extrinsic doping regions in the substrate can lead to a degradation of device performance. To address this issue, this research project proposes a novel high-temperature ion implantation technique, which is performed by implanting Mg ions into GaN on Si substrate at 300°C. SRIM computer code was adopted to forecast the depth of Mg implanted into the GaN substrate in advance. Moreover, a nitrogen plasma process was proposed to conduct surface treatment and enhance the material properties. The plasma process parameters, including RF power and time, were adjusted to investigate their influence on the material properties of GaN. A 40 nm Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> capping protective layer was first deposited on the GaN surface and the samples were then annealed by a conventional rapid thermal anneal at 1150°C for 20 s in flowing N<sub>2</sub> ambient. The depth profile measured by secondary ion mass spectroscopy (SIMS) shows that the doped Mg concentration and depth box profile are  $1 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup> and 100 nm, respectively, which is consistent with the SRIM-simulated results. The TLM structure analysis shows an increase in current and an improvement in contact resistance after the surface treatment by nitrogen plasma. Raman spectra indicates that the nitrogen plasma treatment process can remove the ion implantation-induced damage and compressive stress through eliminating the nitrogen vacancies (V<sub>N</sub>).

**Keywords**: Wide band gap semiconductor, Gallium nitride, Mg ion implantation, Radiation damage.

# I. 前言

氮化鎵(Gallium Nitride, GaN)材料具有優異的寬能 隙、高臨界崩潰電場及高電子遷移率的本質特性。離子 佈植製程具有精準的能量及劑量控制能力,因此被廣泛 用於元件製程中形成 PN 接面。在氮化鎵中形成 P型 結構有乾蝕刻技術及再成長技術(regrowth)方法。然而 乾蝕刻產生的高密度電漿在材料內部引入的缺陷將形 成一條漏電路徑,導致元件的逆向漏電流上升 [1]。而 再成長技術則面臨了成長 P 型區域時,前一段 N 型區 域沉積製程時,Si 元素容易累積在 N 型表面,再接續 P 型區域沉積製程時,無法避免 Si 元素擴散而形成 N 型摻雜 [2],因此,離子佈植製程應用於氮化鎵 P 型則 成為了不可取代的技術。

目前 P 型氮化鎵的主流為參雜鎂離子,然而鎂離 子佈植於氮化鎵仍然有許多需要克服的難題。離子佈植 製程會在材料內部引入輻射損傷而產生大量的缺陷,可 能導致多數載子被補償而形成半絕緣(semi-insulating) 的材料 [3]。目前常見的缺陷可以區分為鎵空位( $V_{Ga}$ )、 鎵間隙原子( $Ga_i$ )、氮空位( $V_N$ )及氮間隙原子( $N_i$ ),此外, 目前廣泛被採用的 Ga-polar 基板,表面亦存在大量的 氮空位( $V_N$ ),都將導致元件的性能衰退。為了能夠修復 離子佈植所引入的大量缺陷,快速熱退火處理是一步可 靠且穩定的熱處理製程,可以有效率地移除缺陷並活化 自由載子。氮化鎵材料的缺陷修復尚需考慮缺陷的遷移 及移除能障(removal energy barriers),根據密度函數理 論(Density functional theory, DFT)計算 [4],鎵空位( $V_{Ga}$ ) 及其間隙原子( $Ga_i$ )的遷移能障分別為1.9 eV 及 0.9 eV, 相較於氮空位( $V_N$ )及其間隙原子( $N_i$ )的 2.6 eV 及 1.4 - 2.1 eV,意味著 V<sub>Ga</sub> 及 Ga<sub>i</sub> 比氮原子相關的缺陷更容 易擴散和修復。因此修復氮化鎵材料缺陷的主要目標則 聚焦在氮原子相關缺陷。

在此計畫中,本研究團隊首度提出在鎂離子佈植氮 化鎵製程後,以純 N2 氮電漿進行表面處理後進行快速 熱退火處理,以減少表面氮空位缺陷及離子佈植引入的 輻射損傷缺陷,並使用 TLM 量測、拉曼光譜評估其修 復效果。

## Ⅱ. 實驗方法

本研究在材料基版的選擇上,考量 free-standing 的 GaN on GaN 基板尚處於製程不成熟且價格高昂的階段, 故採用 GaN on Si 基板。該基板採用金屬有機化學氣相 沉積系統(Metal-Organic Chemical Vapour Deposition, MOCVD)於 6 吋矽晶圓上依序磊晶 1 µm AlGaN 緩衝 層、1  $\mu$ m N<sup>+</sup>-GaN(N<sub>d</sub> > 5 × 10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup>)及 2  $\mu$ m N<sup>-</sup>-GaN (N<sub>d</sub> ~1×10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup>)。將晶圓切割成 1.2 cm×1.2 cm後,經 由丙酮、異丙醇超音波震盪及浸泡 Buffer Oxide Etch (BOE)溶液的標準清洗步驟後備用。於佈植前使用台灣 半導體研究中心的電漿輔助化學氣相沈積系統(Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition, PECVD)沉積 40 nm 的 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 保護層。離子佈植製程條件為溫度 300℃ 並傾斜7度角, 雙能量鎂離子佈植參數為40 keV 2.8× 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup>, 100 keV 1.3×10<sup>14</sup> cm<sup>-2</sup>, 待佈植完成後浸泡於 BOE 中以移除表面的 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 保護層。在快速熱退火製 程前,使用氮電漿系統進行表面處理,氮電漿製程條件 為 N2 氣體流量 100 sccm, RF 功率製程條件規劃為 50 W 及 100 W, 製程時間為 2.5 及 5 分鐘。氮電漿製程完 成後,使用 PECVD 沉積 40 nm 的 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>,作為快速 熱退火處理的表面保護層。快速熱退火製程採用台灣半 導體研究中心的快速升溫退火爐, 製程為於 N2 氛圍中, 於 1150℃ 退火 20 及 40 秒。待完成之後,浸泡於 BOE 中移除表面的 Si<sub>3</sub>N4 保護層,並於 XPS 中確認 沒有來自矽原子的訊號,以利後續的材料分析及金屬電 極沉積。

### III. 結果與討論

### 3.1 SRIM 與 SIMS 結果比較

透過使用 SRIM(Stopping and Range of Ions in Matter),模擬離子佈植縱深分佈,如圖 1 所示。40 keV/100 keV 鎂離子佈植於 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/GaN 的結構中,投 影射程(Projectd range, R<sub>P</sub>)分別為 48.6 nm 及 89.4 nm。 若將佈植劑量與 SRIM 結果合併計算,可以得知雙能 量鎂離子佈植預期能在氮化鎵基板內部形成濃度 1× 10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>, 深度約 100 nm 的佈植層。完成離子佈植製 程後,藉由二次離子質譜儀(Secondary Ion Mass Spectroscopy, SIMS)進行鎂離子濃度縱深分析,並與 SRIM 的模擬結果進行比較,如圖 2 所示。相較於 SRIM 的模擬結果,從 SIMS 分析結果中發現,材料表 面的鎂離子佈植濃度些微低於 SRIM 預測濃度,且鎂 離子佈植的濃度分佈更深入基板內部。其原因為 SRIM 模擬假設環境溫度為絕對0K,且未能考慮材料的擴散 係數進行計算。此外,本研究採用 300℃ 的高溫鎂離 子佈植,從而導致鎂離子於基板內部發生擴散效應。



圖 1.40 keV、100 keV 雙能量鎂離子入射 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/GaN 基板之 SRIM 模擬縱深分佈



圖 2 鎂離子佈植 Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/GaN 基板 SRIM 與 SIMS 結 果比較

### 3.2 TLM 量測結果

透過 TLM 分析氮電漿表面處理對於基板表面的 缺陷修復及金屬接觸特性的改善影響,圖 3 分別為未 佈植、鎂佈植無氮電漿處理及鎂佈植有氮電漿處理,並 藉由 TLM 方法量測電流-電壓特性曲線。如圖 3 所示, 未佈植的氮化鎵試片可以量測得到優異歐姆接觸特性, 而雙能量鎂離子佈植及快速熱退火製程處理過的氮化 鎵試片,其呈現非線性電流電壓特性。此外,經過 50 W, 2.5 分鐘氮電漿處理過的試片恢復至趨於線性的電 流電壓特性。圖 4 為電壓等於 0.5 V 時萃取得到的總 電阻與間距之關係,並根據 TLM 公式可求得接觸電 阻與片電阻值,公式表示如下:

$$R_T = \frac{R_{sh}}{Z}(d+2L_T)$$

R<sub>T</sub> 為總電阻值、R<sub>sh</sub>為片電阻值、z 為電極寬度、 d 為兩電極的間距及 L<sub>T</sub> 為傳輸長度,定義為電流從金 屬-半導體-金屬所通過的距離。計算結果如圖 5 所示, 未佈植的氮化鎵試片其測得接觸電阻為 1.01 mΩcm<sup>2</sup>, 若經過鎂離子佈植並未經過氦電漿處理,則大幅上升至 12245 mΩcm<sup>2</sup>,可以得知離子佈植在基板表面誘發大量 的輻射損傷氮空位( $V_N$ )缺陷,並未在快速熱退火階段修 復完成。經過氦電漿處理過後,接觸電阻則下降至 111 mΩcm<sup>2</sup>,意味著氦電漿表面處理提供的額外氮原子,有

助於在快速熱退火製程時修復氮空位(V<sub>N</sub>),並改善金屬 與氮化鎵表面的接觸特性。



圖 3 (a)未佈植、(b)Mg 離子佈植無氮電漿處理經過 RTA 處理、(c) Mg 離子佈植有氮電漿處理且經過 RTA 處理的不同間距電流電壓特性曲線



圖 4 經由 TLM 結構量測總電阻與間距關係

### 3.3 拉曼光譜量測結果

拉曼光譜測量主要目的為分析材料的結晶特性及 應力變化,本計畫採用 532 nm 的入射雷射光且在室溫 中進行分析。圖 5 為氮化鎵試片經由不同氮電漿製程 參數表面處理的拉曼光譜圖,並與未佈植及有無氮電漿 處理的試片進行比較。

六方晶系的氮化鎵材料特徵能峰主要為 567 cm<sup>-1</sup> 的 E<sub>2</sub>(high),其為氮原子橫向震動產生的訊號,氮原子 及鎵原子縱向震動貢獻位於 734cm<sup>-1</sup> 的 A<sub>1</sub>(LO)的能 峰訊號 [5],其主要為極性聲子(polar phonons)導致的聲 子-電漿子(plasmon)耦合作用 [6]。如圖 5 所示,經過 鎂離子佈植後未進行快速熱退火的試片,在低頻率(200 - 400cm<sup>-1</sup>)的背景強度有些微上升,原因為離子佈植於 基板內部引入的輻射損傷導致瑞利散射(Rayleigh scattering)增強 [7], 而通過快速熱退火製程的試片則無 此明顯特徵,意味著大部分的輻射損傷可以成功被修復。 根據文獻指出鎂離子佈植所引入的間隙原子 (Interstitial), 如 Mgi, Ni, Gi 或產生的氮空位(VN)都會在 材料內部產生大量的壓應力(Compressive stress),佈植 的元素取代原始晶格的原子也會造成晶格膨脹,並導致 E2(high)波峰向右位移 [7,8]。如圖 6 所示, 鎂離子佈植 後 E<sub>2</sub>(high)從 567.08cm<sup>-1</sup> 位移增加至 567.43cm<sup>-1</sup>,證 實鎂離子佈植在晶格原子內引入壓應力。透過僅有經過 快速熱退火處理過的試片,可以從 E2(high)的波峰位置 不變,判斷材料內部的壓應力並沒有被消除。但經過50 W,5分鐘的氮電漿處理,可以發現 E2(high)大幅向左位 移至 566.37 cm<sup>-1</sup>,歸因於氮電漿製程除了修復鎂離子 佈植引入的缺陷,也有助於原生缺陷(Native defects)的 修復,同時移除了材料的壓應力。此外從圖 6 中的波 峰位移可以發現,若是固定相同的電漿製程時間 5 分

鐘,100 W 的氦電漿製程更有助於修復缺陷。且無論在 50 W 或 100 W 的氦電漿 RF 功率中,相較於 2.5 分 鐘製程時間,將時間增加至 5 分鐘的氦電漿處理,可 以發揮更大的效益。從  $E_2(high)$ 的位移趨勢可以得知氦 電漿製程的功率參數對於缺陷修復的效益不及時間參 數影響顯著。文獻指出,離子佈植引入的輻射損傷可能 導致晶格結晶性下降,若是輻射損傷足夠大則會形成非 晶質區域(amorphous),並導致  $E_2(high)$ 的半高寬(Full width half maximum, FWHM)提升 [9]。如圖 7 所示,  $E_2(high)$ 的半高寬在未佈植時為 4.27 cm<sup>-1</sup>,在鎂離子佈 植後並無大幅度改變,因此可以推論本研究中採用的雙 能量鎂離子佈植及劑量,尚未對氦化鎵基板的結晶性產 生影響。此外,經由氦電漿處理過後的氮化鎵試片,其  $E_2(high)$ 的半高寬依然維持在~4.2 cm<sup>-1</sup>。

圖 8 為 A<sub>l</sub>(low)特徵能峰強度與氮電漿製程參數 關係。結果顯示經過鎂離子佈植後,A1(low)的強度大幅 上升,歸因於離子佈植於基板內部引入的缺陷能階導致 自由載子濃度下降。然而經過快速熱退火處理過後, A1(low)强度则恢復至未佈植的原始强度,代表鎂離子 佈植誘發的輻射損傷能夠在此階段移除。從圖中可以發 現,經過 2.5 分鐘的氮電漿製程表面處理,其 A1(low) 並無顯著的改善,然而當製程時間增加至 5 分鐘時, 無論製程功率 50 W 或是 100 W 的試片, A1(low)強度 都有顯著的下降,其趨勢與 E2(high)波峰的結果一致, 若經過適當時間的氮電漿製程表面處理,除了能夠修復 鎂離子佈植製程引入的缺陷,甚至能夠將氮化鎵基板內 的原生缺陷一併修復,進一步提升材料的基本特性。圖 7 為 A<sub>1</sub>(low)特徵能峰半高寬與氮電漿製程參數關係。 文獻指出,A1(low)能峰的半高寬與 E2(high)一樣都與晶 格的結晶性高度相關 [10],從圖 9 可以發現,經過鎂 離子佈植及快速熱退火製程,亦或是氮電漿處理,其半 高寬並無明顯趨勢變化,其結果與 E2(high)的分析高度 吻合。



圖 5 不同氮電漿製程參數的氮化鎵試片與未佈植試片 之拉曼光譜比較



圖 6 E2(high)特徵能峰位移與氮電漿製程參數關係



圖 7 E2(high)特徵能峰半高寬與氮電漿製程參數關係



圖 8 A1(Low)特徵能峰強度與氮電漿製程參數關係



圖 9 A1(low)特徵能峰半高寬與氮電漿製程參數關係

### IV. 結論

本計畫提出高溫鎂離子佈植於氮化鎵基板,經過氮 電漿製程表面處理後,藉由傳統快速熱退火處理移除離 子佈植引入的氮空位(VN)缺陷。SRIM 模擬程式顯示 40keV/100keV 雙能量鎂離子佈植深度約 100 nm, 二次 離子質譜儀測量表面鎂離子濃度約 10<sup>19</sup> cm-3 且具有顯 著的擴散效應。TLM 結構量測結果得知,無氮電漿處 理試片的接觸電阻( $R_c$ )為 12245 m $\Omega$ cm<sup>2</sup>,經由氮電漿處 理後能夠下降至 111 m $\Omega$ cm<sup>2</sup>。拉曼光譜分析結果顯示, 鎂離子佈植引入大量的壓應力導致 E2(high)向右位移。 僅有快速熱退火處理,尚難以移除材料內部的壓應力。 若經過氮電漿處理後, E<sub>2</sub>(high)波峰則明顯向左位移。 此外,A1(low)波峰的強度在鎂離子佈植後大幅上升,經 過氮電漿處理後則顯著下降,主要是受到自由載子的影 響。此外, E<sub>2</sub>(high)及 A<sub>1</sub>(low)的半高寬在佈植前後及有 /無氮電漿處理並無明顯變化,意謂材料的結晶性並無 受到影響。

### 參考文獻

- R.J. Shul, L. Zhang, A.G. Baca, C. Willison, J. Han, S. Pearton, and F. Ren, "Inductively coupled plasmainduced etch damage of GaN pn junctions," Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films. vol. 18, no. 4. 2000, pp. 1139-1143.
- [2] G. Pickrell, A. Armstrong, A. Allerman, M. Crawford, K. Cross, C. Glaser, and V. Abate, "Regrown vertical GaN p-n diodes with low reverse leakage current," Journal of Electronic Materials. vol. 48. 2019, pp. 3311-3316.
- [3] A.Y. Polyakov, S. Pearton, P. Frenzer, F. Ren, L. Liu, and J. Kim, "Radiation effects in GaN materials and devices," Journal of Materials Chemistry C. vol. 1, no. 5. 2013, pp. 877-887.
- $\begin{bmatrix} 4 \end{bmatrix} J.-M. Lee, K.-M. Chang, S.-W. Kim, C. Huh, I.-H. Lee, and S.-J. Park, "Dry etch damage in n-type GaN and its recovery by treatment with an N<sub>2</sub> plasma," Journal of Applied Physics. vol. 87, no. 11. 2000, pp. 7667-7670.$
- [5] H. Harima, "Properties of GaN and related compounds studied by means of Raman scattering,"
Journal of Physics: Condensed Matter. vol. 14, no. 38. 2002, p. R967.

- [6] V. Meyers, E. Rocco, T. Anderson, J. Gallagher, M. Ebrish, K. Jones, M. Derenge, M. Shevelev, V. Sklyar, and K. Hogan, "p-type conductivity and damage recovery in implanted GaN annealed by rapid gyrotron microwave annealing," Journal of Applied Physics. vol. 128, no. 8. 2020, p. 085701.
- M. Katsikini, K. Papagelis, E. Paloura, and S. Ves, "Raman study of Mg, Si, O, and N implanted GaN," Journal of Applied Physics. vol. 94, no. 7. 2003, pp. 4389-4394.
- [8] M. Kuball, "Raman spectroscopy of GaN, AlGaN and AlN for process and growth monitoring/control," Surface and Interface Analysis: An International Journal devoted to the development and application of techniques for the analysis of surfaces, interfaces and thin films. vol. 31, no. 10. 2001, pp. 987-999.
- [9] A. Pandey, R. Raman, S. Dalal, D. Kaur, and A.K. Kapoor, "Structural and optical characteristics investigations in oxygen ion implanted GaN epitaxial layers," Materials Science in Semiconductor Processing. vol. 107. 2020, p. 104833.
- [10] J.D. Greenlee, B.N. Feigelson, T.J. Anderson, M.J. Tadjer, J.K. Hite, M.A. Mastro, C.R. Eddy Jr, K.D. Hobart, and F.J. Kub, "Multicycle rapid thermal annealing optimization of Mg-implanted GaN: Evolution of surface, optical, and structural properties," Journal of Applied Physics. vol. 116, no. 6. 2014, p. 063502.

## 應用於衛星之積體電路與記憶體元件的輻射效應與製程研究 Radiation Effects and Process Study of Integrated Circuit and Memory Devices for Satellite Applications

計畫編號:MOST 111-NU-E-007-003-NU 計畫主持人:張廖貴術 e-mail:lkschang@ess.nthu.edu.tw 計畫參與人員:許馥帆、林哲維 執行單位:國立清華大學工程與系統科學系

## 摘要

抗輻射體電路元件在衛星科技與半導體產業製造 上,都有很重要的應用。閘介電層製程是發展積體電路 金氧半、快閃記憶體元件很重要的研究課題,而先進積 體電路元件皆已廣泛使用高介電係數材料(high-K)。本 研究探討金氧半場效電晶體(MOSFET)、鰭式場效電晶 體(FinFET)元件經高輻射劑量率對抗輻射特性之影響, 開發 FinFET 元件抗輻射製程與元件製作,以優化 High-K 閘介電層製作快閃記憶體元件(Flash)與抗輻射量測 等。研究結果發現,電晶體在相同輻射總劑量下,劑量 率越高電晶體的抗輻射能力就越差。可能的原因是輻射 導致的氧化層電荷 Qot,在相同總劑量下劑量率高的照 射時間短,同時產生的退火效應時間也短,因此留下的 Qot 也較多,導致電晶體的導通電流衰退與關閉漏電流 增加都較嚴重。另外快閃記憶體元件 ZrON 樣品的寫入 及抹除速度不因輻射效應而改變,ZrAION 樣品在經 1000 kRad 輻射劑量後之寫入速度些微變慢、抹除速度 隨輻射劑量增加而變慢。ZrION 與 ZrAION 樣品經輻射 傷害與 105 次的寫/抹操作後記憶窗的變化相似,所以 耐久力不錯且相當。ZrON 樣品經輻射傷害後仍保有不 錯的電荷保持力,而 ZrAION 樣品受輻射傷害後電荷保 持力明顯劣化。綜合以上,氮化 high-k 介電層(ZrON)的 快閃記憶體元件具有較好的抗輻射能力,金屬合金 (ZrAION)介電層對元件特性並無幫助。

**關鍵詞:**衛星,抗輻射,閘介電層,金氧半場效電晶體, 鰭式場效電晶體,快閃記憶體元件

### Abstract

The radiation hardening integrated circuit (IC) devices are important for the applications in the science and technology of satellite and semiconductor industry production. The research topic of gate dielectric process is crucial for MOS and Flash devices in IC. High-K gate dielectrics have been widely implemented in modern IC. Several tasks were carried out in this proposal, including the effects of high radiation dose rate on hardness of MOSFET and FinFET, process development and fabrication of radiation hard FinFET, optimal high-k gate stack and radiation hardness characterization of Flash memory devices. It is found that under the same total radiation dose on the transistor, the higher the dose rate, the worse the radiation hardness of the transistor. The possible mechanism is that the oxide charge Oot caused by radiation, under the same total dose, the irradiation time for a higher dose rate is shorter, and the time of annealing effect is also shorter, so more Oot is left, which leads to the reduced conduction current and increased off leakage current. In addition, the writing and erasing speeds of ZrON Flash samples are not changed by the radiation effect, and the writing speeds of ZrAION samples are slightly slower after 1000 kRad radiation dose, and the erasing speed is slower with increasing radiation dose. ZrION and ZrAION samples have similar changes in the memory window after 105 write/erase operations after radiation damage, so the endurance is good and comparable. The ZrON sample shows good charge retention after radiation damage, while the charge retention of the ZrAION sample deteriorates clearly. Based on the above, a nitrided high-k dielectric (ZrON) flash memory device has better radiation hardness, and the metal alloy (ZrAION) dielectric layer does not help the device characteristics.

**Keywords**: Satellite, Radiation hard, gate dielectric, MOSFET, FinFET, Flash device

#### I. 前言

半導體製造在我國是一重要產業,其中積體電路 (IC)技術水準已領先國際。半導體晶片大量使用於日常 生活及各種裝置,已經是不可或缺的電子零組件。近年 來隨著太空科技與核能技術的進步,半導體元件技術在 該領域的應用越來越受到人們的重視。再者,半導體與 太空技術開發都符合國家重點科技項目。隨著積體電路 元件之奈米化與製程複雜化,介電層的品質要求將更嚴 格,因此絕緣層或閘高介電層之界面、漏電流等特性是 當前研發的重點。由於系統整合晶片的發展趨勢,元件 之間隔離的困難將增加,所以各種製程方法正積極進行 中,如高速離子植入等。再者,由於電漿製程已大量使 用在超大型 IC 製造,人造衛星使用大量太空等級半導 體元件等,因而輻射或荷電粒子對半導體元件產生的傷 害與防治是非常重要的研究課題。

由於積體電路 CMOS 製程技術的持續進步,使得 電晶體的 feature size 持續縮小。然而當電晶體的 feature size 縮小到低於 45 nm 以下時,傳統的 Bulk CMOS 電 晶體會遇到三個嚴重的挑戰:(1)Drain 與 source 之間 的次臨界漏電流(subthreshold current)越來越嚴重(2)開 極漏電流也是越來越嚴重(3)由於製程變異(process variation)的影響,導致晶片中的每顆電晶體的 doping 濃度會有所差異(稱為 doping fluctuations)。電晶體的臨 限電壓是跟電晶體的 doping 濃度有關係,但由於電晶 體的 feature size 的縮小,稍微的 doping 濃度差異即會 引起極大的臨限電壓差異。因此, Bulk CMOS 電晶體 的臨限電壓極易受到製程變異的影響。由於鰭式場效電 晶體(FinFET)沒有傳統 Bulk CMOS 電晶體的上述問題 並且 FinFET 的製程跟傳統 Bulk CMOS 的製程差異不 大,因此在20nm 以下的製程,FinFET 電晶體被認為 是實現 ULSI 電路的更好選擇[2]。FinFET 電晶體的結 構[3],連接 Drain 與 Source 之間的通道的形狀像魚鰭 (Fin)一樣,也就說此通道的外型高而薄。而控制 Drain 與 Source 之間的通道是否能導通的閘極(Gate),其形狀 就像冂字型,緊緊圍住通道的三面,因此閘極上的電壓 對通道有比較好的控制性,可以輕易地控制通道是導通 或是關閉。三面包覆閘極電晶體 FinFET 的電特性雖然 比平面 MOSFET 有明顯改善,為了進一步增進閘極靜 電控制能力,四面全包覆閘極電晶體 GAAFET 元件已 有許多研究報告,可以更增進元件特性[4]。GAAFET 在 抑制短通道效應上比 FinFET 有著更好的效果,除此之 外,對於元件微縮的極限中,以 GAAFET 趨向有著最 小微縮可能性。

快閃記憶體 (Flash memory) 同時具備了許多優點 如,非揮發性、高積集度、快速寫入/讀取、可直接於系 統中重複寫入資料、高擦寫次數、低消秏功率、低成本、 單一電源供應等,因此快閃記憶體近年來快速崛起,其 中固態電子元件式硬碟機(Solid State Disk)的應用已漸 漸取代現有硬式磁碟。目前仍有許多研發的空間以期增 進其工作效能、減少工作電壓及功率、增加記憶容量等。 快閃記憶體又稱非揮發性記憶體(non-volatile memory), 主要分為浮動閘極(Floating Gate)及電荷陷阱式 (Charge trapping -Substrate) 兩種結構 [11, 12]。為了 增進 flash device 工作效能,高介電係數(high-k)材料、 能帶工程的效應大都建立於平面本體元件上,但是這些 效應在複晶矽快閃記憶體元件上的影響卻少有相關文 獻。我們使用二氧化鉿(HfO2)/氮化矽(SiN)堆疊而成的 能帶工程儲存層(BETL)來改進複晶矽奈米線(nanowire, NW)記憶體的電性[13]。根據實驗結果,使用二氧化鈴 /氮化矽堆疊式能帶工程擷取層,並運用在奈米線通道 結構上,寫入抹除速度以及電荷保持力皆有效地提升, 同時也保有著良好的元件耐寫抹特性。因此,本研究擬 開發抗輻射之積體電路 FinFET、Flash 元件製程,以期 提升我國 IC 元件製造技術水平。

本研究計畫之主要目的係開發鰭式場效電晶體 (FinFET)及快閃記憶體(flash)元件抗輻射製程,探討元 件中絕緣層與高介電層之輻射效應,進行測量分析並以 製程方法減少元件之輻射傷害。本研究計畫之最大宗旨 在培育輻射應用技術與半導體產業之人才,其工作目標 有以下幾項,一為 MOSFET、FinFET 元件經高輻射劑 量率對抗輻射特性之分析探討,二為開發 FinFET 元件 抗輻射製程、元件製作及量測,三為以優化 High-K 閘 介電層製作 Flash 元件與抗輻射量測,四為福爾摩沙衛 星七號電子元件之抗輻射資料蒐集與分析研究等。這些 研究目標是積體電路元件很重要的製程研發課題,也將 提出抗輻射製程與可靠度分析。

## II. 主要內容

本計畫的金氧半電晶體製程部分,流程與結構示意 圖如圖 1 所示。實驗樣品使用八吋 P 型單晶矽晶片,晶 格方向為(100),電阻值為 8~22 Ω-cm。利用 EBL 微影 技術,得以在同一晶片上精準控制各種不同的電晶體之 線寬,蝕刻出通道,定義出主動區,接著在 RCA 清洗 過程中,本實驗樣品不同的地方就是在此處,在使用 DHF 清理 Native Oxide 時,為了做出不同開極結構,分 別浸泡不同秒數,進而達到通道下的 SiO2 絕緣層(BOX) 蝕刻,用 H2O2 成長介面氧化層 IL,接著用 ALD 沉積 出高品質的高介電層 HfO2,完成開極層堆疊。沉積完 介電層後,依序進行開極金屬沉積、開極圖形定義與蝕 刻、離子佈植、快速熱處理退火、隔離氧化層覆蓋、接 觸窗口定義及蝕刻、連接金屬沉積以及金屬燒結,完成 此實驗元件。



圖 1本計畫 MOSFET 之元件製程結構與流程圖

圖 2 為 FinFET 的製作流程及步驟。本實驗 FinFET 使用晶格方向(100), 電阻值介於 8~22 Ω-cm 之間的八 吋 P 型 SOI 晶圓,先經 RCA 清洗後再進行磊晶製 程,將 Si0.78Ge0.2240 奈米磊於 SOI 基板上,利用電 子束微影系統定義出不同線寬的主動區通道,之後使用 電漿乾蝕刻技術蝕刻出主動區;平面電晶體通道則是純 鍺,之後將元件進行 RCA 清洗,利用原子層氣相沉積 系統,在 250℃環境下沉積高品質的氮化鉿(HfN)作為 界面層,在沉積二氧化鋯(ZrO2)作為介電層。介電層形 成完畢後會在氧氣環境下進行 400 度 30 秒的沉積後 退火(PDA),之後再利用多功能金屬濺鍍系統沉積 80 nm 的氮化鈦(TiN)作為閘極金屬電極,利用電子束微影 定義閘極圖案並蝕刻完成及去光阻,在閘極區域形成完 畢後,將樣品送至離子佈值機,以自我對準的方式摻入 磷 P31+離子,以此形成 N-type 元件,接著會再透過 快速熱退火在氮氣的環境下來使載子活化,並同時修復 因摻雜離子而造成晶格的損傷。完成元件後,接著送到 清大同位素館進行 Co-60 不同輻射劑量率的照射,完成 後即拿回清大工科進行量測。



本實驗的快閃記憶體元件製程部分,表1為多晶砂 奈米線通道之無接面式快閃記憶體樣品列表,本實驗使 用多晶砂作為通道材料,主要在閘極堆疊時變動雙層電 荷儲存層中的後段材料,並製備於電阻值 8~12 Ω-cm 的 六吋矽晶圓上,完成以多晶矽薄膜電晶體平台形成之快 閃記憶體元件。前製片之堆疊方式,以低壓化學氣相系 統(LPCVD)在980℃的環境下,於矽晶圓上利用濕式 氧化的方式成長 100 奈米 (nm)的二氧化矽 (SiO2), 以及於 780 ℃的環境下沉積 50 奈米 (nm) 的氮化矽 (Si3N4),完成前製片的堆疊。接著再同樣以低壓化學 氣相沉積系統(LPCVD)沉積厚度約為100 奈米(nm) 的非晶砂(α-Si), 並以固態結晶(Solid-phase crystallization, SPC)的方式長晶,形成多晶砂,接著利 用中電流離子佈植機以劑量 1E15,能量 30 KeV,以磷 (P31+) 摻雜, 使未摻雜之多晶矽反轉為所需的 N-type, 再使用快速升温退火機台(RTA)以900℃、30秒退火 來活化植入的離子。後續經過數道的薄膜沉積及微影蝕 刻製程,利用側壁空間(sidewall spacer)作為蝕刻阻擋 層(hard mask)的方式,再以光阻保護源極與汲極 (Source/Drain)和蝕刻阻擋層保護通道,形成微小線寬 的奈米線結構。

表 1 Flash 實驗樣品列表				
Sample	ZrO <sub>2</sub>	ZrON	ZrAION	
Gate	ТіN 100 пт (PVD)			
Blocking	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 16 nm (ALD)			
Trapping	ZrO₂ 4 nm	ZrON 4 nm	ZrAION 4 nm	
	SiN 4 nm (LPCVD)			
Tunneling	SiO <sub>2</sub> 3 nm(RTO)			
Channel	poly-Si (JL)			
Structure	Tri–Gate			

閘極堆疊的部分,以快速升溫氧化(RTO)在900 ℃的環境下,進行 30 秒的方式,形成厚度約 3 奈米 (nm)的 SiO2 作為元件的穿隧氧化層;再利用低壓化 學氣相沉積系統(LPCVD)在 780℃ 的環境下,沉積 約4 奈米 (nm)的 Si3N4 作為電荷儲存層的前端;接 著使用原子層化學氣相沉積系統(ALD)依據各式樣品 的設計來沉積不同的電荷儲存層之後段材料,其中是以 ZrO2 作為控制片,使用 ALD 沉積 4 奈米(nm)的 ZrO2 做為後段的電荷儲存層;另一個實驗樣品 ZrON,是使 用 ALD 沉積 4 奈米 (nm) 的 ZrO2, 再經過氨電漿處 理後形成 ZrON 作為後段的電荷儲存層; 第三個實驗樣 品 ZrAION,則是使用 ALD 沉積 4 奈米 (nm) ZrO2 的 同時也摻雜了 Al 元素,並進行氨電漿處理形成合金型 態的 ZrAION 作為後段的電荷儲存層。而在後續的阻擋 氧化層三者皆是使用 ALD 沉積 16 奈米(nm)的氧化 鋁(Al2O3),並以物理氣相沉積系統(PVD)沉積100 奈米 (nm)的 TiN 作為金屬閘極層,之後再經過數項 後段製程步驟,完成元件製作。

圖 3 為穿透式電子顯微鏡 (Transmission electron microscope, TEM) 圖像, 分別為 ZrO2、ZrON、ZrAION 元件的通道剖面 TEM 圖, 透過 TEM 圖可以觀察到奈

米線閘極的通道切面。實驗樣品 ZrO2 之通道剖面圖, 其奈米線通道寬度約為 22 奈米 (nm),通道高度約為 15 奈米 (nm)。實驗樣品 ZrON 之通道剖面圖,其奈米 線通道寬度約為24 奈米 (nm), 通道高度約為23 奈米 (nm)。 實驗樣品 ZrAION 之通道剖面圖,其奈米線通 道寬度約為30 奈米(nm),通道高度約為13 奈米(nm)。 而透過穿透式電子顯微鏡圖像可以清楚地觀察以二氧 化矽 (SiO2)、氮化矽 (Si3N4) 與摻雜 N 或 Al 的二氧 化鋯(ZrO2),以及氧化鋁(Al2O3)堆疊之穿隧氧化層、 電荷儲存層與阻擋氧化層,並可進一步了解各層之間的 厚度關係。製備樣品時是使用國立交通大學奈米中心 Fiji F202DC ALD 機台沉積, 奈米中心當時所提供的鍍 率如下(加熱式原子氣相沉積方式):二氧化鋯(ZrO2): 0.98 Å/cycle, 氧化鋁 (Al2O3): 1.07 Å/cycle。再將元 件送至國立清華大學原子科學技術發展中心之同位素 館的 Co-60 照射場,來進行 10k、100k、1000k(rad) 三種鈷 (Co) 輻射劑量的照射工作。



圖 3 ZrO<sub>2</sub>、ZrON、與 ZrAION Flash 樣品之元件通道 剖面圖

Co-60 以不同輻射劑量 10k、100k、1000k (rad)照射後,量測元件電特性變化。依據國家太空中心所提供資料,福衛五號在近地軌道的輻射環境,經鋁(Al) 3 mm 厚度後,電子元件每年吸收的 TID 值大約是 10 Krads (Si)。利用 HP 4156B 機台進行金氧半電晶體的基本電性量測,其量測包括轉移特性曲線(Id-Vg)、直流特性曲線(Id-Vd)、臨界電壓(Vth)、最大轉導值(Gmmax)、汲極電流(Id)、次臨界斜率(S.S.)、汲極引發位能障降低(DIBL);在電容器的量測,主要是利用 HP 4156B 與Agilent 4284A 量測 Cgb、Jg-Vg。

#### III. 結果與討論

本研究計畫依照原規畫工作完成了 MOSFET、 FinFET 元件經高輻射劑量率對抗輻射特性之分析探討, 開發 FinFET 元件抗輻射製程、元件製作及量測,以優 化 High-K 閘介電層製作 Flash 元件與抗輻射量測等。 本實驗之結果分成兩部份來說明,第一部份為 MOSFET、 FinFET 元件經高輻射劑量率對抗輻射特性之分析比較, 第二部份為快閃記憶體(Flash)元件製程開發、元件製作 與抗輻射量測。以下分別簡要敘述主要的結果。

本研究量測分析元件導通電流與關閉電流退化比 例對不同輻射劑量率的結果,圖4為平面及鰭式電晶體 之 Ion, Ioff 退化比例對不同輻射劑量率圖。可以發現 不管是 MOSFET 還是 FinFET,其導通電流退化量都

相對比較微小,但關閉狀態的漏電流上升就明顯很多, 與先前的文獻結果一致。而從圖中也可以去比較得知, MOSFET 的劣化程度較 FinFET 劣化程度來的高出許 多。經過 100 kRad 輻射傷害後,MOSFET 有嚴重的劣 化,FinFET 僅些微衰退明顯有較佳的抗輻射能力。所 以,FinFET 元件的立體通道結構,具有更好的靜電控 制效應,抗輻射傷害的能力也大幅提高。再者,MOSFET 與 FinFET 輻射劑量率效應分析結果,可看出劑量率較 高時會造成較大的元件特性偏移或衰退,因此抗輻射量 測時輻射劑量率須註明,並依據規範選取適當範圍。原 因可能是輻射導致的氧化層電荷 Qot,在相同總劑量下 劑量率高的照射時間短,同時產生的退火效應時間也短, 因此留下的 Qot 也較多,導致電晶體的 Ion 衰退與 Ioff 增加都較嚴重。



圖4 平面及鰭式電晶體之 Ion、Ioff 退化比例對不同輻射劑量率圖

圖 5 為平面、鰭式電晶體之 on/off ratio 變化量對 不同輻射劑量率圖,與前面結果類似,皆隨著輻射劑量 率的上升,而使 on/off ratio 的退化量增加。可以比較 出平面的退化量數值較鰭式電晶體來的高,同樣的物理 機制,FinFET 元件的立體通道結構具有更好的靜電控 制效應,抗輻射傷害的能力也大幅提高。

在 ZrON Flash 樣品由圖 6(a)盒狀圖(四個元件分 別各取 5 組在寫入 3 V 記憶窗時,其所需寫入時間之數 據所示,無論有無照射 Co-60 輻射之樣品皆花費 5.1x10<sup>-8</sup> 秒左右的寫入時間,即可寫入 3 V 的記憶窗。圖 6(b) 為四個元件抹除速度的表現,可以觀察到無輻射照射之 樣品與經三種輻射劑量照射之樣品皆具有相當的抹除 速度,且在四個樣品抹除 3 V 記憶窗時,所需的抹除時 間,皆落在 3.5x10-5 秒左右,如圖 13 盒狀圖(四個元 件分別各取 5 組在寫入 3 V 記憶窗時,其所需抹除時間 之數據)所示。這與寫入速度情況相似,推測只經過氮 化製程的 ZrON 樣品較不易受輻射照射或劑量的影響, 具有更好的抗輻射能力。



圖 5 (a)平面, (b)鰭式電晶體之 on/off ratio 變化量對不 同輻射劑量率圖



圖 6 受不同輻射劑量傷害之 ZrON 樣品,分別各取 5 組在(a)寫入,(b) 抹除 3 V 記憶窗其所需時間之數據 作盒狀圖

在 ZrAION Flash 樣品分別承受 10 k、1000 k、1000 kRad 三種 Co-60 輻射劑量照射後,於低臨界電壓的狀態下,對閘極施加 16 V 的操作電壓進行寫入速度的量測;如圖 7(a)為四個元件寫入速度的表現盒狀圖(四個元件分別各取 5 組在寫入 3 V 記憶窗時,其所需寫入時間之數據)所示。因此輻射效應對四個元件的寫入速度雖然有些微的影響,但在 3 V 記憶窗內仍有不錯的表現。然而在 ZrAION 樣品承受輻射後,在高臨界電壓的狀態下,於閘極施加-16 V 的操作電壓進行抹除速度的 最測;如圖 7(b)為四個元件抹除速度的表現盒狀圖(四個元件分別各取 5 組在抹除 3 V 記憶窗時,其所需抹除時間之數據)也顯示出,四個元件抹除 3 V 記憶窗時, 時間之數據)也顯示出,四個元件抹除 3 V 記憶窗時, 所需花費的時間會隨著輻射劑量增加而依序增長。



圖 7 受不同輻射劑量傷害之 ZrAION 樣品,分別各取 5 組在(a)寫入,(b) 抹除 3 V 記憶窗其所需時間之數據 作盒狀圖

圖 8 為 ZrON 樣品及 ZrAION 樣品分別承受 10 k、 100 k、1000 kRad 三種 Co-60 輻射劑量照射後於室溫下 量测的電荷保持力之特性圖。量測方法描述,透過寫入 抹除的操作,對元件寫入3V作為量測電荷保持力前元 件的原始狀態,當記憶窗(Memory Window)固定為 3V 後,開始依照表定時間量測元件的狀態,且外插至十年 後,探討元件隨著時間流逝其維持 3V 記憶窗的能力。 可以觀察到無輻射之 ZrON 樣品即使外插至十年後仍 能維持 92 %的良好電荷保持力,但是隨著輻射劑量從 10 k 增加至 1000 k, 分別顯示出 86 %、79 %、73 %依 次劣化的趨勢。而無輻射之 ZrAION 樣品的電荷保持力 外插至十年後則是維持在 82 %,但同樣地,隨著輻射 劑量增大,電荷保持力卻呈現更明顯的劣化趨勢,從82 %劣化為 10k 樣品的 71%, 再掉至 100k 樣品的 64%、 甚至當輻射劑量增加達 1000 k 時,其元件電荷保持力 僅剩餘60%。



圖 8 ZrON, ZrAION 樣品受不同輻射劑量傷害後之電荷 保持力測試

## 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

#### IV. 結論

本計畫研究結果得知,在輻射劑量固定的情況下, 輻射劑量率越高,電晶體的抗輻射能力就越糟。可能的 原因是輻射導致的氧化層電荷 Qot,在相同總劑量下劑 量率高的照射時間短,同時產生的退火效應時間也短, 因此留下的 Qot 也較多,導致電晶體的 Ion 衰退與 Ioff 增加都較嚴重。另外,輻射造成的傷害會使整個電晶體 所有接面處都造成破壞,讓元件的源極及汲極接面特性 下降,整體電特性受到影響,故輻射傷害對接面影響值 得注意。本研究也探討以優化 High-K 閘介電層製作 Flash 元件與抗輻射量測,結果顯示,隨著輻射照射劑 量從 10 k 增加至 1000 kRad 下 ZrON 樣品的寫入及抹 除的速度不因輻射效應而改變,同時具有相當的記憶窗。 對於 ZrAION 樣品而言,僅照射 1000 kRad 輻射劑量之 樣品的寫入速度會些微變慢,抹除速度則會隨輻射照射 劑量增大而變慢。在耐久力特性上,加入氮及鋁這種強 鍵結元素,無論有無輻射傷害之元件,在經過105次反 覆的寫/抹操作後,記憶窗的變化具有相似的表現。對於 電荷保持力方面,ZrON 樣品及 ZrAION 樣品在輻射後 會隨著輻射劑量增大而劣化;且 ZrON 樣品即使經過 1000 kRad 輻射劑量照射後,元件仍保有 73%的電荷保 持力,甚至優於僅照射 10 kRad 輻射劑量的 ZrAION 樣 品,反而是 ZrAION 樣品受輻射傷害後,電荷保持力發 生了急劇的劣化。推測鋁摻雜改變了整體材料的結構特 性,使其變的鬆散,在輻射照射下更容易出現品質劣化 的情況。綜合考量下, ZrON 樣品在經 1000 kRad 輻射 傷害後仍保持較優異的記憶體特性,因此具有最好的抗 輻射能力。

## 参考文獻

- [1] http://tacc.cwb.gov.tw/v2/mission.html
- [2] M. Agostinelli et al, VLSI Tech, p. 232, 2010.
- [3] S. A. Tawfik, ICM, p. 171, 2007.
- [4] Y. Tian et al., 2007 IEEE International Electron Devices Meeting, p. 895.
- [5] K.S. Chang-Liao and L.C. Chen., J. Vac. Sci. & Tech. B15(4), p.942 (1997).
- [6] T.P. Ma, IEEE ED-45, p.680 (1998).
- [7] X. Guo et al, IEEE EDL-19, p.207 (1998).
- [8] X. Guo et al, IEEE 1999 IEDM, p.137.
- [9] H.F. Luan et al, IEEE 1999 IEDM, p.141.
- [10] W.J. Qi et al, IEEE 1999 IEDM, p.145.
- [11] M.H. White et al., IEEE Circuits and Devices Magazine, Vol. 16(4), p. 22, 2000.
- [12] W.J. Tsai et al., IEEE International Reliability Physics Symposium, p. 34, 2002.
- [13] Z. H. Ye et al., IEEE Electron Device Lett., vol. 33 (10), p. 1351, 2012.
- [14] Y. Sun et al., IEEE Trans. Electron Devices, vol. 58, p. 1329, 2011.

# 跨域合作與風險溝通(II)

## 知「輻」習「輻」-環境輻射科普教案研發與活動推廣 Knowing Radiation, Learning Radiation- The Project to Develop Popular Science Teaching Material and Activities for Environmental Radiation

計畫編號:111-NU-E-227-001-NU 計畫主持人:潘愷 e-mail:kaipan@ntunhs.edu.tw 計畫共同主持人:方文熙 計畫參與人員:莊宜倫、洪儷華、陳筠晴、潘韋如 執行單位:國立臺北護理健康大學 嬰幼兒保育系(所)

### 摘要

我們身處的自然環境中,本就存在有光、熱、電波 等大小不同的能量,「輻射」也是其中一種;惟多數民 眾的科學知識普遍不足,對於無色、無味、無形、無影 的「輻射」,往往會有莫名的恐懼,再加上某些主觀意 識型態的非理性態度,進而對「輻射」相關的議題,往 往省略了檢視與查證的科學步驟而以訛傳訛。其中,高 中生或非理工科系大學生對於輻射特性的認知往往來 自各類社群媒體或網路資訊,訊息雜亂不易辨識真假, 也因此對環境中如土壤、食物、飲水中所具有的天然放 射性物質,或如醫療、工程領域上所使用的人工輻射源 都並非全然清楚。

本計畫主要在開發且推廣給非理工科系大學生及 青少年(國、高中生)適用的「環境輻射」科普教材。 透過化學、物理、環境、生醫、教育與教材開發等專家 提供意見,共同規劃出兩套科學桌上遊戲及進階學習教 材。本計畫同時針對大學生、高中生、國中生及小學生, 辦理近 20 場次,每場 2 小時的「環境輻射知多少」研 習課程(包括桌遊競賽與輻射儀器環境實務檢測),共 有 620 位(女性:353 人,56.9%,男性:267 人,43.1%) 師生共同參與,科普推廣活動辦理總時數累積計有 40 小時;活動結束後對學習者進行科學桌遊學習成效評量, 成效均達 4.25 分以上 ( 满級分 5 分 ), 輻射知識的正確 率達95%以上;同時編寫完成「環境輻射知多少」1小 時課程簡報教材(大學生版及青少年版)與「環境輻射 大學堂」(大學生適用)及「拯救猴子大作戰」(青少年 適用)兩套桌上遊戲,可提供給大學生或國、高中學生, 在非制式教學管道外,自學環境輻射知能之科普教材。 **膈鍵詞:**環境輻射、青少年與大學生、科普知識

#### Abstract

This project aims to compile environmental radiation education materials for teenagers (junior and senior high school students) and non-science and technical college students. Through the advice of experts in chemistry, physics, environment, biomedicine, education and teaching material development, we jointly planned two sets of scientific board games and advanced learning materials. This project also containing 20 sessions and over 40hours' "How much do you know about environmental radiation" popular science activities, and there are nearly 650 students join the activities. The effectiveness evaluation after the program could get above 4.25 points (full score is 5 points), and the correct rate of radiation knowledge is over 95%.

The project has been compiled the power point textbook of the 1-hour course "Knowing Radiation, Learning Radiation" (College and Youth Edition) and two sets of board games: "Environmental Radiation University Hall" (applicable to college students) and "Saving Monkeys" (applicable to teenagers). Which can be provided to college students or teenagers to learn more about environmental radiation knowledge.

**Keywords:** environmental radiation, teenager and college student, popular science knowledge

## I. 前言

行政院於 2010 年頒布環境教育法 (環境保護署, 2010),係為推動環境教育,促進國民瞭解個人及社會 與環境的相互依存關係,增進全民環境認知、環境倫理 與責任,進而維護環境生態平衡、尊重生命、促進社會 正義,培養環境公民與環境學習社群,以達到永續發展; 顯見環境教育實為全民應具備的通識素養,也是國民的 共同責任。在我們身處的自然環境中,最容易感受到光 或熱,就是一種能量,是為輻射;輻射依其能量的高低 可以區分為游離輻射與非游離輻射兩大類,本研究所稱 「輻射」主要是游離輻射。

輻射並非單純的人造產物,早在人類出現以前,天 然背景輻射就已存在,所以我們呼吸、吃東西、踩在地 上或搭飛機等都會接觸到輻射,但是科技進步以後,在 各行各業等領域也都廣泛應用了各式輻射相關的設備, 包括醫療、工業、研究、國家安全以及環境保護各方面, 游離輻射也提供了強大的助益。惟近年來,國內由於某 些族群意識型態或政治因素的影響,讓某些與民生相關 的公共議題,無法客觀的根據專業科學證據做決策,加 上社群媒體刻意炒作下,原本應該是專業與科學的議題, 往往卻由非科學專業背景的政論家意見,成為了一般民 眾的學習教材。多數民眾科學知識普遍不足,對於無色、 無味、無形、無影的輻射,通常感到陌生與不安,每當 有重大輻射新聞事件發生,如日本福島核災、國內核電 廠存廢爭議等,再加上某些主觀意識型態的非理性態度, 往往就省略了檢視與查證的科學步驟而以訛傳訛(林群

智,2006;施佩蓉,2016)。但是,審視現行學生的教 育歷程,對於和我們生活密不可分的「輻射」主題,並 未見到有充分的課程或知識傳遞;故日後不論是面對食 品中是否含有放射性物質的認知及是否可能會造成危 害,抑或是在醫療過程中需經歷放射線診斷或治療的可 能風險,往往會因道聽塗說,以訛傳訛,造成過度恐慌 的疑慮。輻射存在於我們的周遭,其應用的領域又如此 廣泛, 它絕非洪水猛獸, 只要能妥切的運用與適當的防 護,我們就不會受到過多輻射曝露的危害。為減少無謂 的焦慮,有關「環境輻射」科普教育之推廣普及有其必 要性。因此,有鑑於 A. 國內各級學校輻射教育不足: 國內中、小學課程中並無輻射教育教材與相關課程,平 日之防災教育亦只著重地震、颱風、火災、水災,核安 應變相關宣導相對缺乏;直自 2011 年因日本福島核電 站爆炸產生的核輻射外洩問題,再掀核能安全問題,始 讓臺灣重新審視核安教育,並期在中小學課程裡加強輻 射核能教育,讓中小學生了解核能面貌與核安資訊。另 教育部曾鼓勵未設有核能相關科系之大學院校,開設 「核能、輻射與生活」之通識課程,另在補助「大專院 校安全衛生通識課程及教育訓練要點」中也明定內容應 包括:游離輻射、非游離輻射及電腦作業危害與預防等。 惟上項不論是對中小學或大專校院之措施,皆為鼓勵性 質而未有強制性,事實上,各級學校中原本輻射相關學 理背景之師資就不足,所以真正實施的成效並不彰或僅 曇花一現而無延續性。B. 高中生與非理工學習背景大 學生環境輻射知能與素養不足:輻射科學的基礎原理來 自於原子的結構,係屬物理、化學學習的範疇;高中學 生若選擇第一類組(社會科類組)或後續大學進入文、 法、商等學系就讀,基本上根本無法接觸到物理或化學 等相關學科的學習;若非自身對輻射科學主題有興趣且 願意多方涉獵學習,否則根本不會有機會在正式管道學 習。隨著網路的興盛,社交軟體早已經成為青少年們交 友溝通的重要工具,而網路社群更是對公眾議題的影響 與日俱增。當能源政策、空污、輻災、核食等議題被廣 泛討論時,若無正確的科學背景知識,往往只會流於空 談或易被誤導。以臺灣對於核能的研究為例,大多集中 於專業人士的內部討論且多只出現於臺灣核能研究的 專業期刊上,僅有少數的科普文章討論核能的安全(王 榮德等,1985;莊閔盛,2004),且鮮少以社會科學觀 點出發。近年來大學生常在臺灣社會運動中扮演思考與 批判的角色,但若不具備基本環境輻射知能,又無適當、 中肯的文章論述或訊息傳遞,恐怕容易會有錯誤的認知 或是產生不正確的判斷。

## II. 主要內容

本計畫擬針對高中及大學非理工科系的學生,彙編 此族群學生所適用的環境輻射科普教材,同時辦理「環 境輻射知多少」研習活動,讓學生藉由輻射偵測儀器與 樣品放射性含量分析方法與實務操作,建立對輻射的基 本認知。教材編輯擬採用跨領域學門協同及 Dick & Carey 系統教學設計模式,結合前述研習活動,導入原 子能與輻射相關議題分析,提升對於環境輻射之知覺與 議題的敏感度,進而強化對輻射風險判斷的能力。本計 畫目標有二:一、開發適合高中與非理工科系大學生「環 境輻射」科普教材;二、辦理可強化環境輻射知能學習 成效的「環境輻射知多少」推廣活動

## III. 結果與討論

本計畫先針對大學非理工科系學生與高中生實施 「環境輻射評量問卷」之調查,以瞭解目標對象對環境 輻射的態度與知識能力;總共發出1050 份問卷,有效 問卷 879 份,以性別區分:女性有 561 份(64%)、男 性為 318 份(36%);若以級別區分:則是國中生有 190 份(22%)、高中生 347 份(39%)及大學生 342 份(39%); 在環境輻射態度的統計資料分析可以看出,全體學生對 核災區輸入的食品安全性、居住在可能有輻射風險的房 屋及是否居住在核電廠周遭等與切身生活相關議題的 關注程度都較高,而且女性的關注程度又都稍高於男性。 另經由因素分析的主成分分析法的最優斜交轉軸法,得 到二個因子,第一個為「生活接觸因子」,第二個為「怕 受傷害因子」。

第一個生活接觸因子,共有六個題項,分別為「2. 我擔心手機基地台的電磁波、3.我害怕在醫院照 X 光會 有副作用、4.我擔心微波加熱後的食品會影響健康、6. 我煩惱使用智慧型手機時產生的電磁波、9.我對搭飛機 時會接受到的輻射線感到不安、10.我對輻射劑量為「零 檢出」的產品仍會感到緊張」。第二個怕受傷害因子, 共有四個題項,分別為「1.我在意生活環境中的輻射、 7.我憂慮核災地區輸入的農產品含有輻射。9.我擔心長 期住在輻射屋內會導致基因突變、8.我對住在核能發電 廠附近地區會感到焦慮。」在環境輻射知識的統計資料 分析可以看出其中正確率未達 50%以上的題目包括有 對悠遊卡、脈衝光、核磁共振原理及對游離輻射特性的 誤解;從全體答題正確率高於50%以上來看,全體學生 對輻射基本知識似乎都有一定的認識,但對周遭生活或 新闻媒體所關注議題的題項來看,卻都出現偏低正確率 的答題結果; 就此結果推論: 學生對輻射知識原理的理 解可能未盡全面,所以常在媒體被討論的熱門議題,往 往被外界大量卻不一定完全正確的資訊所影響。

整體而言,在輻射知識上,男性得分是大過女性, 在性別上是有差異性存在。大學生的輻射知識程度是贏 過高中生的輻射知識,而高中生的輻射知識則又贏過國 中生的輻射知識。也就是隨著年齡的增加,輻射知識亦 會增加。

在輻射態度上,整體上來看不同性別在輻射態度上 是有所差異,女性對於輻射的態度比起男性更為強烈。 而年齡上對於輻射態度也有所差距的,在大學生、高中 生與國中生三個年齡層中,不論在「生活接觸因子」和 「怕受傷害因子」都是大學生有比較強烈的態度。基於 以上「環境輻射評量問卷」調查的統計結果,本計畫針 對大學生及青少年,分別編寫有「環境輻射知多少」簡 報教材(適用於教師於課堂授課或個人自學用),內容 包括「認識輻射」、「輻射種類」、「劑量與檢測」、「輻射 防護」及「生活實例」等五個部分,部分內容圖例如下 (簡報檔案全文如雲端連結: https://drive.google.com/drive/folders/1\_2vcIYpv-OwGwSE4IOnkDdd4S9-lkuUw?usp=share\_link);另設

計有兩套科學桌上遊戲,分別是「環境輻射大學堂」(大

學生適用)及「拯救猴子大作戰」(青少年適用),可提 供給大學通識領域課程或國,高中理化、健康教育科目 教師,作為課程上介紹環境輻射主題學理外的輔助教材, 另外也可作為大學生或國、高中學生,在非制式教學管 道外,自學環境輻射知能之科普教材(桌遊規則簡介之 簡 報 如 雲 端 連 結 : https://drive.google.com/drive/folders/1RhsgLjF8NJcqQm p4z8vYADHeYzPJ0uhA?usp=share\_link)。

針對大學生所設計「環境輻射大學堂」科學桌遊的 實施成效評量,說明如下:本活動共回收132份有效資 料,填答者的男女比例分別為29.5%及70.5%;系別為 理工科系的作答者佔17.4%,非理工科系則佔82.6%。

就「環境輻射大學堂」的成效調查,從性別來看, 女性整體的平均分數高於男性,平均分數為 4.49 分及 4.12 分,女性在 14 題中皆達到 4.00 分以上,唯獨第 2、 3、8 題的平均分數低於男性。從科系來看,非理工科系 的學生的平均分數為 4.43 分,理工科系的學生的平均 分數為 4.15 分,整體平均分數為 4.38 分。就讀理科的 學生在第1、2、3、4、5及8題的平均分數高於非理工 科系的學生,而第6、9、10、11、12、13、14 題則是 非理工科系學生的平均分數高於就讀理工科系的學生, 唯獨第7題不論學生就讀的科系皆為4.48分。理工科 系的學生相較於非理工科系的學生認為在遊戲中環境 輻射內容有邏輯且連貫,在遊戲中能思考解決問題的方 法,這個桌遊企圖讓我們學習環境輻射名詞。而就讀非 理工科系的學生比起理工科系的學生,認為桌遊企圖讓 我們學習環境輻射名詞,自身想擁有一套桌遊,會想邀 請朋友及他人一同再次遊玩此遊戲。

「環境輻射大學堂」桌遊活動的評量中,環境輻射 知識共有三題。三題都有相當高的答對率。第一題的題 目為「環境中具有各種能量不同的輻射,其中,游離輻 射的能量比非游離輻射的能量高。」本題答對率為 90.2%,非理工科系的學生(90.8%)答對率高於理工科 系的學生(87.0%); 男性(92.3%) 的答對率高於女性 (89.2%)。第二題的題目為「高劑量的游離輻射會損害 我們身體的細胞或器官,甚至導致死亡。但在用途、劑 量使用正確,以及採取必要防護措施情況下,游離輻射 在能源、工業、研究、醫療診斷和治療上仍有很大的助 益。<sub>1</sub>本題答對率為 97.7%,理工科系的學生(100%) 答對率高於非理工科系的學生(97.2%); 男性(100%) 的答對率高於女性(96.8%)。第三題的題目為「保護自 已免於受到游離輻射傷害的基本要件,包括:減少與輻 射源接觸的時間、遠離輻射源以及適當的防護措施。」 本題答對率為 97.7%,非理工科系的學生(98.2%)答 對率高於理工科系的學生(95.7%);女性(100%)的答 對率高於男性 (92.3%)。整體的答對率為 95.2%,非理 工科系的學生(95.4%)答對率高於理工科系(94.2%), 女性(95.3%)的答對率高於男性(94.9%)。顯示環境 輻射大學堂桌遊活動可以帶給遊玩者正確的環境輻射 知識。

整體而言,「環境輻射大學堂」桌遊深受同學喜愛 與支持,知識與遊戲的結合,不僅提升同學對於環境輻 射的知識,也促進學生對於知識的主動渴求,雖然科學 桌遊的遊玩制定中能有改善之處,但整體回饋皆肯定遊 戲所帶來的知識性與趣味性。本桌遊展現之教育性具顯 著成效,未來可以依照遊玩者之建議,修正遊戲玩法設 計、題目設計、遊戲規則之缺失。再增添輻射知識、修 正玩法,提供學生在學習的路上,擁有更多元的學習方 式並樂於其中。

針對青少年(高中與國中學生)所設計「拯救猴子 大作戰」科學桌遊的實施成效評量,說明如下:本調查 共回收 338 份有效資料,填答者的男女比例分別為 45.3%及 54.7%;級別為國中填答者佔 60.4%,高中填 答者則佔 39.6%。

「拯救猴子大作戰」桌遊活動的成效調查結果,從 性別來看,女性整體的平均分數高於男性,平均分數為 4.34分及4.15分,女性在14題中平均分數皆高於男性。 從級別來看,國中生的平均分數為4.13分,高中生的 平均分數為4.44分,高中生在14題中平均分數皆高於 國中生,整體平均分數為4.25分。國中生認為遊戲中, 環境輻射內容有邏輯且連貫,能體會環境輻射的重要性, 且會想再次遊玩拯救猴子大作戰桌遊。高中生認為拯救 猴子大作戰桌遊的遊玩目標與環境輻射具高度相關,遊 戲中完整呈現環境輻射知識與其因果關係,並從中培養 思考解決問題的能力。

「拯救猴子大作戰」桌遊活動的評量中,環境輻射 知識共有三題。三題都有相當高的答對率。第一題的題 目為「環境中具有各種能量不同的輻射,其中,游離輻 射的能量比非游離輻射的能量高。」本題答對率為 92.3%,高中生(95.5%)答對率高於國中生(90.2%); 男性(93.5%) 答對率高於女性(91.4%)。 第二題的題 目為「高劑量的游離輻射會損害我們身體的細胞或器官, 甚至導致死亡。但在用途、劑量使用正確,以及採取必 要防護措施情況下,游離輻射在能源、工業、研究、醫 療診斷和治療上仍有很大的助益。」本題答對率為 97.3%,國中生(97.5%)答對率高於高中生(97.0%); 男性(98.0%)高於女性(96.8%)。第三題的題目為「保 護自己免於受到游離輻射傷害的基本要件,包括:減少 與輻射源接觸的時間、遠離輻射源以及適當的防護措 施。」本題答對率為 97.9%, 高中生 (98.5%) 高於國中 生 (97.5%); 女性 (98.4%) 高於男性(97.4%)。整體的 答對率為 95.83%,高中生(97.0%)答對率高於國中生 (95.07%); 男性(96.3%) 答對率高於女性(95.53%), 顯示拯救猴子大作戰桌遊活動可以帶給遊玩者正確的 環境輻射知識。

整體而言,「拯救猴子大作戰」桌遊結合環境輻射 知識,讓學生們在遊玩的同時也能吸收新知識,促進學 生學習的動力。整體回饋顯示,桌遊受到學生的喜愛及 認同,且教育性顯著成效,多數學生在遊玩本桌遊後, 對於輻射知識有更深入的了解,在遊玩制定中仍有改善 之處,未來可以依照遊玩者的建議,修改卡牌數量、卡 牌玩法設計、提高桌遊的趣味性與知識性,使本桌遊更 加完善,幫助遊玩者在輻射知識學習的道路上,提供不 一樣的視野並提升學習效果。

本計畫的桌遊推廣活動,同時針對大學生、高中生、 國中生及小學生,辦理近20場次,每場2小時的「環 境輻射知多少」研習課程(包括桌遊競賽與輻射儀器環 境實務檢測),共有620位(女性:353人,56.9%,男 性:267人,43.1%)師生共同參與,科普推廣活動辦理 總時數累積計有40小時。

## IV. 結論

本計畫所設計產出的兩套科學桌遊教案,其施作成 效與後續調整改進方向如下:

【拯救猴子大作戰】

- 針對青少年學生族群,在課堂上先由教師介紹環境 輻射基本知識,再讓學生分組操作桌遊教案;課程 結束後對其學習成果與科學桌遊實施成效的評量, 在量性或質性統計上都呈現正向結果。
- 本桌遊教案遊戲規則簡單、知識概念易懂且趣味性高,學生能從遊戲過程中理解到簡單的輻射防護原則,適合作為輻射防護的入門教材。
- 桌遊設計在功能卡牌說明中,同時輔以輻射防護知 識的傳達;惟學生多專注於遊戲的競賽,自主學習 的動機較弱。建議搭配課前環境輻射知識介紹及課 後綜整競賽心得,對環境輻射的學習效果將更佳。
   【環境輻射大學堂】
- 本教案以非理工科系大學生為對象,同學利用課餘時間自行組隊競賽;學習成果與科學桌遊實施成效, 在量性或質性統計上都呈現正向結果。
- 本桌遊設計旨在環境輻射科普知識的傳達,從遊戲 過程中來瞭解與自身安全有關的知識或釐清相關的 迷思,大學生普遍覺得學習效果優於課堂講授;但 因娛樂性不高,重複再玩的意願相對較低。
- 本桌遊設計之關卡,若能以題庫或模組方式設計(但 需配合數位模式操作),則可隨機產生各種不同組合 的遊戲內容,相信可強化回流再玩的吸引力。

## 參考文獻

- 王榮德、詹長權(1985)。核能電廠真的百分之百 安全嗎?。健康世界。114,3-7。
- [2] 吴建忠(2001)。環境放射性的認識之調查分析。 化學。59(2),189-198。
- [3] 林光賢(2012)。深耕核能教育之我見。核能資 訊中心核能簡訊雙月刊。135,20-23。
- [4] 林進材(2018)。教學理論與方法(再版)。臺北: 五南。
- [5] 林群智(2006)。由核電爭議談核科學主軸之通 識教育。通識教育與跨域研究。1(1),19-26。
- [6] 施佩蓉(2016)。日本三一一地震後臺灣反核輿 論的解析:問卷調查研究。國際與公共事務。3, 51-111。
- [7] 徐照麗(2000)。教學媒體:系統化的教學設計、 製作與運用。臺北市:五南。
- [8] 財團法人核能科技協進會(2008)。核能、輻射與 生活通識教材。教育部 95 年度委辦大專校院核 能、輻射與生活通識課程推動工作計畫(案號: 0950186706)。臺北市:教育部。
- [9] 莊閔盛(2004)。淺談核能教育。生活科技教育月 刊。37(4),73-77。
- 〔10〕 陳芳、揚石麟(2012)。大專護生對輻射認知水 平的調查研究。國際護理學雜誌,31(3),547-548。
- 〔11〕 楊國良(2011)。高中職學生核能認知與核能態

度關係之研究(未出版之碩士論文)。國立彰化 師範大學,彰化。

- [12] 趙惟珍(2012)。台北地區民眾對輻射風險知覺 之研究(未出版之碩士論文)。銘傳大學,臺北。
- [13] Alexander, S. (1984). Why Nuclear Education?
   A Sourcebook for Educators and Parents.
   (ERIC No. ED 256 683)
- [14] Bradley, L. A. (2012). Radiation safety for radiologic technologists. American Society of Radiologic Technologists, 83 (5), 447-461.
- [15] Clayton, R. & Trotter, T. (2013). The impact of undergraduate education in radiation oncology. Journal of Cancer Education, 28 (1), 192-196.
- [16] Dick, W & Carey, L. (1996). The Systematic Design of Instruction. 4th ed., N.Y. Haper Collins.
- [17] Dick, W., Carey, L. & Carey, J. O. (2005). The systematic design of instruction (6thed), Boston, MA; Allyn and Bacon

## 原子能輻射防護科普內容製作與社群媒體推播之研究 Research on content production and social media communication of atomic energy

science popularization

計畫編號: MOST 111-NU -E-144-001 -NU 計畫主持人:單文婷 e-mail:wenting@ntua.eud.tw 執行單位:國立台灣藝術大學廣播電視學系

## 摘要

科學傳播生態系 (ecosystem) 在過去二十年間出現 明顯變化,網路普及與社群媒體問世,不僅迅速地改變 人類生活,影響國家社會發展,在科學傳播領域也因此 出現嶄新樣貌,例如科學家、科學研究機構有越來越多 機會藉由社群媒體與公民接觸,透過型態多元的各種作 品,直接向公民傳達科普知識,不再需要像過去依靠媒 體記者作為中介。也因為社群媒體,過去被認為最困難 的科學知識轉譯、讓科學向公眾流動等也變得容易且有 效果。本研究基於前述研究背景,一方面探討當科學傳 播從傳統媒體轉向網路社群媒體發展,如何在內容製作 上更親民、更受到公眾歡迎、傳播更有效?另方面也藉 由協助原子能委員會製作科普展覽影像、網路課程或嘗 試各種型態的科普影像作品,期盼能實踐公眾參與科學, 讓更多民眾理解原子能科普。另外為提倡科學領域的性 別平等與鼓勵多元文化參與,本研究今年也邀請協助推 廣原子能科普的新住民種子老師現身說法,期待透過影 像傳播力量倡議科學傳播性別創新。

**關鍵詞:**科學傳播、公眾參與科學、社群媒體、性別創 新、原子能委員會

#### Abstract

The science communication ecosystem has undergone significant changes in the past two decades. The popularization of the Internet and the advent of social media have not only rapidly changed human life, but also affected the development of the state and society. Scientific research institutions have more and more opportunities to contact citizens through social media, and directly convey popular science knowledge to citizens through various works of various types. They no longer need to rely on reporters as intermediaries in the past. Also, the translation of scientific knowledge, which was considered the most difficult in the past, and the flow of science to the public have become easy and effective all because of social media. This study is based on the aforementioned research background. On the one hand, it explores how to make content more close to the people, more popular with the public, and more effective when science communication shifts from traditional media to social media. On the other hand, by assisting the Atomic Energy Commission to produce popular science exhibition videos, online courses, or try various types of popular science video works, we hope to practice public participation in science and let more people understand atomic energy science. In addition, in order to promote gender equality in the field of science and encourage multicultural participation, this study also invites new resident seed teachers who help promote atomic energy science to speak out, and looks forward to advocating gender innovation in science communication through the power of image communication.

**Keywords**: Science Communication, Public Engagement in Science, Social Media, Gender Innovation, Atomic Energy Commission

## I. 前言

新冠肺炎 COVID-19 疫情肆虐全球期間,不僅改變 了人際互動,長期封鎖的措施也對民眾心理及社會發展 造成影響。德國國家科學院(The German National Academy of Science)在2020年就發表聲明,呼籲各國 政府要關注民眾封鎖生活及其後的負面問題,包括網路 上的各種關於傳染病的假訊息、以及有爭議的公共衛生 資訊辯論等。專家學者提醒我們,由於在疫情期間,民 眾大量暴露在社群媒體訊息中,對科學知識、疫情疾病、 公共衛生等訊息的需求量高,所以政府應該讓專業的科 學家借助社群媒體力量導正視聽,告訴民眾「專家怎麼 說」(What do the experts say?)和「具體情況是什麼」 (What are the specifics of the situation),讓科學家與決 策者共同合作,協助民眾安心度過危機時期。

而當疫情趨換,各國邊境陸續解封,但社群媒體上 仍然充斥大量的真假訊息,民眾要如何分辨?或是如何 提高民眾數位媒體素養,讓民眾具備辨識假訊息的能力, 也成為各國政府共同努力的方向。學者認為,與此同時 也不要忘記科學家的力量,科學家的角色在科學傳播領 域已經越來越重要,當「讓專家說話」變成常態,科學 家使用何種傳播管道與傳播內容,以及會有什麼傳播效 果也成為重要課題。本計畫即以從公眾參與科學的角度 出發,研究後疫情時代科學家如何成為「說故事的人」, 並且實際協助原子能委員會製作科普傳播內容,並觀察 在社群媒體上的多元型態作品的傳播效益,期盼讓原子 能科普知識更廣泛傳播。

## II. 主要理論內容

根據本研究旨趣,以下整理與本年度計畫執行相關 理論背景如下:

(一) 訓練科學家來說科學故事:

學者觀察過去二十年,從事科學傳播的人員數量在 穩定增加,這也促使科學傳播影響力快速擴散,此與網 路普及、社群媒體的普及有很大關係,許多研究指出社 群媒體的興起將科學傳播帶入全新的發展階段,科學家 或公眾也越來越熟悉使用社群媒體參與科學傳播,而為 了達到傳播目標,科學家們也開始嘗試以不同以往的多 樣化、創新的內容吸引公眾接觸科學。學者 Liang 早在 2014 年就指出,科學家認為自己是最好的傳播者,尤其 從加強公眾對科學的信任、提供正確訊息、防止科學錯 誤報導等角度,由科學家主導科學傳播、擔任公共傳播 者都優於公眾或媒體記者【1】。

在新冠疫情爆發之前,德國國家科學學院(German National Academy of Sciences)對科學傳播現象進行觀察,其在 2017 年出版「社群媒體與數位科學溝通」

(Social Media and Digital Science Communication)報告 書中指出,網路數位化的發展影響科學傳播發生改變, 比如過去科學家與民眾(專業與非專業)之間壁壘分明 的界線逐漸模糊 (The boundary between professional and general audiences dissolves )。學者認為此所指的就是「公 眾參與科學」(PES)的具體實踐,社群媒體讓公眾和科 學家的對話機會增加了,對於建立公民科學意識 (Citizen Science)、公眾協助科學集資(Crowdsourcing)都 有幫助,與此同時,科學家因為使用社群媒體進行科學 傳播,也必須學習與公眾實際的面對面對話或是在虛擬 的網路空間與民眾交流。傳播學者 McClain (2017)明 確主張應該要由科學家主導科學傳播,尤其在社群媒體 時代,只有科學家才能幫助對抗網路上氾濫的假新聞 (fake news)、偽科學 (pseudoscience) 問題,而且科學 家藉由社群媒體進行專業科學知識傳遞,也有助於提高 公眾信任和平衡媒體報導【2】。

#### (二) 社群視頻與科學傳播

紐約州立大學助理教授 Stengler 等人(2019)研究 指出,透過社群線上視頻,確實可以讓年輕世代和科學 傳播接觸的機會大幅增加,但是他也提出網路視頻上科 學傳播的挑戰,比如由非專業背景的科學家或一般公眾 產製的內容可能造成科學資訊的錯誤解讀,或發生內容 嚴謹度不足等問題。Stengler 等學者對此也提出兩個建 議:其一,線上科學傳播視頻內容應該以正確傳播、溝 通為目的,可以考慮由科學專家製作或是互相合作製播; 其二,應該有更多研究關注線上科學傳播的視頻內容 (science communication through online video),或是讓 專家參與審核,藉由研究分析討論,提出線上科學視頻 產製模式、敘事呈現,以及如何提高科學傳播效果和正 確性的最佳方式【3】。

隨著科學傳播從傳統媒體轉向社群媒體發展,科學 與社會間的動態交流變得越來越頻繁且重要,尤其是疫 情後,人們依賴網路上的各種公衛資訊,許多新創的科 學傳播內容也帶給社會廣泛影響,這也加速科學家更努 力學習與公眾溝通,踏出原本封閉的專業領域,真正實 踐了讓科學向公眾社會流動 (Besley et al.,2015; Davies,2013)【4】【5】。

從研究角度來說,本研究除了進行歐美的文獻整理, 也實際上協助原子能委員會製作社群媒體傳播的多元 內容,藉由觀察實作過程,一方面與新興的科學傳播研 究對話,討論疫情後的科學傳播發展趨勢,另方面也期 盼藉由參與原能會的科普內容製作,觀察科學家們使用 社群媒體進行公共傳播的變化。本研究從105年起執行 原子能科技學術合作研究至今(112年計畫執行中),已 協助製作多部原子能政策動畫、相關影片或網路數位教 材等,而在網路上置放多樣化的互動式科普內容,是否 真的有助於實踐科學的公眾參與?增加原子能科學專 家與公眾的溝通互動?也將是本研究欲探索的議題。

#### (三)總的來說,本年度今年目標有以下幾項:

- 提高科學家使用社群媒體傳播之能力,增加科學 政策行銷效果,鼓勵公眾參與科學討論。
- 鼓勵與協助科學家主動傳播,以平衡社會視聽,過 止偽科學或假科學新聞傳遞。
- 協助政府製作原子能科學傳播主題的社群媒體線 上視頻內容。

## III. 成果與討論

本年度執行成果說明如下:

(一)完成以國、高中生為對象的科普書籍採訪與編輯, 書名為「晨讀 10 分鐘-原子,你要去哪兒?」共製 作包括認識輻射、核電廠除役、輻射應用以及原子 能女科學家等 14 篇文章,並且完成書籍封面設計、 與片頭動畫製作,明年度將以製作成動態內容且 並嘗試讓科學家參與內容製播,推出國內原子能 科普 podcast 與首部電子書。



(二)協助原能會在2月華山展覽拍攝現場影片,以及現場課程4部影片(主題為:除役向前行-安全停機篇、輻災防救小英雄、阿輻電眼好犀利、前進大海-離岸風機知多少),以及社群媒體上FB科普影片7部,111年共拍攝與製作完成社群媒體科普傳播11部影片,並放置社群媒體上進行傳播。



- (三)7月份協助原子能委員會製作線上科普展覽影片, 共4部科普影片(每部4到5分鐘)主題分別是氚貞 瑩現、毛小孩動物X室、微電網、放射性廢棄物 的分類及處置。
- (四) 鼓勵與倡議科學傳播中的性別平等,111年6月邀請現任 WIN TAIWAN 黃茹絹會長線上演講,演講主題「原子能領域的女科技人」,並開放校內外師 生或民眾參與,倡議科學性別平等。



(五) 製作與拍攝訪問 4 位原子能新住民種子老師加入 原子能科普傳播的過程與感想,製作「用新(心)表 達:新住民老師說科普」紀錄影片,開啟從性別創 新、性別交纖觀點討論科學中的性別平等議題。



## IV. 結論與建議

回顧本年度計畫執行過程與成果內容,對學術研究 等各方面應用價值與未來建議說明如下:

- 本年度邀請2至3位傳播學院的研究生參與研究, 確實有助於增加年輕世代對社群媒體上的真假科學 訊息辨別有啟發作用,也有利於鼓勵年輕世代投入 科學傳播相關研究、或參與科學傳播視頻的拍攝製 作。
- 邀請碩博士與大學生參與線上科學視頻製作的執行, 一方面有助增加其對政府原子能科普政策理解,且 本計畫發現,邀請年輕世代參與計畫對提升原子能 委員會正面形象、提升其關注科學領域的性別平等 也有幫助。
- 邀請年輕世代針對原能會內容進行社群媒體分享, 增加本計畫協助製作各種原子能科普視頻內容的傳 播效果。
- 4.本計畫製作之原子能科學視頻內容、短影音等可提供讓高中、國中、國小學生做為科學課程或生活領域課程補充使用,讓學生藉由影像認識原子能科普、理解輻射防護安全知識,並且得到正確科學研究資訊。
- 5. 本研究在執行期間也整理國外最新之科學傳播研究 文獻,透過參與觀察,探討國內科學家進行跨域合 作、公眾溝通、科學傳播、科學領域的性別創新等 意見與做法,預計日後撰寫論文進行發表或投稿期 刊供學術研究參考。

## 参考文獻

- Liang, X., Su, L.Y-F., Yeo, S.K., Scheufele, D.A., Brossard, D., Xenos,(2014). Building buzz:(scientists) communicating science in new media environments. *Journalism & Mass Communication Quarterly*. 91(4), 772-791. doi:10.1177/1077699014550092.
- McClain, C.R. (2017). Practices and promises of Facebook for science outreach:Becoming a Nerd of Trust. *PLoS Biol.* 15(6),e2002020. https://doi.org/10.1371/journal.pbio.2002020
- [3] Stengler, E. & Sherman, H. (2019). "Research catches up with the unstoppable How to citereality of s cience communication through online video". *JCOM* .18 (02), doi:https://doi.org/10.22323/2.18020701.c
- [4] Besley, JC.(2015)." What do scientists think about the public and Does it matter to their online engagement?". *Science and Public Policy*, 42:201– 214
- [5] Davies, S. R. (2013)." Research staff and public engagement: A UK study". *Higher Education*,66(6):725–739. doi: 10.1007/s10734– 013-9631-y

## 化學遊樂趣-放射永恆 Chemistry On the Go - Radioactive

計畫編號:111-NU-E-032-001-NU

計畫主持人:陳曜鴻

e-mail:yauhung@mail.tku.edu.tw、yunchin.wu@gmail.com 計畫參與人員:高憲章、吳勇慶、范靜怡、譚均皓、林佑燐 執行單位:淡江化學系、淡江科學教育中心

## 摘要

今年本計畫延續去年計畫成果,主要是為了能讓學 校師生及社會大眾從科學實驗中學習輻射及原子能知 識,透過淡江化學系與科學教育中心聯手合作辦理「化 學遊樂趣」活動,以兩台改裝後的貨車做為實驗及活動 載具,將規劃出的輻射及化學教案帶入全臺數地教學資 源相對缺乏的學校,讓參與活動及實驗的師生能有機會 認識原子科學,同時利用辦理大型擺攤活動時機進行雙 方交流,以連結更多有著潛在需求的學校師生,以此增 進輻射科普教育受教地區及對象,達成更全面的原子能 科普推廣教育。

**關鍵詞:**化學遊樂趣、輻射實驗、化學實驗、游離輻射、 輻射防護、輻射應用。

#### Abstract

This year, the project aims to build upon the achievements of last year's initiative. Its main objective is to enable students, teachers, and the general public to learn about radiation and atomic energy through scientific experiments. Collaborating with the Department of Chemistry at Tamkang University and the Science Education Center, the project will organize the "Chemistry On the Go" event. Two modified trucks will serve as mobile laboratories and activity vehicles, bringing planned radiation and chemistry teaching materials to schools in areas with limited teaching resources across Taiwan. By participating in the activities and experiments, students and teachers will have the opportunity to familiarize themselves with atomic science. Furthermore, during large-scale scientific events, there will be opportunities for mutual exchange, aiming to connect with more schools who have potential educational needs. This will enhance the outreach of radiation science education and promote comprehensive atomic energy popularization and education.

**Keywords :** Chemistry On the Go × radiation experiment × chemical experiment × ionizing radiation × radiation protection × radiation application •

## I. 前言

本計畫內容主要起源於生活中各報章媒體常見之 輻射與能源相關議題,這些議題在各種產官學組織中常 伴隨著許多似是而非的爭議,在沒有透過適合的教育管 道了解議題的背景知識下,民眾眼裡的輻射及核能就成 為不安全或危險的代名詞。社會大眾對於原子科學的了 解,常透過各種報導文章介紹,從核電廠爆炸、核廢料、 核武器等具有爭議的角度進入,進而以較負面的看法 來詮釋原子能。然而原子能在基礎科學知識領域、對現 代社會科技的諸多應用,廣泛而深入在醫農工商研究等 各領域之中,影響力非同小可,因此如何將正確的原子 能科普知識推廣於社會之中,就成為本計畫工作者刻不 容緩的事情。

過去數年,淡江大學科學教育中心一直深耕於化學 科普教育的推廣,我們舉辦了適合國中小、高中生及一 般大眾的科普推廣活動,希望藉此讓更多偏遠地區或教 育資源較少的學校能有機會接觸到有趣的化學知識。在 2019 年的科普活動中,因緣際會下與清華大學原子科 學技術發展中心展開合作,建立起化學教育與原子科學 教育一同推廣的方式,在合作兩年後,開啟由淡江大學 支持的輻射推廣教育計畫。計畫之中,淡江科教中心透 過辦理「化學遊樂趣」活動的方式,以兩台三噸半貨車 改裝成「化學車」及「分析車」,將車子變身為適合展 現及表演實驗的舞台,同時也能搭載科普教育所需之儀 器及教案,巡迴於臺灣各地偏遠地區及有需求的學校, 將輻射教育資源帶入校園,增加在校師生們另種學習科 學的方式。

## II. 主要內容

本計畫基於一般中學師生無法透過學校正規課程 學習原子能及輻射基本知識下,以淡江化學系及科學教 育中心過去數年的化學推廣教育經驗做為基礎,透過與 社會各產官學組織單位合作,以化學遊樂趣活動做為推 廣主軸,將輻射及原子能相關知識送進偏遠地區學校。 計畫執行期間,我們與各縣市政府教育單位、有活動需 求之學校合作,討論雙方需求,一同辦理科普推廣活動。 具體內容分別敘述如下:

#### 1. 化學車-科普活動執行:

計畫執行期間,化學遊樂趣的化學車活動是以淡江 科教中心團隊為主體,帶領校內化學系工讀生及服務學 程生參與活動執行,活動前置作業包含:與參與學校聯 繫討論需求、實驗教案設計、化學車車況及實驗器材整 備、工讀生及學程生募集與培訓等作業,準備完成後即 開著化學車至學校辦理包含三個節目的一日活動課程。 另外,化學車也於計畫期間與多個產官學組織合作辦理 大型科普活動,各別內容敘述如下:

- (1) 化學魔術秀:透過將化學車單側開啟歐翼而變形的舞台做為活動的表演中心,以主持人表演脫口 秀及魔術的方式,吸引同學們的注意,讓學生能在 輕鬆歡樂之餘認識化學及體驗它的樂趣。
- (2) 化學的故事:除了以充滿歡笑的表演方式讓同學 學習化學之外,我們也用一節課的時間,設計專業 講座介紹化學家的故事,如:瑪麗居禮的故事、輻 說講座,講座知識也會結合諸多時事、議題等,並 於故事時間搭配學校主題課程,也透過設計出大 型海報、壁報,在活動期間於巡迴學校活動中心展 覽。
- (3) 實驗動手做:化學是一門以實驗為主的科學,然而 在偏遠地區的學校常受限於校內科學教師缺乏、 實驗器材不完備或實驗課程時間不易取得等因素, 讓學生無法透過實驗進行化學學習,因此我們設 計出數個實驗,如:知輻習輻、三碘一課等,由淡 江科教中心團隊及化學系的學生擔任講師及助教, 指導學生從操作中學習步驟背後所代表的輻射及 化學知識。
- (4)大型科普活動:本年度計畫有辦理數場大型科普活動,我們以輻射偵測實驗為主與行政院原子能委員會、同步輻射中心、新北市教育局、嘉義市教育處、臺北科教館、高雄科工館等單位合作,教導參與活動民眾及師生操作實驗及學習輻射相關知識,並將推廣成果及教案分享給更多有興趣的單位組織。

#### 2. 分析車-分析實驗學習:

分析車活動主要執行方式是以專業的器材、化學分 析實驗及數據整理分析的方式來進行,過程中希望讓學 校同學體驗科研人員常見的實驗方式,從動手做實驗開 始,建立起學習化學的興趣。活動執行流程:首先進行 約40分鐘的實驗前講座,提供學生做實驗前必備的基 礎知識,這些專業知識會與生活科學結合,隨即開始約 2小時的動手做實驗,逐步帶領學生完成化學實驗中的 器材操作、數據計算及誤差評估。在分析車的實驗課 中,我們原本希望將輻射知識及實驗內容帶入其中,但 因2019年起的新冠疫情影響,儀器及材料等資源無法 適時供應,使得我們做了一些調整,將輻射實驗先進行 簡化並放在化學車活動之中,再利用分析車到校辦理實 驗的時間,與學校師生進行前期探訪、討論需求及未來 執行方式,以待疫情趨緩後計畫能繼續深耕,設計出專 屬分析車的輻射實驗及教案。

### III. 結果與討論

利用 II.主要內容所提及之活動、故事、表演及實驗 等課程,本計畫在今年度執行之研究結果主要是:化學 車的講座與實驗、分析車的實驗學習、大型科普活動推 廣、化學遊樂趣活動場次統計,細部說明如下:

#### 1. 化學車-化學的故事:

本計畫所進行之「化學遊樂趣」活動分為化學車及 分析車活動,化學車活動為完整一日行程,其中化學的 故事時間會採用校內 1~2 節課的時間,以原子科學或 基礎化學的科學家故事、科普新知、科學新聞、產業資 訊及科技動態等訊息,整合設計出適合國中小生的講座 (圖 2),如:瑪麗居禮(科學家)的故事、「輻說」講座。 另外,也會依據當日搭配的實驗動手做,以主題式展出 大型壁報,在計畫執行活動期間跟著化學車到各巡迴學 校做展覽。今年的研究成果,設計並改良「知輻習輻」、 「三碘一課」的背景知識壁報(圖 1),提供校內師生利 用活動時間觀看,以強化學習印象。



圖 1 知輻習輻、三碘一課背景知識海報



圖 2 化學車-輻說與化學主題講座 左上:彰化草湖國中;右上:臺南麻豆國中 左下:花蓮鳳林國中;右下:雲林宜梧國中

#### 2. 化學車-實驗動手做:

前言提到,化學車的活動為一日行程,當日通常分 為三個部份,此項動手做實驗的部份會安排於活動日的 下午進行,教學方法為設計出三個不同的實驗,並讓參 與學校學生進行闖關體驗,淡江科教團隊在過去數年之 中已設計出約 25 個實驗,今年研究成果為改良去年設 計出的實驗,分別為「知輻習輻」實驗、「三碘一課」 實驗,實驗內容分別敘述如下:

(1)「知輻習輻」實驗:本實驗利用簡易蓋格管輻射偵 測器、生活中的輻射源、特殊屏蔽材料、實驗學習 單(圖 3)及教案等教材,開發出一套適合國中師生 學習之輻射課程教案,讓學生在體驗實驗後,能 學習到輻射是什麼?輻射在哪裡?輻射的分類、 輻射的防護及輻射的應用等原子能知識,並適時 提供常見的輻射問與答,讓學生親自接觸實驗的 同時,也能順便解惑對輻射的疑問。

(2)「三碘一課」實驗:本實驗利用生活中容易取得的 優碘、熱水、指紋及去漬油等材料,搭配實驗學習 單(圖 3)及教案等教材,根據碘元素三態變化的方 式,設計出一套適合國中師生學習的碘元素教案, 讓學生在認識碘元素的基本性質中,能一同接觸 到核電廠事故中常提及的碘 131、碘片、飲食缺碘 的疾病及輻射汙染等知識議題,也會知道碘酸鉀 (KIO3)常添加於一般食用鹽中形成加碘鹽,以生活 科學知識做連結,延伸同學認識輻射防護與放射 科學的知識。



圖 3 知輻習輻、三碘一課實驗學習單



圖 4 知輻習輻、三碘一課實驗照片 左上:桃園新屋高中;右上:彰化草湖國中 左下:高雄大洲高中;右下:花蓮光復國中

#### 3. 化學車 - 大型科普教育推廣活動:

本年度計畫,我們嘗試與多個產官學組織合作,將 輻射與原子能教案透過活動擺攤的方式,面對社會各族 群民眾進行科普教育推廣。主要合作活動有:淡江大學 春之饗宴、嘉義科學 168 教育博覽會、臺北科教館中小 學科學博覽會、新北市教育局科普遊樂趣、同步輻射中 心 Open House 活動、臺灣科普環島列車活動、臺灣科 學節等諸多大型科教活動,將團隊所研製教案教材,傳 播於參與活動之師生、校友、民眾等各社會群體,希望 藉此面對大量民眾的機會,較快速地傳播正確的原子能 基礎知識。



圖 5 大型科普教育推廣活動照片 左上: 嘉義科學 168 博覽會; 右上: 中小學科學博覽會 左下: 同步輻射 Open House; 右下: 科普列車活動

#### 4. 分析車-分析實驗學習:

化學遊樂趣分析車活動的核心,是以專業的實驗器 材、嚴謹的實驗操作及完整的數據分析做為實驗方式, 實驗過程是希望讓參與活動的學生能體驗科研人員日 常實驗的研究方式,於動手做實驗中建立起對化學的興 趣。實驗執行流程,首先我們進行約40分鐘的實驗前 講座,將化學知識、生活科學及時事新知結合,讓學生 具有實驗前預備知識;接著再利用約2小時進行實驗, 逐步帶領學生完成化學分析實驗、器材操作及數據計算。 在分析車的實驗課程中,我們原本預定將輻射知識、實 驗材料無法適時供應,因此我們做了些許調整,將輻射 實驗簡化置在化學車活動,並利用分析車到校辦理活動 的機會,與學校師生進行前期訪查及需求討論,以待未 來持續申請的計畫能繼續深耕,開發設計出專屬分析車 的輻射實驗。





圖 6 分析車實驗前講座及實驗後合照 左上:桃園陽明高中;右上:國立苑裡高中 左下:新竹香山高中;右下:臺南建興國中

#### 5. 化學遊樂趣活動場次:

本計畫所辦理之化學遊樂趣活動,以淡江大學化學 系及科教中心為出發點,連結全臺各地縣市政府教育單 位、化學產業界及基金會、科學教育民間組織及其它有 心深耕於科普教育的團體進行合作,開著兩台改裝貨車

跑遍全臺各縣市偏遠或資源缺少之地區國中小、高中, 進行到校科普教育活動。然而,2021-2022 年淡大科教 團隊面臨成立多年來所遭遇的最大考驗,因新冠疫情確 診人數的爆發、學校單位的警戒,限制了很多跨縣市的 教學活動,使得化學車及分析車出隊期間少了很多機會, 在這樣難以到處趴趴走的條件下,我們仍持續努力執行 任務並推廣教育活動。最終,2022 年化學遊樂趣活動場 次統計:化學車 30 場、分析車 16 場、大型科普活動 8 場,全年共 54 場次,平均 4.5 場/月;活動參加人數總 計 7427 人 (男生 3832 人、女生 3595 人),活動場次大 合照如圖 7。從數據統計中可得知,活動參與男女生人 數已逐年地接近,顯見在現今社會講究性別平等的風氣 之下,我們已可以做到不因性別關係而影響受教機會。



圖7活動場次大合照 左上:南投信義國中;右上:臺南學甲國中 左下:高雄一甲國中;右下:花蓮鳳林國中

本計畫結果提列三點展望,討論如下:

- (1)持續將化學遊樂趣活動所開發及設計之課程、實驗、教案等資源,向全臺各縣市之偏遠或資源相對缺乏地區學校辦理,也希望在來年的計畫中,疫情對活動的影響能逐步減少,我們可以將原子科學及輻射科普教材融入化學魔術秀表演、分析車實驗之中,讓更多國高中學生能夠有機會體驗化學與原子科學的奧秘與樂趣。
- (2)本計畫所辦理之活動工作人員,不論是否是淡江 大學學生,除了在活動前學習應有的背景知識及 操作技能外,也需要學生能將課程知識及實驗融 會貫通,並有能力教導同儕,我們會持續對團隊工 作人員進行培訓,並塑造出一群對於化學及原子 科學有清楚知識及能力的種子講師。
- (3)本團隊將持續與活動所到之學校團隊進行合作, 將化學遊樂趣現有之教案與教材提供給有需求的 中小學教師,並協助教師在現有的課網上進行相 關物理、化學課程教材開發、探究與實作課程。另 外,活動進行的同時也會和化學相關產業建立合 作管道,並在課程之中提供學生了解臺灣目前化 學及能源產業現況,以期待未來有更多年輕戰力 強化臺灣科技產業的發展。

#### IV. 結論

依據結果與討論資料顯示,將111年度計畫之化學

車活動、分析車活動、大型科普活動、化學遊樂趣場次 及成效評量等成果總結於下:

- 化學遊樂趣之化學車活動,開發設計並改良出適合 國高中師生之化學故事時間課程:瑪麗居禮的故事、 輻說講座;化學車動手做實驗:知輻習輻實驗、三 碘一課實驗。全年活動場次共 30 場。
- 化學遊樂趣之分析車活動,以化學講座開場介紹實驗背景知識,結合生活中的科普,再讓參與活動學 生親自動手做實驗,從實驗中學習化學及原子能科 普知識。全年活動場次共16場。
- 化學遊樂趣之大型科普活動:本年度與去年相比, 增加不少產官學合作對象,並與這些對象辦理數場 大型科普教育活動,於臺灣北中南三處皆有辦理。 全年活動場次共8場。
- 本計畫辦理之化學遊樂趣活動場次,分別為化學車 活動 30 場、分析車活動 16 場、大型科普活動 8 場, 共辦理 54 場次。活動場次分佈圖於圖 8。
- 5. 本計畫在辦理化學遊樂趣 54 場活動之後,將活動結 束後回收之有效問卷統計並做量化處理,發現學生 普遍對於活動滿意度高,化學實驗操作部份,有不 少同學表達希望有機會能再做相關實驗,經過基礎 課程學習後,有近7成的學生對化學或原子科學是 有想法或是有興趣多了解,甚至有高達96%的學生 有意再參加一次活動,有此可見,本團隊持續深耕 臺灣科普教育之重要性,將有助眾多年輕學子們啟 發對於基礎科學知識的喜好與好感。



圖 8 活動場次分佈圖

## 參考文獻

〔1〕110年度原子能科技學術合作研究計畫成果發表 會論文集。

## 科展用核能與輻射知識之互動電玩遊戲 Interactive Game of Nuclear and Radiation Knowledge for Science Fairs

計畫編號: MOST 111-NU-E-262 -001-NU 計畫主持人: 陳彥均 e-mail: chen.mg.lhu@live.com 執行單位: 龍華科技大學多媒體與遊戲發展科學系

## 摘要

核能與輻射知識,是一般人比較不了解的領域。然 而,核能與輻射具有許多應用,和民眾的日常生活相關。 根據過去的經驗,電玩遊戲對於兒童和青少年,具有極 高的吸引力。非常適合應用於科展等活動,向民眾宣傳 科學知識。本計畫利用電玩遊戲技術,以核醫藥物為主 題,開發了互動式電玩遊戲。此程式可以應用在傳統科 展活動,讓民眾了解核醫藥物的製作與保存方法,並且 了解輻射防護與半衰期等知識。

關鍵詞:電玩遊戲、核醫藥物、輻射、科展。

## Abstract

Nuclear and radiation knowledge are unfamiliar topics for the public. However, there are many applications related to our daily life. According to past experiences, computer game is attractive to children and teenagers. It is suitable to propagate knowledge in science fairs. In this project, a computer game program of radiopharmaceutical is developed. This program can be applied in both traditional science fairs. The public can understand the product and the store of the radiopharmaceutical. The knowledge, such as radiation protection and half-life, will be learned.

**Keywords** : Computer game, radiopharmaceutical, radiation, science fairs.

## I. 前言

核能與輻射知識,是一般人比較不熟悉的領域。然 而,核能與輻射具有許多應用,和民眾的日常生活相關。 如果民眾缺乏正確的知識,則容易被坊間流傳的錯誤觀 念誤導。因此,向民眾傳遞正確的核能與輻射知識,是 一件相當重要的事情。在2018-2019年的開發與展出經 驗之中,發現互動式電玩遊戲對於兒童和青少年,具有 極高的吸引力。非常適合應用於科展等活動,向民眾宣 廢除役、輻射的民生應用三個主題,製作了 VR 程式。

在本計畫之中,以核醫藥物為主題,製作了一款知 識型電玩遊戲。其中,包含了核醫藥物的製作、存放與 運送等三個關卡。透過這三個關卡,讓民眾了解核研所 的迴旋加速器,以及輻射防護和半衰期等知識。

## II. 主要內容

本計畫所開發的電玩遊戲,取名為「救命輻務-核 醫藥物」,遊戲的開頭畫面如圖 01。在第1個關卡之中, 介紹核醫藥物的製作。藉由核研所的迴旋加速器,撞擊 固態、液態或氣態的標靶,以產生特定的放射性同位素, 如圖 02。在第2個關卡之中,介紹核醫藥物的輻射防 護。利用鉛製容器,存放具有放射性的核醫藥物,以阻 隔輻射對於外界的影響,如圖 03。在第3個關卡之中, 介紹核醫藥物的半衰期比較短,所以無法從國外進口, 必須在台灣自行製造,如圖 04。



圖 01:遊戲開頭畫面







圖 02: 關卡 1 之遊戲畫面





圖 03: 關卡 2 之遊戲畫面



圖 04: 關卡 3 之遊戲畫面

因應疫情,部分科展改成網路線上型式。因此,本 計畫也將這款電玩遊戲,轉製成網頁版本。舉辦線上科 展時,只需要租用網路伺服器,來架設這款遊戲。再將 超連結放置在線上科展網頁。如此,民眾就可以透過網 路瀏覽器,來遊玩本計畫所開發的遊戲。

## III. 結果與討論

本計畫的成果,授權給原子能委員會免費使用。在 原子能委員會所舉辦的科展之中,進行實際進行展出, 並且開放給民眾體驗使用,如圖 05 所示。吸引了許多 參觀民眾進行體驗。









圖 05: 於科展中開放民眾使用

## IV. 結論

本計畫利用民眾有興趣的電玩遊戲技術,以核醫藥 物為主題,開發了知識型電玩遊戲。藉此,吸引民眾了 解核醫藥物的生產、存放與運送等知識。本遊戲開發完 成之後,授權給原子能委員會使用,已經在科展之中, 實際開放給民眾體驗,獲得良好的成果。本計畫的整體 成果,與原先的規劃大致相符。

## X 光分析技術應用於東方書畫之研究(II)

## Applications of X-ray analytical techniques in the studies of East Asian paintings

計畫編號: MOST 111-NU -E-136-001-NU 計畫主持人:陳東和 e-mail:thchen@npm.gov.tw 計畫參與人員:陳韻婕 執行單位:國立故宮博物院

## 摘要

本計畫主要利用 X 光輻射檢測技術分析研究東方 書畫,包括使用 X 光螢光 (XRF) 分析材料的元素分佈 情形,以及利用 X 光影像技術觀察繪畫材料結構層次 並藉以瞭解繪畫設色、技法等問題。此外,亦視需要運 用其他分析技術如 FT-IR、高光譜影像術等,以獲取較 為完整的繪畫材料與結構訊息。本計畫為二年期計畫, 接續第一年對部分清代宮廷繪畫及唐卡之分析,第二年 以十九世紀廣東外銷畫的研究為主,分析包括數幅廣州 及香港之港灣風景畫與兩幅林呱或其作坊所繪的油畫 人物畫像〈浩官〉與〈廣州行商〉。透過大面積 XRF 元 素分析掃描的結果,結合 FT-IR 光譜分析,可判定繪畫 使用的顏料及其設色情形,同時也建立繪畫材料分析數 據庫,日後能進一步結合藝術史的研究,討論繪畫技法 與風格等相關議題。此外,分析結果也揭露了畫作過往 的修復痕跡,提供未來作品持拿、保存與展示之重要參 考。

關鍵詞:X光,X光螢光,FT-IR,外銷畫,顏料

## Abstract

This 2-year project employs X-ray analytical techniques, including Macro-X-ray fluorescence (macro-XRF) for elemental mapping and X-ray imaging for layer structure inspection, to study some East Asian paintings of different types and periods. Besides, FT-IR and other auxiliary techniques are also used to complement the study. Following the first year study on court paintings of the Qing dynasty and Thangka, the second year's investigation focuses on the Chinese export painting housed at the National Palace Museum, including two portraits by Lamqua or his workshop and some other port landscape oil paintings. With the macro-XRF and FT-IR, the pigments used in the paintings are identified and may serve as database for exploring pigment trade, painting techniques and other issues related to the history of art. Besides, the former restoration of the painting has also been revealed, which provides critical information for holding, conservation and exhibition of these paintings.

Keywords : X-ray, XRF, FT-IR, export painting, pigments.

## I. 前言

不論從書畫的保存、材質的研究,或書畫鑑識的角

度而言,科技分析方法或可扮演輔助的角色,提供基本 或關鍵的作品材質、技法或年代訊息。東方傳統書畫一 般是以墨、礦物及動、植物顏料於處理過的紙或絹上書 寫或作畫,就材料和技法上而言,與西方油畫有異。雖 然所使用的顏料之原始材質或相同,但不似油畫通常以 畫布或木板為基底材,於其上施繪較厚的顏料層,書畫 作品整體組成較薄,墨及有機類材質常是主要材料,即 便使用礦物顏料,通常亦無如油書有厚厚堆疊的顏料層, 因此,從非侵入性、無取樣的非破壞檢測分析的角度而 言,確實有其技術上的限制。而在另一方面,拜科技日 新月異之賜,有愈來愈多針對藝術品研究而發展或改良 的非破壞檢測技術,如X光螢光光譜(XRF)、FT-IR光 譜、多光譜或高光譜術等,不論是靈敏度或解析度,都 較過去要提高許多,對書畫的分析研究的確有所裨益。 不過就書畫的科技檢測整體而言,因為相關參考資料庫 有限,即使運用了新穎的光學技術獲取了材料光學圖譜, 亦未必能精確地判斷材料屬性與內容;另一方面,國內 結合科技分析與書書藝術史的跨領域之整合性研究尚 有待持續開拓。

關於東方繪畫的研究,學界過去對浮世繪及中國或 日本傳統書畫也進行了不少科學分析研究,累積了一定 的成果,例如東京文化財研究所或美國 Freer Gallery 等 過去所進行的繪畫科學分析研究案例,或可提供國內博 物館界參考。

國立故宮博物院近年來建置現代的文物科學研究 實驗室,著手各類型的文物分析,其中書畫的檢測研究 相對較少。本計畫主要在過去既有的相關分析研究的基 礎上,利用X光相關技術,包括X光螢光分析與X光 影像術,並結合其他分析技術如FT-IR、高光譜等,針 對本院部分十八、十九世紀的書畫作品進行研析,希望 透過跨科技與人文藝術的合作,能夠對這些作品有更多 的認識。本計畫為二年期計畫,第一年(110年)分析 清代宮廷繪畫與唐卡;第二年(111年)主要則是研究 分析本院近年入藏之清代廣州外銷畫。

十七世紀下半葉後,隨著東西交流日益頻繁,在西 風東漸下,許多傳教士進入中國後,引進了顏料和創作 技法,也為清代的藝術風格注入了新的質素。十八世紀 後,除了清宮外,廣東為接觸西方外來文化與貨物最直 接的地方,各類洋貨主要是透過廣州十三行進口到中國, 其中也包括許多的工藝材料。在中西藝術交流的氛圍下, 廣州外銷畫約莫於十八世紀中葉興起,並盛行、流通於 十九世紀。外銷畫的銷售對象主要為歐美人士,採用西

方的畫法與風格,材料上則同時包括了就地取材和使用 西方的繪畫材料。就繪畫類別上,有油畫、紙本水彩、 玻璃畫、通草片水彩畫、水粉畫、壁紙畫等。外銷畫描 繪了十八、十九世紀以廣州為中心的人事景物與貿易交 流情形,同時是研究東西貿易與藝術交流的重要材料。

本計畫透過大面積 XRF 元素掃描等相關技術,分 析判定外銷畫上所使用的顏料,並討論設色方式,同時 也建立繪畫材料分析數據庫,日後能進一步結合藝術史 的研究,討論繪畫技法與風格的相關議題。此外,分析 結果也也揭露了畫作過往的修復痕跡,提供未來作品持 拿、保存與展示之重要參考。

## Ⅱ. 研究對象及方法

#### 2.1 研究對象

本計畫第二年主要則是研究分析國立故宮博物院 所藏之清代廣州外銷畫。本院近年入藏多幅外銷畫,目 前典藏於南部分院。作為近代亞洲藝術的一環,特別與 十八及十九世紀東西文化、藝術與貿易交流中扮演一定 的角色,這些外銷畫承載了繪畫材料與技術相關資訊, 不過由於過往對外銷畫的科學分析研究相對較少,本計 畫希冀能透過分析此批外銷畫,建立顏料資料庫,藉以 討論外銷畫的顏料使用狀況與設色技法,

目前所分析的外銷畫內容包括數幅廣州及香港之 港灣風景畫(圖1至圖4)與兩幅人物畫像〈廣州行商〉 (圖5)與〈浩官〉(圖6)。此二幅畫像為林呱(Lamqua, 本名關喬昌)或其作坊所繪的油畫。關喬昌與其兄弟關 聯昌(又名庭呱)於1825成為喬治·錢納利(George Chinney, 1774-1852)的學生,學習西方油畫技法,並於 1835年於廣州開設畫室。



圖1廣州風景畫,19th C.末,油彩



圖 2 香港, c. 1860, 油彩



圖 3 虎門, 19th C 前半, 油彩



圖 4 廣州商行, 1830s, 油彩



圖 5 廣州行商,林呱或其作坊,1834,油畫



圖 6. 浩官,林呱或其作坊, 19th C 油畫

#### 2.2 研究方法

本研究利用大面積元素掃描分析儀(macro-XRF)、 傳立葉轉換紅外線光譜儀(FT-IR)及高光譜影像(hyperimaging)等技術,檢視分析國立故宮博物院近年入藏之 多幅外銷畫,包括兩幅人物畫像以及多幅港口風景畫。 研究內容主要透過材料檢測技術分析畫作之結果,討論 畫作中顏料使用種類與設色狀況。由於現存外銷畫的科 學分析研究仍有限,本研究對外銷畫的繪畫顏料與技法 之認識有所裨益。此外,也藉由檢視肉眼看不見的隱藏 影像與顏料訊息,揭露畫作過去的修復痕跡,提供未來 保存修復之參考。

#### (一) X 光螢光光譜分析 (XRF)

XRF 技術為元素分析技術,主要利用 X 光激發材 料而產生特性 X 光螢光,由於每一種元素之特性 X 光 能量不同,從偵測所得之 X 光能量即可判定元素種類。 XRF 儀器精密度及設計考量,可進行非破壞之定性、半 定量及定量分析。由於繪畫通常面積較大,無法置於桌 上型 XRF 之樣品室中進行分析,因此,較常使用手持 式 XRF 對畫作的局部微小區域進行點分析,本研究計 畫中部分繪畫之分析亦使用之。不過雖然分析上方便, 但手持式 XRF 無法獲取整體畫作大範圍顏料分佈狀況。 有鑑於此,本院新建置了 macro-XRF 大面積微區掃描 技術(圖 7),不同於一般 XRF 只能作定點檢測,macro-XRF 儀可作大範圍自動掃描分析,因此可獲取繪畫中 材料元素分佈影像圖(element mapping),從而推斷畫像 中顏料的分佈與使用狀況,並藉以探究繪畫技法的相關 問題。



圖 7 外銷畫 macro-XRF 分析

#### (二) X 光影像術

本研究計畫中主要利用故宮建置的 X 光影像系統 進行部分書畫作品之檢視。X 光影像技術廣泛應用於文 物、藝術品的檢測,本院使用的 X 影像及 CT 系統可用 於二維及三維影像拍攝,目前所使用的 X 光光源主要 為微米級 CT 用反射式 X 光管,藉由調整 X 光能量(電 壓、電流)大小,獲取最佳化影像。

#### (三) 其他輔助分析技術

除了 X 光分析技術外,本計畫亦利用下列分析技術輔助研究計畫之進行,以獲取較完整的有關東方書畫 材料、技術上的相關資訊。

1. 一般紫外與紅外光影像

檢視及紀錄畫作原始與修護狀況,獲取不同 繪畫層之相關影像訊息,提供進一步探究畫作材 料與技法之參考。 2. 可見光與紅外光之高光譜影像

利用可見光至近紅外光(1800nm)之不同波段 光源,檢視畫作,同時獲取如同指紋般的畫作材料 光譜與影像訊息,提供有關於畫中的顏料、有機材 質,以及其與修護所用材料之比較研究等之訊息。

3. FT-IR 光譜

由於 XRF 分析僅提供顏料元素訊息,而許多 不同顏料中也含有相同的元素,且顏料也經常混 合使用,因此,為了能更精確判定畫作中的顏料, 本計畫亦利用桌上型或移動式之高解析度反射式 FT-IR 技術 (圖 8),不接觸畫作,直接獲取繪畫表 面多處之顏料分子結構訊息,進一步正確判定顏 料種類。



圖 8 外銷畫 FT-IR 分析

### III. 結果與討論

## 3.1 颜料分析

本計畫分析研究多幅外銷畫,本報告僅就其中部份 畫作分析結果精簡整理說明。圖9至圖12分別為人物 畫像〈浩官〉(圖9)與〈廣州行商〉(圖10)及兩幅港 口書作(圖11及圖12)表面的元素掃描分佈圖,從顏 色和其所對應的元素及配合 FT-IR 檢測的結果,大致可 判斷使用的顏料包括硃砂 (HgS)、藍銅礦 (azurite, Cu<sub>3</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>)、鉛白(white lead)、赭石、普魯士藍、 骨黑、含鐵錳黑色顏料等。以 < 浩官 > 為例, 可見整幅 畫基本上都有鉛的分佈,基本上應是使用了鉛白 (2PbCO<sub>3</sub>·Pb(OH)<sub>2</sub>)作為打底層;背景的深黑色顏料 主要是由含鐵、錳元素混合組成;袍服黑色部分可見微 微透紅,這個紅色主要是來自於紅色朱砂(HgS)的貢 獻;藍色衣領部分並未發現明顯有銅(Cu)元素的分佈, 因此排除石青(藍銅礦, azurite, Cu<sub>3</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>), 而 從 FT-IR 光譜分析結果,可以確認此藍色區域含有普魯 士 藍 (Prussian blue,  $Fe_4[Fe(CN)_6]_3$ ) ·  $xH_2O$  或 KFe[Fe(CN)6].xH2O)。普魯士藍的 FT-IR 特徵譜峰位於 2.098 cm<sup>-1</sup> 附近。

需要一提的是,因使用 XRF 分析畫作乃在大氣下 進行,一些較輕的元素如鈉、鋁等並無法偵測到,且也 無法偵測僅含碳、氫、氧、氮之有機顏料或染料,因此, 藍色顏料群青(ultramarine, Na<sub>8-10</sub>Al<sub>6</sub>Si<sub>6</sub>O<sub>24</sub>S<sub>2-4</sub>)及錠藍 (或稱花青, indigo, C<sub>16</sub>H<sub>10</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 並無法利用 XRF 偵 測出是否使用於畫中,需要進一步再利用 FT-IR 協助判 定。

又如〈廣州商行〉,除了可能用鉛白打底外,也發

現鋅(Zn)元素的廣泛分布,應是使用了鋅白(ZnO)。 鋅白也是十八世紀後畫家常用的白色顏料,此幅畫因為 畫中沿河岸有一排白色的廣州十三行建築,鋅白主要用 來調白色色調用。又汞(Hg)元素也見分佈於建築暗紅 色屋頂與側牆,以及部分船舶中。此外,天空中的昏黃 雲朵也有濃度較低的汞分佈情況,可見此時期外銷畫中 經常使用硃砂作為紅色顏料。

結合 XRF 與 FT-IR 的分析結果顯示 (圖 13),普魯 士藍大量使用於外銷畫中,特別是背景天空、與顯見普 魯士藍此時廣泛流通於廣州。研究亦顯示,廣州於 1820 年代中期後即能自行製造普魯士藍,此與普魯士藍的大 量流通使用有直接關聯。

#### 3.2 修復痕跡

此一批外銷畫因年代久遠,或可能因自然或人為因 素而產生劣化,不過因外觀上完整,肉眼並不易觀察出 是否有經過修復的情況。透過 XRF 掃描分析,從元素 分佈的情況經常可以看出畫作修復的痕跡,主要是因為 修復使用的顏料或材料通常不會完全與原畫創作時使 用的材料相同,從元素分佈的差異上便可清楚判定。

以〈浩官〉一畫為例(圖9),畫像臉部位置可以看 出有一帶狀修復痕跡,此部位可見高濃度的鈦、鋅、鈣、 鋇、銘等元素分佈,但這些元素並未明顯見於畫像其他 部份,主要是修復使用的顏料所含的成份。

另一幅〈虎門〉港口畫(圖12)中心位置。同樣也 可從鈦、鈣、鉻等元素分佈狀況判定此區域曾經修復過。 此外,經過 XRF 掃描分析後,發現亦曾經被修復過的 畫尚包括〈廣州商行〉(圖11)、〈江戶號〉、〈廣州行商〉 (圖10)等。

修復痕跡的確認與紀錄至少有兩層重要的意義,一 是瞭解繪畫的保存狀況,瞭解作品哪些地方較為脆弱, 經歷過什麼樣的修復,以及使用了哪些修復顏料或材料, 對後續的持拿、保存與展示都提供了關鍵的訊息。另一 個重要的意義是,從藝術史研究的角度而言,修復過的 部位所使用的材料並非原創時所使用的材料,在筆觸、 技法甚至外觀上經常有別於原始面貌,因此,在探討畫 作的風格、材料與技法時,便需留意此一情形,避免不 正確的判斷與描述。



圖 9 〈浩官〉XRF 掃描分析元素分佈圖 (部份)



圖 10 〈廣州行商〉XRF 掃描分析元素分佈圖 (局部)



圖 11 〈廣州商行〉XRF 掃描分析元素分佈圖



圖 12 〈虎門〉XRF 掃描分析元素分佈圖(局部)





圖 14 〈廣州商行〉FT-IR 分析光譜圖-2

## IV. 小結

本計畫為結合科技與人文之計畫,乃利用 X 光螢 光分析(XRF)並結合 FT-IR、高光譜及其他技術等分 析研究繪畫,提供外銷畫中顏料的使用分佈情形之訊息, 以便未來能進一步結合藝術史的研究,討論繪畫技法與 風格的相關議題,特別是有關東西方繪畫顏料與技法交 流的課題向來為學者所關注,在文獻記載有限的狀況下, 科學分析所獲取的結果實為進一步探究相關議題的重 要資訊。此外,透過 XRF 等分析也能揭露畫作過去修 復的痕跡,作為未來作品持拿、保存與展示之重要參考。

## 参考文獻

- 〔1〕陳東和、陳致甫,西清續鑑鏡匣的顏料檢測。國 立台灣博物館學刊,67(1):13-29,2014。
- 〔2〕陳東和,國立臺灣博物館藏鄭成功畫像再研究計 畫期末報告,國立臺灣博物館/國立故宮博物院, 2018。
- 〔3〕陳東和,X光分析技術應用於東方書畫之研究, 《110年度原子能科技學術合作研究計畫成果發 表會論文集》,頁 184-189,2022年9月。

## 「原」來可以這樣「教」:後核電議題的跨域教學

## Transdisciplinary Teaching and Innovative Learning for Post-Nuclear Power

## Issues

計畫編號:111-NU-E-004-001-NU 計畫主持人:杜文苓 e-mail:wtu@mail2.nccu.tw 計畫共同主持人:黃俊儒、蕭乃沂 計畫參與人員:林俐君、王渝安、鄭雯敏、吳柏翰 執行單位:國立政治大學創新國際學院

## 摘要

原子能議題涉及不同專業和價值,同時涉及技術、 政治、社會等複雜交錯的變因,在面對公眾進行溝通 和科技教育時,無法由單一觀點進行說服或知識輸出。 依此,針對後核電時代的原子能相關教育推廣,計畫團 隊將由知識建構、政策溝通、科技教育等三個面向切入, 並邀請各大專院校的研究者與教學者共同參與,從研究 和教學的跨域協作進行後核電脈絡的知識系統重構。

承上,本計畫的主要目標有三:一、重新辨識後核 電相關議題之學科範疇與研究教學主題。二、建構議題 溝通的關鍵場域及協作網絡。三、教材協作研擬與教學 場域實驗。就具體步驟而言,計畫團隊先以團隊內對焦, 進行議題設定;接著,透過學術社群跨領域會議,盤點 可合作的大專院校或組織;第三步驟則是進行溝通素材、 教案與教學設計,而後執行實驗課程,並蒐集反饋意見。

本計畫期待未來可持續擴展合作網絡,不只是課程 參與,或許也至不同的研究學年會進行宣傳;並編纂執 行手冊,以利複製與擴散。透過網絡、素材與執行方法 手冊,持續滾動後核電時代的原子能議題溝通的範圍, 協助政府回應社會對該議題的認知和參與討論之需求。 **關鍵詞:**知識系統重構、跨科際溝通、風險溝通、科技 教育。

#### Abstract

Atomic energy issues involve the values of different disciplines, including complicated interlocking factors such as technology, politics, society, etc. It becomes impossible for the government to communicate with the general public with a single viewpoint and one dimension of knowledge. Therefore, this project aims at elaborating and educating the issue of post-nuclear energy era through three aspects: knowledge construction, policy communication, as well as science and technology education, to promote atomic energy education under the postnuclear energy era .

Furthermore, this research team will invite the researchers and teachers from various universities, colleges and institutes in Taiwan to collectively participate in the transdisciplinary research and teaching in order to carry on atomic energy knowledge system restructuring. As stated above, the main goals of this project are as follows: First, re-identify the disciplines and the teaching subjects of the post-nuclear energy correlative issues. Second, redefine the essential fields for policy communication and construct the issue network between academia and society. Third, collaboratively design and develop teaching materials and experimental practices in the teaching fields. For specific steps, the project team will first discuss agenda setting among the team members. Second, the team then will conduct the focus meetings, and inventory the universities, colleges and institutes or the organizations which are willing to cooperate in the future. The third step is to produce the communication materials and the teaching plans, and then further execute the experimental curriculum, following up with feedback and opinion collection.

After the first round of experimental teaching, the project team will continually expand the collaborative network, not only on course participation, but also on communication and promotion about this project in many related academic conferences and communities. The team will also write a guidebook for policy communication and education to provide a base for further discussion and promotion. By doing so, the project team aims at assisting the government to respond to the demand of society for policy understanding and participation in the post-nuclear energy related issues.

**Keywords** : Reconstruction of the Nuclear-Issue Knowledge System, Transdisciplinary Communication, Risk Communication, Technology Education

## I. 前言

現今核電相關議題的探討,主要鎖定在核廢料處理 與核電廠除役規劃等面向,社會公眾參與技術議題討論 的需求增加,依此必須納入多元領域專業思考,包含社 會面的文化歷史、社群聚落、政治社會結構、經濟產業、 公共衛生等,方能回應社會各界之需求。在跨領域政策 規劃與執行下,需透過多元研究領域的協作,方能確保 科技物的管理和規劃具有全面性;此外,在面對公眾進 行公共溝通時,更需要有完整且具體的政策說明,不論 是從理論或實務發展而來的目標設定,皆需仰賴跨專業 領域的探討和前期溝通設計來提升政策周延性與資訊 擴散之效果。

#### II. 主要內容

整體而言,在研究發展、政策實務、公共溝通三個 面向上,都需要跨域的知識整合,透過知識共產的過程, 重新建構原子能相關議題的範疇和視野。依此,計畫主 要目的如下:

## 第一、重新辨識原子能相關議題之學科範疇與研究教學 主題。

針對核廢料處理與核電除役議題,重新指認相關學 科範疇,並以議題為導向進行研究和教學主題的設計, 以此做為知識體系重構的基礎。

#### 第二、建構議題溝通的關鍵場域及協作網絡。

邀請相關研究與教學者,建構教研網絡並進行議題 溝通與教學之跨域協作。

#### 第三、教材協作研擬與教學場域實驗。

依據前述討論結果,進行教材設計與製作;並進入 教學現場進行互動式教育,並蒐集回饋意見。

依此,計畫團隊在相關理論文獻蒐集上,共分為三 部分:第一部分為跨域(transdisciplinary)知識與協作 (cooperation);第二部分為風險溝通;第三部分為科技 傳播與教育。

#### 第一、跨科際研究與知識系統重構

原子能事務的議題所涉及的專業學科十分廣泛,若 就單一觀點或單一專業之論述,對於整個知識系統之理 解與資訊傳播,則容易因專業門檻過高,造成知識傳遞 上的困難與阻礙。此時,學術界對於跨領域的界定與討 論也從單一學科跨入超學科/跨科際(trans-disciplinary) (Borrego & Newswander, 2008; Collin, 2009; Jantsch, 1972; Stember, 1991)。社會學者波普(Karl Popper)認 為「學科」的存在一部分是因為歷史緣由以及行政便利 性所導致(Popper, 1968),導致獲取知識的僵化和限縮 (陳竹亭、唐功培, 2013),也無法回應人類社會快速 變遷的需求。為此,學界、技術專家等社群等反思和發 展出「跨科際」的思潮,將關鍵議題建構在真實問題的 出發點上。儘管研究範疇和問題意識不一定符合學術性, 但卻必須符合公共性(Balsiger, 2005)。

「跨科際」研究之操作程序起於跨學科的協調和磨 合,經由研究成員根據界定的議題範圍,提出各自的觀 點與論證,在進一步以整合性研究對社會的真實需求或 學術的詮釋觀點產生貢獻。

## 第二、風險溝通與多層次思考

「國際風險治理協會」(International Risk Governance Council, IRGC)於2005年提出風險治理模 式與架構;包括「預評估」(pre-assessment)、「風險評 估」(risk assessment)、「總體風險衡估」(risk appraisal)、 「風險管理」(risk management)與「風險溝通」(risk communication),重新建構一套理解科技物的知識系統, 也揭露自然科學由社會建構的事實。(周桂田,2004)。

關於溝通科技風險的論述模式與策略,社會結果與 脈絡一派認為資訊傳遞在社會關係和議題脈絡下所扮 演的功能,並非只是科技事實的呈現。有學者提出風險 論述的語言詞彙、論述形式都隱含了不同社會權力的掌 握,以及文化價值和科學邏輯的展現(Widavsky & Dake, 1990)。心理學一派則從風險認知(risk perception)的 論點解讀,如學者專家、科技官僚、倡議團體、科技技術物周遭居民,乃至一般大眾等,受不同因素影響可能對核能使用與核廢料處理的風險認知各自有異(Slovic, 2001)。有些學者則認為,民眾對科技風險的認知是因為自身對風險控制的恐懼和不瞭解(Slovic et al., 1980;Holtgrave and Weber, 1993),因此必須提供較完整的資訊和知識以降低上述不確定性。

另一種途徑以溝通作為主體,德國風險社會學者 Renn 認為科技物的風險爭論可分為三個層次:第一個 層次為技術專業與客觀數據;第二層次為機構處理風險 的能力,涉及風險和利益的分配公平與否、風險管理者 的可靠性 (trustworthiness)等議題;第三層次則擴散 至不同的社會價值觀、文化的生活方式。而三層次的風 險溝通核心,皆需掌握溝通者和被溝通者的相互理解與 訊息流動的原則,而分別著重在的風險資訊的相互確認、 相互對話與信任建議、對話與價值調和(杜文苓,2013)。

#### 第三、從生活問題理解科技議題

科技技術對社會的影響,還有政治決定科技政策發 展的交互作用下,科技與社會的關係,已無法截然二分, 必須從議題進行整合性的思考。

有些科學家針對民眾科技知識上的間隙(gap)主 張透過科學教育或單向訊息傳遞來彌補或增加民眾對 科技發展的接受度(Irwin, 1995),在傳播學理上稱為 「欠缺模式」(deficit model)或「普及模式」 (popularization model)(Väliverronen, 1993)。然而,有 另一派學者認為個體在接收訊息時,會基於自身經驗以 及所處的社會文化脈絡,而有不同的判斷和認知,因此 在面對不同目標群體(target audience)時,必須發展不 一樣的科學傳播方法,此為情境模式(contextual model)。 另一個學術社群則反思科學的角色,認為科學知識並非 由科學專業獨享,一般民眾在日常生活所累積的經驗, 可能成為脈絡化知識,甚至更能回應真實社會中的需求 (Irwin and Michael, 2003), 此為專家-常民模式 (layexpertise model)。另外,近年有一派更著重於知識生產 過程的重要性,認為科學知識應該讓民眾共產 (coproduct),以達到科學民主化(democratizing science) 的目標 (Brossard and Lewnstein, 2011), 稱為公眾參與 (public empowerment and participation)模式。綜整之, 欠缺模式與情境模式著重於科學基礎知識傳播的重要 性,同時也看中不同學科的專業和典範;相較於此,常 民-專家模式則採用批判反思的立場,重新界定科學的 範疇和內容;而公眾參與模式則更進一步回到科學產製 的程序面作思考,而非實質內容的爭論。

此計畫以原子能業務的跨域學習和實務溝通為主 軸,因而採用問題導向學習(problem-based learning, 以下簡稱 PBL)的學習法,希望讓學生從生活感知中, 重新理解該議題。主要分為三個階段:面對問題、獨立 學習、回到問題(Wiers et al, 2000),重新給定學習者在 教學關係中的主動性,學習從真實的社會情境裡,建構 自己的知識體系和認知模式。

在研究設計上,本支計畫將協力跨專業領域知識體 系重構、知識轉譯及教案團隊整隊與教案設計等部分, 並著重在跨科際之大專院校系所盤點與網絡建立之項 目,透過網絡關係之建立,將上述知識體系與轉譯之教

案帶入跨科際院所進行實作教學。一方面希望能蒐集不 同領域大專院校生對後核電議題之看法,另一方面則試 圖透過參與觀察研究法,在建立網絡的同時將觀察結果 回饋至現有之政策溝通方法與教學策略上,透過此一平 台形成跨政府端與社會系統之間的關鍵節點。

在研究方法上,本計畫以文獻分析法、深度訪談、 焦點座談、行動研究和參與觀察等五種途徑作為工作方 法框架。首先,透過文獻蒐集法先盤點原子能事務及相 關議題,在社會面向上具有爭議或較受關注之焦點外, 亦同步規劃藉由召集顧問團隊形成跨專業領域之協作 網絡,進行相關議題爭點之解讀與類別化,在幾個重要 的命題下找出現行比較適合作為後續討論的面向,再經 由專業團隊進行脈絡化之知識轉譯,使技術性知識有機 會轉化為社會可理解及討論的知識體系,並由本計畫團 隊與協作網絡擴大搜尋適合進場實作的大專院校或相 關活動。最後,由本計畫團隊依需求搭配協作講師,帶 著討論出的知識體系及轉譯過後的素材進場實作,並以 質量化並重的方式蒐集參與學生對課程的建議與反饋, 以確認操作的過程是否有效地傳遞預期輸出的知識內 涵,再進一步將蒐集到的具體意見回饋至知識體系進行 調整,以利修改後可提升相關素材及教學方法,更加符 合輸出特定知識內涵的主要目的。

### III. 結果與討論

因應擴增原子能相關議題之學科範疇與研究教學 主題之素材、建構議題溝通的關鍵場域及協作網絡,以 及教材協作研擬與教學場域實驗並進行系統性整理等 三大計畫目標,並透過與合作單位行政院原子能委員會 (下稱原能會)業務單位共同討論後,後續規劃與執行 成果主要以青年世代為溝通對象,並以核電廠除役、核 廢料選址兩大主題持續擴散原子能議題的教學課程。

#### 第一、學術社群--能源參與式治理跨領專家工作坊

本次活動以邀請不同領域,包含經濟學、社會學、 政治學、法律學、海洋工程及環境工程等專業領域之專 家學者約30位,規劃兩天一夜行程聚焦在北部最早興 建核能電廠(核一廠及核二廠)所在地「北海岸」一帶, 以實地走訪為核心,盤點興建、除役對地方所影響。透 過跨領域溝通及討論工作坊之設計,讓不同領域之專家 學者了解台灣能源轉型脈絡,並帶領參與老師走進北海 岸這個場域,身體力行感受核電廠除役及核廢料困境未 解與地方之間的關係。本計畫透過規劃及辦理實體會議, 邀請老師走進田野,並透過討論工作坊形式,規劃後續 可合作之課程及將議題對接到不同領域知識的可能。

## 第二、跨領域教學課程

#### (一) 國立政治大學 人類世與地緣政治

本次合作對象隸屬國立政治大學創新國際學院助 理教授楊智元老師之授課班級,並與波蘭亞捷隆大學社 會學機構合作進行能源議題綜合講座。班級為英文授課, 故此次課程安排採全英文進行知識傳遞與溝通,同步進 行實體、線上授課活動。本計畫協同執行團隊創新民主 中心(下稱 CID)設計以「北海小旅行暨教師工作坊」、 「2020 台北雙年展-核廢的未知數協商劇場」兩個實際 的創新跨域溝通案例,探討實驗型的公共對話模式如何 形塑新的社會共同想像與願景。

#### (二) 國立政治大學公共行政學系 研究設計與方法

本團隊受國立政治大學公行系謝文琪老師邀請,嘗 試用節奏明快的方式講述,讓學生們能專注於內容。核 廢料知識較難一目了然,過程中穿插問答時部分學生仍 能踴躍給予回應。田野經驗分享環節明顯吸引學生注意 力。最後進入小組活動環節,學生們都順利自成小組積 極討論,嘗試完成學習單,並大方分享組內看法。

## (三)國立高雄科技大學海洋工程與造船學系工程倫 理與社會

本課程受高科大洪文玲老師邀請,授課對象為理工 科系大三學生,大堂人數將近60人,故利用既有分組, 規劃講授與「協商劇場」活動之課程內容。課前學生透 過影片已對協商劇場、授課團隊有初步認識,實際進班 後以穿插大量互動問答、引導發言來活絡課堂氣氛,經 過前半場議題討論帶動,學生漸漸較為主動發言,並能 積極投入協商劇場所扮演的角色中。協商劇場為本次課 程焦點,也是前半段學習的實作體驗,學生分為11小 組,依據角色卡扮演政府代表、專家代表、地方代表、 原民代表、非人代表等五類角色,由小組討論該角色在 協商情境中的發言,學生也可自由發揮,如更改姓名或 是帶入其他背景資訊,讓角色更突出。

#### (四) 國立中正大學通識教育 新聞中的科學

本次至本計畫共同主持人中正大學黃俊儒老師的 通識課進行授課,學生多為大一、大二的學生,故在課 堂對話的帶動上可能較具互動性,加上黃俊儒老師自身 擅於帶動氣氛,在團隊進場之時便能感受到輕快的氛圍。 首先建構同學們對於核廢議題的背景知識,再藉由新聞 導讀讓同學實際操作如何盤點核廢議題的相關資料,同 時又能具備媒體識讀的取得正確資訊,最後再讓同學觀 照「核廢大事紀」中的文章經內化後改寫成個人的社群 PO 文,操作如何執行能讓其他人感興趣的知識轉譯與 傳播過程。

## (五) 國立中正大學通識教育 電影中的科學

本次授課班級為黃俊儒老師全校性通識課程,選課 限制須為大二以上之學生方能選修,不分學系皆可選修 此堂課。因此本次教學融入許多互動環節,從小組討論 中也可看出大家因為專業不同,因而可以以不同視角提 供出不同想法,對於關注面像進而也轉為多元。知情環 節中將相關名詞之分類與說明都配上好理解、易區別之 符號。在講述的過程中也安插問答互動,從利害關係 人辨識,到場域安排、進行方式設計、討論主題與現場 狀況記錄等,以各維度進行分析,了解議題全貌,以利 課程最後實做階段可以做運用。

#### (六) 中國文化大學行政管理學系 公共政策

本課程受陳潁峰老師邀請前往中國文化大學行政 管理學系,辦理橫跨兩周之課程。第一堂課主要為能源 知情與「協商劇場」簡介,第二堂則規劃實際演練協商 劇場之課程內容。學生透過課前作業認識北海岸核廢議 題利害關係人,並進行角色模擬,體驗政策情境中原先 盤點之利害關係人其自身在各環節中思考脈絡及可能 處境。最後透過學習單進行選址再設計及回饋問卷之反 思、收斂。

## (七) 國立台中教育大學 小教在職專班

本課程受謝儲鍵老師邀請,前往中教大進行授課對 象為小學教師研習班,人數約19人,以能源政策的參 與式治理為主題,講授發展審議式素養教學之可能性。 課前學員透過已對素養教學、授課團隊有初步認識,實 際進班後以媒體識讀以及情境模擬,前半場議題討論氣 氛活絡,學員多為主動發言、發問,並能積極投入協商 劇場所扮演的角色中。在協商劇場活動中,授課團隊塑 造情境,如核廢貯存政策說明會,學員需依據角色卡的 基本立場,延伸發展角色的發言及態度;同時也依情境 條件,查找相關資訊或是關照其他角色的意向,產生政 治協商的合縱連橫效果。

#### (八) 國立政治大學社會系 科技社會學

本課程受陳宗文老師邀請,授課對象為社會系大三 與大四的學生,其餘有小部分商學院與傳播學院學生。 人數約80人,故規劃講授與「選址協商劇場」活動之 課程內容。「選址協商劇場」主活動三個部分,在體驗 後,本團隊安排了收整式的回顧,讓學生快速檢視先前 所經歷的選址流程,並同時進行程序再設計的腦力激盪。 搭配第二份學習單,學生們從「選址小組組成方法」、 「潛在場址挑選方法」到「場址決定方法」三個部分著 手,針對他們體驗的重點階段去實踐程序再設計。

#### 第三、小結

本計畫前後共辦理1場跨領域專家共識會議、1場 青年營隊活動以及12場跨域教學課程。其中青年活動 以議題為核心進入田野踏查或搭配其他活動主題帶入 核電廠除役及核廢料治理知識,以此提升議題擴散的機 會,同時有助於參與者在體驗中習得相關概念。跨域教 學課程則以核電廠除役及核廢料治理的角度設計教學 素材,並以互動式的議題探討,反思能源使用的優劣成 本;並以此掌握青年世代對議題的立場和看法;有助於 提升新世代參與核廢議題討論的動機。當中共進行4場 選址程序設計工作坊、7場核廢選址價值調查等,從教 學經驗中試驗出適合作為議題教學的素材及教學方法。

本系列教案設計旨在將核能與核廢料,青年普遍陌 生的科技物帶進課堂,在知識基底上用劇場作為操作途 徑能讓學生從日常中旁觀者的身分暫離,沿著敘事線換 位思考並研擬不同處境下的行動策略。而劇場體驗實則 培養利害關係人意識的練習;回到現實中,學生們與議 題的距離已被拉近,可更自然覺察其重要性和演練過的 行動方案,將學習效果擴散至往後的日常生活。

## IV. 結論

#### 第一、知識共構教學方法

本研究計畫成果展現多類型和多層次的科學知識 轉譯如何創新讓公眾參與科技、技術和政策討論的方法, 以原子能領域知識為例,從科學技術出發到發電治理及 生活應用層面,便是十分複雜且跨度多個專業領域的知 識範疇,對於日常接觸相關領域有限的學習者,倘若需 要理解相關內涵確實並不容易,不只需建構科學領域基 礎知識,更需要透過科技與社會的觀點,理解新興科技 物下行動者行為和政府體制等多重利益整合之命題,可 調原子能領域本身就是結合了科技、行為及制度等知識 系統的產物,因此使得初學者甚難從單一專業進行分析, 更加顯示出知識共構教學方法應用於原子能領域,以促 進知識普及的重要性。

#### 第二、未來政策規劃建議

在科普面上,藉由學習者在各場次教學現場的回饋 可以得知國內青年對原子能相關知識的理解普遍較淺 薄。因本計畫下所研擬的授課內容和教案以核廢料處置 與核電除役議題為核心,對於不熟悉本議題的學習者而 言資訊相對艱深複雜,不易掌握核電與核廢料處置相關 的背景知識(例:國內核廢料存放位置)以及治理體系 (例:國內核廢料主管與主辦機關)的相關概念。尤其 是多數人認為原能會同時是國內核廢料的主管和主辦 機關,顯示原能會在社會端思考原子能相關議題的角色 不容小覷。回顧本研究在運用教案的經驗,發現學習者 在1至3小時的課程時間規劃中能吸收的資訊仍有所 限制,更凸顯未來政策推行上將青年與未來世代為對象 的原子能知識科普視為有效率導出實際社會需求的重 要基礎。

在制度面上,藉由學習者在各場次教學現場的回饋 可以得知,多數人在學習議題爭點、治理體系和利害關 係人網絡後,認為政府應另外成立一個專責機構負責管 理核廢料,顯示國內青年在思考核廢料選址程序時普遍 重視其公正獨立性。另一方面,國內青年對於全國/地方 公投的態度則較無共識,代表可能是社會端相對有疑問 的民意表決方式,未來在溝通選址程序上值得加強討論。

#### 第三、實務推動建議

延續前一節所提到國內青年對於原能會在核電和 核廢料的角色責任有強烈印象,凸顯本研究目的之一為 協助原能會教育推廣之業務,並釐清未來在原子能新興 議題上,適合擔任的角色與對外溝通時的角度。盤點本 研究在知識跨域共構過程中所建立的關鍵社群後,建議 可作為未來原能會推動資訊擴散之途徑,維繫連結並擴 大教育實作規模。

同時,為協助原能會未來長期的教育培力規劃,本 研究團隊也將持續研擬將沉浸式教案最佳化的方法,期 望拉近國人與原子能議題的距離,讓學習者從日常中旁 觀者的身分暫離,培養利害關係人意識的練習,回到現 實可更自然覺察其重要性和演練過的行動方案,將讓學 習效果有效並深度擴散。

## 參考文獻

- [1] Balsiger, P. W. (2005), Transdisziplinarität, München, Germany: Wilhelm Fink.
- [2] Borrego, M., & Newswander, L. K. (2008). Characteristics of successful crossdisciplinary engineering education collaboration. Journal of Engineering Education, 97, 123-134.
- [3] Collin, A. (2009). Multidisciplinary, interdisciplinary, and transdisciplinary collaboration: Implication for vocational psychology. International Journal for Educational and Vocational Guidance, 9(2), 101-110.
- [4] Holtgrave, D. R., & Weber, E. U. (1993).
   Dimensions of risk perception for financial and health risks. Risk Analysis,13(5),553–558.

https://doi.org/10.1111/j.1539-6924.1993.tb00014.x

- [5] Jantsch, E. (1972). Inter- and transdisciplinary university: A systems approach to education and innovation. Higher Education, 1(1), 7-37.
- [6] Irwin, A., & Michael, M. (2003). Science, social theory and public knowledge. Maidenhead, UK: Open University Press.
- [7] Irwin, Alan (1995). Citizen Science A Study of People, Expertise and Sustainable Development. London: Routledge.
- [8] Popper, K. R. (1968), Conjectures and Refutations: The Growth of Scientific Knowledge (2nd ed.), New York, NY: Harper and Row.
- [9] Stember, M. (1991). Advancing the social sciences through the interdisciplinary enterprise. The Social Science Journal, 28(1), 1-14
- [10] Slovic, P. (2001). Perception of risk from radiation. In: Slovic, P. eds. The Perception of Risk. London: Earthscan Publications Ltd: 264– 274.
- [11] Slovic, P. Fischhoff, B., & Lichtenstein, S.
  (1982). Psychological Aspects of Risk Perception. In: Sills DL, Wolf CP, Shelanski VB. Accident at Three Mile Island: The Human Dimensions. Boulder, Colo: Westview Press: 11– 19.
- [12] Slovic, P., Fischhoff, B., and Lichtenstein, S.
   (1980). Facts and fears: Understanding perceived risk. New York: Plenum Press.
- [13] Väliverronen, E. (1993). Science and the Media: Changing Relations. Science & Technology Studies, 6 (2), 23–34. https://doi.org/10.23987/sts.55053.
- [14] Widavsky, Aaron., & Karl Dake. (1990).
   Theories of risk perception: Who fears what and why? Daedalus, 119, 41-60.
- [15] Wiers RW, Van De Wiel MW, Sá HL, Mamede S, Tomaz JB, Schmidt HG (2000). Design of a problem-based curriculum: a general approach and a case study in the domain of public health. Medical Teacher, 24 (1), pp.45-51.
- [16] 杜文苓(2013)。核能安全風險之溝通。科技 部與原能會計畫,計畫編號 102-NU\_E\_004-002-NU,未出版。
- [17] 周桂田(2004)。獨大的科學理性與隱沒(默) 的社會理性之"對話"一在地公眾、科學專家與 國家的風險文化探討。臺灣社會研究季刊,56, 1-63。
- [18] 陳向明(2010)。社會科學質的研究。台北: 五南圖書出版公司。
- [19] 陳竹亭、唐功培(2013)。跨科際教育在臺灣 大專校院實施之探究。長庚人文社會學報,6(2), 159-195。

## 能源轉型下原子議題之人才培育與教育推廣 Development of Digital Materials and Promotion of Radiation Education About Atomic Issues in Energy Transition

計畫編號: MOST 111-NU-E-845 -001-NU

計畫主持人:古建國

e-mail: ckku@go.utaipei.edu.tw

執行單位:臺北市立大學應用物理暨化學系

## 摘要

2025 年非核家園除了持續維護核安之外,處理退 役核電廠核廢料將是我們未來將面對問題,本計畫目的 包括訂定結合108 課綱中、小學核子議題與政府能源轉 型中原子議題之學習指標、編輯數位教材與數位遊戲、 新增授課以及辦理多元族群推廣活動並分析活動學習 成效,其中教材內容與政府能源轉型政策關聯性,包括 「鄰避效應」、「核能電廠除役」、「核廢料處理」等核安 資訊。活動對象包括學生、親子與新住民等,上課地點 以參訪設施適合場地或學校為主。研究步驟有訂定核子 議題學習指標、數位教材、新增種子老師與多元族群活 動推廣等。研究工具包括專家諮詢會議與審查會議以及 學習成就分析等。

研究結果於教材方面包數位教材、科學園遊會體驗 與闖關、親子參訪、學習體驗等;學生學習成效方面, 研究發現學習後成效優於學習前。

關鍵詞:能源轉型、多元族群、輻射教育

## Abstract

This study is editing learning indicators, digital teaching materials, digital games based on learning indicators, training teachers, and conducting activities. The content of the teaching materials includes the content of learning about nuclear power issues, nuclear safety, neighborhood avoidance effect, decommissioning of nuclear power plants, nuclear waste disposal, and international energy knowledge. The research subjects were students. Research tools include expert meetings and study opinion surveys.

Research results include learning indicators, digital teaching materials, digital games based on learning indicators, and conducting activities. The study found that the results after learning were better and significantly different than before learning.

**Keywords** : Energy Transition Policy > Multiple ethnic groups > Radiation education.

## I. 前言

原能會已於101年5月核備台電公司「低放射性廢 棄物最終處置計畫書(修訂二版)」,此計畫步驟共分成 四個階段,依序為「處置場選址階段」、「處置場建造階 段」、「處置場運轉階段」與「處置場封閉監管階段」等。 然一般民眾對此資訊並不清楚,學校課程也沒有相關之 內容教學,加上興建處置場址遇到諸多問題而無具體進展,加上鄰避效應,讓低放射性廢棄物最終處置進行, 造成極大挑戰。除此之外,民眾關切食物是否受到輻射 汙染、放射性危害、醫療輻射與核能電廠意外事故之防 護等議題,是需要持續加以宣導,特別是受限目前疫情 新聞與學校相關教材內容不多,老師並無獨立單元可以 傳授相關原子能議題。

黃達三(1989)提出十二項能源相關議題,其中提 到核能利用包括核廢料處理與安全性議題,由此能源教 育內容應該包含認識核能及其衍生出的放射性廢棄物 處理、安全性等相關議題。各級學校很早就開始推廣能 源教育, 2009年教育部能源國家型科技計畫第一期程, 則是於各縣市成立能源教育中心,進行認識能源、能源 現況與發展與能用應用能源教育推廣。

日前公布 108 課綱有能源教育議題,希望能要唤起 學生對能源有正確概念,知道能源轉型包括廢核減煤、 發展再生能源與廢核議題等,同時還能理解能源高效率 技術發展重要性與國外新興能源的發展趨勢,了解能源 的使用與經濟發展、環境之間相互的牽動與影響,本計 畫擬加入非核家園下核電廠除役內容學習指標、相關教 材開發與師資培訓,並進行交育推廣,期盼民眾體認能 源轉型為未來必走之道。

#### II. 主要內容

本計畫擬透過分析 108 課網中核能議題學習內容 與政府能源轉型政策關聯性,包括「鄰避效應」、「核能 電廠除役」、「核廢料處理」等核安資訊與國際能源知識, 訂定學習指標,做為教材編輯依據,編輯數位教材,再 辦理教師增能研習,培訓種子教師進行多元族群教學, 將強化於原子能教育的推廣,其具體內容說明如下:

- 訂定結合 108 課綱中小學核子議題與政府能源轉型中原 子議題之學習指標。
- 2. 根據核子議題學習指標編輯數位教材與數位遊戲。
- 3. 辦理能源轉型中原子議題師資培訓。
- 辦理多元族群能源轉型中原子議題推廣活動並分析活動
   學習成效。

## III. 結果與討論

(一) 訂定結合 108 課網中小學核子議題與政府能源轉型中原子議題之學習指標

第一層	第二層	第三層
1. 能 源	1-1 能源結	1-1-1 現行電力結構
轉型	構	1-1-2 未來電力結構
	1-2 永續發	1-2-1 再生能源
	展	1-2-2 新興科技
2. 認 識	2-1 輻射種	2-1-1 游離輻射
輻射	類	2-1-2 非游離輻射
	2-2 輻射來	2-2-1 天然輻射
	源	2-2-2 人造輻射
	2-3 輻射單	2-3-1 放射性物質的強度
	位	2-3-2 人體吸收輻射量的單位
		2-3-3 對人體健康的影響
	2-4 輻射知	2-4-1 放射性物質特性
	識	2-4-2 游離輻射的防護
		2-4-3 警示標誌
3. 臺 灣	3-1 核電廠	3-1-1 防護措施
的核雪	防護	3-1-2 防護演練
时极电	3-2 核電廠	3-2-1 避鄰效應
殿	除役	3-2-2 放射性廢棄物處理
		3-2-3 核能電廠除役
4. 醫 療	4-1 醫療輻	4-1-1 醫療游離輻射劑量
柜射	射概念	4-1-2 醫療游離輻射偵測
十田 21	4-2 醫療輻	4-2-1 檢查種類
	射檢查	4-2-2 輻射劑量
	4-3 醫療輻	4-3-1 檢查種類
	射治療	4-3-2 輻射劑量

(二) 根據核子議題學習指標編輯數位教材與數位遊戲

## 能源話題嬉遊記







進行教材諮詢與審查會,以瞭解專家、教學老師對教材 看法並審查。



(三) 辦理能源轉型中原子議題師資培訓

本計畫整合歷年推廣老師並新增五位現職老師,因 為老師皆對能源轉型中原子議題教材內容熟悉,所以透 過諮詢會議時說明教材內容,並參與審查會議,以確認 對教材內容了解與實施。

## (四)辦理多元族群能源轉型中原子議題推廣活動並分析活動學習成效

## 1. 科學園遊會

舉辦日期	主/協辦單位	舉辦地點	參與人數
111/9/18	科教館防災 市集	國立台灣 科學教育 館	377 人次(男 238、女139)

舉辦日期	主/協辦單位	舉辦地點	參與人數
111/10/22	大坪國小/百 年慶	新北大坪 國小	114 人次(男 66、女48)
111/11/5-6	教育部/國立 台灣科學教 育館	國立台灣 科學教育 館	>5000 人次
111/11/12- 13	教育部/國立 台灣科學教 育館	國立台灣 科學教育 館	>5000 人次
111/11/20	屏東科技大 學	岡山和平 國小	第四屆平野季 &北高雄科學 日/>1600人次
111/12/03	桃園市政府	龍潭龍源 國小	>2000 人次
112/1/13	臺北市立大 學	新竹錦山 國小	130人(男 68、 女 62)

舉辦日期	主/協辦單位	舉辦地點	參與人數
112/3/28	臺北市立大學	新北市信義 國小	20 人次(男 9、女 11)
112/3/29	臺北市立大學	新北市光華 國小	5 人次(男 2、女3)
112/3/30	臺北市立大學	高雄市過埤 國小	25 人次(男 11、女 14)
112/3/31	臺北市立大學	新北市蘆洲 國小	24 人次(男 8、女16)
112/3/31	臺北市立大學	屏東市崇蘭 國小	18 人次(男 6、女 12)
112/3/31	臺北市立大學	新北市信義 國小	11 人次(男 8、女 3)

4. 親子参訪活動

舉辦日期

## 2. 新住民推廣活動

舉辦日期	主/協辦單位	舉辦地點	參與人數
112/2/5	臺北市立大	八里新住民	18 人次(男
	學	關懷協會	4、女14)
112/3/27	臺北市立大	新北正義國	18 人次(男
	學	小	1、女17)
112/3/28	臺北市立大	新北成功國	20 人次(男
	學	小	3、女17)
112/3/28	臺北市立大	新北雙城國	12 人次(男
	學	小	2、女10)
112/3/29	臺北市立大	新北碧華國	12 人次(男
	學	小	2、女10)
112/3/30	臺北市立大	新北八里國	11 人次(男
	學	小	0、女11)

## 3. 學校課後推廣

舉辦日期	主/協辦單位	舉辦地點	參與人數
112/3/24	臺北市立大學	高雄市新甲 國小	12 人次(男 4、女 8)
112/3/27	臺北市立大學	新北市成州 國小	16 人次(男 8、女 8)
112/3/27	臺北市立大學	新北市萬里 國小	17 人次(男 8、女 9)



舉辦地點

參與人數

主/協辦單位



## 5. 活動學習成效

本研究瞭解學生學習成效,進行學習成就分析,配 合數位教材以 google 表單進行收集。某國小學為例, 共計 27人 (男 15、女 12)

題目	前 測 答 對率%	後 測 答 對率%
1.行政院於 2017 年能源發展綱領	72	81
以及 能 源 句 抚 出 的 能 源 轉 型 日 皮 書 , 強 調 能 源 轉 型 , 下 列 哪 一 種		
發電方式將會減少?(A)太陽能發		
電(B)核能發電(C)燃煤發電(D)		
天然氣發電。		
2.行政院於為了要達成能源轉型,	56	65
於 2025 年將終止下列哪一種發電		
(A)水力發電(B)核能發電(C)火力		
發電(D)天然氣發電。		
3.行政院於 2017 年能源發展綱領	17	33
以及能源局提出的能源轉型白皮		
書, 強調能源轉型,其中下列哪		
一種發電量會最多(A)水力發電		
(B)核能 發電(C)火力發電(D)天		
題目	前 測 答 對率%	後 測 答 對 率 %
----------------------	--------------	----------------
然氣發電。		
4.臺灣目前哪一種發電量會最多	0	36
(A)水力發雷(B)核能 發雷(C)火		
力發電(D)天然氣發電?		
5.什麼是「鄰避效應」概念(A)不要	56	71
有 惡鄰居(B)不要有鄰居(C)獨棟		
獨居房子(D)設施不要建在我家後		
院。		
6.下列何者屬於鄰避設施(A)核電	50	76
廠(B)七星山(C)淡蘭古道(D)陽明		
山公園。		
7.核廢料中,最有害的輻射放射性	61	77
物質存在下列哪一種?(A)核反應		
中維修人員的手套(B)廢棄 X 光		
機(C)用過的核燃料棒(D) 核反應		
中維修人員的衣服。		
8.目前臺灣核電廠中還在使用的	44	56
的是下列哪一個?(A)核一廠 (B)		
核二廠(C)核三廠(D)核四廠。		
9.臺灣核電廠除役作業中,除役拆	33	48
廠是第幾階段?(A)第一階段(B)		
第二階段(C)第三階段(D)最後階		
段。		
10.臺灣已有的核電廠除役中,目	17	28
前除役階段最快的廠房已進行到		
哪 裡?(A)準備工作(B)過渡階段		
(C)拆廠階段(D)復原階段。		
11.臺灣已有的核電廠除役規劃	39	53
中,哪一階段需要時間最久?(A)		
準備工作(B)過渡階段(C)拆廠階		
段(D)復原階段。		
12.在正常沒意外事故情況,下列	0	25
哪一個地方偵測到的游離輻射劑		
量 最高(A)核電廠(B)機場(C)市		
場(D)都差不多。		
13.宇宙有不同能量輻射線,根據	50	66
能量高低的排列,下列何者的能量		
最高?(A)微波(B)紫外線(C)X 射		
線(D)伽馬射線。		
14.大家出門搭乘運輸工具所使用	61	72
的' 悠遊卡」、「一卡通」、「ETC」		
或寵物身上的 寵物晶片」是應用		
下列哪一種輻射?(A) 無線電波		
(B)微波(C)紅外線(D)磁鐵感應。		

題目	前 測 答 對率%	後 測 答 對 率 %
15.核子事故警報為響1秒,停1	22	45
秒,共持續多少秒?(A)50 秒(B)		
過 60 秒(C)90 秒(D)120 秒。		

# IV. 結論

### (一) 結論

- 訂定結合 108 課綱中小學核子議題與政府能源轉型中原子議題之學習指標:透過分析 108 課綱中 小學於核子議題的學習內容與政府能源轉型中原 子議題的政策整理學習指標,作為數學教材編輯 方向的參考。
- 根據核子議題學習指標編輯數位教材與數位遊戲: 配合教育部推動生生有平板政策,編輯能源轉型 政策下核安資訊與國際能源知識的數位教材與數 位遊戲。內容從能源轉型下核電廠除役主軸下介 紹核電廠除役過程、鄰避效應、核電廠廢棄物與其 他相關核安資訊等。
- 整合原有師資與現職教師進行能源轉型中原子議 題師資增能說明,做為日後推廣種子老師。
- 辦理多元族群能源轉型中原子議題推廣活動並分 析活動學習成效:透過科學園遊會、學校課後時間 或親子體驗活動進行。
- 5. 研究發現,學生在學習後成績友顯著進步。

### (二) 建議

- 完成數位教材可以透過新住民教育班或是終身教 育班進行推廣。
- 2. 利用科學園遊會可以對一般民眾進行教育推廣。

# 参考文獻

- 〔1〕李翰林。 https://opinion.cw.com.tw/blog/profile/52/article/74 90
- [2] 教育部(2019)。108 課網。取自 http://www.k12ea.gov.tw/files/class\_schema/課網/ 17-自然科學/17-1/十二年國民基本教育課程綱要 國民中小學暨普通型高級中等-自然科學領 域.pdf
- [3]經濟部。再生能源資訊網 https://www.re.org.tw/default.aspx
- [4] 黃達三 (1989)。「科學」、「技學」、「社會」一未 來科學教育的新方向。國教之聲,23(2),4-13。
- [5] 劉振乾(1991)。歐洲各國學校之核能教育簡介。 能源報導,1,50-51。

# 跨域合作與風險溝通(III)

# 輻射照射在農產品與農業資材消毒的應用研究

# Application of gamma irradiation on elimination of plant pathogens and pests in agriculture products and cultural materials

計畫編號:111-NU-E-055-001-NU 計畫主持人:謝廷芳 e-mail:tfhsieh@tari.gov.tw 計畫參與人員:蘇俊峯、戴廷恩、賴思倫、陳淑佩、蔡佳欣、黃巧 変、陳純葳 執行單位:行政院農業委員會農業試驗所

### 摘要

本研究的主要目的在於探討伽瑪輻射照射處理進 口水苔介質消毒的有效劑量。以輻射照射0(對照組)、 3、6、9、18kGy 進行水苔介質消毒,比較不同劑量處 理不同有害生物與雜草種子的消毒效果,結果顯示經 3kGy 以上輻射照射處理,南方根瘤線蟲 (Meloidogyne incognita) 卵孵化率、蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌 (Pectobacterium carotovorum subsp. carotovorum) 的重 新分離率及葉下珠 (Phyllanthus urinaria) 的種子發芽 率皆為 0 (%), 而對液化澱粉芽孢桿菌 (Bacullus amyloliquefaciens)而言,尚有 83 cfu/mL 以上的孢子存 活,但與對照組 (0 kGy) 的 10<sup>3</sup> cfu/mL 孢子存活具有 顯著性差異 (p<0.05)。同樣的,以3kGy 以上輻射照射 處理鐮胞病菌 (Fusarium solani) 厚膜孢子時,平均尚 有 65%的存活率, 與對照組 (0kGy) 的存活率達 100% 具有顯著性差異 (p<0.05)。另外,針對白絹病菌 (Sclerotium rolfsii) 褐色菌核與針對鬼針草種子 (Bidens pilosa) 的存活率,則要在6kGy以上輻射照射 處理時,才能與對照組 (0kGy) 處理者具有顯著性差異 (p<0.05)。將不同有害生物與雜草種子放置在立體水苔 的內部、表面及正中心點各處,經輻射照對後比較各處 有害生物與雜草種子的存活率,結果顯示有害生物與雜 草種子未因所處位置而有存活率差異之現象。

**關鍵詞:**輻射照射、水苔、植物害蟲、植物病害、伽馬 輻射、消毒、有害生物、雜草、線蟲卵孵化率、存活

# Abstract

The main purpose of this study is to explore the effective dosage of gamma radiation for disinfection of imported sphagnum moss. The sphagnum moss as the medium of orchid cultivation was sterilized with radiation exposure of 0 (control), 3, 6, 9, and 18 kGy, and the disinfection effects of different dosages of different harmful organisms and weed seeds were compared. Egg hatching rate of root knot nematode (*Meloidogyne incognita*), re-isolation rate of *Pectobacterium carotovorum* subsp. *carotovorum* and seed germination rate of *Phyllanthus urinaria* were totally suppressed, while for the beneficial microorganism (*Bacullus amyloliquefaciens*), more than 83 cfu/mL spores survived, but there was a significant

difference (p<0.05) from the  $10^3$  cfu/mL spore survival of the control (0 kGy). Similarly, when the chlamydospores of Fusarium solani were treated with radiation above 3 kGy, the average survival rate was 65%, which was significantly different from the 100% survival rate of the control (0 kGy) (p < 0.05). In addition, the survival rate of the sclerotia of Sclerotium rolfsii and the seed survival rate of Bidens pilosa can be significantly higher than that of the control (0 kGy) only when the radiation exposure is above 6 kGy (p<0.05). Put different harmful organisms and weed seeds on the inside, surface and center of the three-dimensional sphagnum moss, and compared the survival rates of harmful organisms and weed seeds in each place after irradiation. The results showed that there is no difference in survival rate of the harmful organisms and weed seeds due to the location in sphagnum moss.

**Keywords:** radiation dose, sphagnum, pest, plant pathogen, gamma radiation, sterilization, harmful organism, weed, egg hatching rate of nematode, survival

### I. 前言

農民將農作物栽培在土壤中,土壤是傳統農業栽培 模式中必要的介質。然而,越來越多的精緻農業與設施 農業,所使用的介質包括有泥炭土、水苔介質或椰纖, 而這些栽培用介質的品質與供應,往往會變成農產品生 產成敗的關鍵因子。在台灣,非土壤的栽培用介質越來 越仰賴進口,在進口的過程中,最棘手的莫過於出現病 蟲草害的問題,一旦有檢疫上疑慮時,檢疫措施或退運 或禁止進口則是可能的處理方式。在可行的栽培用介質 消毒處理方式,目前常採用有:(1)自然曝曬陽光消毒; (2) 化學藥劑浸泡消毒,如漂白水、二氧化氯;(3) 熱水 高溫浸泡消毒,如水苔以80℃熱水浸泡消毒。(4) 燻蒸 消毒,如有條件的使用溴化甲烷。另外,尚有蒸氣消毒、 有機添加物消毒可供選擇使用。然而各式消毒方式都有 其使用上的限制,如陽光消毒無法達到耐高溫雜草種子 的致死温度; 化學藥劑存在有揮發性問題, 導致作用時 間不長;高溫消毒、燻蒸處理則需要專門業者與設備方 可進行。因此,放射線於農業生產用資材消毒的應用, 或許是可行的替代方案之一。本研究延續前期試驗結果, 以 3kGy 以上的輻射照射劑量,可使根瘤線蟲 (Meloidogyne incognita) 二齡幼蟲的存活率與卵的孵化

率下降,炭疽病菌 (Colletotrichum sp.) 與鐮胞菌 (Fusarium sp.) 的菌絲生長與孢子發芽受到抑制。以 1.5kGy 以上輻射照射處理可增加茄棉粉介殼蟲 (Phenacoccus solenopsis) 與木瓜秀粉介殼蟲 (Paracoccus marginatus) 致死率。採用 3kGy 以上的輻 射照射量,則會造成文心蘭與火鶴花切花永久性的物理 傷害。進一步,本年度將探討不同病原菌的繁殖體,如 線蟲的卵、細菌的內生胞子、真菌的菌核與厚膜胞子, 以及雜草種子,透過輻射照射處理之後,可否達到消毒、 除滅介質中有害生物的目標。

# II. 主要內容

# (一) 水苔介質試驗點的準備

水苔介質試驗點的準備:取5kg 裝水苔 (長 x 寬 x 高=60 x 30 x 30 cm<sup>3</sup>),預設立方體的6個面中心點 (SSC, six-side center)為 SSC1、SSC2、SSC3、SSC4、SSC5、 SSC6為試驗點。以該立方體長端對半橫切,於橫切面 畫一虛擬十字線,取中心點 (CC, cube center)為試驗點, 由 CC 點沿虛擬十字線往四方各延伸 7.5 cm,再取編號 CC1、CC2、CC3、CC4 等4點為試驗點,則共有 11 個 試驗點。

#### (二)供試有害生物的準備與重新分離

- 南方根瘤線蟲: 取南方根瘤線蟲 (Meloidogyne incognita) 卵塊 20 個,移置於內含 2mL 2%WA 的 3cm 培養皿中,培養皿以石蠟膜封口。將供試樣本 移置於上述水苔介質試驗位置處,進行不同劑量 的輻射照射。消毒處理之後,取回樣本於顯微鏡下 鏡檢、觀察、記錄卵的孵化率。
- 2. 細菌菌株: 取蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌 (Pectobacterium carotovorum subsp. carotovorum)與液化澱粉芽孢桿菌(Bacullus amyloliquefaciens)菌液,分別以分光光度計調整濃度至約10<sup>5</sup> cfu/mL,吸取40uL 加至滅菌後的無菌試管中,內含8mm濾紙。將其放置無菌操作台上陰乾5hr後蓋上蓋子。供試細菌樣本移置於上述水苔介質試驗位置處,進行不同劑量的輻射照射。消毒處理之後,無菌試管內加入200uL 無菌水,回溶後吸取100uL 回溶液塗在NA 培養基上,觀察是否有菌落產生與計數菌落數。
- 3. 真菌分離株:取供試白絹病菌 (Sclerotium rolfsii, Scl-012) 與鐮胞病菌 (Fusarium solani, Fs-303) 分 離株。將 Scl-012 分離株培養於 PDA 平板上,置 於 24℃下培養待其長出褐色菌核,蒐集備用;將 Fs-303 分離株,利用栽培介質 BVB 製作土壤萃取 液,添加 0.03%硫酸銨以誘導厚膜孢子產生,並製 備成厚膜孢子懸浮液。該些厚膜孢子產生,並製 備成厚膜孢子懸浮液。該些厚膜孢子產生,並製 備成厚膜孢子懸浮液。該些厚膜孢子透浮液分裝 於離心管中,供試樣本則移置於上述水苔介質試 驗位置處,進行不同劑量的輻射照射。消毒處理之 後,將菌核與厚膜孢子分別培養於 PDA 培養皿上, 觀察是否有菌絲或菌落生長。白絹病菌之存活率 (%) =[(對照組無處理菌落直徑-輻射劑量處理組 菌落直徑)/對照組無處理菌落直徑] × 100%; 鐮孢

病菌之存活率(%) =[(對照組無處理菌落總數一輻 射劑量處理組菌落總數)/對照組無處理菌落總數] ×100%。

### (三) 供試雜草的準備與發芽試驗

收集種子葉下珠科-葉下珠 (Phyllanthus urinaria) 與菊科-鬼針草 (Bidens pilosa) 種子,分別以秤藥紙包 裝後,移置於上述水苔介質試驗位置處,進行不同劑量 的輻射照射。消毒處理之後,於9-cm 培養皿中先平舖 上一張衛生紙,並滴入無菌水 6mL。將消毒後的供試種 子 10 顆/每皿移置上方,再舖上一層濾紙後,該培養皿 放置於封口袋內,封口保濕,觀察、記錄供試種子的發 芽率。

# (四) 資料屏蔽效應分析與統計分析

試驗所得資料經變方分析 (analysis of variance, ANOVA)與最小顯著差異性 (least significant difference, LSD, p=0.05) 測驗。另外,試驗所得資料分析屏蔽效應 距離對輻射消毒效果的影響時,屏蔽效應0 cm 表示 5 kg 裝水苔 (長 x 寬 x 高= 60 x 30 x 30 cm<sup>3</sup>),預設立方 體的6個面中心點 (SSC, six-side center)為SSC1、SSC2、 SSC3、SSC4、SSC5、SSC6為試驗點的所得資料平均 值。屏蔽效應距離15 cm 表示 5 kg 裝水苔以該立方體 長端對半橫切,於橫切面畫一虛擬十字線,取中心點 (CC, cube center)所得資料平均值。屏蔽效應距離7.5 cm 表示 5 kg 裝水苔中心點 (CC, cube center),由 CC 點 沿虛擬十字線往四方各延伸7.5 cm,再取編號 CC1、 CC2、CC3、CC4 等4點試驗點的所得資料平均值。

### III. 結果

### (一) 輻射照射對南方根瘤線蟲卵孵化的影響

將南方根瘤線蟲(Meloidogyne incognita) 卵塊分別 固定在預設供試水苔的 11 試驗點,分別進行 0、3、6、 9、18 kGy 輻射劑量處理後,結果對照組 (0 kGy) 的 11 試驗點南方根瘤線蟲卵的孵化率介於 50-100%,而有經 3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理者,南方根瘤線蟲卵的 孵化率皆為 0 (%)。經 LSD 統計分析,對照組 (0 kGy) 與其他輻射照度處理的南方根瘤線蟲卵孵化率不具有 顯著之差異性 (p>0.05)。

# (二)輻射照射對蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌重新分離的影響

將含有  $10^5$  cfu/mL 蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌 (Pectobacterium carotovorum subsp. carotovorum) 分別 固定在預設供試水苔的 11 試驗點,分別經 0.3.6.9.18 kGy 輻射劑量處理後,重新分離蝴蝶蘭細菌性軟 腐病菌並計數菌落數。結果由對照組 (0 kGy) 的 11 試 驗點處理可重新分離得到蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌達  $10^3$ cfu/mL 以上。但是有經 3.6.9.18 kGy 輻射劑量處理 者,則皆無法重新分離得到蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌。經 LSD 統計分析,對照組 (0 kGy) 與其他輻射照度處理 的蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌重新分離率不具有顯著之差 異性 (p>0.05)。

### (三) 輻射照射對液化澱粉芽孢桿菌重新分離的影響

將含有 10<sup>5</sup> cfu/mL 液化澱粉芽孢桿菌 (Bacullus

amyloliquefaciens) 分別固定在預設供試水苔的 11 試 驗點,分別經0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後, 重新分離液化澱粉芽孢桿菌並計數菌落數。結果由對照 組 (0 kGy) 的 11 試驗點處理可重新分離得到液化澱 粉芽孢桿菌達 10<sup>3</sup> cfu/mL 以上;經3 kGy 輻射劑量處理 者的 11 試驗點處理可重新分離得到液化澱粉芽孢桿 菌介於 27 至 1.3x10<sup>2</sup> cfu/mL,平均為 83 cfu/mL;經6 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理可重新分離得到 液化澱粉芽孢桿菌介於 1-27 cfu/mL,平均為 9 cfu/mL; 經9 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理可重新分離 得到液化澱粉芽孢桿菌介於 0-4 cfu/mL,平均為 1 cfu/mL;經 18 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理 可無法重新分離得到液化澱粉芽孢桿菌。

經 LSD 統計分析,對照組 (0 kGy) 與其他輻射照 度處理的液化澱粉芽孢桿菌重新分離率具有顯著之差 異性 (p<0.05)。進一步分析,屏蔽效應對液化澱粉芽孢 桿菌重新分離率的影響,結果顯示 3 kGy 輻射照射處理 的水苔屏蔽效應距離 0 cm、7.5 cm 與 15 cm 的液化澱 粉芽孢桿菌重新分離率分別為 77%、92%與 85%,經 LSD 統計分析,水苔屏蔽效應距離處理組的液化澱粉 芽孢桿菌重新分離率不具有顯著之差異性 (p>0.05)。6 kGy 輻射照射處理的水苔屏蔽效應距離 0 cm、7.5 cm 與 15 cm 的液化澱粉芽孢桿菌重新分離率分別為 10%、 9%與 5%,經 LSD 統計分析,水苔屏蔽效應距離處理 組的液化澱粉芽孢桿菌重新分離率亦不具有顯著之差 異性 (p>0.05)。

### (四) 輻射照射對白絹病菌菌核存活的影響

將含有白絹病菌(Sclerotium rolfsii, Scl-012) 褐色 菌核的離心管,分別固定在預設供試水苔的11 試驗點, 分別經0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後, 重新分 離白絹病菌並計算菌絲生長情形,換算為存活率。結果 由對照組 (0 kGy) 的 11 試驗點處理可重新分離得到 白絹病菌,菌核存活率達100%。經3kGy輻射劑量處 理者的11 試驗點處理仍可重新分離得到白絹病菌,菌 核存活率介於 100-66.6%,平均為 88%;經 6 kGy 輻射 劑量處理者的 11 試驗點處理可重新分離得到白絹病 菌,菌核存活率介於100-33.3%,平均為66%;經9kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理可重新分離得到白 絹病菌,菌核存活率率介於 66.6-0%,平均為 6%;經 18 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理已無法重新 分離得到白絹病菌,菌核存活率皆為0%。經LSD統計 分析,對照組 (0kGy) 與 3kGy 輻射照度處理的白絹病 菌菌核存活率,與其他輻射照射處理者具有顯著之差異 性 (p<0.05)。進一步分析,屏蔽效應對白絹病菌菌核存 活率的影響,結果顯示 3kGy 輻射照射處理水苔屏蔽效 應距離 0 cm、7.5 cm 及 15 cm 的白絹病菌菌核存活率 分別為 99%、92%及 67%,經 LSD 統計分析,水苔屏 蔽效應距離處理組的白絹病菌菌核存活率不具有顯著 差異性 (p>0.05)。6kGy 輻射照射處理水苔屏蔽效應距 離 0 cm、7.5 cm 及 15 cm 的白絹病菌菌核存活率分別 為 56%、67% 及 67%,經 LSD 統計分析,水苔屏蔽效 應距離處理組的白絹病菌菌核存活率不具有顯著差異 性 (p>0.05)。

### (五) 輻射照射對鐮胞菌厚膜孢子發芽的影響

將含有鐮胞病菌 (Fusarium solani, Fs-303) 厚膜孢 子的離心管,分別固定在預設供試水苔的11 試驗點, 再經0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後,重新分離 鐮胞病菌並計算孢子存活率。結果由對照組 (0kGy) 的 11 試驗點處理可重新分離得到鐮胞病菌,孢子存活率 皆為 100%。經 3 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處 理仍可重新分離得到鐮胞病菌, 孢子存活率介於 1.3-88.7%,平均為35%;經6kGy輻射劑量處理者的11 試 驗點處理可重新分離得到鐮胞病菌,孢子存活率介於 3.3-21.3%, 平均為 11%; 經 9 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理可重新分離得到鐮胞病菌,孢子存活率 介於 0-10.7%, 平均為 3%; 經 18 kGy 輻射劑量處理者 的11 試驗點處理已無法重新分離得到鐮胞病菌, 孢子 存活率皆為0%。經LSD 統計分析,對照組 (0kGy) 的 鐮胞菌孢子存活率,與其他輻射照射處理具有顯著之差 異性 (p<0.05)。進一步分析,屏蔽效應對鐮胞菌孢子存 活率的影響,結果顯示 3kGy 輻射照射處理水苔屏蔽效 應距離 0 cm、7.5 cm 與 15 cm 的鐮胞菌孢子存活率分 別為 30%、43% 及 33%,經 LSD 統計分析,水苔屏蔽 效應距離處理間不具有顯著之差異性 (p>0.05)。6kGy 輻射照射處理水苔屏蔽效應距離 0 cm、7.5 cm 及 15 cm 的鐮胞菌孢子存活率分別為9%、13%及15%,經LSD 統計分析,水苔屏蔽效應距離處理間亦不具有顯著之差 異性 (p>0.05)。

### (六) 輻射照射對鬼針草種子發芽的影響

將含有鬼針草種子 (Bidens pilosa) 的秤藥紙分別 固定在預設供試水苔的11 試驗點,分別經0、3、6、 9、18kGy 輻射劑量處理後,觀察各處理組種子發芽情 形並計數發芽率。結果對照組 (0kGy) 的 11 試驗點處 理的鬼針草種子發芽率介於 20-50%, 平均為 37%; 經 3 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理的鬼針草種子 發芽率介於 10-50%, 平均為 35%; 經 6 kGy 輻射劑量 處理者的 11 試驗點處理的鬼針草種子發芽率介於 0-50%,平均為17%;經9kGy輻射劑量處理者的11 試 驗點處理的鬼針草種子發芽率介於0-10%,平均為1%; 經 18 kGy 輻射劑量處理者的 11 試驗點處理的鬼針草 種子皆無法發芽。經 LSD 統計分析,對照組 (0 kGy) 與 3kGy 輻射照度處理的鬼針草種子發芽率,與其他輻 射照射處理具有顯著之差異性 (p<0.05)。進一步分析, 屏蔽效應對鬼針草種子發芽的影響,結果顯示 3kGy 輻 射照射處理水苔屏蔽效應距離 0 cm、7.5 cm 及 15 cm 的鬼針草種子發芽率分別為 38%、32%與 30%, 經 LSD 統計分析,水苔屏蔽效應距離處理間不具有顯著之差異 性 (p>0.05)。6kGy 輻射照射處理水苔屏蔽效應距離0 cm、7.5 cm 及 15 cm 的鬼針草種子發芽率分別為 13%、 28%與0%,經LSD統計分析,水苔屏蔽效應距離處理 組間亦不具有顯著之差異性 (p>0.05)。

### (七) 輻射照射對葉下珠種子發芽的影響

將含有葉下珠 (Phyllanthus urinaria)的秤藥紙分 別固定在預設供試水苔的 11 試驗點,分別經 0、3、6、 9、18 kGy 輻射劑量處理後,觀察種子發芽情形並計數 發芽率。結果對照組 (0 kGy)的 11 試驗點處理的葉下 珠種子發芽率介於 0-80%;但是經 3、6、9、18 kGy 輻

射劑量處理者的 11 試驗點處理的葉下珠種子皆無法 發芽。經 LSD 統計分析,對照組 (0 kGy) 與其他輻射 照度處理的葉下珠種子發芽率不具有顯著之差異性 (p> 0.05)。

# IV. 結論與討論

伽馬輻射照射消毒的優點包括更好的穿透性、更好 的消毒效果、不受溫度和壓力等外在條件的影響等 (Singh et al., 2016),可造成活體細胞的傷害包括細胞膜 的通透性增加 (AlZahrani and Al-Sewaidan, 2017)、酵素 活性的功能障礙 (Rendic and Guengerich, 2012)、放射性 毒素的產生 (Ibragimova et al., 2008),以及造成脫氧核 糖核酸 (DNA)的損傷等 (Sage and Shikazono, 2017)。 致本研究前期試驗針對文心蘭與火鶴花切花貨品的處 理,不管採用多少輻射照射劑量,皆會造成文心蘭與火 鶴花切花的物理性傷害。在農業資材水苔介質的消毒上, 伽馬輻射照射因會造成活體細胞傷害的機制,則可達到 殺死介質內有害生物的目的。

然而,不同的微生物會有不同的存活構造,如作物 線蟲病害微生物以卵塊為其存活的構造 (Mkandawire et al., 2022)。線蟲的卵是一個保護的構造,由多細胞層 所組成,主要成分包括脂質、幾丁質與糖蛋白,這種排 列方式讓卵具有滲透性,又可以抵抗逆境環境, *Trichuris suis* 與 Ascaris suum 的卵可以在環境中存活 10 年以上(Lindgren, et al., 2020)。本研究將南方根瘤線 蟲(Meloidogyne incognita) 卵塊進行輻射照射處理,結 果 3 kGy 以上南方根瘤線蟲卵的孵化率皆為 0 (%)。雖 然證實輻射使線蟲卵不孵化,但是卻無法證實該些卵是 否已死亡或進入休眠狀態。

在細菌病原菌中,內生胞子是可以抵抗環境逆境的 構造 (Ngalimat, et al., 2021),包括耐高溫 (可高達 150°C)、在絕對零度仍具有生命跡象、對化學藥劑 (如 triphenylmethane dyes)表現耐性、可保護細菌細胞免受 紫外線輻射、極端 pH 梯度、乾旱與營養耗竭的影響 (Basta and Annamaraju, 2023)。將具有內生胞子構造的 液化澱粉芽孢桿菌 (Bacullus amyloliquefaciens)菌株經 0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後,結果經9 kGy 輻 射劑量處理者重新分離仍有平均1 cfu/mL。取不具內生 胞子構造的蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌 (Pectobacterium carotovorum subsp. carotovorum),則經3 kGy 以上輻射 劑量處理皆無法重新分離得到蝴蝶蘭細菌性軟腐病菌。

在真菌病原菌中,厚膜孢子 (Akhter et al., 2016) 與 菌核 (Wu et al., 2008) 也是可以抵抗環境逆境的構造。 將具有厚膜孢子構造的鐮胞病菌 (Fusarium solani)菌 株經 0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後,結果 9 kGy 輻射劑量處理者仍可重新分離得到鐮胞病菌,厚膜孢子 存活率介於 0-10.7%,平均為 3%;將白絹病菌 (Sclerotium rolfsii, Scl-012) 褐色菌核經 0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後,結果 9 kGy 輻射劑量處理者仍可 重新分離得到白絹病菌,菌核存活率率介於 66.6-0%, 平均為 6%。

不同的雜草種子同樣存在不同的存活特性與抵抗 環境逆境的能力 (Qasem, 2020)。將鬼針草種子 (Bidens pilosa) 經 0、3、6、9、18 kGy 輻射劑量處理後,結果 9kGy 輻射劑量處理者的鬼針草種子發芽率介於 0-10%, 平均為 1%;但是葉下珠 (Phyllanthus urinaria) 種子的 發芽率,經3kGy 以上處理皆無法發芽。

本研究本年度的結論,輻射照射消毒可應用於水苔 介質的消毒,3kGy即可使一般微生物達致死劑量,但 是針對微生物的存活體,包括線蟲的卵、細菌的內生胞 子、鐮胞菌的厚膜孢子、菌核病的菌核與一些雜草種子, 則需使用到9kGy以上,才可達致死劑量。

# 参考文獻

- [1] Akhter, A., Hage-Ahmed, K., Soja, G. and Steinkellner, S. 2016. Potential of *Fusarium* wiltinducing chlamydospores, in vitro behaviour in root exudates and physiology of tomato in biochar and compost amended soil. *Plant Soil* **406**, 425–440. https://doi.org/10.1007/s11104-016-2948-4.
- [2] AlZahrani, K., and Al-Sewaidan, H. A. 2017. Nanostructural changes in the cell membrane of gamma-irradiated red blood cells. Indian journal of hematology & blood transfusion : an official journal of Indian Society of Hematology and Blood Transfusion, 33(1): 109–115. doi://doi.org/10.1007/s12288-016-0657-z.
- [3] Basta M, and Annamaraju P. 2023. Bacterial Spores. In: StatPearls [Internet]. Treasure Island (FL): StatPearls Publishing. Available from: https://www.ncbi.nlm.nih.gov/books/NBK556071/
- [4] Ibragimova, M. I., Petukhov, V. Y., Zheglov, E. P., Khan, N., Hou, H., Swartz, H. M., Konjukhov, G. V., and Nizamov, R. N. 2008. Quinoid radio-toxin (QRT) induced metabolic changes in mice: an ex vivo and in vivo EPR investigation. Nitric oxide : biology and chemistry, 18(3): 216–222. doi://doi.org/10.1016/j.niox.2008.01.002.
- [5] Lindgren, K., Gunnarsson, S., Höglund, J., Lindahl, C., and Roepstorff, A. 2020. Nematode parasite eggs in pasture soils and pigs on organic farms in Sweden. Org. Agr. 10, 289–300. https://doi.org/10.1007/s13165-019-00273-3
- [6] Mkandawire, T. T., Grencis, R. J., Berriman, M., and Duque-Correa, M. A. 2022. Hatching of parasitic nematode eggs: a crucial step determining infection. Trends in Parasitology 38: 174-187. DOI:<u>https://doi.org/10.1016/j.pt.2021.08.008</u>
- [7] Ngalimat, M. S., Yahaya, R. S.R., Baharudin, M. M.A., Yaminudin, S.M., Karim, M., Ahmad, S.A., Sabri, S. 2021. A review on the biotechnological applications of the operational group *Bacillus amyloliquefaciens*. Microorganisms. 17;9(3):614. doi: 10.3390/microorganisms9030614.
- [8] Qasem, J. R. 2020. Weed seed dormancy: the ecophysiology and survival strategies. Seed dormancy and germination. IntechOpen. DOI: 10.5772/intechopen.88015.
- [9] Rendic, S., and Guengerich, F. P. 2012. Summary of information on the effects of ionizing and nonionizing radiation on cytochrome P450 and other drug metabolizing enzymes and transporters. Current drug metabolism, 13(6): 787– 814. doi://doi.org/10.2174/138920012800840356

- Sage E, and Shikazono N. 2017. Radiationinduced clustered DNA lesions: repair and mutagenesis. Free Radic Biol Med. 107: 125-135. doi: 10.1016/j.freeradbiomed.2016.12.008. Epub 2016 Dec 8. PMID: 27939934.
- [11] Singh, R., Singh, D., and Singh, A. 2016.
   Radiation sterilization of tissue allografts: A review. World journal of radiology, 8(4): 355–369. doi://doi.org/10.4329/wjr.v8.i4.355
- Wu, B. M., Subbarao, K. V., and Liu, Y. B. 2008.
   Comparative survival of sclerotia of *Sclerotinia minor* and *S. sclerotiorum*. Phytopathology 98:659-665.

# 應用輻射照射於台灣外銷鳳梨之檢疫處理技術開發 Application of Irradiation to the Development of Quarantine Treatment Technology for Pineapples Exported from Taiwan

計畫編號:NSTC111-NU-E-005-001-NU
計畫主持人:杜武俊
e-mail:wctu@dragon.nchu.edu.tw
計畫共同主持人:羅彩月
計畫參與人員:蘇敏彰、林慧玲、路光暉、陳嬿后
執行單位:國立中興大學昆蟲學系

### 摘要

本計畫與原能會核能研究所 (原委會,行政院) 共 同合作,以鳳梨 (Ananas comosus L. Merr.,台農 17號) 上常發生之介殼蟲 (太平洋臀紋粉介殼蟲, Planococcus minor (Maskell, 1897)) 為標的,進行輻射照射處理滅蟲 試驗,並分析處理後之果質變化,藉以建立福照檢疫處 理技術,以利鳳梨鮮果外銷。試驗結果顯示,以100Gy 照射處理粉介殼蟲不同齡期卵,雖然可以少量孵化,但 都無法存活;雌成蟲雖可大量產下卵囊,但僅極少孵化, 幾近完全無法存活;至於不同齡期若蟲,於照射後無法 進入到下一個若蟲齡期,甚至於第9天開始陸續死亡。 另外,關於輻射照射處理鳳梨果實後經模擬儲運過程後 之試驗結果,根據果實外觀、剖面與果品分析之數據顯 示,250 Gy 劑量照射對鳳梨無顯著影響;惟 500 與 750 Gy 照射處理及模擬儲運後,則有一定程度的影響。綜 觀以上結果顯示,250 Gy 之輻射處理劑量,可以完全抑 制粉介殼蟲之發育,而對鳳梨果不會發生明顯地影響, 因此可做為未來在植物檢疫處理上之應用參考。

**關鍵詞:**鳳梨、太平洋臀紋粉介殼蟲、輻射照射、檢疫 處理

### Abstract

This project cooperated with the Institute of Nuclear Energy Research (Atomic Energy Council, Executive Yuan) to use  $\gamma$ -irradiation to control the mealybug, *Planococcus* minor (Maskell, 1897), one of the critical pests occurring on pineapples, in Taiwan, and analyzed the effect on the quality of pineapple fruit. The results of 100 Gy treatment of P. minor at different stages showed that (1) egg stage: although a small number of eggs hatched, none of them survived; (2) nymph stage: after irradiation, the development of nymphs of different ages stagnated, they could not enter the following nymphs and started to die on the 9th day. (3) adult stage: adult females still could lay abundant ovisacs, but only a few eggs hatch and are almost entirely non-viable. In addition, regarding the experimental results after irradiation and simulating the storage and transportation process of pineapple fruits, according to the data of fruit appearance, cross-section, and fruit analysis, 250 Gy-treatments had no significant effect on the

pineapple; however, 500 and 750 Gy-treatments showed a certain degree of influence. In conclusion, the above results show that the radiation treatment dose of 250 Gy can completely inhibit the development of *P. minor* and has no noticeable impact on pineapple fruit, which can be used as a reference for future applications on quarantine treatment. **Keywords** : pineapple, Pacific mealybug (*Planococcus minor*), irradiation, quarantine treatment

# I. 前言

經由全球貿易而引入入侵物種 (invasive species), 對全球生物多樣性和生態系的穩定是一嚴重的威脅,並 可能對農業造成嚴重的經濟損失、增加管理成本和失去 市場等問題。植物檢疫處理 (phytosanitary treatment) 的 主要目是在防止引入入侵物種,同時也是促進全球貿易 的必要手段。傳統上,植物檢疫殺蟲處理,多以溴化甲 烷 (methyl bromide) 燻蒸行之;然而燻蒸劑本身對環境 或人體健康有著不良的影響,因此已漸被禁用。原本預 計開發中國家將於2015年完全禁用溴化甲烷;然而, 因無法獲得有效的替代方法,故在植物檢疫處理上依然 允許使用此化合物。國際間,不同植物及其產品 (特別 是水果)之檢疫處理技術中,輻射照射已被視為最具潛 力,用以替代溴化甲烷之方法,且逐漸被接受(如美國、 澳洲、紐西蘭等國家)。自2004年首次使用輻射照射進 行檢疫處理以來,此技術在這方面的應用每年以10%成 長 (Hallman and Blackburn, 2016)。早在 1980 年代,聯 合國糧農組織 (FAO)、國際原能總署 (IAEA) 及世界 衛生組織 (WHO) 等國際組織即已宣佈,在10kGy(千 格雷) 以下劑量照射的食品是具有衛生安全性的,不需 再經任何毒性試驗,且該類食品亦無營養及危害生物方 面之特殊問題。當今,亦已有許多食品和醫用器材等物 品,係經應用適當劑量之加馬射線 (γ-ray) 照射處理以 達滅菌效果。輻射照射處理法甚為方便與安全,且不會 有化學藥劑殘存的問題;同時,此技術在農產食品上的 應用,有殺蟲、殺菌、降低菌數、抑制發芽之效果 (Ahmed, 1993; Chen et al., 1993; Zhang et al., 1993; Zhou et al., 1996; Wang and Du, 2005; Arvanitoyannis et al., 2009),也可延緩蔬果後熟及延長蔬果上架販售的時間 及蔬果品質改善等功能 (D'Innocenzo and Lajolo, 2001; Wang and Chao, 2003; Janave and Sharma, 2005)。運用輻

射照射處理農作物主要除了達到滅殺害蟲或使害蟲絕 育外,同時也要確保所處理之農作物不會受到輻射之影 響。

屏東地區為台灣出口鳳梨 (Ananas comosus L. Merr.,台農 17號) 之最主要產地,主要銷往大陸、日本、韓國與香港等地。然而 2021 年,我國外銷鳳梨 首次因被檢出介殼蟲,而遭到中國大陸禁止輸入。為解 決此問題,本計畫探討輻射照射應用於外銷鳳梨檢疫處 理之可行性,並將此結果提供相關單位參考。

# II. 主要內容

本計畫主要以鳳梨為標的與行政院原子能委員會 核能研究所(桃園,龍潭)共同合作,進行一系列輻射 照射處理滅除粉介殼蟲之試驗,並與本校園藝學系合作, 進行處理後果質變化分析,藉以建立相關數據,據以訂 定一套適用之「輻射照射鳳梨檢疫處理方法」,提供相 關單位做為檢疫處理之參考。

# III. 結果與討論

### 3.1 太平洋臀紋粉介殼蟲對輻射照射處理之感受性

針對太平洋臀紋粉介殼蟲卵、幼蟲期與雌成蟲分別 施以照射處理,之後觀察卵之孵化率與可成長至成蟲之 存活率,以及幼蟲死亡率與成蟲的繁殖力等。其結果分 述如下:

### (一) 卵期

卵接種後,分別於第1、3與4天進行不同劑量之 照射處理,其結果顯示卵接種後1天進行照射之孵化率 為0%;卵接種後第3天照射之孵化率0~0.6%,但初齡 若蟲無法存活;卵接種後第4天照射之孵化率1.3~31% (表1A),但若蟲無法存活(表1B)。由上述結果可知, 隨著卵之齡期越大對於輻射照射的耐受性越高,惟雖可 孵化為若蟲,但仍無法繼續成長。

表 1	輻射照射處理對介殼蟲 (P. minor)卵之孵化率
	<ul><li>(A) 與存活率 (B) 之影響</li></ul>

(A)	Dose	Н	atch Rate (%	6)	
	(Gy)	4 days	3 days	1 day	
	CK	90	90	88	
	100	31	0.6	0	
	200	4.3	0	0	
	400	13	0	0	
( <b>B</b> )	Dose	Lymph Survival Rate (%)			
	(Gy)	4 days	3 days	1 day	
	CK	92	87.6	87	
	100	0	0	0	
	200	0	0	0	
	400	0	0	0	

### (二) 若蟲期

卵接種後,分別於第7、12及17天進行不同劑量 之照射處理,照射處理結果如下:(1)初齡若蟲(接種 後第7天)之結果顯示,對照組於第5天已有二齡若 蟲,而照射處理組則於照射後,若蟲無法持續發育至下

一齡期,且第3天起開始出現死亡現象。100 Gy 照射 處理組於第9天若蟲存活率為2%,第11天存活率降 為 0%; 200 Gy 照射處理組於第9 天存活率為 0%; 400 Gv 照射處理於第9天若蟲存活率為4%,第11 天存活 率降為 0% (表 2 A)。(2) 二齡若蟲 (接種後第 12 天) 之 結果顯示,對照組照射後第4天已有三齡若蟲,照射後 第10天已長成雌成蟲,第15天約有半數雌成蟲開始產 卵,反觀處理組若蟲成長速度緩慢仍維持二齡狀態無成 長,且於照射後第6天開始出現明顯死亡現象。100 Gy 照射處理於第9天若蟲存活率為3.7%,第11天存活率 降為0%,200 Gy 照射處理於第9天存活率則為10%, 第11 天存活率降為0%,400 Gv 照射處理於第9 天若 蟲存活率為0%(表2B)。(3)老熟若蟲(接種後第17 天) 照射結果顯示,對照組照射後第5天已有雌成蟲, 並在照射後第10天開始產卵,反觀三組處理組照射後, 若蟲齡期無變化仍維持 3 齡若蟲狀態,蟲體略微變色 (褐色),並於於照射後第6天出現明顯死亡數,100 Gy 照射處理於第9天若蟲存活率為2%,第11天存活率 降為0%,200 Gy 照射處理於第9天存活率則為0%, 400 Gy 照射處理於第9天若蟲存活率為10%,第11天 存活率降為0%(表2C)。

表2輻射照射處理對介殼蟲(P. minor)不同齡期若蟲 (A. 一齡若蟲、B. 二齡若蟲、C. 三齡若蟲)存活率之 影樂

	49	H			
		Survival Rate (%)			_
Day 1	Day 3	Day 5	Day 7	Day 9	_
100	98	98	97	97	_
100	45	25	13	2	

15.6

18

96

13

0

Day 11

97 0

0

0

B)	Dose			Survival	Rate (%)		
	(Gy)	Day 1	Day 3	Day 5	Day 7	Day 9	Day 11
_	CK	100	100	98	98	96	96
	100	100	98.7	72.7	52.7	3.7	0
	200	100	98.3	66	32.3	10	0
	400	100	90.7	60	16	0	0

(C)	Dose			Survival	Rate (%)		
	(Gy)	Day 1	Day 3	Day 5	Day 7	Day 9	Day 11
	CK	100	100	98	97	95	95
	100	100	65.3	18	10.7	2	0
	200	100	23.7	6.3	4.3	0	0
	400	100	56.7	26.3	1.7	10	0

#### (三) 雌成蟲

(A)

Dose

(Gy)

CK

100

200

400

100

100

54

46

先於南瓜接種約 50 個卵囊,每一卵囊約 30 顆卵 粒,共接種 1500 顆卵,接種後第 23 日將前述南瓜分切 成 5×5 cm 大小之南瓜塊,其上約有 100 隻成蟲,置於 布丁杯 (直徑 10 cm x 高度 5.7 cm),依試驗劑量進行 照射,結果顯示,雌成蟲照射後第 3 天可發現,凡經輻 射照射處理之雌成蟲開始大量產卵,此時對照組僅 2 隻 雌成蟲產卵,第 7 天對照組可見大量若蟲孵化,以 100 Gy 照射之處理組有 5 隻若蟲孵化,但進入第 9 天則無 任何若蟲存活,200 與 400 Gy 照射組則一開始就無若 蟲孵化 (表 3)。由上述結果可推測,經輻射照射後的雌 成蟲因面臨逆境 (輻射照射刺激) 會開始大量產卵,但 經輻射照射處理雌成蟲產下之卵囊均無法順利孵化或 存活。 總結上述結果可知,經輻射照射處理之若蟲會隨著 天數越長存活率越低,以最低劑量 100 Gy 照射不同齡 期卵雖然可以少量孵化,但無法存活;照射雌成蟲雖可 大量產下卵囊但極少孵化甚至無法存活;照射不同齡期 若蟲期,於照射後無法進入到下一個若蟲齡期,甚至於 第9天開始陸續死亡。

# 表 3 輻射照射處理對介殼蟲 (P. minor) 雌成蟲產卵囊 數 (egg mass) 之影響

Dose		No. of E	gg Mass	
(Gy)	Day 1	Day 3	Day 5	Day 7
CK	0	2	2	252*
100	0	204	204	$204^{*}$
200	0	217	217	217
400	0	207	207	207

\*N: nymph hatch

### 3.2 輻射照射處理對鳳梨果質之影響

金鑽鳳梨 (台農 17 號) 綠熟果於核能研究所輻射 照射處理廠,分別施以 250、500 與 750 Gy (註:三次 重複處理下,果實實際平均接受劑量分別為238.3、528 與760.9 Gy)。照射後觀察鳳梨外觀(果皮)與剖面(冠 芽和果肉)之結果顯示,15℃儲藏1天(圖1)與持續 置於15℃儲藏7天之果實(圖2)均未呈現顯著差異。 後續,將鳳梨移庫置於25℃下5天後分析果質之結果 顯示,對照組果心與冠芽呈現正常狀態 (圖 3 A);250 Gy 照射基部些微褐化 (圖 3 B 紅色箭頭處),冠芽仍維 持綠色;500 Gy 照射基部明顯褐化且冠芽一半呈現乾 枯 (圖 3 C 紅色箭頭處); 750 Gy 照射果心嚴重褐化並 呈現水浸狀且冠芽與表皮呈現乾枯 (圖 3 D 紅色箭頭 處)。鳳梨果品硬度分析結果顯示,15℃儲藏1與7天 之三個劑量照射後果實與對照組比較無顯著差異,移庫 至 25℃再储藏 5 天後, 250 Gy 與對照組比較無顯著差 異,500 Gy 照射後硬度並未明顯軟化 (表4綠字標示), 而 750 Gy 照射組因果肉呈現水浸狀導致果肉偏軟 (表 4 紅字標示)。果品糖酸比統計結果顯示, 250 Gy 照射 處理組與對照組三個儲藏時間 (15℃儲藏1和7天與移 庫至 25℃再儲藏 5 天) 都無顯著差異, 500 與 750 Gy 處理組於照射後 15℃儲藏 1 天和 7 天與對照組相比無 顯著差異,但持續於25℃再儲藏5天後,會因為代謝 異常導致糖酸比數值偏高趨勢 (表5 紅字標示)。

總結比對果實外觀、剖面與果品分析可知 250 Gy 劑量照射對鳳梨無顯著影響,500 與 750 Gy 處理之鳳 梨以此儲運條件則有一定程度的影響。



圖 1 金鑽鳳梨 (台農 17 號) 綠熟果於輻射照射處理後 於 15℃储藏 1 天後其果實外觀 (果皮) 與剖面 (冠芽和 果肉) 結果。(A) 對照組、(B) 照射劑量 250 Gy、(C) 照 射劑量 500 Gy 與 (D) 照射劑量 750 Gy。



圖 2 金鑽鳳梨 (台農 17 號) 綠熟果於輻射照射處理後 於 15°C儲藏 7 天後其果實外觀 (果皮) 與剖面 (冠芽和 果肉) 結果。(A) 對照組、(B) 照射劑量 250 Gy、(C) 照 射劑量 500 Gy 與 (D) 照射劑量 750 Gy。



圖 3 金鑽鳳梨 (台農 17 號) 綠熟果於輻射照射處理後 於 15℃儲藏 7 天後移庫之 25℃持續儲藏 5 天後其果實 外觀 (果皮) 與剖面 (冠芽和果肉) 結果。(A) 對照組、 (B) 經 250 Gy 照射後基底些微褐化 (紅色箭頭處)、(C) 經 500 Gy 照射後基底明顯褐化與冠芽一半呈現乾枯 (紅色箭頭處) 與 (D) 經 750 Gy 照射後果心嚴重褐化 並呈現水浸狀且冠芽與表皮呈現乾枯 (紅色箭頭處)。

表4 輻射照射處理對鳳梨儲運後果實硬度之影響

Treatments -		Firmness (N/cm	<sup>2</sup> )
(Gy)	15°C 1day	15°C 7days	15°C7days + 25°C 5days
СК	23.3 a <sup>z</sup> A <sup>y</sup>	18.9 aB	18.5 bB
250	23.0aA	20.9 aA	20.2 abA
500	22.3 aA	20.5 aA	21.7aA
750	21.9aA	21.2 aA	19.6 abA
Means within column	s followed by the same le	atter are not significantly	different at P<0.05 by I SD test

<sup>y</sup>Means within rows followed by the same capital letter are not significantly different at P<0.05 by LSD test

表 5 輻射照射處理對鳳梨儲運後果實糖酸度比之影響

T		TSS/TA	
(Gy)	15°C 1day	15°C 7days	15°C7days + 25°C 5days
CK	30.6 abA	21.7bB	23.8bB
250	29.6 abA	23.1 abB	23.7bB
500	26.9bA	27.4aA	28.3 aA
750	32.4 aA	26.1 abB	28.7 aAB

<sup>z</sup>Means within columns followed by the same letter are not significantly different at P<0.05 by LSD test.

 $^{y}$ Means within rows followed by the same capital letter are not significantly different at P<0.05 by LSD test.

# IV. 結論

整體試驗結果顯示,以100 Gy 照射處理粉介殼蟲 各蟲期均無法順利成長與存活;雌成蟲雖可大量產下卵 囊,但亦無法存活。另外,關於輻射照射處理鳳梨果實 後經模擬儲運過程後之試驗結果顯示,250 Gy 劑量照 射對鳳梨無顯著影響。故認為250 Gy 之輻射處理劑量, 可以完全抑制粉介殼蟲之發育,而對鳳梨果不會發生明 顯地影響,此是可做為未來在植物檢疫處理上之應用參 考。

# 参考文獻

- [1] Ahmed M. 1993. Up-to-date status of food irradiation. Radiat Phys Chem 42: 245-251. doi: 10.1016/0969-806X(93)90244-O
- Arvanitoyannis IS, Stratakos A, Tsarouhas P. 2009. Irradiation applications in vegetables and fruits: a review. Crit Rev Food Sci Nutr 49: 427-462. doi: 10.1080/10408390802067936
- Chen Q, Xu P, Chen H, Chen L, Dong S. 1993.
   Study on process control and acceptability of irradiated seasonings. Radiat Phys Chem 42: 323-326. doi: 10.1016/0969-806X(93)90257-U
- [4] D'Innocenzo M, Lajolo FM. 2001. Effect of gamma irradiation on softening changes and enzyme activities during ripening of papaya fruit. J Food Boichem 25: 425-438. doi: 10.1111/j.1745-4514.2001.tb00750.x
- [5] Hallman GJ, Blackburn CM. 2016. Phytosanitary irradiation. Foods 5: 8. doi: 10.3390/foods5010008
- [6] Janave MT, Sharma A. 2005. Extended storage of gamma-irradiated mango at tropical ambient temperature by film wrap packaging. Journal of Food Science and Technology-Mysore 42: 230-233.
- Wang J, Chao Y. 2003. Effect of <sup>60</sup>Co irradiation on drying characteristics of apple. J Food Eng 56: 347-351.
- [8] **Wang J, Du YS.** 2005. The effect of gamma-ray irradiation on the drying characteristics and final quality of dried potato slices. Int J Food Sci Technol 40: 75-82. doi: 10.1111/j.1365-2621.2004.00906.x
- [9] **Zhang ZZ, Liu XM, Li GF, Yang YT, Tian LM.** 1993. A study on storage and preservation of hsueh pear with radiation technology. Radiat Phys Chem 42: 331-332.
- [10] Zhou Q, Jin R, Wei J, Fu J, Xiong L. 1996. Irradiation preservation and its dose control for dehydrated vegetables. Acta Agriculturae Zhejiangensis 8: 255-256.

# 當代原子能法重要法律議題及訴訟案例研析

# A Study on the contemporary Key Nuclear Energy Legal Issues and Litigation Cases

計畫編號:111-NU-E-007-002-NU 計畫主持人:翁曉玲副教授(國立清華大學通識教育中心) e-mail:hlweng@mx.nthu.edu.tw 共同主持人:高銘志教授(國立清華大學科技法律研究所) 紀和均助理教授(國立中興大學國家政策與公共事務研究所) 計畫參與人員:謝友仁律師 執行單位:國立清華大學通識教育中心

# 摘要

本研究計畫蒐集我國歷年來的核能訴訟和訴願案, 研析其中所涉及的法律爭議和行政法院見解,藉此歸納 和檢討現行原子能法等相關法規可能存在之疏漏及常 見的核能行政管制實務缺失,進而提出改進建議。此外, 本計畫亦介紹日、法、德等國家具代表性的核能訴訟案 例,說明此等訴訟中所涉法律爭點、法律規定和法院判 決見解。期透過我國法制和司法實務見解,以及他國司 法實務上處理核電爭議事件之經驗,回饋監理機關檢討 原子能法制及管制措施,提升核安監理行政品質。 **關鍵詞:**原子能法、核能訴訟、核能政策、原子能委員 會,行政法院。

### Abstract

This project collects Taiwan's nuclear energy lawsuits and petitions over the years, and analyzes the legal disputes involved and the opinions of the administrative courts. We summarize and review the possible omissions in the current Atomic Energy Law and other relevant regulations and the common lack of nuclear energy administrative control practices, and then propose legislation and supervision improvement suggestions. In addition, this project also introduces representative nuclear energy litigation cases in Japan, France, and Germany, and explains the legal issues, legal regulations and court judgments involved in these litigations. It is hoped that Taiwan's legislative, judicial and administrative authorities can learn from the experience of other countries in dealing with nuclear power legal disputes, consider whether the nuclear energy-related laws and administrative supervision measures are perfect, and prepare for possible nuclear energy litigation in the future. Keywords: Atomic Energy Law, Nuclear Energy Litigation,

Nuclear Energy Policy, Atomic Energy Council, Administrative Court

# I. 前言

我國自 1970 年代推動興建核電廠以來,涉及原子 能法和相關法律的處罰和許可之爭訟案件數量雖然不 多,但因這些案件大多與核電廠之安全監理和民眾權益 保障有關,而且亦涉及主管機關(原能會)行政作為之 適法性與適當性問題,值得深入研究之處。本計畫即擬 從回顧和研析我國至今曾發生的原子能法律訴訟爭議, 探討我國行政法院對此類爭議問題的法律見解,並檢討 核能行政管制實務的問題,期能提昇主管機關管制行政 之品質。

其次,國外核能訴訟案例非常豐富,有些法律議題 與我國核能政策和核電廠管制所遭遇到的問題相近,很 值得借鏡他國的法律和司法實務經驗去進行比較法制 研析,故本計畫亦以國外核能訴訟研析與核能法制比較 作為研究重點,將介紹國外常見之重要原能法律爭議問 題,並選擇經典訴訟案例進行判決簡介與評析,提出符 合國際趨勢、公共利益和權利保障的法律意見,供主管 機關參考。

### II. 主要內容

### 壹、我國核能訴訟研析

我國原子能安全主管機關-行政院原子能委員會 (以下簡稱原能會),就安全管制業務面而言,主要負 責國內核能電廠、核子設施及輻射作業場所的安全監督。 主管法律包括有「原子能法」、「核子損害賠償法」、 「核子反應器設施管制法」、「核離輻射防護法」、「核 子事故緊急應變法」、「低放射性廢棄物最終處置設施 場址設置條例」和「放射性物料管理法」等法規。

由於核電產業具有技術與資本密集度高和產業集 中度高的特性,加上我國核電產業並未朝私有化發展, 向來僅有台灣電力公司一家提供核能發電,因此原能會 的管制對象相對單純,不若其他產業主管機關管制對象 與業務複雜許多。

經本計畫搜尋司法院裁判書系統結果顯示,至今累 積與原子能相關法律的行政訴訟案件數量約莫40餘件, 爭訟案件類型為:(1)台電核電廠相關爭議有四案, 其中核二廠2案、核四廠2案;(2)台電放射性廢棄 物處置爭議則有中期貯存1案、最終處置7案;(3) 輻射屋、輻射鋼筋、游離輻射議題有6案;(4)環境 影響評估爭議1案;(5)公民投票法相關爭議5案。 除卻公投法案件,本計畫通盤檢視前述爭訟案件,

完整介紹前述各類爭訟案件之案件事實、訴訟爭點和法 院判決理由,經深入研析後,得出幾項常見的原能法律 爭點如下:

(1)訴訟當事人適格問題,例如環團或位處核災應變 區範圍內外之居民得否提起訴訟?

(2)原能會所為處分適法與否、有無判斷餘地的問題, 例如同意核電廠大修後重新啟動之審查處分有無違法 判斷?

(3)原能會裁罰核電廠未依規定辦理變更設計作業之處分是否適法?

(4) 低放射性廢棄物最終處置設施之選址爭議問題。

在「台電核二廠一號機大修計畫聲請撤銷同意准予 備查」之爭訟案件中,主要論及針對距核子反應器多少 距離之居民,始具有提起撤銷訴訟或續行確認訴訟之原 告適格的問題,雖我國行政法院對此見解不盡相同,但 參酌國外法院判決,從放寬至 50 公里,甚至最遠可至 400 公里內之居民得有訴訟權能的角度來看,以目前我 國公告的核災急應變區僅從 5 公里延伸至 8 公里範圍, 實屬不足。故本計畫建議,考量我國民情、地理環境及 氟候條件等因素,主管機關可思考修定擴大核子事故緊 急應變法施行細則所訂之緊急應變計畫區或相關規定。

其次,從台電低放射性廢棄物最終處置場址計畫書 修正案之訴訟案件中可知,不同法律之間的競合關係和 各階段主管機關之權責區分關係等問題應再釐清。故本 計畫建議主管機關 1.應釐清物管法與低放處置條例間 是否完全為「普通法」及「特別法」之關係之問題;2. 釐清有關低放射性廢棄物最終處置場址選定程序中,於 物管法、低放處置條例中,於各階段主管機關之職責? 例如:行政院、原能會、經濟部、地方政府、台電公司 等之關係。3.釐清物管法及低放處置條例中,有關台電 提出低放射性廢棄物最終處置計畫中,何者為原能會得 以核定、決定或管轄之部分。

另外在「低放射性廢棄物最終處置計畫書時程規劃 裁罰案」之訴訟案中,有關台電所訂最終處置計畫中各 階段實施時程,若非可歸於已之因素而無法進行的情形 下,主管機關可否予以處罰的問題,本計畫建議主管機 關於審查計畫實施情形時,仍應考慮業者實施可能性, 和若違反義務時可歸責性的問題,以免違反行政罰法之 規定。

### 貳、日本核能訴訟研析

在2011 年福島震災後,日本出現眾多之原子能訴 訟爭議案件,引發法界關注。但其實早在2011 年之前, 日本即有眾多具有代表性之法院案例,頗值參考。本計 畫參考國際知名原子能法學期刊《核能法學報》 (Nuclear Law Bulletin)中所介紹之日本原能訴訟案例 15 件,從中精選出數則對台灣原能法有重大意義和啟 示的司法判決進行研析,提供我國司法、行政和法學界 參考。

本計畫所蒐集的這15件原能訴訟案件,大體上分 成四大類型,分別是:

(1)與核電廠興建、營運許可及安全審查有關的訴訟 案件6件

(2)刑事訴訟2件:日本茨城縣東海村 JCO 核燃料處 理工廠臨界事故刑事判決和日本東京電力公司(TEPCO) 前高級主管因職業疏忽發生核災導致福島縣居民傷亡 刑事判決。

(3)民事訴訟4件:仙台核電廠及高濱核電廠附近居 民訴請法院發佈禁止電廠重啟與運轉之禁令訴訟;地方 團體訴請廣島法院禁止伊方核電廠運行之訴訟;女川核 電廠居民請求禁止事前同意重啟核電廠訴訟案;水戶地 方法院因疏散計畫不當而禁止東海第二核電廠運行訴 訟案。

(4)核災事故後國家賠償訴訟3件:福島核災事故後 民眾向政府提起國家賠償訴訟,前橋、千葉、福島等三 地地方法院判決;名古屋地方法院關於國家賠償的判決 (2019年);仙台高等法院關於國家賠償的判決(2020年)。

本研究分析前述日本核電訴訟判決,可歸納出相關 重點如下:

1. 世界重大核災事件對日本核電訴訟之影響

雖然日本早在三哩島事件之前,就已經有核 電訴訟。但在1979年三哩島之後,眾多核電訴訟 之提起,似乎都與這些核災所引發之關切有關。而 往往這些核災所引發之擔憂,也會成為居民或原 告主張之內容,而要求政府或法院加以回應。如, 因1986年車諾比爾事故,引發高等法院針對1990 福島二號電廠一號機安全審查案。而造成日本核 電爭訟案件數量大爆發,則以2011年東日本大地 震所引發之福島事故爭議有關。

2. 核電訴訟從曠日廢時到加速審理?

早期核電訴訟,歷時甚久,如伊方和福島的法 律糾紛從提起訴訟到最高法院作出裁決,分別歷 時 19 年和 17 年。但近期針對福島核災後的國 賠爭議,似乎僅於十年左右的時間,最高法院就做 出判決。

 2011 福島事故影響訴訟類型:從行政、轉民事、 國賠訴訟之趨勢

2011 年福島事故,可以說是日本民眾在核電 訴訟所採取途徑之重大轉捩點。在 2011 年之前, 普遍均以行政訴訟方式,挑戰政府對核電商轉之 各種許可(興建許可、安全審查、事故後重新運轉、 機組擴建許可)但在這些案件中,法院原則上均尊 重政府核能管制機關之專業判斷,而駁回原告居 民之請求。甚至,難得在志賀核電廠案,地方法院 質疑,政府耐震係數之法規,反應爐的建築結構低 估了可能造成的地震損害,但仍沒有裁定其暫停 營運。

但在福島事故後,民眾居民採取民事訴訟與 國賠訴訟雙管齊下的策略下,大有斬獲。原告民眾 對不准重啟之假處分,部份可順利得到法院之准 許。當然在審理過程中,也往往一波三折,各法院 立場並不統一,代表性案例可以伊方電廠重啟案 為例,法庭攻防相當精采。而法院在是否准許假處 分過程,其實並非單純以原告主張為準,而是也會 具體審視是否符合不准重啟或暫時停止運轉之假 處分要件,如,女川案,並沒有獲准頒發假處分, 主要的原因在於,法院會具體檢視原告所主張之 具體危險是否存在。

國賠案件上,也相較於過去行政許可爭訟,原 告民眾能夠有斬獲,難得呈現出勝多於敗的局面。 如,截至 2021 年 3 月,即福島事故十年後,已 有 18 起關於國家責任的司法判決的賠償訴訟: 其中 10 起案件法院認為東電公司和國家都有責 任支付賠償,而其餘 8 起案件法院作出免除事故 責任的判決。

#### 4. 當事人適格之擴充

在行政訴訟過程,最常引發爭議者,亦即對當 事人適格的議題,即到底居住在離核電廠多少範 圍內之居民有提起訴訟之資格。早期似乎傾向在 程序上允許住民提告,而透過實質審查駁回。但在 1990 年仙台高等法院則訂出 50 公里半徑內之條 件,並駁回非居住在此半徑內之原告之請求。而最 高法院在 1992 年則做出指標性裁定,允許居住在 離半徑 58 公里居民之當事人適格。2011 年福島事 故後,似乎法院在審理過程,就較少特別處理當事 人適格之議題。

### **参、法國核能訴訟研析**

核能既為法國最重要的能源來源,卻因為核能設施 興建許可、核能安全維護與放射性廢物處理等事項,非 常複雜且具政治上爭議性,因此,常常成為行政訴訟上 的爭訟客體。法國最高行政訴訟管轄機關:平政院,就 此類高度專業性的原子能訴訟,遂採中度的審查密度模 式,以求取得法治上的平衡。以下就核能設施興建許可 審查、核能安全維護和放射性廢料處理為:

1. 核能設施興建許可審查

核能設施的興建許可訴訟中,平政院認為其 興建許可的合法性要素,可以區分為三類:環境性、 經濟性與事前徵收補償。

(1) 環境性:

核能設施的興建要符合事前的環境影響評估 程序,尤其是傷害環境的負面影響的預估。踐行 「公共調查程序」(l'enquête publique)便是研究環境 的負面影響。若是上述調查程序中,沒有實際去考 量到環境影響因素,則出現法定程序的違反,興建 許可應予撤銷。

(2) 經濟性:

平政院在 1996 年 2 月 26 日 Carnet 市核電廠 興建案中,上訴人主張法國的經濟環境已經改變, 基本現有的能源生產已經超過平常消費,考量不 同能源的價值與環境成本,應該要撤銷工業暨外 貿部長的興建許可。該院認為平衡能源消費與有 使用能源的考量之處,不只是內部消費,亦需及於 出口。從相關資料上無法得出能源需求轉變、可能 的環境損害,而必須要撤銷原許可。

(3) 事前徵收補償:

興建核電廠採取「公共徵收」(la expropriation publique)時,必須在政府公告興建核電廠的「律令」 (le décret)之時起算5年內,完成全部的補償,以 保護原土地所有權人的利益。

2. 核能安全維護

確保核能安全是核能訟訟中常見的攻防議題。 法國的核能安全法制,法律用語上,已經從核能 「安全」(la securité)轉換成核能「確保」(la sûreté), 兩者的不同之處在於,應該考慮核能作用的內在 危險性。既然核能作用的內在危險性要列入考慮, 逐漸出現核安秩序概念,主要是事前不但預防核 能設施的營運時,發生核安危險,並且要有輻射防 護的規定。平政院曾於審查手機的電信基地臺的 建照時,要求建照發給機關必須要遵守環境憲章 中「預防原則」(le principle de précaution)的預防損 害環境的法定義務。法國學說上援引此判決,利 用「舉輕明重」的法理,推論「核能設施」 (l'Installation nucléaire de base)的「建照」(le permit de construire)合法性認定時,其建照亦要配合「地 方都市計畫」(le plan Local d'Urbanisme, PLU),同 時要遵守國家都計法規與環境憲章中「預防原則」。

預防原則不是要求政府必須採用「未卜先知」 或「回到未來」的核安科技,而是依「當時的科學 與技術」,無論在籌劃、興建、營運、除役、放射 性廢料儲存與處理,都有共通原則,以防止與限制 危險的發生。同時,建照的發給須考慮到該公司的 技術與財務能力,可以應付未來的營運。簡言之, 核安項目也要納入財務能力,而不能純技術考量。

3. 放射性廢料處理

在2014年法國電力公司擬於東部地區的Ain 省興建「活化廢料處理與儲存設施」訴訟案中,該 設施是否違反當地Saint-Vulbas市公告的地方都 市計畫規則第Ux1條中「禁止占用與利用不連接 與不必然涉及核電廠活動的土地」,其中涉及所謂 「不連接與不必然」的概念,平政院認為在目的解 釋下,「不連接與不必然」,不可能限制只有核能 活動,而是亦可以擴大到附屬活動(accessoire),例 如本案中所指增設/或擴充暫時性活化廢料處理 與儲存設施,故本案法國電力公司於舊廠原址興 建/或擴充廢料活化處理與儲存設施的作法並不違 法。

另外,在2009年法國政府興建 Flamanville 核 電廠訴訟案中,平政院認定政府已經先後舉辦公 共調查程序與公共辯論程序---舉辦者是公共辯論 委員會---,給予足夠的公共討論的空間與時期,利 害關係人可以參與能源政策、環境保護和興建新 反應爐的觀點交換;而且就未來的放射性廢料對 於環境與健康的危險部分,在其環境影響評估研 究中,對於危險部分,有足夠仔細地的說明,同時, 提出封閉、評估與管理廢料(的方式),可以限制其 危險,故本案政府同意法國電力公司興建 Flamanville 核電廠並無違法之虞。

# III. 結論

有鑑於台灣民眾權利意識高漲,而且對核能存廢議 題看法兩極化,故未來無論核電是存或廢,勢將引起諸 多法律攻防與討論。本計畫採系統性、全面性地深入研 析我國原子能法律訴訟案件與法院見解,期提昇行政機 關依法行政的質量。另一方面,則考慮到核電安全和監 理的複雜性,預先設想不同情況下可能會引發之訴訟爭 議,擬透過比較法研究,研析相關利害關係人能否具有

起訴的當事人適格與訴訟利益,確認其訴訟要件的適法 性,以及援引日、法、德等外國之立法例與法院判決, 進一步形塑我國各類涉及核能訴訟案件的可行審判標 準,讓原能會能提早應對未來可能發生的相關訴訟並提 出訴訟因應策略。

# 參考文獻

### 中文文獻

- 1. 期刊論文
- [1]陳春生,放射性廢棄物最終處置與非核家園,台 灣本土法學雜誌,第53期,2003年12月。
- [2]陳信安,德國核能發電廠除役法制初探,如沐法 之春風-陳春生教授榮退論文集,頁 810-873, 元照出版,2020年12月。
- [3] 賴字松,核能安全管制法制中地方自治團體參與 之正當性—以日本核能安全協定為中心,如沐法 之春風— 陳春生教授榮退論文集,頁 874-899, 元照出版,2020年12月。
- 〔4〕紀和均,從民主治理分析低放射性廢棄物最終處置設施場址設置條例的程序法制,如沐法之春風 一陳春生教授榮退論文集,頁900-926,元照出版, 2020年12月。
- [5] 曾雅真,歐洲原子能共同體及其會員國權力的競 合:以國際用過核燃料及放射性廢物管理建制為 例,政治科學論叢 62 期,頁 115-153,2014 年 12 月。
- [6] 黃之棟,談「核」容易?:從烏坵選址看我國當前低放射性廢棄物最終處置問題,國立臺灣科技 大學人文社會學報 10 卷 1 期,頁 45-66,2014 年 3 月。
- [7] 陳潁峰,地方問責與核能安全治理:以新北市核 能安全監督委員會為例,民主與治理 4卷2期, 頁 109-150,2017年08月。
- [8] 蔡瑄庭,低放射性廢棄物最終處置設施場址設置 條例適用疑義之簡析,臺北大學法學論叢 80 期, 頁 79-116,2011 年。
- [9] 王鼎棫,有願才有力一日本「脫原發辯護團」針 對高濱核能發電停止運轉假處分之聲明翻譯文, 網址:bit.ly/3IwSA3M
- 2. 研究計畫
- [1] 高仁川、陳信安、張惠東,研析核電廠除役所涉 法制基礎之比較研究,行政院原子能委員會委託 研究,107年12月。
- [2] 湯京平、蔡瑄庭、范玫芳,低放射性廢棄物最終 處置設施候選場址地方公投之研究,國立政治大 學地方政府研究中心,行政院研究發展考核委員 會補助委託研究,98年12月。
- 3. 學位論文
- 〔1〕張裕芷。「日本核電訴訟法律判斷基準之探討」。 碩士論文,國立高雄大學財經法律學系碩士班, 2016。
- 〔2〕 黄則鳴,臺灣核廢料政策之論述分析—2011 年至

2016年,臺灣大學公共事務研究所碩士學位論文, 2017年。

- 〔3〕黃伊平,判斷餘地與司法審查密度之研究-以核 能訴訟為中心,台北大學法律學系碩士論文, 2015年。
- 〔4〕洪立齊,論多階段行政程序-以放射性廢棄物最終處置程序為中心。臺北大學法律學系一般生組 碩士學位論文,2015。
- 〔5〕高宇彦,公民投票的理論與實際—以「低放射性 廢棄物最終處置設施場址設置條例」為例。中原 大學財經法律研究所學位論文,2013年。
- 4. 專書
- [1] 台灣能源法學會/行政院原子能委員會,核能法 體系(一)核能安全管制與核子損害賠償法制, 新學林出版,2014年。
- [2]陳春生,原子能法領域之階段化行政程序,核能利用與法之規制,元照,1995年11月。

外文文獻

- [1] Roller, Die verfassungsrechtliche Bewertung des Atomausstiegs 2011, ZUR 2017, S.277ff.
- [2] Burgi, Nach dem Atomausstiegsurteil des BVerfG: Veränderte Maßstäbe für Gesetzgebung und Verwaltungsvollzug im Atomrecht?, NVwZ 2019, S.585ff.
- [3] Mann/Hundertmark, Das neue Strahlenschutzgesetz und seine Schnittstellen zum Umwelt-, Bau- und Katastrophenschutzrecht, NVwZ 2019, S.825ff.
- [4] Akimoto, D. (2020). Japan as a 'Nuclear-Bombed State': The Genocidal Nature of Nuclear Violence. In Japan's Nuclear Identity and Its Implications for Nuclear Abolition (pp. 11-42). Palgrave Macmillan, Singapore.
- [5] Fujigaki, Y. (2019). Lessons from Fukushima for Responsible Innovation: How to Construct a New Relationship Between Science and Society?. In Innovation beyond technology (pp. 223-239). Springer, Singapore.
- [6] Matsui, S. (2017). T-Rex, Jurassic Park and Nuclear Power: Nuclear Power Plants and the Courts after the Fukushima Nuclear Accident. Wm. & Mary Envtl. L. & Policy Rev., 42, 145.
- [7] Schreurs, M. A. (2018). Climate change politics in Japan in the aftermath of the Fukushima nuclear crisis: The United States and Canada. In National Pathways to Low Carbon Emission Economies (pp. 97-113). Routledge.
- [8] Yun, S. W., Ryu, J. S., & Kim, Y. J. (2018). Restarting of Nuclear Power Plants and Strengthening Safety in Japan.

追尋與地方共存的低放射廢棄物處置之道:以德日低放射廢棄物處置管制法制與

# 實踐為考察

# Seeking Ways for Low-level Radioactive Waste Disposal to Coexists with Local Environment: An Inspection on the Germany and Japan's Low-level Radioactive Waste Legal Regime and Practice

計畫編號:MOST 111-NU-E-005-002-NU 計畫主持人:陳信安 e-mail:hsinganchen@nchu.edu.tw 計畫共同主持人:羅承宗 計畫參與人員:李宛真、陳佳欣、陳明皙、郭廷毅、黃加錢、 楊子嫻

執行單位:國立中興大學法律學系

# 摘要

本研究計畫將全面探究並釐清我國現行關於低放 射性廢棄物之管制法制是否有規範不足、缺漏,或是衝 突而不利於最終處置目標之達成。另外,在比較法部分, 本研究計畫欲就德國及日本最終處置管制法制之基本 理念與運作模式、重要之規範內容,以及其之所以能或 可能成功設置最終處置場之關鍵因素加以分析並說明, 同時並以此為基礎,除嘗試就我國現行之管制法制提出 相關之立法或修法建議,以供主管機關或相關單位修法 或政策研擬與推行時之參考外,並應有助於主管機關釐 清在現行法制下導致難以完成最終處置場址選址之原 因,並協助其探尋可能之解決途徑。

**關鍵詞:**放射性廢棄物、放射性廢棄物最終處置設施、 場址、德國場址選擇法

### Abstract

This research project aims to thoroughly investigate and clarify whether the laws and regulations, under Taiwan's current Low-level Radioactive Waste legal regime, have inadequacies, omissions as well as conflicts that are disadvantageous to reaching final disposal goal. In addition, in the section of comparative laws, the research project aims to analyze and explain, based on Germany and Japan's final disposal control legal regimes, the fundamental concept, operation model, important laws and regulations as well as the key factors which will, or may, lead to the success of establishing the final disposal sites. Furthermore, on the basis of the aforementioned sections, apart from trying to put forward the suggestions of legislation or law amendments for Taiwan's current control legal regime in order to provide references to authorities or related agencies when it comes to amending law or policymaking, it would also assist authorities in clarifying why current legal regime fails to accomplish the selection of final disposal site, as well as assist in finding possible solutions.

**Keywords**: Low-level Radioactive Waste, Radioactive Waste Final Disposal Facility, Final Disposal Site, German Repository Site Selection Act

# I. 前言

我國截至目前為止尚未有低放射性廢棄物最終處 置設施之設置經驗,加上在最終處置之管制法制,尤其 是最終處置設施之選址方面或因低放射性廢棄物最終 處置設施場址設置條例(以下稱低放場址條例)所生地 方性公民投票無法如期進行,以及主管機關、主辦機關, 以及選址作業者之權責分配等問題而無法順利推行。由 於第一核能發電場及第二核能發電廠已經開始或即將 開始進行除役程序,所產生之低放射性廢棄物恐無法再 以暫時存放於核能發電廠內之方式加以處理,而有儘速 完成最終處置設施設置之需求;也因此,本研究報告認 為乃有借鏡他國最終處置管制經驗之必要。基此,本研 究報告乃以德國及日本法制為比較研究之對象。

之所以選擇德國作為比較研究對象,係因為該國於 2013 年制定簡稱為「場址選擇法 (Standortauswahlgesetz)」之「高放射性廢棄物最終處 置設施設置場址找尋及選擇法 (Gesetz zur Suche und Auswahl eines Standortes für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle)」,期望藉由該法所形構之強 化公眾參與,且以學術為基礎(wissenschaftsbasiert)之 透明(transparent)、具自我審查(selbsthinterfragend) 及學習性 (lernend) 之場址選擇程序之進行,以選定對 於高放射性廢棄物之最終處置係具有最佳安全性 (bestmögliche Sicherheit) 之最終處置設施場址。雖然 德國目前仍在持續地進行該等場址選擇程序中,但不論 是該法之規範內容及所形構而成之場址選擇程序,乃至 於官方相關資料及學理討論,均已有相當豐碩之成果, 實值得參考。而在日本方面,日本目前唯一的低放射性 廢棄物處置場:日本青森縣六個所村(六ヶ所村/ろっか しょむら, Rokkaisho mura) 處置場對於放射性廢棄物

之最終處置模式,同樣亦有相當之參考價值。

### II. 主要內容

在德國法制方面,目前德國並未有針對高放射性廢 棄物所設置之最終處置設施。也因此,為重新進行高放 射性廢棄物最終處置設施場址之選址作業,德國聯邦眾 議會乃於2013年制定場址選擇法(以下簡稱選址法), 期望藉由該法所形構之強化公眾參與,且以學術為基礎 之透明、具自我審查及學習性之場址選擇程序之進行, 以選定對於高放射性廢棄物之最終處置係具有最佳安 全性之最終處置設施場址。

顧名思義,德國選址法係以高放射性廢棄物最終處 置設施設置場址之找尋程序為其規範對象,至於後續最 終處 置設施之許可、設置、營運,乃至於其除役等事項, 則非該法之規範範圍。如進一步觀察選址法第1條各項 規定之規範內容,可知其除具有針對最終處置設施之設 置所為之實體要求外,同時亦含有對於場址找尋所為之 程序面要求。而作為整體場址選擇程序至為重要之引導 動機,係應予實現之最高安全性之確保,以及為使場址 選擇任務之履行能獲致最大化之正當性所應進行之各 類極富挑戰性之參與形式。除此之外,德國聯邦立法者 亦意識到整體場址選擇程序之進行,乃至於最後就場址 所作成之決定,將會對於未來世代產生一定程度之影響, 甚或造成衝擊,從而要求應注意因此所生世代正義 (Generationsgerechtigkeit)之問題,並確立國家應負清 除責任(Entsorgungsverantwortung),以及決定應具所謂 可逆性(Reversibilität)等原则。

至於在組織方面,依選址法第3條第1項規定,作 為開發案主體而肩負進行場址選擇程序任務者,為原子 能法第9條之1第3項第2句第2分句規定所定以私 法形式所組成,並以德國聯邦作為其唯一股東 (alleiniger Gesellschafter)之第三人,即2016年7月 時所設立之聯邦最終處置公司。但除場址選擇程序之進 行及場址之找尋外,聯邦最終處置公司在後續原子能法 之許可程序中,則係作為相關許可之申請人,並進而負 責最終處置設施之規劃、設置,以及營運。如聚焦於 場址選擇程序之進行,則依選址法第3條第1項規定, 聯邦最終處置公司在進行場址選擇程序之過程中,尤其 (insbesondere)應履行之任務,包括:調查局部區域 (Teilgebiete)、就場址地區(Standortregionen)之選擇 與應進行探勘之場址擬定(erarbeiten)建議(Vorschläge)、 擬定探勘計畫(Erkundungsprogramme)及審查標準

(Prüfkriterien)、進行地面(übertägig)與地下(untertägig) 探勘(Erkundung)、進行各類初步安全調查(vorläufige Sicherheitsuntersuchungen),以及就最終處置設施之設 置場址,向聯邦核能清除安全局提出建議。此外,聯邦 最終處置公司同時亦為於場址選擇程序中所進行之公 眾參與程序之參與者。

再者,對於場址選擇程序之進行亦扮演重要角色者, 為聯邦核能清除安全局。如就選址法關於該局於場址選 擇程序中所應履行之任務規定以觀,可知其在場址選擇 程序中係作為管制及協調機關(Regulierungs- und Koordinierungsbehörde)而為相關任務之履行,亦即對 探勘計畫及審查標準作成確定(Festlegung)、就開發案 主體所提之建議進行審查,並對之擬定附具理由之推薦 (Empfehlungen)、依據原子能法規定監控(überwachen) 場址選擇程序之進行、依選址法規定作成裁決 (Bescheid),以確定該等規定所定各期別之場址選擇 程序已依選址法所定之要求及標準進行,且由開發案主 體所提出之選擇建議亦與該等要求及標準相符、進行策 略性環境評估(strategische Umweltprüfungen),以及依 選址法規定應進行終局性之場址比較,並就場址提出建 議。此外,該局並作為參與機關(Beteiligungsbehörde), 而在場址選擇程序中扮演公眾參與主體之角色,負責組 織各類公眾參與形式。

德國聯邦立法者認為,欲對放射性廢棄物進行具最 佳安全性之最終處置,關鍵在於獲致廣泛之社會共識 (breiter gesellschaftlicher Konsens)。也因此,其所設定 公眾在整體場址選擇程序中所應扮演之角色,乃不同於 過往因國家各類基礎建設開發案而受有影響者,毋寧應 轉變為積極、主動地參與程序之進行,甚至在某些部分 係作為程序之共同形構者,一同形構程序之具體內涵。 從而,公眾參與本身並非程序進行所欲達成之最終目的, 而是有助於前述程序面要求之落實,以及達成選址法最 為核心之目標,即找尋具最佳安全性之最終處置設施設 置場址。而在將整體場址選擇程序形構為具參與性之程 序時,德國聯邦立法者一方面考量德國過往找尋最終處 置設施址所生之衝突情形、相關議題之錯綜複雜程度, 以及可預期漫長之程序進行期間等因素,而於選址法第 5條規定中,就公眾參與程序之基本原則予以明定。另 一方面,對於公眾參與之形式,其除於選址法第7條規 定中就德國傳統計畫法制所常見之公眾參與形式,亦即 意見陳述程序及商議期日予以明定外,並於第9條至第 11 條等規定中另行創設全新的,經制度化 (institutionalisiert)的公眾參與形式,即局部區域會議、 地區會議,以及地區委員會專業會議;除此之外,並於 選址法第8條規定中創設國民監察委員會,監看整體場 址選擇程序之進行 。

選址法規範脈絡下之公眾,概念範圍很明顯地係較 廣,而泛指整體德國居民而言;在某些情況下,甚至並 包括鄰近之他國居民在內。而此等廣義的公眾概念,亦 與整體場址選擇程序對於德國內國所生之重要意義相 符。只是,即便認為選址法本身係如此理解公眾概念, 並不表示其所定之各類公眾參與形式均應開放所有德 國居民參與;相反地,在該法第8條至第11條等關於 各類公眾參與形式之規定中,均進一步明定參與者之範 圍,甚至是人數上限。也因此,上述以整體德國居民為 其內涵之公眾概念,應僅係指選址法第7條規定所定參 與意見陳述及商議期日等德國傳統公眾參與形式之公 眾。

針對在場址選擇程序進行過程中之公眾參與,選址 法第8條至第11條等規定乃明定有相當全面,且加以 制度化之參與架構,並藉由各種不同會議之召集,使得 與高放射性廢棄物最終處置設施之場址選擇、設置,乃 至於營運有所相關之各類不同利益及立場,有在場址選 擇程序中被代表,並進而被反映之可能。有鑑於傳統德 國以聯邦行政程序法為依據所進行之計畫確定程序,因 透明程度有限,以及只有點狀式地保障參與機會等情形 所生僅能在有限之正當性範圍內發揮其功能等問題,乃

有必要重新創設超越一般公眾參與範圍之公眾參與形 式,以期藉此而使得引導場址找尋程序之進行之各類準 則、要求能確切地獲致落實。而此,即為選址法第8條 至第11條等規定之基本立法思維。

若進一步觀察選址法第8條至第11條等規定所要 求設置之各類會議,可以發現在設置時間方面,該等規 定所要求之各類公眾參與形式乃分別在不同之場址選 擇程序期別及階段中進行設置並完結,而呈現一種交錯 之公眾參與結構。申言之,其可進一步分為伴隨整體場 址選擇程序之進行而持續設置者,以及在不同程序期別 及階段中僅暫時性設置者。前者,即為國民監察委員會 (Nationales Begleitgremium);而後者,則為局部區域 會 議 ( Fachkonferenz Teilgebiete )、 地 區 會 議 (Regionalkonferenzen),以及地區委員會專業會議 (Fachkonferenz Rat der Regionen) 。此外,如就其所 代表、反映之利益範圍而論,則又可分為全國性,即國 民監察委員會、跨地區性,即局部區域會議與地區委員 會專業會議,以及地區性,即地區委員會等三種不同公 眾參與形式。之所以由不同之時間及利益代表範圍觀點 設計各類公眾參與形式,乃是期望由不同之期別及階段 所接續組合而成,且歷時長久之整體場址選擇程序,在 面對隨著程序之進行而逐漸擴充、完善之資料狀態之情 況下,仍能有效地進行各種不同程度之審查,並使公眾 享有參與之機會。

如將焦點置於德國 2017 年版選址法所形構之整體 場址選擇程序,則德國學理認為其有如下之三大特色: 首先,不同於德國過往一般計畫行政程序,聯邦立法者 於此乃大幅度地介入整體程序之進行;申言之,其自行 作為規劃者而於不同之程序期別中,以制定聯邦法律之 形式就不同期別之場址選擇作成決定,並終結各該程序 期別之進行。再者,如前所述,整體場址選擇程序經塑 造為極具參與性之程序,公眾參與在整體程序之進行過 程中,扮演十分重要之角色。最後,則是將在整體錯綜 複雜之規劃程序進行過程中,應進一步釐清之各種不同 問題予以分門別類,使其分別在各個期別及階段中被探 究,並進而獲致解答。

如整體觀察選址法第三章,尤其是屬於該章範圍之 第 12 條至 20 條等關於場址選擇程序之進行(Ablauf des Standortauswahlverfahrens)之規定,則德國學理及 聯邦最終處置公司將由該等規定所形構而成之整體場 址選擇程序,概分為三個不同期別。首先,第一期程序 之主要目的,在於確定後續應進行地面探勘之場址地區。 其又可分為如下之二個階段:其一為調查與確定局部區 域;再者,則為調查並決定應進行地面探勘之場址地區。 而第二期別之場址選擇程序,主要係進行地面探勘 之場址提出建議。最後,第三期別之場址選擇程序,主 要在於進行地下探勘,以及決定最終處置設施之設置場 址。礙於精簡報告篇幅限制,各期別程序之細部設計, 及所可能衍生之相關問題,請參閱本研究計畫完整版之 研究報告。

至於在日本法制方面,就日本核電發電狀況以觀, 2010 年度核能發電量佔 25.1%。但是因為 2011 年福島 核災後,對於日本核能的利用產生巨大的影響。全國的 核電廠接連停止運轉,在 2012 年 5 月的時點,日本運 轉中的核電廠於睽違 42 年後,呈現完全「歸零」的狀態。於 2021 年 3 月之際,日本雖然已有 9 座核子反應 爐重新展開運轉,但相較於福島核災之前,所佔的發電 比例仍然相當不足。

日本低放射性廢棄物最終處置,大抵可從靜態的法 令規範與動態的實例兩方面加以綜合觀察。有關動態實 踐的考察,即環繞在日本唯一低放射性廢棄物處置場: 日本青森縣六所村(Rokkaisho mura)處置場為中心進 行探討。往昔台灣相關研究多對六所村處置場討論甚多, 但本研究團隊認為,倘若太著重在科學硬體探討,而輕 忽法律與社經層面的細緻考察,則難以澈底瞭解其營運 全貌。日本原燃公司將總公司所在地係直接設置於青森 縣六所村,而非僅將埋藏低放廢棄物處置場設於此處。 這點反映在日本原燃公司員工招聘活動上,也是立基於 青森縣六所村為中心,廣向外界徵才。日本原燃公司總 員工截自 2022 年 4 月 1 日統計時,共 3,142 人,其中 網站還饒富深義地特別揭露「青森縣出身」者高達1,942 人。另外,日本原燃公司雖另外在青森市裡還設有「青 森地域共生本社」、在東京都則也設有分公司,各自約 有 50 名左右的員工服務。主要任務在於與地方與中央 政府相關部會進行折衝協調、以及跟媒體業界從事聯繫 溝通等。總的來說,日本原燃公司是一間實際上與青森 縣六所村「在地共生」的企業。絕大部分 3,000 餘名員 工乃工作、生活於六所村當地,且約2/3都是青森縣出 身員工,尤其對人口約僅1萬人的六所村而言,其重要 性不言而喻。

### III. 結果與討論

依前述對德國及日本最終處置設施場址找尋及規 劃法制之比較法研究成果,本研究報告認為我國現行低 放場址條例之規範內容,不論在組織面或程序面,均有 諸多規範問題而有修正之必要。在組織面部分,低放場 址條例相關規定乃呈現主管機關與選址作業者角色定 位不明,以及選址小組之定位及與主辦機關之關係是否 妥適等問題。至於在程序面部分,首先,在關於創造知 識之程序方面,低放場址條例即有如下規範不足之情形: 其一,立法者應係將選址小組定位為具專業性之小組, 用以協助主辦機關取得或創造與場址之找尋及規劃有 所相關之知識。但有問題的是,除低放場址條例第4條 第1項規定已經就排除標準予以明確規定外,立法者並 未進一步就其他決定標準予以規範,而是有賴於選址小 組藉由程序之進行以創造或獲取所需之知識而形構相 關之決定標準。然而,在選址小組成員並未納入場址地 點居民代表,以致於可能無法兼顧知識分散之情況下, 由其所形構之相關決定標準是否能顧及場址地點之實 際情況,即有疑問。再者,立法者所形構之知識創造程 序,似乎無法有效地將各種不同的知識主體相互串連, 並使其進行有效之相互溝通,進而達到有效之知識移轉 之目的。

除上述問題外,本研究報告認為低放場址條例在公 眾參與方面,乃有嚴重規範不足之情形。對於低放場址 條例第7條第2項與第3項,以及第9條第2項與第3 項等規定所形構而成之公眾參與形式,其性質並非有效 的、對話式的,以溝通為導向的公眾參與形式,毋寧僅

是最為原始的單向意見陳述方式而已。再者,就進行該 等單向意見陳述之時點而論,不論是針對選址計畫,抑 或是針對遴選報告,均是在該等計畫及報告已經有結論 之時間點,方讓參與者有為意見陳述之可能。由於此等 公眾參與之形式僅屬單向的意見陳述方式,且時間點亦 屬過晚,以致於參與者基本上對於該等計畫或報告之結 果,已無再產生任何實質影響之可能性。而在低放場址 條例對於公眾參與形式為如此不足之規範脈絡下,連帶 將會影響選址作業者依該條例第6條第2項規定所為 之公眾溝通工作之進行及其成效。

至於由建議候選場址所在地縣(市)辦理地方性公 民投票,以作為是否進而成為候選場址之決定方式,本 研究報告認為亦有以下幾點值得探究:首先,將是否繼 續成為候選場址之決定繫諸於地方性公民投票之結果, 並非妥適之解決方式。顧名思義,地方性公民投票所欲 決定者,為地方自治團體之自治事項,且亦應僅以此為 限,然而,低放射性廢棄物最終處置設施之設置及營運, 係否完全屬於地方自治團體之自治事項,恐有疑問。雖 然場址之設置係位於地方自治團體轄境內,並將對場址 所在地居民產生一定程度之影響,但與此同時,其亦涉 及低放射性廢棄物之處置此一非單純地方性事務之處 理。不僅如此,在場址所在地居民因地方性公民投票而 享有最終否決權的情況下,即便先前藉由極為完善的公 眾參與形式,而致力於建立及提升居民對於鄰避設施之 可接受性,亦終將徒勞無功;更何況是低放場址條例所 形構之公眾參與形式及可能性,有前述諸多問題之情況 下,亦無庸期待場址所在地之縣(市)居民會在地方性 公民投票中投下贊成票。又,在面對鄰避設施所生之鄰 避現象及鄰避反應中,設施所在地居民所呈現者,主要 係因為對該等設施之不瞭解而產生與安全性、危險及風 險等面向有關之恐懼或憂慮,甚至是厭惡感,在某些情 況下,該等感受或將成為政治鬥爭之素材;凡此種種, 均不利於理性地看待場址之問題。

再者,本研究報告認為,對於地方性公民投票之辦 理,地方場址條例亦有明顯規範不足之情形,例如該條 例第 11 條各項規定均未就地方性公民投票之進行,以 及辦理機關等事項自為規定,至多僅係在該條第1項規 定中要求應於建議候選場址公告期間屆滿後 30 日內, 於該場址所在地之縣(市)辦理地方性公民投票,並不 受公民投票法第2條規定之限制。然而,何謂不受公民 投票法第2條規定之限制,解釋上亦有疑義。除此之外, 低放場址條例對於地方性公民投票之結果,僅有就經公 民投票而獲致同意後之後續程序應如何進行予以規範, 卻未對於公民投票結果為不同意之情形時之後續程序 自為規範,僅於該條例第11條第5項規定依照公民投 票法相關規定辦理。然而,應如何依照公民投票法相關 規定辦理,亦同樣生有疑義。即便建議候選場址所在地 縣(市)之地方性公民投票結果為同意,本研究報告認 為低放場址條例對於後續處理候選場址所定之程序,仍 有諸多可議之處。例如,對於同時有二個以上候選場址 之情形,主辦機關應依據何等標準決定,並未有明文。 雖然該條項之立法說明指出,係授權由主辦機關依公民 投票同意比率高低或場址特性決定何者為候選場址 , 但此或將大幅提升前述地方性公民投票不同意之可能 性,加劇原本即已甚難獲得同意之情形。另一方面,所

謂依場址特性決定,其標準為何,並不清楚。在安全性 相同,且其內涵範圍極廣之情況下,主辦機關在依據場 址特性作成決定時,尚應審酌何等因素,是否包括後續 環境影響評估(以下稱環評)之結果等,恐亦有以框架 方式予以初步規定之必要。再者,依低放場址條例第13 條及第14條等規定,應係在經地方性公民投票同意而 獲致候選場址後,方由選址作業者依環境影響評估法 (以下稱環評法)規定第二階段環評。此等程序設計似 乎忽略在地方性公民投票為同意後之候選場址,仍有可 能在後續之環評程序中獲得審查不通過之結果;如此, 除將導致前述費盡千辛萬苦方獲得同意結果的地方性 公民投票變成毫無意義之外,亦極有可能導致所有政治 攻防,或原本不同意而欲尋求所謂翻盤之縣(市)居民 將焦點移轉至環評程序之進行。

最後,相對於低放射性廢棄物最終處置設施場址之 找尋問題,已有低放場址條例予以規範,對於內含更具 危險性,半衰期更為長久之放射性同位素之高放射性廢 棄物之最終處置設施之找尋及處理,目前僅有原能會依 據放射性物料管理法第21條而訂定性質屬法規命令之 高放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則作為 規範依據。在此等規範密度下,前述關於知識創造與取 得,以及公眾參與等程序面之理論要求,當然即難以獲 致落實,甚至亦有認為,未以法律位階之法規範就此等 重要事項予以規範,實已違反法律保留原則之要求。

## IV. 結論

經由前述研究及分析結果,對於我國放射性廢棄物 最終處置設施設置場址之找尋,本研究報告建議,在目 前對於低放射性廢棄物最終處置設施設置場址之找尋 結果可說幾無社會共識,以及低放場址條例有本研究報 告前述分析所述之諸多規範問題,且該等規範問題亦幾 無藉由法解釋加以解決之情況下,正本清源之作法或可 仿效德國法制,即全部重新開始。當然,欲全部重新開 始,即需就低放場址條例進行大幅度之修正。對於該條 例之修正,在組織面及程序面應特別注意本研究報告所 分析之規範問題,尤其是如何強化公眾參與形式及功能, 即為不可迴避之問題。

另外,在組織面,本研究報告亦建議揚棄現行 區分為主管機關、主辦機關,以及選址作業者三種不同 角色之組織結構,在考量人民,尤其是場址所在地居民 對於組織之信賴問題之情況下,或可同樣考慮另設全新 之組織專門負責場址選擇程序之進行。除此之外,本研 究報告並不建議以地方性公民投票作為決定場址之方 式,取而代之者,除強化與人民,尤其是場址所在地居 民之公眾參與程度外,並應著重於如何衡平其因場址設 置所生成本與效益分攤不均所受之不利負擔情形。換言 之,單純給與所謂回饋金或獎勵金之機制或可收短期之 效,但長久而論,實非妥適之舉,毋寧應置重於如何有 效地規劃並協助場址所在地之地方長期發展,以避免, 或至少大幅地降低其因此而必須長期承受不利負擔之

最後,在高放射性廢棄物之最終處置設施設置場址 之找尋及規劃方面,本研究報告亦認為有盡可能及早完 成立法,且相關規範內容亦應留意本研究報告上述就組

織面及程序面所提供之建議,以免重蹈低放場址條例之 覆轍。 見本研究計畫完整版之研究報告)

# 參考文獻

- [1] 邱崇原、湯京平,公民投票與鄰避困境-臺灣低放射性廢棄物貯存場的選址經驗及南韓之啟示, 台灣民主季刊,11卷4期,2014年12月,頁1-36。
- 〔2〕范玫芳,誰的風險?誰的管制與檢測標準?蘭嶼 核廢料爭議之研究,傳播研究與實踐·第7卷, 第1期,2017年1月,頁107-139。
- [3] 陳春生,放射性廢棄物最終處置與非核家園,台 灣法學雜誌,53期,2003年12月,頁135-147。
- [4] 傅凱若、董祥開、黃東益,台灣核電廠除役利害 關係人溝通策略之研究,2019年,頁1-25, http://www.taspaa.org/Upload/Paper/8f9f96597120 46fd8e2d81d169e9ef68.pdf(最後瀏覽日:2023年 3月25日)。
- 〔5〕黃之棟,談「核」容易?:從烏坵選址看我國當前低放射性廢棄物最終處置問題,國立臺灣科技 大學人文社會學報,10卷1期,2014年3月, 頁45-66。
- [6] 黃東益、朱文妮,政府信任與低放射性廢棄物最終處置設施接受度:臺閩地區、臺東縣與達仁鄉之比較,中國行政評論,21卷1期,2015年3月,頁77-110。
- 〔7〕蔡瑄庭,低放射性廢棄物最終處置設施場址設置 條例適用疑義之簡析,臺北大學法學論叢,80期, 2011年12月,頁79-115。
- [8]新台灣國策智庫有限公司,台灣國家願景·我們的主張:能源政策,2011年10月。(於此僅列出中文期刊論文之參考文獻,完整之參考文獻,請

輻射誘變選育耐逆境高蛋白質及機能性大豆與根圈益生菌與高加值機能性產品開

# 發(2)

# Gamma-irradiation mutagenesis and breeding of stress-tolerant high-protein and functional soybeans and plant beneficial rhizobacteria and development of highvalue functional products (2)

計畫編號:MOST 111-NU-E-415-001-NU

計畫主持人:王紹鴻

e-mail: shwang@mail.ncyu.edu.tw

計畫共同主持人:朱紀寶、謝佳雯、蔡文錫、林志鴻、羅至佑

計畫參與人員:楊修銘、張心怡、尤迦儀、簡筱恩、唐恩丰、

呂世姻、簡嘉慧、張亨鼎、劉冠好

執行單位:國立嘉義大學微生物免疫與生物藥學系

# 摘要

延續 109 年度篩選高異黃酮金珠大豆伽瑪輻射誘 變品系,篩選強耐澇、高產量及高異黃酮 31 株優良誘 變品系種子,其粗脂肪及粗蛋白質平均值分別為 16.60%與 39.08%,以含醣基異黃酮百分比較高, genistin 最高而 glycitin 最低,其中 11 株系具有較佳生產表現潛 力。。利用輻射誘變乳酸菌 Lactobacillus plantarum RB29、 L. pentosus LPH1-2 及 L. brevis RA10 與 L. brevis RA87 水解大豆蛋白生成具有血管張力素轉化酶抑制生物活 性最佳培養組合,活性高達 53.5%;該乳酸菌配方發酵 大豆, GABA 高達 9.37 mg/L、去醣基異黃酮占總異黃 酮含量達 80.2%。由大豆根瘤分離出 Bradyrhizobium yuanmingense 親緣株並輻射誘變篩選高固氮活性菌株, 比較菌株生長特性或協助大豆植株結瘤情形,6株誘變 候選菌株與親株無差異但大豆地上部生物量低於親株; 乾旱逆境下,誘變株 CyPM1<sup>m1</sup>顯著提升植株存活時間, 誘變株 SB006-1-2<sup>m1</sup> 提升植株生長;淹水逆境下,誘變 株 CyPM1<sup>m2</sup>、SB006-1-2<sup>m2</sup> 及 SB006-1-2<sup>m3</sup> 顯著改善植 株生長。以大豆根圈土壤高溫分離4株高產 IAA 與多 •••
唐之植物促生細菌進行伽瑪射線輻射誘變,選獲超過 20株優良誘變候選株,誘變株 S135-A1-2 #10 於盆缽淹 水試驗提升側根鮮重並提高蓄水程度。本研究應用伽瑪 輻射誘變選育具抗逆境特性大豆與植物促生微生物,增 加重要農業利用價值。

**關鍵詞:**伽瑪輻射誘變、高異黃酮選育大豆、高產量選 育大豆、抗逆境選育大豆、伽瑪輻射誘變根瘤菌、伽瑪 輻射誘變根圈益生菌、伽瑪輻射誘變乳酸菌、微生物生 物轉化發酵平台

## Abstract

With waterlogging screening, 31 high-yield and highisoflavone-content mutant lines with strong waterlogging tolerance were selected after four rounds of screening within two years. Of these lines, the average weight of 100 seeds per plant was higher than 20 g, showing great potential for developing anti-waterlogging soybean lines. Their average crude fat and protein contents were 16.60% and 39.08%, respectively. Of them, eleven lines with good growth performance were selected for further bleeding. The glycoside-conjugated isoflavones were the higher than other forms. The content of genistin was the highest and glycitin was the lowest. An optimized combination of the yirradiation mutants Lactobacillus plantarum RB29, L. pentosus LPH1-2, L. brevis RA10, and L. brevis RA87 were selected to hydrolyze soybean protein, and as high as 53.5% angiotensin-converting enzyme inhibitory activity was found in product. GABA content in the ferment reached 9.37 mg/L, and the isoflavone aglycones account for 80.2% of the total flavonoids. Bradyrhizobium yuanmingense isolates from soybean root nodules were irradiated to select for higher growth-promoting activity, the mutants' growth characteristics and the nodulation activity were similar to the wild type, however, the biomass of the aboveground soybean parts was less than the wild type; the mutant CyPM1<sup>m1</sup> could increase significantly the survival time of soybean plants and the mutant SB006-1-2<sup>m1</sup> improved the plant growth under drought stress. Under waterlogging stress, CyPM1<sup>m2</sup>, SB006-1-2<sup>m2</sup>, and SB006-1-2<sup>m3</sup> significantly improved the growth of soybean plants. Four Priesta megaterium candidate isolates from rhizosphere soils showing high-polysaccharide and phosphate-solubilizing activity were subjected to yirradiation mutagenesis, and more than 20 candidates showing higher IAA and polysaccharides were selected. All the results demonstrate that  $\gamma$ -irradiation mutagenesis shows good potential in breeding anti-stress and high nutrient soybean, as well as improving microorganisms used in plant growth promotion or soybean product processing

**Keywords** :  $\gamma$ -irradiation mutagenesis, Selected high isoflavone soybeans, Selected high-yield soybeans, *Rhizobia* mutants induced by  $\gamma$ -irradiation, Plant growth-promoting rhizobacteria mutants induced by  $\gamma$ -irradiation,

Lactic acid bacteria mutants induced by  $\gamma$ -irradiation, Microbial biotransformation platform.

# I. 前言

本計畫利用伽瑪輻射誘變技術達成染色體大範圍 多元變異,係針對農糧作物抗逆境品系育種技術以及植 物生長促進微生物進行伽瑪輻射誘變之育種應用。針對 110 年篩選出高產量與高異黃酮之金珠大豆突變品系 [1],選育具有抗逆境特質株系之第五代高產量且高異 黃酮輻射誘變遺傳性狀穩定品系,並藉伽瑪輻射誘變 選高葡萄糖苷酶活性乳酸菌並優化候選菌株組合以生 物轉化生產無配醣基異黃酮之健康促進活性產品,進一 步針對大豆發酵產物中具有健康促進分子含量進行分 析[2,3]。此外,透過分離田間大豆根瘤以及根圈土壞微 生物,協助提升在大豆植株固氮與植物生長效率[4,5]。 本研究取得豐富成果,針對優良候選根瘤細菌以及耐熱 芽孢桿菌經伽瑪輻射誘變選育,已選獲具有協助植株宿 主抗逆境潛力之候選微生物菌株,開發成為大豆植物促 生長及抗逆境益生菌。

### II. 主要內容

本計畫延伸110年「輻射誘變選育耐逆境高蛋白質 及機能性大豆與根圈益生菌與高加值機能性產品開發」 計畫,以金珠大豆經輻射誘變處理後,於網室種植並篩 選生長性佳,產量高、及水解後異黃酮類含量高之優良 單株,評估至第五世代選取高功能性大豆品系,作為研 發推廣使用。同步透過篩選伽瑪輻射誘變乳酸菌作為生 物轉換菌種,開發以大豆原料適合慢性病患營養補給產 品的最適生產製程探討,藉由反應曲面分析法篩選特定 組合增加具有血管張力素轉化酶抑制活性功能性大豆 胜肽以及健康促進因子 GABA 產量,發展大豆加值技 術。同時,透過篩選由大豆根部根瘤細菌以及實驗田土 壤所分離植物促生芽孢桿菌進行伽瑪輻射誘變,以期選 育出可協助大豆植株抗逆境之根瘤菌候選誘變菌株與 植物促生活性芽孢桿菌候選誘變菌株。

本計畫已取得豐富的初步成果:(1)利用淹水逆境 篩選具有耐澇特性、高大豆種子營養成分與異黃酮、生 長表現優良之11株大豆伽瑪輻射誘變品系、(2)自4株 寄主廣效性固氮根瘤細菌篩選出具有提升大豆幼苗之 淹水脅迫抗性之伽瑪輻射誘變株、(3)自植物根圈候選 芽孢桿菌篩選出具有提升大豆幼苗淹水脅迫抗性之伽 瑪輻射誘變株、(4)由反應曲面實驗設計法篩選出優良 乳酸菌輻射誘變菌株之生物轉化組合並開發出含有大 豆活性肽及 GABA 之優良豆漿乳酸菌發酵品優化製程 等研究成果。

# III. 結果與討論

以先前計畫採收之高異黃酮且高產之大豆株系 S004-A1,經200 Gy 照射後,於田間種植1500 粒種子, 經淹水處理約3天後,在種植期間亦經歷大雨等級強降 雨,大雨後一個月收得優良者34單株;經第二次種植, 有9個株系具有較佳生產表現潛力;第三次、第四次種 植後,每單株後代選取最優良5株形成33株系,其中 有11個株系的單株重>15g且100粒種子重>20g,此 11 個株系具有較佳生產表現潛力(表 1)。

本計畫優良株系大豆樣品中粗脂肪含量介於 14.54~19.90% 間,粗蛋白質含量介於 36.17~41.32% 間。 所有分析之大豆樣品粗蛋白質含量皆高於食藥署大豆 食品營養成分資料庫公布數值 35.6% (表 2)。本計畫分 析含醣基和不含醣基主要大豆異黃酮種類 daidzin、 glycitin、genistin、daidzein、glycitein、genistein 共六種, 以含醣基含量百分較高。含醣基的異黃酮含量整體上以 genistin 為最高,而以glycitin 為最低;不含醣基異黃酮 含量,以 daidzein 最高, genistein 最低(表 3)。

表1 誘變品系 S004-A1 第四次種植優良株系組合

Code	單株種子重,g	100 粒種子重,g
MSB004-1A(L3)-1	16.8	21.3
MSB004-4A-1	18.4	21.0
MSB004-8A-1	20.7	21.7
MSB004-9A-1	18.1	21.8
MSB004-15A-1	16.6	21.9
MSB004-18A-1	15.3	22.0
MSB004-19A-1	15.8	21.3
MSB004-20A-1	16.1	21.7
MSB004-21A-1-1	16.7	22.0
MSB004-23A-1	18.9	23.0
MSB004-24A-1	15.9	23.4
S004-A1 (Parental)	09.9	19.7

表 2 大豆種子粗脂肪、蛋白質與異黃酮含量分析結果

Code	粗脂肪含量	粗蛋白質含	異黃酮含量
	% (g/100g)*	<b>量% (g/100g)</b>	百分比(%)
MSB004-1A-S	16.41	39.50	0.0941
MSB004-4A	16.92	38.67	0.1070
MSB004-8A	16.94	40.94	0.1106
MSB004-13A	16.79	38.59	0.0877
MSB004-14A	16.44	39.08	0.0762
MSB004-15A	16.98	38.90	0.1057
MSB117-A1-1-1	19.60	37.21	0.0757
MSB117-A1-1-2	17.69	37.11	0.0612
MSB117-A1-2	18.70	36.17	0.0809
MSB117-A1-5	19.90	37.52	0.0673
S004-A1	15.79	40.50	0.1068

表 3 大豆種子主要異黃酮含量百分比分析結果

Code	Daidzin	Glycitin	Genistin	Daidzein	Glycitein	Genistein
MSB004 -1A-S	0.0237	0.0086	0.0295	<u>0.0259</u>	<u>0.0049</u>	0.0014
MSB004- 4A	0.0263	0.0088	0.0376	<u>0.0273</u>	<u>0.0052</u>	<u>0.0018</u>
MSB004- 8A	0.0287	0.0083	<u>0.0378</u>	0.0277	0.0059	0.0023
MSB004- 13A	0.0206	0.0072	0.0307	0.0231	0.0047	0.0015

Duluzin oly chin demotin Duluzen diy chem demoten	Code	Daidzin Gl	ycitin Genistin Daidzeir	n Glycitein Genistein
---	------	------------	--------------------------	-----------------------

MSB004- 14A	0.0193	0.0074	0.0265	0.0162	0.0048	0.0018
MSB004- 15A	0.0261	0.0094	<u>0.0381</u>	0.0255	<u>0.0052</u>	0.0014
MSB117- A1-1-1	0.0199	0.0116	0.0248	0.0145	0.0036	0.0013
MSB117- A1-1-2	0.0149	<u>0.0109</u>	0.0196	0.0111	0.0033	0.0013
MSB117- A1-2	0.0200	<u>0.0115</u>	0.0288	0.0147	0.0041	0.0017
MSB117- A1-5	0.0159	<u>0.0115</u>	0.0223	0.0109	0.0040	<u>0.0019</u>
S004-A1	0.0335	0.0106	0.0400	0.0169	0.0041	0.0017

註:粗體字含量最高、細底線含量次高、雙底線含量第 三高。



圖 1 反應曲面分析乳酸菌發酵大豆蛋白及糖濃度對血 管張力素轉化酶抑制活性(ACE-I)之影響。

透過設計模型的效率測試,並以 Fisher 統計分析 確定關鍵參數,推估大豆蛋白含量、糖濃度以及 L. brevis RA10 添加量這三個變因對以 L. plantarum RB29、L. pentosus LPH1-2 及 L. brevis RA87 乳酸菌發 酵培養產出的 ACE-I 活性表現產生強烈影響。固定 L. brevis RA10濃度在最佳條件獲得曲面分析圖 (圖 1), 透過試驗設計可獲得最佳培養預測條件,實際進行發酵 所得發酵產物 ACE-1 活性表現為 53.5%, GABA 含量 為 93.7 mg/100 mL、去醣基異黃酮占總亦黃酮含量達 80.2%。

表 4 B. yuanmingense SB006-1-2 及 CyPM1 誘變菌株接 種大豆六週結瘤情形及對生長影響

(g)
重
8 <sup>a</sup>
8 <sup>a</sup>
8 <sup>a</sup>
4 <sup>a</sup>
5 <sup>a</sup>
2 <sup>a</sup>
7 <sup>a</sup>
9 <sup>a</sup>

註:每行標示相同字母者之間均值無顯著差異 p<0.05 (最小顯著差異性檢驗, Fisher LSD test)。 自大豆植株根瘤分離固氮細菌並篩選出 S084-3-2、 SB006-1-2、SB006-3-2及 CyPM1 等4株後選菌株,皆 與 Bradyrhizobium yuanmingense 具有高度親緣性,接種 黃豆 (SB003)、黑豆 (SB008及 SB009)、菜豆、敏豆等 豆科植物,四株皆能感染根部產生根瘤,但感染菜豆及 敏豆形成之根瘤呈現白色缺乏豆血紅素,應無固氮作用。 接種平台分析6株誘變菌株對金株大豆的結瘤能力,結 果顯示誘變菌株結瘤數及有效結瘤數與野生菌株無顯 著差異;誘變菌株與野生菌株產生之根瘤鮮重亦無顯著 差異,但 B. yuanmingense CyPM1 與 SB006-1-2 菌株間 則有顯著差異。比較4株 SB006-1-2 與2株 CyPM1 之 誘變株與其野生株差異性,顯示8株供試菌株對金珠大 豆的生長皆無顯著差異,但 CyPM1 野生菌株與誘變菌 株接種金珠大豆6週後生物量皆較接種 SB006-1-2 誘 變菌株高 (表 4)。

表5 固氮根瘤菌在乾旱或淹水逆境環境對金珠大豆植 株存活及生長之影響

	乾旱	壓力	淹水壓力		
菌株编號	存活天數	芽乾重 (g)	淹水天數	芽乾重 (g)	
CvPM1	11 5 <sup>cd</sup>	0.91 °	7	$216^{a}$	
$CyPM1^{m1}$	13.3 a	0.91 °	7	2.10 1.84 <sup>a-c</sup>	
CvPM1 <sup>m2</sup>	11.0 <sup>d</sup>	$1.12^{bc}$	7	1.04 1.97 <sup>ab</sup>	
SB006-1-2	12.5 <sup>b</sup>	0.96 °	7	0.91 <sup>d</sup>	
SB006-1- 2 <sup>m1</sup>	11.0 <sup>d</sup>	1.38 ab	7	1.41 <sup>b-d</sup>	
SB006-1- 2 <sup>m2</sup>	12.5 <sup>b</sup>	1.10 bc	7	2.01 ab	
SB006-1- 2 <sup>m3</sup>	11.3 <sup>d</sup>	0.98 °	7	1.91 <sup>ab</sup>	
SB006-1- 2 <sup>m4</sup>	11.0 <sup>d</sup>	0.93 °	7	1.71 <sup>a-c</sup>	
SDW	12.0 bc	1.08 bc	7	1.18 <sup>cd</sup>	
Control	-	1.50 <sup>a</sup>	-	1.71 <sup>a-c</sup>	

註:每行標示相同字母者之間均值無顯著差異 p<0.05 (最小顯著差異性檢驗, Fisher LSD test)。

乾旱逆境處理誘變菌株 CyPM1<sup>m1</sup>之金珠大豆植株 可存活 13.3 天,優於野生菌株且與無菌水處理組有顯 著差異,相較於其他菌株亦有顯著差異;植株生長情形 則以處理誘變菌株 SB006-1-2<sup>m1</sup>之金珠大豆植株,其乾 物重優於野生菌株之處理組,且與正常給水之對照組無 明顯差異(表5)。淹水逆境試驗淹水1週後,所有處理 組之植株仍然存活,顯示金珠大豆具有耐淹水特性。野 生菌株 CyPM1 與誘變菌株 CyPM1<sup>m2</sup>、SB006-1-2<sup>m2</sup> 及 SB006-1-2<sup>m3</sup> 等之處理組與無菌水處理組有顯著差異, 且與正常給水之對照組無顯著差異(表5)。

金珠大豆根系土壤中微生物經過熱處理後依表型 分離出 26 株具耐高溫內生孢子之 B. subtilis group 菌 株,經 Bacillus ChromoSelect agar (SIGMA) 與溶血性 分析篩除病原菌且測試汰除溶磷活性低弱菌株,再以多 醣拉絲試驗篩選出高產多醣候選菌株:S135-A1-2、 S109-A-1-2、S109-A Lg-2、S029-A1-3。四株候選菌株 經 16S rDNA 鑑定結果與 Priesta megaterium 具高度親

緣性。分析此四株菌株各 30 株伽瑪射線輻射誘變菌株 之 IAA 產量,與原始親株比較顯示,S109-A Lg-2 有 2 誘變菌株 (#9、#15)、S109-A-1-2 有 11 誘變菌株 (#6、 #7、#8、#9、#10、#12、#13、#16、#19、#25、#29)、 S135-A1-2 有 8 誘變菌株 (#4、#5、#6、#10、#25、#29)、 #29、#30) 遠比親株產生較高 IAA (圖 2)。再透過含剛 果紅染劑培養菌落周圍顏色深度分析多醣產量,圖 3 中 顯示超過 20 株產多醣能力高於原始菌株,且皆具有生 產植物生長促進因子 IAA 之能力。



圖 2 經伽瑪射線輻射誘變之 4 株根圈促生候選菌株之 IAA 分泌活性。(a) S135-A1-2 (b) S029-A1-3 (c) S109-A Lg-2 (d) S109-A-1-2。橙色: p < 0.05, 粉紅色: p < 0.01, 紅色: p < 0.005。



圖 3 伽瑪射線輻射誘變 4 株根圈促生候選菌株之剛果 紅多醣試驗。(a) S135-A1-2;(b) S029-A1-3;(c) S109-A Lg-2;(d) S109-A-1-2。

從 IAA 與多醣產量試驗中篩選出之高產量誘變菌 株與其候選野生菌株進行大豆植株淹水試驗,其中 S135-A1-2 系列誘變株中 S135-A1-2 #10 與原始野生親 株 S135-A1-2 (#WT) 之 IAA 與多醣產量具顯著差異, 後續以 S135-A1-2 #WT 與 S135-A1-2 #10 進行耐澇活 性試驗。觀察淹水試驗後之金珠大豆表徵 (圖 4),可明 顯發現 S135-A1-2 #WT 與 S135-A1-2 #10 兩者比起 未接種菌源 (Control) 大豆具有較多側根與較長植莖。



圖 4 伽瑪射線輻射誘變菌株與野生親株協助耐受淹水 壓力後金珠大豆型態。

分析量化數據發現 S135-A1-2 #WT 與誘變菌株 #10 可提升淹水植株之側根長,以散佈圖顯示並以 Student's t-test 分析側根長、鮮重與乾重,可發現 S135-A1-2 #10 輻射誘變株與親株#WT 皆可顯著增加在淹 水壓力下側根長、新鮮重與乾重,同時也可呈現 S135-A1-2 #10 較 #WT 在乾重時失重更顯著(圖 6)。



圖 6 伽瑪誘變菌株與野生親株接種金珠大豆淹水壓力 處理側根性狀分析盒鬚點狀圖。(a)側根長度;(b)側根 新鮮重量;(c)乾燥後重量。

### IV. 結論

本計畫在 110 年計劃優異成果基礎下,針對選獲之 高異黃酮且高產大豆株系 S004-A1,本期在第一年針對 金珠大豆誘變品系進行突變與育種的基礎上,進一步選 種純化工作,已獲得淹水逆境篩選具有耐澇特性大豆株 系,其中有 11 個株系的單株種子重>15 g 且 100 粒種 子重>20 g,此 11 個株系具有較佳生產表現潛力。此外, 團隊透過田口式直交法與曲面分析法,優化不同乳酸菌 組合菌株濃度及其他因子對於 GABA、去醣基異黃酮產 量以及 ACE-I 活性表現影響的關鍵因子,並篩選出優 良發酵組合配方。續以利用反應曲面實驗設計法,本計 畫已優化製成可獲得 ACE-I 活性表現可達到 53.5%, GABA 含量可達 93.7 mg/100 mL、去醣基異黃酮占總亦 黃酮含量達 80.2%的豆漿乳酸菌發酵品。

經伽瑪射線輻射誘變優秀大豆固氮根瘤菌 Bradyrhizobium yuanmingense 獲得6株誘變菌株,其表 現型與野生菌株皆無顯著差異,但對菜豆及敏豆的感染 能力,誘變菌株之間存在差異性。就乾旱、淹水及高鹽 等逆境測試,結果顯示誘變菌株 CyPM1<sup>m1</sup> 可提升金珠 大豆植株對栽培介質乾旱的耐受性;盆缽淹水處理1週 後,金珠大豆植株仍可存活,且野生菌株 CyPM1 可顯 著增加植株之乾物重;誘變菌株 CyPM1<sup>m2</sup> 與野生菌株 CyPM1 皆可提升金珠大豆幼苗對高鹽度的耐受性。此 外,針對第一年篩選之具有溶磷活性與產多醣能力之4 株與 Priestia megaterium 有高度親緣性優質菌株,經由 伽瑪射線輻射誘變後挑選穩定生長且分泌生產植物生 長促進因子 IAA 能力之候選菌株,經淹水壓力生長測 試平台測試後,確認 S135-A1-2#10 突變菌株具有提升 大豆幼苗之淹水脅迫抗性。

本計畫以 2 年期間利用淹水逆境篩選具有耐澇特

性之大豆伽瑪輻射誘變品系,更優化乳酸菌誘變菌株組 合生物轉化出具有高健康促進活性之優良豆漿發酵品, 更重要的是透過植物促生細菌篩選與誘變,篩選出具有 提升大豆幼苗淹水脅迫等逆境抗性之寄主廣效性固氮 根瘤細菌誘變株、以及植物根圈促生芽孢桿菌誘變株等 研究成果,無論在協助大豆植株因應氣候環境逆境以及 下游開發保健產品,對本國農業作出實質的重大研發貢 獻。

# 参考文獻

- [1] 王紹鴻,朱紀寶,蔡文錫,謝佳雯,& 吳進益. (2022, 26th September). 輻射誘變選育耐逆境高 蛋白質及機能性大豆與根圈益生菌與高加值機 能性產品開發. Paper presented at the 「111 年原 子能科技學術合作研究計畫成果發表會」。台北 市集思台大會議中心。
- [2] 陳星好,陳立耿,& 王紹鴻. (2022). 伽瑪輻射誘 變根黴菌合併乳酸菌共發酵大豆天貝之功能成 分分析. 嘉大農林學報, 19(1), 15-28。
- [3] 謝佳雯、戴長玉、陳天偉、歐斐生(2022)。促進 Akkermansia muciniphila 生長以及腸胃道微生物 菌群變化的植物性凝態優格及其應用。2022 年年 台灣乳酸菌協會學術研討會。輔仁大學國璽樓國 際會議廳。2022.12.23。
- [4] 楊修銘 & 林志鴻. (2022). 固氮根瘤菌之分離與 鑑定及其對大豆植物生長之影響. 植物醫學期刊, 64 (4), 221-222。
- [5] 呂世姻,陳星好,& 王紹鴻(2022)。篩選伽瑪輻 射誘變大豆根圈分離菌株之抗逆境潛力。發表於 「第二十六屆細菌學研討會」。國立陽明交通大 學博愛校區賢齊館,2022.08.25-08.27。

輻照對紅龍果果乾品質提升與保鮮之研究

# Study of Irradiation on Quality Improvement and Preservation of Dried Dragon Fruit

計畫編號:NSTC 111-NU-E-346-001-NU 計畫主持人:劉冠汝教授 e-mail:kjliu@gms.npu.edu.tw 計畫參與人員:洪瑄璟、陳沛渝、林文慧、許甯雅 執行單位:國立澎湖科技大學食品科學系

# 摘要

對於確保食品安全與提升品質而言,食品輻照是一 項成熟的技術,越來越受到食品產業的重視。本研究評 估了<sup>60</sup>Co-y 射線輻照處理對紅龍果果乾中活性化學物 質含量、抗氧化能力和感官品質的影響。結果表明,輻 照劑量越高,紅龍果果乾的乾燥速率越快,水活性(Aw) 較低,乾燥時間越短。55 ℃熱風烘箱乾燥 17.5 小時的 紅龍果果乾水萃物中總類黃酮、總多酚和維生素 C 含 量在高達2.2kGy輻照後顯著增加(分別約為6.46 mg/g、 2.96 mg/g 和 11.62 mg/100 g), 但在 5.4 kGy 照射後顯 著降低。此外,輻照處理導致 b\*值顯著降低,L\*和 a\* 值顯著升高;然而,在2.2kGy劑量之前,顏色變化很 小。2.2 kGy 組對 ABTS 和 DPPH 自由基的清除率在 5.6 mg/mL 和 56 mg/mL 時分別是 0 kGy 組的 1.05 倍和 1.26 倍, 說明輻照可以經由提高紅龍果果乾 (乾燥時間 17.5 小時)清除自由基的能力來提高其抗氧化能力。Betanin 是紅龍果果乾中甜菜紅素的主要抗氧化成分, phyllocactin 和 isobetanin 次之。從細菌計數中獲得的結 果顯示,與對照組相比,所有劑量的γ輻射都能使細菌 的數量顯著減少。與0kGy 組相比, 0.6~7.0kGy 組活 菌數分別減少 38.49%、84.63%、84.63%、84.63%和 100%,抑制能力相對增加。綜合上述結果可知,劑量 低於 5.4 kGy 的 <sup>60</sup>Co-γ 射線輻照,可以成功地用於提高 紅龍果果乾的生理活性和保存期限。

關鍵詞:輻照、紅龍果果乾、品質、抗氧化、保存期限

### Abstract

Food irradiation as an established and mature technology has gained more attention in the food industry for ensuring food safety and quality improvement. In this study, the impact of  $^{60}$ Co- $\gamma$  ray irradiation treatment on the content of active chemicals, antioxidant capacities and sensory quality in dried dragon fruit was assessed. The results showed that higher irradiation dosage led to higher drying rate, lower water activity (Aw) and shorter drying time. Total flavonoids, total polyphenols, and vitamin C content of a water extract of dragon fruit dried by hot air oven at 55 °C for 17.5 hours significantly increased after irradiation up to 2.2 kGy (about 6.46 mg/g, 2.96 mg/g and 11.62 mg/100 g, respectively), but they significantly decreased after irradiation at 5.4 kGy. Moreover, irradiation

treatment caused a significant decrease in b\* value and a significant increase in L\* and a\* values; however, changes of color were slight until the dose of 2.2 kGy. The scavenging rates of ABTS and DPPH radicals in the 2.2 kGy group were 1.05 and 1.26 times that in the 0 kGy group at 5.6 mg/mL and 56 mg/mL, demonstrating that irradiation can improve the antioxidant capacity of dried dragon fruit (drying time 17.5 h) by increasing their ability to scavenge free radicals. Betanin was the dominant antioxidant component in betalanin of dried dragon fruit, followed by phyllocactin. The results obtained from bacteria count showed that gamma irradiation in all doses significantly reduced the number of bacteria compared to control. Compared with the 0 kGy group, the count of viable bacteria in the 0.6~7.0 kGy group was reduced by 38.49 %, 84.63 %, 84.63 %, 84.63 % and 100 %, respectively, and the inhibition rose accordingly. Based on the results, the  $^{60}$ Co- $\gamma$  rav irradiation at doses below 5.4 kGv can be successfully used for improving the physiologically activities and the shelf life of the dried dragon fruit.

**Keywords** : Irradiation, Dried dragon fruit, Quality, Antioxidation, Shelf life

# I. 前言

紅龍果生性強健,具有耐風、耐鹽、耐旱和耐貧瘠 等能力強(1),極適合長期乾旱、有冬季東北季風肆虐和 土壤鹽化的澎湖種植,2020 年澎湖縣紅龍果的總產量 達 141.56 公噸(2),其用途除鮮食外,尚可作釀酒、果 汁、果凍、果醬、果醋及果乾等產品(3)。紅火龍果是一 種富含生物活性化合物的水果,包括酚類化合物、類黃 酮和甜菜红素(betacyanin),有助於水果的抗氧化能力 (4),也能預防癌症、糖尿病和心血管疾病(5)。其中甜菜 紅素亦具有清除自由基、抗癌和降低血脂等作用,甜菜 苷(betanin)與 phyllocactin 為該色素的主要成分。新鮮紅 龍果收穫後的保存期很短大約 10 天,若以加工技術開 發乾製品,如:果乾,不僅可解決因產銷失衡而造成價 格崩盤的問題,還能提供農民收益,擴展水果的利用性 與附加價值,同時增加消費者多樣化的選擇。

輻照是一種高效的冷殺菌技術,可用於提高食品安 全、延長貨架期、殺滅微生物和昆蟲,以及延緩水果的 成熟和發芽(6),目前已被50多個國家採用做為衛生和 植物檢疫的加工方法,其涵蓋範圍超過60多種產品。

輻照不會使食品具有放射性或損害食品的營養品質,也 不會引起食品味道、質地或外觀的變化(7)。近年來,國 內外學者已經對輻照在農產品的保鮮上做出了一定的 研究,但利用<sup>60</sup>Co-γ輻照紅龍果果乾,進而提高品質與 延長保鮮期的報導鮮少見聞。為探討輻照對紅龍果果乾 功能、營養及品質的影響,本研究規劃不同劑量的<sup>60</sup>Co-γ (0、0.6、2.2、3.8、5.4 和 7.0 kGy)進行輻照處理, 並比較未輻照樣品和輻照樣品之差異,如:活性成分含 量、抗氧化功能、外觀色澤、組織物性、口感風味和生 菌數含量等。藉此確定出適宜的紅龍果果乾烘乾溫度、 乾燥時間與輻照劑量,於探索輻照保鮮及優化品質的過 程中,為輻照在果乾產品之應用方面提供參考。

### II. 主要內容

本計畫以熱風乾燥結合 <sup>60</sup>Co-γ 射線輻照製作的紅 龍果果乾為研究對象,進行品質指標相關研究,如:水 分含量、外觀色澤、結構質地變化、感官品評和微生物 衛生安全,並比較不同輻照劑量、輻照前後果乾內活性 物質含量變化及抗氧化活性差異,藉此獲得節能、低成 本且高產能的加工製程,為優化紅龍果果乾乾燥工藝和 製備高品質休閒食品提供理論依據,同時解決水果貯藏 期太短而造成浪費的問題。

### (一) 紅龍果乾燥與果乾製備

新鮮紅龍果購自澎湖縣七美鄉的果農或當地市場, 將紅龍果清洗,去皮,切片,置於55℃的熱風乾燥機 中進行不同時間的乾燥處理(16、17.5、24和26小時), 過程中不定時翻面,觀測果乾的品質與外觀變化。

### (二) 輻照處理

以<sup>60</sup>Co-γ射線輻照不同時間乾燥的紅龍果果乾,參 考文獻資料(8,9)設定照射劑量,分別為0(對照組)、0.6、 2.2、3.8、5.4和7.0 kGy,每組輻照劑量做三重複。輻 照處理後的紅龍果果乾分別進行活性成分、抗氧化功能、 組織物性、感官品評和微生物含量等指標分析,評估輻 照提升果乾品質、殺菌能力及安定性的效果。紅龍果果 乾的輻照操作將委託行政院原子能委員會核能研究所 進行。

### (三) 色澤(color)分析

以色差計(Chroma meter CR-200, Minolta, Japan)測 定輻照前、後紅龍果果乾的色澤,包括明亮度(Hunter L value)、紅色度(Hunter a value)以及黃色度(Hunter b value),進行三重複測定。

# (四) 總酚含量測定

依據 Singleton 與 Rossi(1965)(10)的方法經修飾後進行。

- **檢量線**: 1.取 100 μg/mL 沒石子酸溶液配製成0、20、40、60、80、100 μg/mL 的濃度。2.各取 100 μL 加入 900 μL 去離子水。3.取 50 μL 加入 50 μL 0.5 N Folin-phenol、100 uL 20% Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>。4.以 750 nm 測定吸光值,建立檢量線。
- **樣品**: 1.取 100 μL 樣品加入 900 μL 去離子水。2. 取 50 μL 加入 50 μL 0.5 N Folin-phenol、100 μL 20 % Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>。4.以 750 nm 測定吸光值,帶入檢量線 公式計算總酚含量(mg/g)。

### (五) 類黃酮含量測定

參考 Christel(2000)的方法(11),AICl3 與類黃酮化 合物反應時可將結構上的羥基(-OH)及酮基(-C=O)結合 形成黃綠色複合物,於波長 430 nm 有最大吸光值。以 檞皮素(quercetin)為標準品作出檢量線(配製濃度:0、 0.2、0.4、0.6、0.8、1.0 mg/mL),將樣品中反應產生的 複合物所測得吸光值代入標準曲線,計算樣品總類黃酮 化合物含量,類黃酮含量越高,黃綠色複合物顏色越深。

### (六) 輻照紅龍果果乾之 Betanin 分析

梁等人(2014)(12)研究曾指出應是紅肉紅龍果含有 高量的 betanin,造成紅肉火龍果的抗氧化活性高於白 肉火龍果。基於此因為探討 <sup>60</sup>Co-γ 射線輻照對紅龍果 果乾抗氧化能力之影響,故進行 betanin 定性(量)分析。 HPLC 檢測條件: 偵測器波長,538 nm;樣品注入量, 20 μL;流動相 A:乙腈; B:0.2 %甲酸水溶液; C:甲醇; D:水;流速,1.0 mL/min; 柱溫,25°C。實驗所用管柱 型號為 mightysil RP-18GP (250x4.6 mm,5 μm,100 Å); 以 UV detector 檢測,並以 integrator 定量分析。

### (七) 果乾之物性分析

取乾燥好的紅龍果果乾置於 10 cm<sup>2</sup> 的載臺上,採 用質地物性測試儀 (Universal Testing Machine 4464 Instron, Canton, Mass, U.S.A)做質地組織分析。採直徑 2.5 mm 的測定棒,位移速率為 80 mm/min,壓縮 75 % 高度的條件下,對樣品進行兩次壓縮,即可得到力與時 間的曲線圖,再計算樣品的點聚性(cohesiveness)、硬度 (hardness)及彈性(springiness)。依此分析結果尋得製 作紅龍果果乾的最佳輻射劑量、最適乾燥時間和溫度, 降低品質受熱破壞的機會。計算公式如下: cohessiveness= Area 2/Area 1; hardness=H1(單位: KG 或 N); springiness=L2/L1

# (八) 抗氧化能力評估

由於紅肉紅龍果果實含有豐富的甜菜紅素 (betacyanin)、類黃酮、多酚類化合物,具有很好的抗氧 化效果(13),為了深入瞭解熱風乾燥法結合輻照技術是 否會破壞果乾中的活性成分,故利用 DPPH 和 ABTS 自 由基清除能力及螯合亞鐵離子之效果進行確認,提供優 化紅龍果果果乾乾燥製程的依據參考。

### (九) 總生菌數分析

以3M 快速檢測片(3M<sup>TM</sup> petrifilm<sup>TM</sup> aerobic count plates)進行總生菌數(aerobic count plate)測定。秤取紅龍 果果乾5g於鐵胃袋中加無菌水稀釋至50g(為10倍稀 釋),以鐵胃機均質後取3mL,各加1mL至檢測片上, 蓋上壓板靜置1min使培養基凝固。檢測片透明面朝上, 於37°C培養箱培養48hr後觀察菌落數,總生菌數以 log CFU/g表示。

### III. 結果與討論

#### (一) 輻照對紅龍果果乾水分含量和水活性之影響

未輻照及輻照紅龍果果乾的水分含量和水活性如 表 1 所示。結果得知,不同乾燥時間處理的紅龍果果 乾,水分含量和水活性皆隨<sup>60</sup>Co-γ 射線輻照劑量的增 加而減少,乾燥 16.0 小時的果乾水分變化(5.4 kGy,水 分含量 35.08%和水活性 0.705)又比乾燥 24.0 小時顯著。

此現象歸因於輻照引起的水水解(14)。Jan 等人也在γ射線輻照(輻照劑量 0-10 kGy)糙米斷奶食品中報導了類似的結果(15)。另一個原因是由於γ射線輻照使果乾的細胞結構受到破壞,細胞質壁出現分離,細胞組織分散,水分從內部到表層變得容易,進而促進了水分的散失。 由此可知輻照有助於果乾的乾燥,故適當輻照可縮短產 品製作時間,在節能、省成本的同時也保留了較多的營 養成分。

表1 輻照劑量與乾燥時間對紅龍果果乾水分含量和水 活性之影響

輻照劑量 (kGy)	乾燥時間 (h)	水分含量 (%)	水活性 (Aw)
0.0	16.0	38.79±2.94	0.867±0.015
0.0	24.0	$17.41{\pm}1.40$	$0.639 \pm 0.003$
0.6	16.0	37.17±1.11	$0.863 {\pm} 0.001$
0.0	24.0	$17.48 \pm 1.95$	$0.630 \pm 0.005$
2.2	16.0	35.60±0.42	$0.859 {\pm} 0.001$
2.2	24.0	17.81±1.33	$0.627 {\pm} 0.005$
2.8	16.0	36.64±0.46	$0.740 \pm 0.017$
5.8	24.0	17.35±0.43	$0.560 \pm 0.005$
5.4	16.0	35.08±1.37	$0.705 \pm 0.005$
5.4	24.0	17.37±1.15	$0.552 \pm 0.004$
7.0	16.0	34.98±0.46	$0.676 \pm 0.010$
7.0	24.0	13.49±0.75	$0.539 \pm 0.006$

紅龍果果乾的乾燥溫度:55℃。

### (二) 紅龍果果乾色澤分析

紅龍果果乾的亮度隨乾燥時間與輻照劑量增加而 提升;W.I值(白度)會隨輻照劑量的增加有上升的趨勢 (表 2)。輻照可提高果乾的 a\*值(紅色),可能是由於酚 類化合物與 betanin (3.8 kGy, 乾燥 24 h, 413.42 mM)有 較高的提取,導致具有顏色的低聚和聚合物增加,進而 提升紅龍果果乾的 a\*值(紅色)。此外,亦可能因紅龍果 果乾膜和細胞壁降解增加,導致色素釋放增加。

表 2 不同輻照劑量處理紅龍果果乾之色澤分析

輻照劑量	乾燥時間	T *	. *	1.*	<b>X</b> 7 I
(kGy)	(h)	$L^{*}$	a~	D*	W.I.
0.0	24.0	19.62±0.03	6.50±0.02	1.36±0.00	19.35±0.03
0.6	24.0	20.32±0.02	11.05±0.05	1.47±0.03	19.54±0.02
2.2	24.0	19.84±0.02	2.38±0.05	1.13±0.06	19.79±0.02
3.8	24.0	20.05±0.01	1.93±0.04	0.36±0.00	20.03±0.01
5.4	24.0	22.17±0.00	1.98±0.04	0.48±0.00	22.14±0.00
7.0	24.0	22.71±0.01	2.91±0.00	0.28±0.00	22.65±0.01

曾有研究指出葡萄經過 1500 Gy 之 γ 射線輻照處 理,可使葡萄酒具有更好的紅色,更高的顏色強度、花 青素含量和抗氧化功能(16)。當果乾經過 24 小時乾燥, 置於 3.8~7.0 kGy 劑量下輻照加工,果乾的 b\*值(黃色) 呈現下降趨勢。我們的研究與 Jo、Son、Lee 等人(2003) 之前的研究結果一致,<sup>60</sup>Co-γ射線輻照可以改善農產品 的顏色。

#### (三)總酚含量(TPC)和總類黃酮含量(TFC)

抗氧化和抗糖基化是天然酚類化合物和黄酮類最 重要的功能活性。γ 輻照對紅龍果果乾 TPC 和 TFC 的 影響見圖 1。結果表明乾燥 17.5 小時的果乾經 2.2 kGv <sup>60</sup>Co-γ 射線處理,水萃取物中的總酚含量會比未輻照組 提高 2.4 倍,相同乾燥時間及輻照條件下,水萃取物中 類黃酮類含量則增加 2.2 倍。此與 Harrison 和 Were 用 4.0 kGy 和 12.7 kGy 的 γ 射線處理來源不同的杏仁皮使 酚類含量增加的結果相類似(18)。γ射線輻照果乾使酚 類含量增加,可歸因於糖苷成分中酚類化合物的釋放, 以及較大的酚類化合物通過 γ 射線輻照降解為較小的 酚類化合物。乾燥 24.0 小時的輻照樣品總酚含量隨輻 照劑量的增大呈下降趨勢,未輻照組和 0.6~7.0 kGy 辐 照组的總酚含量相比,分别下降了 0.99%、0.67%、0.68 %、0.68%、0.92%。這種降解可能是由於自由基的產 生(19)和高劑量下過氧化酶活性增強引起 H2O2 所致 (20)。長時間乾燥加上高劑量輻照會使紅龍果果乾中的 類黃酮含量降低,推測可能類黃酮的結構受到破壞而造 成。



圖 1γ輻照劑量對紅龍果果乾總酚含量及類黃酮含量 之影響

# (四) 紅龍果果乾活性成分與抗氧化能力之相關性分析

γ 輻照劑量(0-7.0 kGy)對紅龍果果乾中維生素 C 含 量、betanin 濃度、抗氧化活性(如:清除 DPPH 自由基、 ABTS 自由基和螯合亞鐵離子等能力)的影響,及活性 成分與抗氧化功能的相關性如圖 2 和圖 3 所示。維生素 C是紅龍果中主要的水溶性維生素,具還原性對果蔬有 保護作用。圖 2 結果得知,乾燥 24.0 小時經 0.6~3.8 kGy <sup>60</sup>Co-γ 射線處理的紅龍果果乾,維生素 C 的含量會隨輻 照劑量的增加而顯著增加,順序如右:18.07 mg/100g(0 kGy) < 14.84 mg/100g (0.6 kGy) < 13.55 mg/100g (2.2 kGy) < 20.01 mg/100g (3.8 kGy)。從這些結果可以推斷, 較高的輻射劑量有利於紅龍果果乾中維生素C的釋放, 此結果可能與γ輻照劑量增加促使分解酶失活有關(21)。 當劑量高達 5.4 kGy 時維生素 C 含量下降, 推測乃因水 輻照形成的 OH 自由基或過氧化氫等次級自由基與維 生素反應所引起。低劑量輻照紅龍果果乾,其水萃物之 DPPH 自由基清除率會隨輻照劑量的增加而提高, 3.8~7.0 kGy 輻照後自由基清除率也比未輻照的果乾高 出 1.1 倍(圖 2), 說明抗氧化活性之變化與維生素 C 含

### 量有好的相關性。

紅龍果果乾甲醇萃取物之 ABTS 自由基清除實驗 中發現,清除率會隨輻照劑量的增加而提高,當輻照劑 量達 5.4 kGy 的效果最好為 61.32 % (乾燥 17.5 小時), 24 小時長時間乾燥則會障礙果乾清除 ABTS 自由基(圖 3)。果乾的螯合亞鐵離子能力會隨輻照劑量的增加而提 高。此現象可歸因於紅龍果果乾的膜和細胞壁降解增加, 釋放較多的抗氧化活性成分,導致螯合亞鐵離子的能力 提高。但乾燥 17.5 小時的紅龍果果乾,此能力卻隨輻 照劑量的增加而輕微下降,推測可能當下的輻照沒有足 夠的能量破壞果乾的膜和細胞壁,無法釋放較多的抗氧 化活性成分所致。輻照後紅龍果果乾中 betanin 的濃度 及抗氧化活性變化如圖 3 所示,當果乾以小於 5.4 kGyy 射線處理, betanin 的濃度會與輻照劑量、ABTS 自由基 清除率及螯合亞鐵離子能力呈高度線性相關,揭示了來 自紅龍果的 betanin 提取物具有很强的抗氧化活性。 Tenore 等人(2012)也報告了紅龍果中這些參數之間的 高度線性相關性。



圖 2 不同輻照劑量處理對紅龍果果乾維生素 C 含量及 DPPH 自由基清除率的影響





### (五) 輻照劑量對紅龍果果乾質地之影響

水分含量越低,果乾的質地會越硬,咀嚼性就變差。 本研究中發現未輻照樣品的硬度不僅明顯高於輻照樣 品,彈性還比輻照樣品差。此外,隨著輻照劑量的增加 (3.8~10.0 kGy),紅龍果果乾的硬度下降,彈性上升,內 聚性方面除乾燥 20 小時,3.8 kGy 輻照樣品的數值較高 外,其餘無顯著變化(表 3)。王俊和于勇(2005)表明,以

# 原子能科技學術合作研究計畫成果發表會精簡報告

2~10 kGy 劑量的 γ 射線輻照稻穀可以大幅提高膠稠度 及食用品質。由於紅龍果中含豐富的膳食纖維及果膠類 物質,施予不同劑量的 γ 射線處理,將使果實細胞受到 破壞,內部的多醣與膠類物質釋出,因而提升了紅龍果 果乾的彈性及耐嚼性,降低硬度。综上所述,適當的輻 照處理將有助於優化果乾的質地及口感。

### (六) 輻照處理對紅龍果果乾微生物數量的影響

從細菌計數中獲得的結果表明,與未輻照組相比, 所有劑量的γ射線輻照紅龍果果乾,皆能顯著減少細菌 數量。0.6~7.0 kGy 組的活菌數分別減少了 38.49%、 84.63%、84.63%和100%,抑菌作用上升的 趨勢是一致的(表 4)。根據先前的研究發現,γ射線輻照 可能會破壞微生物 DNA,使 DNA 鏈上的氫原子被γ輻 照產生的羥基自由基去除,而達到抑制或殺滅微生物的 功效。Prakash 等人(2002)報告指出 0.5 kGy 的輻照可以 大大減少切丁西紅柿的微生物數量,延長商品的保質期, 不會對感官品質產生任何不利影響。

表3 乾燥時間與輻照劑量對紅龍果果乾物性之影響

乾燥時間 (h)	輻照劑量 (kGy)	Hardness (N)	Spring (mm)	Cohesive (%)
	0.0	58.56±2.07	0.61±0.12	23.72±2.47
	3.8	49.91±1.50	0.97±0.01	28.00±0.67
20.0	5.4	54.17±3.17	0.96±0.03	24.84±3.49
	8.0	$38.23 \pm 4.40$	0.95±0.02	24.58±0.51
	10.0	35.04±4.26	0.93±0.03	25.61±1.33
	0.0	71.59±4.47	0.58±0.07	24.91±1.99
	3.8	$65.65 \pm 0.42$	$0.75 \pm 0.05$	$23.28 \pm 1.60$
24.0	5.4	$65.65 \pm 2.59$	$0.90\pm0.02$	25.17±2.17
	8.0	$60.55 \pm 4.54$	0.95±0.04	22.82±0.16
	10.0	57.31±0.96	0.95±0.03	21.19±1.79

表4 輻照劑量對紅龍果果乾生菌數之影響

乾燥時間 (h)	輻照劑量 (kGy)	總生菌數 (CFU/g)
	0.0	21.67±3.54
	0.6	13.33±0.00
24.0	2.2	3.33±0.00
24.0	3.8	3.33±0.00
	5.4	3.33±0.00
	7.0	$0.00 \pm 0.00$

### IV. 結論

綜合以上結果,以<sup>60</sup>Co-γ射線輻照可以減少製作紅 龍果果乾的乾燥時間,提升乾燥效率和營養價質,達到 省時節能又高品質的優點。輻照改變了果乾的 L\*、a\* 值和 b\*值,導致顏色發生變化,並使一些生物活性成分 有所改善,例如總酚、總類黃酮、維生素 C 和 betanin 等含量增加。由於輻照不僅減少紅龍果果乾的微生物數 量,還提升抗氧化能力與食用口感,延長商品的貯藏期, 未來可作為紅龍果加工產業應用之參考。此外,也可透 過控制輻照劑量、改進輻照技術及加熱條件,讓紅龍果

果乾品質提高,為綠色食品加工開闢新路。

# 参考文獻

- Wu, Y., Xu, J., He, Y., Shi, M., Han, X., Li, W., Zhang, X. and Wen, X. 2019. Metabolic profiling of pitaya (*Hylocereus polyrhizus*) during fruit development and maturation. Molecules 24:1114.
- 〔2〕行政院農業委員會農糧署,2021,縣市作物查詢, 農情報告資源網。
- [3] 李靚、朱涵彬、孫耀軍、李長濱、潘春梅和岳曉 禹,2020,火龍果初加工綜合利用研究,食品安 全導刊,36:141-142。
- [4] Taira, J., Tsuchida, E., Katoh, M. C., Uehara, M. and Ogi, T. 2015. Antioxidant capacity of betacyanins as radical scavengers for peroxyl radical and nitric oxide. Food Chem. 166:531-536.
- [5] Rohin, M. A. K., Abu Bakar, C. A., Ali, A. M. 2014. Isolation and characterization of oligosaccharides composition in organically grown red pitaya, white pitaya and papaya. Int. J. Pharm. Pharmaceut. Sci. 6 (S2):131-136.
- [6] Ravindran, R. and Jaiswal, A. K. 2019. Wholesomeness and safety aspects of irradiated foods. Food Chem. 285:363-368.
- [7] Eustice, R. F. Novel processing technologies: facts about irradiation and other technologies. 2020. Genetically Modified and Irradiated Food. Academic Press pp.269-286.
- [8] Maraei, R. W. and Elsawy, K. M. 2017. Chemical quality and nutrient composition of strawberry fruits treated by γ-irradiation. J. Radiat. Res. Appl. Sci. 10:80-87.
- [9] Sunil, N. C., Singh, J., Chandra, S., Chaudhary, V. and Kumar, V. 2018. "Non-thermal techniques: Application in food industries" A review. J. Pharmacogn. Phytochem. 7:1507-1518.
- [10] Singleton, V. L. and Rossi, J. A. 1965. Colorimetry of total phenolics with phosphomolybdic-phosphotungstic acid reagent. Am. J. Enol. Vitic. 16:144-158.
- [11] Christel, Q. D., Bernard, G., Jacques, V., Thierry, D., Claude, B., Michel, L., Micheline, C., Jean-Cluade, C., Francois, B. and Francis, T. 2000. Phenolic compounds and antioxidant activities of buckwheat (Fagopyrum esculentum Moench) hulls and flour. J. Ethnopharmacol. 72:35-42.
- [12] 鄭建瑋、謝宗哲、何殷熾、張毓芳、翁悅容和 梁致遠,2014,乙醇萃取白肉火龍果及紅肉火 龍果的清除自由基能力比較,MC-Transaction on Biotechnology 6:e1。
- Tenore, G. C. Novellino, E. and Basile, A. 2012. Nutraceutical potential and antioxidant benefits of red pitaya (*Hylocereus polyrhizus*) extratcts. J. Funct. Foods 4:129-136.
- [14] Bashir, K. and Aggarwal, M. 2017. Physicochemical, thermal and functional properties of gamma irradiated chickpea starch. Int. J. Biol. Macromol. 97: 426-433.
- [15] Jan, A., Sood, M., Younis, K. and Islam, R. U. 2020. Brown rice based weaning food treated with

gamma irradiation evaluated during storage. Radiat. Phys. Chem. 177:109158.

- Gupta, S., Padole, R., Variyar, P. S. and Sharma,
   A. 2015. Influence of radiation processing of grapes on wine quality. Radiat. Phys. Chem. 111:46-56.
- Jo, C., Son, J. H., Lee, H. J., & Byun, M. W. 2003. Irradiation application for color removal and purification of green tea leaves extract. Radiat. Phys. Chem. 66:179-184.
- [18] Harrison, K. and Were, L. M. 2007. Effect of gamma irradiation on total phenolic content yield and antioxidant capacity of Almond skin extracts. Food Chem. 102:932-937.
- [19] Dixit, A. k., Bhatnagar, D., Kumar, V., Rani, A., Manjaya, J. G. and Bhatnagar, D. 2010. Gamma irradiation induced enhancement in isoflavones, total phenol, anthocyanin and antioxidant properties of varying seed coat colored soybean. J. Agric. Food Chem. 58:4298-4302.
- [20] Latorre, M. E., Narvaiz, P., Rojas, A. M. and Gerschenson, L. N. 2010. Effects of gamma irradiation on biochemical and physicochemical parameters of fresh cut red beet (Beta vulgaris L. var. conditive) root. J. Food Eng. 98:178-191.
- [21] dos Santos, A. L., Morais, R. A., da Silva Soares, C. M., Vellano, P. O., de Souza Martins, G. A. Damiani, C. and Souza, A. R. M. 2022. Effect of gamma irradiation on the physicochemical, functional and bioactive properties of red pitaya (*Hylocereus costaricensis*) bark flour. Radiat. Phys. Chem. 199:110371.
- 〔22〕 王俊和於勇,2005,<sup>60</sup>Co-γ 輻照預處理對晚粳 稻乾燥特性及加工、食用品質的影響研究,中 國農業工程學會2005學術年會論文集,22-26。
- [23] Prakash, A., Manley, J., DeCosta, S., Caporaso, F. and Foley, D. 2002. The effects of gamma irradiation on the microbiological, physical and sensory qualities of diced tomatoes. Radiat. Phys. Chem. 63:387-390.