行政院原子能委員會核能研究所

委託研究計畫研究報告

核設施除役石墨廢棄物特性研究 The Study of Characterization of Irradiated Graphite Waste for Nuclear Reactor Decommissioning

計畫編號:109A003

受委託機關(構):國立清華大學

參與研究人員:李志浩(計畫主持人)、鄭仁傑、阿什溫、羅維禮

聯絡電話:03-5715131#34281

E-mail address : chlee@mx.nthu.edu.tw

研究期程:中華民國 109 年 5 月至 109 年 12 月

研究經費:新臺幣 67.9 萬元

核研所聯絡人員:陳家貫

報告日期:109年 12 月 11 日

目錄

中文摘	要1
ABSTH	RACT
壹、	計畫緣起與目的4
貳、	研究方法與過程6
- 、	快中子數量之估算6
ニ、	清華核反應器中子照射及特性量測
三、	除役石墨廢棄物管理建議8
參、	研究結果11
- `	密度量測11
二、	表面形貌量测11
三、	雜質量測11
(-	-) SEM/EDS 表面成分測定11
(=	-) XPS 量測14
(三	2) 場發射高解析電子微探儀(EPMA)16
(四	1) 中子活化分析量测18
(五	E)BET 量測24
(六	5) XRD 微結構量測26
(セ	:) 感應耦合電漿質譜分析儀(ICP-MS)27
(入	、)元素分析儀

(九) 二	次離子質譜儀(SIMS)檢測	.30
(十)同	步輻射光源斷層掃描(X-ray CT)	.33
(+-)	碳 14 的活度評估	. 39
(+=)	快中子衰减評估	.46
(十三)	照射過石墨機械之探討	.46
(十四)	石墨與其他材料化學性質之探討	.49
四、 照	射過後石墨之處理	.50
肆、 主要	·發現與結論	.51
參考文獻		.52
附錄一 節錡	8: 低放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則	.56
附錄二 節錡	彩: 輻射源豁免管制標準	.60

圖目錄

圖	一、核反應器石墨廢棄物管理可能之方案	9
圖	二、氣冷式反應器石墨產生之放射性核種衰變圖	11
圖	三、掃描式電子顯微鏡顯示不同放大倍率之影像	11
圖	四、石墨樣品 SEM/EDS 表面成分測定(一)	13
圖	五、石墨樣品 SEM/EDS 表面成分測定(二)	13
圖	六、石墨表面 C 元素之 XPS	14
圖	七、石墨表面 O 元素之 XPS 元素	15
圖	八、石墨表面 N 元素之 XPS 元素	15
圖	九、擬合後的 XPS 數據	16
圖	十、石墨表面 EPMA 測定 C, N, O 含量掃描譜線圖	18
圖	十一、石墨樣品中子活化分析加馬射線能譜	19
圖	十二、經兩個月後石墨中子活化分析加馬射線能譜	22
圖	十三、BET 實驗所得之比表面積數據	24
圖	十四、BET 實驗所得孔徑大小分布	25
圖	十五、石墨樣品 XRD 量測數據圖	26
圖	十六、元素分析儀所測石墨氮、碳元素所占重量比例	29
圖	十七、元素分析儀所測石墨氧元素所占重量比例	29
圖	十八、石墨樣品在 1800 nm 深度下的縱深分析	31
圖	十九、石墨樣品(一)在180 nm 深度下的縱深分析	32

i

圖	二十、石墨樣品(二)在 180 nm 深度下的縱深分析	32
圖	二十一、石墨之3維影像重組	34
圖	二十二、石墨樣品2維影像重組	34
圖	二十三、取自同石墨樣品不同位置之2維影像	35
圖	二十四、國際期刊[20]所做之石墨樣品3維影像重組	35
圖	二十五、國外團隊[20]所做石墨孔隙 X-RAY 斷層影像	36

表目錄

表	一、石墨反應器照射後,石墨中主要之放射性核種	9
表	二、石墨樣品 EPMA 表面元素量測數據	17
表	三、石墨樣品中子活化分析短半衰期核種	20
表	四、石墨樣品中子活化分析短半衰期及部分長半衰期核種	23
表	五(a)、孔隙率估算數據(光滑表面)	38
表	五(b)、孔隙率估算數據(粗糙表面,假設表面積為兩倍)	38
表	六、 ¹⁴ C計算所用之各項數據	45

中文摘要

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 後的特性變化,對於除役工作的拆解、貯存及廢棄物管理的影響。本 研究利用核能研究所台灣研究用反應器(TRR)建廠時的石墨備品-核 能級石墨為分析樣品,進行相關的物理、化學等特性研究。報告中先 針對核設施除役石墨廢棄物特性之文獻進行研析及彙整,並將 TRR 未受照射石墨樣品進行分切處理後,進行相關實驗量測,將量測結果 與文獻數據作比對。經評估石墨材料經快中子輻射損傷所產生之機 械性質改變,結果並未明顯變化,其儲能效應(Winger Energy)之風 險極低,對於除役所需之拆除等施工安全未有重大影響。而石墨與金 屬及金屬氧化物化學反應之性質也相當穩定,因此在廢料儲存上亦 無顯著的安全疑慮。

此外,TRR 石墨樣品中附著於石墨表面之碳-14 產生量必需加 以考慮以進行適當的廢棄物管理。由實驗及理論計算數據指出,外層 遠離爐心之石墨反射體之放射性活度可能低於 7.2 x 10⁴ Bq/cm³,而 接近爐心之石墨反射體其碳-14 活度則可能較高。參照國際經驗,建 議石墨表面的除汙方式,可以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。本研究為未受 TRR 中子照射之石墨樣品 初步評估結果,更精確之佐證數據,仍待未來以 TRR 內之石墨進行 取樣分析。

Abstract

During the decommission of graphite reflector in a research reactor, the safety issue of residual radiative isotopes produced after a long time operation is of importance, especially the long half-life isotopes such as ¹⁴C. The generation of those radioactive isotopes and mechanic strength changed after irradiation is crucial factors for dismantling, storage and disposal of radwaste. In this work, a nuclear grade graphite was studied to understand the physics and chemistry properties and to compare with literatures published. Regarding to the mechanic strength of irradiation graphite as reflector in TRR reactor, it's mechanic property does not change much and it should not be a concerned problem in the decommission of the graphite materials. Besides, the study result also shows that the irradiated graphite in the TRR reactor produced significant amount of ¹⁴C on the surface of graphite. According to experimental and theoretical calculation data, the activity of the graphite reflector which is far from the TRR reactor core maybe lower than 7.2 x 10^4 Bq/cm³; the graphite reflector close to the core will be higher than this value. According to some international experience, the attached ¹⁴C on the graphite surface can be removed by mediate temperature oxidization and converted into CO₂ and collected. This study is the preliminary evaluation result of unirradiated graphite samples in TRR. More accurate data still needs sampling and analysis of irradiated graphite of TRR in the future.

壹、 計畫緣起與目的

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 C-14 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。因此,本計畫利用 TRR 建廠時的石墨備品-核能級石墨為分析樣品,進行相關的物理、 化學等特性研究。

本計畫已完成相關核設施除役石墨廢棄物特性之文獻研析及彙整,並將核能研究所提供之 TRR 未受照射石墨樣品進行分切處理後, 進行相關實驗量測,並將量測結果與文獻數據作比較,其量測結果與 初步評估,詳述於報告第參章。

石墨材料在中子反應器中,扮演爐心結構、中子緩速體或反射體 等功能。此類型反應器在進行除役時,必須特別考量石墨經反應器內 中子照射後所產生的各種效應:(一)放射性核種產生(如長半衰期核 種¹⁴C 等);(二)碳原子經中子轟擊後,產生錯位而形成的儲能效應 (Wigner Energy);(三)石墨經中子撞擊後,晶格結構改變所產生的幾 何尺度及應力變化等。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。因此,國 際上使用石墨材料反應器的國家,皆投入相當的人力及經費,對於放 射性石墨(Irradiated Graphite)的各種特性進行研究。在我國核能研究 所 TRR 爐體內也有反射體及熱中子室以石墨作為結構主體,因此, TRR 進入除役階段,也必須對放射性石墨的管理有周全的探討與規 劃。本計畫利用 TRR 建廠時的石墨備品-核能級石墨(Nuclear Grade Graphite)為分析樣品,進行相關的物理、化學、機械及模擬中子照射

等特性研究,此研究成果能對 TRR 石墨拆除作業及未來石墨廢棄物 管理的決策,提供重要的參考依據。考慮的安全議題,最後對 TRR 除役階段的石墨管理做完整的規劃,並透過國際研究趨勢,掌握未來 除役完成後石墨廢棄物的處理及處置的策略。尤其是石墨除役階段, 必須依據其石墨之結構,以及殘餘輻射汙染物量,其除役計畫(圖一), 將有重大不同。

由於 TRR 之石墨僅作為反射體,不像其他國家之反應器做為爐 心之緩和劑,本計畫已完成相關核設施除役石墨廢棄物特性之文獻 研析及彙整,並將核能研究所提供之 TRR 未受照射石墨樣品進行分 切處理後,其量測結果顯示 TRR 石墨中僅有碳-14 產生之量必需加 以考慮。若能夠以低溫氧化法移除石墨孔隙表面之碳-14 成為二氧化 碳吸收移除後,石墨廢棄物應改可以由 C 類改成 A 類-而遠離爐心的 熱柱部分應該可以低於管制豁免量。石墨材料經 TRR 快中子輻射損 傷所產生之機械性質改變,並未有重大之影響。而其結構,因為重水 緩和後快中子通量較低,石墨受快中子輻射損傷或造成 Winger 能量 儲存之風險極低,也可以減輕除役上切割等施工安全之考量。

貳、 研究方法與過程

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],主要之輻射核種為³H, ¹⁴C,³⁶Cl,⁶⁰Co...等,其來源如表一。為了探究主要核種被活化之來 源,需要測量石墨中所含之⁶Li,¹⁴N,¹⁷O,³⁵Cl 以及⁵⁹Co之含量,並 且了解熱中子照射之歷史,以便求取放射核種之數量。至於石墨結 構是否受到快中子之損傷或儲存 Winger energy,則必須了解快中 子照射之歷史,其步驟如下:

一、快中子數量之估算

估算爐心內快中子經重水緩速作用後,到達反射體石墨的快 中子的數量。研究 TRR 原子爐照設置石墨後之通量及能量,以了 解可能活化之量。計算時收集 TRR 原子爐操作之歷史,石墨反射 體之結構,快中子與熱中子之通量,石墨表面冷卻氣體等資料,主 要參考資料為 INER 內部報告。

二、清華核反應器中子照射及特性量測

對未照射核能級石墨(Virgin Graphite)進行成分分析、雜質含量、物理、化學、機械及表面等特性量測(Graphite Characterization)。 雜質含量,幾樣可能造成長半衰期活化之核種例如鋰,氮,鈷,氯...等 元素之含量,加以釐清。分析方法採用中子活化分析法,於清華大 學原子爐中進行,並以 HPGe 偵檢器做定量測量。不易活化的元素 將以 ICP-MS(以及 SIMS)測量其微量元素。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[3],

必須加以瞭解,以便了解表面經¹⁴N(n,p)¹⁴C 核反應後,座落於石 墨表面之¹⁴C 較易以低溫氧化移除之數量。我們將以 SEM 觀察石 墨二維形貌及孔洞大小,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;其表面積大小 以 BET 法量測之。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 X-ray tomography 也是需要的。再者石墨表面經常有不同之有機物吸附 氮氯之能力也有所不同,我們也應用同步輻射之 XPS 測量其表面 之性質[4]。反射體是由多塊石墨粘合而成, Binder 之材料特性與 雜質,也許不同,也需一併量測。雜質種類有許多種,值得注意的有 ³⁵Cl 經 ³⁵Cl(n, γ), ³⁶Cl, (33 barn)反應後產生半衰期為 30 萬年之 ³⁶Cl。 長期儲存期間,溶於地下水中而到人類生活圈,亦不無可能[5]。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[6],如圖二。我們依據特性分析所得到的資訊,引用相關 文獻資料,推估中子照射後,石墨內部所可能產生的放射性核種、 結構變化及儲能含量等。圖二中,³H,¹⁴C,⁴¹Ca,⁶³Ni 均被視為重要 的殘餘核種,但是³H,¹⁴C,⁶³Ni 為純粹的貝他發射核種,無加馬射 線可以測量,⁴¹Ca為純電子捕獲之核種,亦無加馬射線可以測量, ³H 之主要來源為⁶Li(n,α)³H。因此,量測 Li, Ni, Ca 之穩定同位素 之含量為其要點。因上述穩定同位素之含量極低,僅能採用 SIMS 測量之。¹⁴C 之來源為最大宗,也是放射性廢料決定性之放射源。

三、除役石墨廢棄物管理建議

為了除役過程安全順利,我們將建議如何除役之程序更為恰當,並 建議除役前,品管相關程序該如何因應。例如:如何運用液態閃爍 體測量³H,¹⁴C 貝他衰變核種,其前處理步驟將如何?由於質譜儀測 量並未檢出⁶Li,EPMA 並未檢出 Ca,而³H 之半衰期只有 12.3 年, 只發射貝他粒子,於材料中擴散也快,³H 放射性物質之豁免管制量很 高(1E+6 Bq/g)建議可以不用考慮。¹⁴C 是最重要的,只發射貝他粒 子,最可靠之方法應該採用同位素訂年之設備及方法,於液態閃爍 偵檢器測量之。除役時,必須建立定量測量方法,僅移除石墨表面 之¹⁴C 之步驟,形成 CO₂ 另外加以處置,以減少核廢料之方法,此 一方法與石墨表面之各項吸附物有直接關係[4],以加溫氧化去除表 面之方法將濃縮表面之¹⁴C 形成 B 或 C 級之放射性廢料,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。 表 一、石墨反應器照射後,石墨中主要之放射性核種。[1]

Nuclides	Half life (y)	Reactions
³ H	12.3	⁶ Li(n, \alpha) ³ H
¹⁴ C	5730	$^{14}N(n,p)^{14}C$
¹⁴ C	5730	$^{13}C(n,\gamma)^{14}C$
¹⁴ C	5730	$^{17}O(n,\alpha)^{14}C$
³⁶ Cl	301300	$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$
⁶⁰ Co	5.27	⁵⁹ Co(n,γ) ⁶⁰ Co



圖 一、核反應器石墨廢棄物管理可能之方案。[2]



圖 二、氣冷式反應器石墨產生之放射性核種衰變圖。[6]

参、 研究結果

一、密度量測

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/cm³。此一密度與 TRR 石墨來源 CANATOM Ltd.製造規 格(1.75 g/cm³)十分接近。但與石墨之理論密度比較(2.26 g/cm³) 約有 22%之孔隙度。

二、表面形貌量测

以掃描式電子顯微鏡(SEM) 觀察形貌上,多為破碎之石墨 塊組成。圖三 顯示不同放大倍率之影像。



SEM results

圖 三、掃描式電子顯微鏡顯示不同放大倍率之影像。

三、雜質量測

(一)SEM/EDS 表面成分测定

以掃描式電子顯微鏡 (15 keV) 之 EDS 測量石墨表面(約 2 nm)成分測定如圖四與圖五。不同區域數微米範圍之螢光分析其結果顯示石墨表面約有 65%之氮含量,此一結果與文獻[4]相似。 表面氮含量對於形成¹⁴C 有極大的影響,但 EDS 之光譜解析度 不佳,於低能量部分可能有其他干擾,為求得更準確之雜質資訊, 輔以 XPS, EPMA, SIMS,以及元素分析儀進行量測。其結果顯 示 EDS 之螢光能量解析力不佳 (200 eV),含氮量不可靠。EPMA 之螢光能量解析力為 20 eV 左右,可以去除其他汙染元素之干 擾。但是要注意的是 EDS, XPS, EPMA 以及 SIMS 測量時試樣 必須於高真空之環境之下,因此平常我們石墨表面若有室溫下 物理吸附之氮氧分子將於真空中脫附,所得之結果為吸附力較 強之氧氮原子。因此,我們並針對 N 以及 O 原子之含量以塊材 之元素分析儀測量之,其結果如下:

Element	Weight%	Atomic%	
сĸ	31.39	34.80	
NK	68.61	65.20	
Totals	100.00		



Spectrum 1 0 1 2 3 4 5 6 7 8 9 Full Scale 1910 cts Cursor: 0.000 key EntCa

圖 四、石墨樣品 SEM/EDS 表面成分測定(一)。

Element	Weight%	Atomic%	
CK	31.63	35.05	
NK	68.37	64.95	
Totals	100.00		





圖 五、石墨樣品 SEM/EDS 表面成分測定(二)。

(二) XPS 量測

XPS 量測於同步輻射 BL24 光束線以 1150 eV 入射光量測 石墨表面 C, O 及 N 元素,测量 10 mm 不同位置試樣。入射光 點大小約 0.1 mm, XPS 結果如圖六~圖八。其中含氧量並不多, 但是石墨表面 N 幾乎無法量測。此一結果與 SEM/EDS 表面成 分測定完全不同,石墨表面吸附之氮含量極少。以碳而言,其束 縛能峰值為 sp², 於高能量部分有一尾巴之強度可以 sp³, C-H, C-O 等鍵結擬合,如圖 9 所示,最有可能的為 C-O 鍵結,其他鍵 結如 C-H 應該很小。氧原子的 XPS 部分,能峰以 C-O 鍵結最 為適合。



圖 六、石墨表面 C 元素之 XPS。



圖 七、石墨表面 O 元素之 XPS 元素。



圖 八、石墨表面 N 元素之 XPS 元素。



圖 九 擬合後的 XPS 數據。

(三) 場發射高解析電子微探儀(EPMA)

運用螢光能量解析度(小於 100 micrometer)較佳之場發射電 子微探儀(EPMA, 15 keV 高解度 wavelength dispersive mode,小 於 20 eV) 觀察試樣上不同位置之雜質,可以發現主要有 C, O, N, P 等元素, N 仍可以偵測到,但是並不多,而且分布不均匀。 圖十為試樣表面 C, N, O 含量之掃描譜線圖,橫跨數 mm,得知 O 含量約為 N 之 8 倍,表面氮含量約為 1/1000。

Atomic ratio %							
No.	Р	С	N	0	Total		
1	0.0008	99.9992	0	0	100		
2	0	99.8144	0	0.1856	100		
3	0	99.7814	0	0.2186	100		
4	0	100	0	0	100		
5	0.001	99.999	0	0	100		
6	0.0002	99.9316	0	0.0682	100		
7	0	99.8879	0	0.1121	100		
8	0.0006	99.911	0.0143	0.0741	100		
9	0.0017	99.9383	0.0599	0	100		
10	0	99.8157	0.1649	0.0194	100		

表 二、 石墨樣品 EPMA 表面元素量測數據。

Description: In 10 different positions, the distance of each point is larger than 100 μ m in a 1 cm x 1 cm x 1 cm graphite sample. There are 3 point that may contain 0.02%~0.16% of N, it may cause by the uniformity of the graphite sample.



圖 十、石墨表面 EPMA 測定 C, N, O 含量掃描譜線圖。

(四)中子活化分析量测

石墨反射體,經手工鋼鋸,鋸下5mmx5mmx5mm 方塊 置於清華水池式反應器中VT-3照射30min。中子通量經金膜校 驗,為2x10¹² neutron/(s cm²),Cd ratio 為6.0。活化後之核種以 純鍺偵檢器量(HPGe)測量之。其中子活化之加馬射線能譜如圖 十。HPGe 量測分為兩個部分,分別為長半期與短半衰期之量測, 每次約三個星期量測。較短半衰期核種測量之結果如表三,其所 發現之核種與 Adel Fisli 等人[7]有許多核種相同。半衰期較短 的核種於 TRR 冷卻 25 年後,已經不用考慮,重要的是其相關 的同位素是否存在,是否將於長時間爐心照射下產生半衰期較 長的核種,仍必須加以考量。從這些短半衰期核種來評估是否有 其同位素將會有長半衰期核種產生,其答案是否定的。另一部分 常半衰期核種的量測,目前所得之結果與相關文獻[7]及文獻[16] 不完全相同,可見石墨來源不同,微量元素也完全不同,圖 12 為經兩個月冷卻後重新量測之加馬射線能譜。



圖 十一、石墨樣品中子活化分析加馬射線能譜。

Radionuclide	Half-life			γ-ray	(keV)		
Sm-153	46.27 h	46.68	69.5	173.48			
Au-198	64.68 h	80.45	1087.34				
La-140	40.27 h	131.16	243.23	266.99	329.34	433.34	
		487.97	753.22	817.47	869.28	921.43	1599.94
Lu-177*	6.734 d	208.79					
Np-239*	56.56 h	228.47	277.94				
Xe-135*	9.63 h	250.03					
Kr-88*	2.84 h	362.33					
As-76	25.87 h	560.15	564.09	575.53			
Sr-91*	9.63 h	620.78	927.16				
W-187	23.72 h	687.18					
I-134*	52.5 m	848.55					
Ta-182*	114.4 d	1122.88					
Cu-64	12.7 h	1346					
Na-24	14.96 h	1371.45					
Kr-87*	76.3 m	1391.91					
K-42*	12.36 h	1527.78					

表 三、石墨樣品中子活化分析短半衰期核種。

中子活化分析所得之短半衰期之同位素,星號*標示為和

Reference[7]相比有差異性之結果,為本樣品才具有的活化核種。有些核種似乎是核分裂產物來源不明。短半衰期核種對於廢料處理不具有意義。測量短半衰期核種之結果有助於了解石墨中可能存在之雜質並可以預測可能長半衰期之可能。



圖 十二 經兩個月後石墨中子活化分析加馬射線能譜。

Radionuclide	Half-life	Concentration	TBq/m ³	廢	法規豁
		1/cm ³		棄	免活度
				物	***
				類	
				別	
				**	
Ba-133	10.51 y	1.72*10 ¹⁶	1.48*10 ⁻²¹	А	可豁免
Ba-131	11.5 d	7.6*10 ¹⁰	1.34*10 ⁻²³⁹	A	可豁免
Co-60	5.27 y	1.12*10 ¹⁶	7*10 ⁻³	А	可豁免
Cs-134*	2.6 y	1.7*10 ¹⁴	1.21*10 ⁻⁶	А	可豁免
Eu-152	13.54 y	7.92*10 ¹²	1.3*10 ⁻²	А	可豁免
Nd-147*	11 d	1.19*10 ¹¹	1.94*10 ⁻²⁵¹	А	可豁免
Na-22	2.6 y	3.19*10 ¹⁷	4.14*10 ⁻⁵	А	可豁免
Ru-103*	39.26 d	3.38*10 ¹⁸	2.5*10 ⁻⁶⁷	A	可豁免
Sc-46	83.79 d	1.68*10 ¹⁴	4*10 ⁻³⁴	А	可豁免
Sb-124*	60.2 d	8.51*10 ¹³	1*10 ⁻⁵³	А	可豁免
Tb-160*	72.3 d	6.87*10 ¹²	1.25*10 ⁻⁴⁶	А	可豁免

表 四、石墨樣品中子活化分析短半衰期及部分長半衰期核種。

經兩個月時長冷卻後之中子活化分析結果,其所量測之短半衰期及 部分長半衰期之同位素,星號*標示和 Reference[7]相比有差異性之 結果,為本樣品才具有的活化核種,廢棄物類別請參考附錄一**, 豁免量活度請參考附錄二***。

(五)BET 量測

石墨樣品經24小時烘烤去除吸附氣體之後,利用氮氣吸附量測 BET 之結果如圖十三,其吸附曲線有明顯的遲滯迴圈 (hysteresis loop)。氣體在固體上的吸附行為導因於氣體分子與固體表面間的凡 得瓦爾作用力。在足夠低的溫度下 (通常在氣體正常沸點或低於此 溫度),氣體分子的吸附行為可利用一個兩相模型加以分析。所謂的 兩相即為氣體的巨觀相 (bulk phase)與吸附相(adsorbed phase),此吸 附相可視為吸附分子的液相狀態,而吸附分子的多寡可由吸附重量 或被吸附體積表示之,孔洞依據其不同的大小可區分三個範圍,分 別是大孔(Macroporous)孔徑大小為>50 nm、中孔(Mesoporous)孔徑 大小為 2-50 nm 之間以及微孔(Microporous)孔徑大小為<2 nm。



圖 十三 BET 實驗所得之比表面積數據。



圖 十四 BET 實驗所得孔徑大小分布

氟體吸附曲線的型態會隨著材料的孔徑結構、成分、溫度及吸附分 子種類而有所不同,對於奈米孔洞材料的孔洞鑑定分析而言,正確 分析吸附分子之孔洞凝結現象是非常重要的,而此現象反應在吸脫 附曲線中的遲滯迴圈。遲滯迴圈的出現,除了與奈米孔洞材料之孔 洞特性有關外,亦與其他因素如吸附分子之巨觀臨界溫度與吸附分 析溫度等有直接的關係。從實驗結果圖十三可知,兩次測量得氟體 吸附曲線,計算可得石墨 BET 表面積區域可為 1.05 ± 0.44 m²/g 及 0.80 ± 0.31 m²/g,本樣品之表面並不大,可能的原因為石墨粉 末密度較高。從圖十四的孔徑大小分布可了解到石墨樣品的平均孔 徑約為 12.4-13.5 nm,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。

(六) XRD 微結構量測

XRD之結果顯示如圖十五,從繞射峰可得石墨(001)之晶格 間距為 0.6728 nm,與一般的核子用石墨吻合。其(002)峰之半高 全寬(FWHM)為 0.112°,可推出晶粒大小約為 64.8 nm。其主要 成分為石墨,但是其中顯示(101)繞射峰變得非的寬,而(100)峰 仍然夠窄,可以顯示有些石墨結構為層狀結構,層與層之間並未 有磊晶之關係,而各層之間可以旋轉,亦可能成為較無序之結構 混在其間[8,9]。



圖 十五、石墨樣品 XRD 量測數據圖。

(七) 感應耦合電漿質譜分析儀(ICP-MS)

感應耦合電漿質譜分析儀法以適當的霧化器(Nebulizer)將待 測樣品溶液先經霧化處理後,再配合載送氣流輸送,將所形成含待 分析元素之氣膠(Aerosol)輸送至電漿 (Plasma)中,樣品受熱後, 經由一系列去溶劑、分解、原子化/離子化...等反應,將位於電漿 中之待分析元素形成單價正離子,再透過真空界面傳輸進入質譜儀 (Mass spectrometer),繼而配合質量分析器 (Mass-analyzer)將 各特定質荷比(Mass-to-charge ratios)之離子予以解析後,再以 電子倍增器加以檢測,來進行多元素之定性及定量工作,而本次實 驗所欲求之碳、氮、氧及氯離子(陰離子),其訊號可探測結果會與 自然背景訊號以及所使用之溶劑之原子相互重合在一起,而本實驗 所測元素以 ICP-MS 會無法得知其確切濃度,故以第(八)及第(九) 小節所介紹之儀器進行相關的分析。

(八)元素分析儀

元素分析儀之靈敏度可達 0.1%, 無論是天然或是合成的物質, 有機化合物及有機金屬化合物都佔了極大的比例, 而碳、氫、氮、 硫的重量百分比對於確認有機及有機金屬化合物之結構是不可或缺 的重要資料, 經由元素分析可以得知樣品中所含碳、氫、氮、硫各 元素的重量百分比, 故元素分析儀成為化學成份分析上不可或缺的

工具[18]。儀器運作時,由氦氣作為攜帶氣体(carrier gas),燃燒管 內裝填氧化鎢助燃劑,定溫1150℃,還原管中裝填銅粉及銀棉,定 溫 850℃, 樣品分析前先置入 tin-boat(錫船)或 tin-capsule(錫囊)中, 以微量天枰秤重約3至5mg 並摺成小方塊,依序排入自動取樣盤中 等待分析。儀器運作時皆透過電腦由原廠提供之軟體控制,所秤得 的重量也經由連線方式讀入,分析樣品前會先以標準樣品校正儀 器,再依序分析樣品。分析流程一開始,樣品先由自動取樣盤掉入 球型閥中,此時有90秒的時間讓氧氣進入燃燒管,進氧完成,管 內已充滿氧氣,樣品掉入後即瞬間燃燒,並產生1800~2000℃的高 温,燃燒生成的氮的氧化物先經過還原管中的銅粉反應還原成 N2, 而H₂O、CO₂以及SO₂等氣體經過SO₂、CO₂、H₂O吸附/脫附管各 別吸附及脫附,或經 GC-column 分離,最後通過偵測系統 (TCD) 而得到氮、碳、氫、硫的重量百分比[18]。元素分析的結果是化合 物的重量百分比,因此樣品必須不含水及溶劑,以免影響檢測結果; 此外,若要分析基材上的化合物,則必須控制基材的重量,雖然儀 器可以接受 500 mg 以下的樣品,但若基材過大,相對化合物的百 分比會非常低,甚低於儀器的感測範圍,較無法得到準確的數據 [18]。而進行氧元素分析時,採不進氧的高溫裂解方式進行[19]。 裂解管中充填��碳顆粒,當樣品掉入時,則產生下列反應:

(1) Oxygenated sample + C \rightarrow CO + CO₂ + H₂O

(2) $H_2O + C \rightarrow CO + H_2$

(3) CO₂ + C → 2 CO 進入分析管前,經過 Soda Lime 等吸附劑將
CO 吸附,通過分析管後由 TCD 偵測氧含量。

元素分析儀能量測到原本無法利用 ICP-MS 探測之 C,N,O 元素 則,本報告中使用台大元素分析儀來進行量測,其中 N 及 O 的含 量根據儀器設計的不同,需分為兩種方式來進行處理,並且取微量 的石墨粉末來進行測量,並以含量最多的 C 元素當標準來進行比 較,從量測結果圖十六、圖十七可知 N 為 1660x12/14=1423 ppma 的含量及 O 為 140x12/16=120 ppma 的含量。

Sample code	Date Time	Weight(mg)	Grp	N%	C%	S%	H%	Repeat
acetanilide	09.11.2020	4.090	Standard	10.360	71.090	0.000	6.710	
standard 測出值	09.11.2020	4.064		10.367	71.051	0.000	6.701	
graphite-2	09.11.2020	1.722	高碳,石墨類	0.000	99.271		1.288	1
graphite-2	09.11.2020	1.400	高碳,石墨類	0.166	99.083		1.391	1

圖 十六 元素分析儀所測石墨氮、碳元素所占重量比例。

Sample code	Date Time	Weight(mg)	Grp	O%	Repeat
benzoic acid	10.11.2020	3.933	Standard	26.200	
standard 測出值	10.11.2020	3.482		26.194	
graphite-1	10.11.2020	2.840		0.014	1
graphite-1	10.11.2020	3.113		0.000	1
graphite-1	10.11.2020	3.147		0.000	1

圖 十七 元素分析儀所測石墨氧元素所占重量比例。

(九)二次離子質譜儀(SIMS)檢測

二次離子質譜儀(SIMS)檢測測量微量元素最為靈敏,可以達到 ppm 以下,當固體樣品被幾 keV 能量的一次離子濺射時,從靶材發 射出的一部分粒子被游離。而二次離子質譜儀藉由質譜儀來分析這 些二次離子。固體表面在離子轟擊下的二次離子發射提供了有關最 上層原子層的元素,以及同位素和分子組成的信息。次級離子的產 率會根據化學環境和濺射條件(離子,能量,角度)而變化很大, 而這會增加技術定量方面的複雜性。但儘管如此,SIMS 被認為是 最靈敏的元素和同位素表面分析技術。SIMS 技術提供了獨特的組 合,對氫到鈾及以上的所有元素都具有極高的靈敏度(許多元素的 檢測限低至 ppb 級別),該技術的性質(材料濺射)具有"破壞 性",可以應用於可以保持真空的任何類型的固體材料(絕緣體, 半導體,金屬)。

藉由分析不同深度被撞擊出之離子,依據此解析試片內部不同 深度之結構變化,而分析石墨樣品中可能被中子活化之特定元素(如 N,O,C,Cl.....等)元素之縱深分析,並利用 Cs 離子槍進行蝕刻,為比 較實驗結果之可重複性,在實驗中取用兩塊不同位置的石墨作為樣 品,兩塊石墨樣品皆為同一塊原始石墨所取用,圖十八可觀察到在 1800 nm 的深度,OC及 CI-皆無太大之變化,而從實驗結果圖十九、 圖二十可以了解到石墨樣品在距離表面深度 180 nm 下的元素分布非
常均匀,在日後的除役計畫上可作為參考。可以注意的是 CI-之含 量約小於氧含量約 80 倍,將產生³⁶CI 之殘餘放射核種。利用 SIMS 測量石墨中之氮含量有其問題,因為碳的含量實在太高,造成鄰近質 量的微量氮原子量測時,具很高的碳信號干擾,無法確切測得氮含 量,但是可以量測 CN-碎片之含量,約少於氧離子之 1/10。



圖 十八、石墨樣品在 1800 nm 深度下的縱深分析。



圖 十九、石墨樣品(一)在 180 nm 深度下的縱深分析。



圖 二十 石墨樣品(二)在 180 nm 深度下的縱深分析。

(十) 同步輻射光源斷層掃描(X-ray CT)

X-Ray 斷層掃描為利用非破壞性的方式,並提供2維、3維的樣品 影像,在判斷圍觀結構及孔隙率的判斷能提供更好的空間解析度, 圖二十二及圖二十三為本次實驗經不同解析尺度下的2維斷層影 像,在樣品表面可看到部分黑點為金奈米顆粒以作為校正用的標準 位置,由於台灣同步輻射01B光束線X顯微束之可見範圍較窄必 須移動試樣,拼接而成,X-Ray 斷層掃描藉由旋轉石墨樣品固定, 並固定影像範圍,來使3維樣品影像經重組後能提供更多的相關資 訊如圖二十一,而圖二十四及圖二十五為國際期刊[20]和國外團隊 的2維及3維實驗結果,尺度較大可以合併以供參考。圖二十一可 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¹⁴N(n,p)¹⁴C之產量。



圖 二十一、為石墨樣品之3維影像重組,其大小約為 15 μm,一條 裂縫以及許多奈米級的孔洞可以看見。



圖 二十二 、為石墨樣品 2 維影像重組,右圖為經放大後之位置,每 一格約為 15 μm。



圖 二十三、取自同石墨樣品不同位置之2維影像,綠色尺之長度為

10 μm $^\circ$



圖 二十四、國際期刊[20]所做之石墨樣品3維影像重組。



圖 二十五、國外團隊[20]所做石墨孔隙 X-RAY 斷層影像。

有關孔隙率結合 BET 實驗以及在同步輻射所作之結果,提出幾 種假設模型,假設開放洞(open pore)為一表面光滑圓柱形結構,其表 面區域為 Sopen,開放孔的數量為每 cm³ 有 Nopen,由 BET 所得知比表 面積為 S_{BET},利用 Sopen x Nopen = S_{BET} 的關係式來進行估算,其直徑為 $1 \mu m\sim 0.1 \mu m$,長度經實驗數據定為 $10 \mu m$,其結果列於表五(a),可 發現在圓柱直徑於 $0.4 \mu m$,會超過 22%孔隙率,和石墨密度實驗結 果不符,而發現在 $0.3 \mu m\sim 0.1 \mu m$ 之間的孔隙大小較為合理,而若 圓柱側面為粗糙結構,則表面積的變化也會影響孔隙率的計算結果, 以3維CT來看,盲洞的孔隙率約為8%,對應到估算結果,開放洞 表面積平均約為6µm²較為合理,開放圖柱為0.2µm,直徑為10 µm 長度。表五(b)中我們假設開放洞之表面較為粗糙,其面積較光 滑圓柱形大兩倍,而空洞體積相同則開放洞表面積平均約為24µm² 較為合理開放圓柱為0.4µm,直徑為10µm 長度。本小節中此一假 設之模型十分原始,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。倘若這些孔 洞具有 self-similarity 之性質,或許可以由小角度散射之實驗及分析 獲得更多大小範圍之訊息。

直徑	長度	表面積	體積	開放洞	開放洞	盲洞
(μ m)	(μ m)	(μ m²)	(cm ³)	數量(個	孔隙%	孔隙率%
				/cm³)		
1	10	32.97	7.8510 ⁻¹²	8.01*10 ¹⁰	62	N/A
0.5	10	16.09	1.9610 ⁻¹²	1.64*10 ¹¹	32	N/A
0.4	10	12.81	1.2510 ⁻¹²	2.06*10 ¹¹	25	N/A
0.3	10	9.56	7.0610 ⁻¹³	2.76*10 ¹¹	19	3
0.2	10	6.34	3.1410 ⁻¹³	4.16*10 ¹¹	13	9
0.1	10	3.16	7.8510 ⁻¹⁴	8.36*10 ¹¹	6	16

表 五(a)、孔隙率估算數據(光滑表面)。

表 六(b)、孔隙率估算數據(粗糙表面,假設表面積為兩倍)。

直徑	長度	表面積	體積	開放洞	開放洞	盲洞
(μ m)	(μ m)	(μ m²)	(cm³)	數量(個	孔隙%	孔隙率%
				/cm³)		
1	10	66	7.8510 ⁻¹²	4*10 ¹⁰	31	N/A
0.5	10	32	1.9610 ⁻¹²	0.8*10 ¹¹	16	6
0.4	10	25.6	1.2510 ⁻¹²	1.0*10 ¹¹	12.5	9.5
0.3	10	19	7.0610 ⁻¹³	1.4*1011	9.5	12.5
0.2	10	12.6	3.1410 ⁻¹³	2.1*10 ¹¹	6.5	15.5
0.1	10	6.3	7.8510 ⁻¹⁴	4.2*10 ¹¹	3	19

(十一)碳14的活度評估

產生¹⁴C的途徑有以下3種反應:

1. ${}^{14}N(n,p){}^{14}C$

2. ${}^{13}C(n,\gamma){}^{14}C$

3. ${}^{17}O(n,\alpha){}^{14}C$

其中以表面單原子層的氮及單原子層的氧原子完全佔據表層區域 來進行估算,首先計算假設以生成¹⁴C的量佔據整個表面,並以式 (1.2)計算出所包含的粒子數量,再乘以該元素的中子截面以及中子 通量和實際運轉時間,帶回(式1.1)、計算出生成¹⁴C的原子數量,結 合衰減常數 λ,可計算出表面被完全佔據之活度,詳細說明如下:

 $N = \rho \sigma \phi t \quad (\vec{x} 1.1)$

其中 / 為原子數目 Number of particle

 σ 為中子截面 Neutron cross-section

♦為中子通量 Flux

t為實際運轉時間

實際運轉時間以8.29年完全運轉來計算為

8.29*365*24*3600=2.6*10⁸ s

熱中子通量參考:1x10¹³(n/cm²*s)

中子截面積參考數據如下:

核種	中子吸收截面
	單位:barn=10 ⁻²⁴ cm ²
^{14}N	1.8
¹⁷ O	0.235
¹³ C	0.00137
³⁶ Cl	44.1

$$\rho = \frac{BET \quad \text{m@flow} \text{m@flow} \text{measurement}}{4\pi} \quad (\texttt{I} 1.2)$$

活度 Activity = N* λ (式 1.3)

其中λ為衰減常數(decay constant)

以本報告內的¹⁴C 為例,其半衰期約為 5700 年,須將半衰期換 為秒數,帶入式(1.4),可得 λ:

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{5700*365*86400} = 3.85*10^{-12}s^{-1}$$

帶回式(1.2)可得所求之¹⁴C之活度,詳細計算如下: (1)假設石墨表面吸附一層氮原子以¹⁴N(n,p)¹⁴C反應進行計算:

假設石墨表面吸附一層氮原子 ¹⁴N:其原子半徑約為 144 pm,可 換算為 1.44 *10⁻⁸ cm,以圓面積 π r²進行計算為 6.51*10⁻¹⁶ cm², 從 BET 數據可得比表面積為 $1.5 \text{ m}^2/\text{g}$,結合石墨樣品的密度為 1.76g/cm³,可得每一 cm³表面區域為 $1.5*1.76*10^4=2.6*10^4 \text{ cm}^2$,將數 據帶回式(1.2),得出氮原子數目= $2.6*10^4/6.51*10^{-16}=3.99*10^{19}$ cm⁻³再將其結果帶回(式 1.1),得出 ¹⁴C 原子數目為 $1.87*10^{17}$ 個, 將上述結果帶回(式 1.3),最後得出活度: Activity = $N*\lambda$ = $7.19*10^5 \text{ Bq/cm}^3$ 。

考量實際吸附情形,因為 ${}^{14}N(n,p){}^{14}C$ 反應可能形成 ${}^{14}CH_4$ [16]或 ${}^{14}CN$ 氣態分子,其中 ${}^{14}CH_4$ 分子幾乎不會吸附在石墨表面,而 ${}^{14}CN$ 只吸附在石墨表面的缺陷位置 [21],因此實際殘留在石墨表面上 的 ${}^{14}C$ 的覆蓋率遠小於 10%。保守以 10%覆蓋率計算,最後得出 活度: Activity = N* λ *10% = 7.19*10⁴ Bq/cm³。

(2)假設石墨表面吸附一層氧原子以¹⁷O(n,α)¹⁴C 反應進行計算:

假設石墨表面吸附一層氧原子,氧原子半徑約為 152 皮米(pm), 可換算為 1.52×10^{-8} cm,以圓面積 πr^2 進行計算為 7.25×10^{16} cm², 從 BET 數據同(1)之計算可得每一 cm³表面區域為 2.6×10^4 cm², 將 數 據 帶 回 式 (1.2) , 得 出 氧 原 子 數 目 = $2.6 \times 10^{4}/7.25 \times 10^{16}=3.58 \times 10^{19}$ /cm³。乘上 ¹⁷0 之豐度佔 0.0383%,再 將其結果帶回 (式 1.1)及 (式 1.3),最後得出活度: Activity = N* $\lambda = 32$ Bq/cm³。

(3)假設石墨塊材含有¹³C同位素以¹³C(n,γ)¹⁴C反應進行計算:

¹³C:由自然界中¹³C 所佔之豐度為 1.079% 來進行估算,由密度 1.76 g/cm³ 在 1cm³ 的空間進行估算,詳細計算步驟如下:

¹³C 原子數目 = $\frac{1.76\frac{g}{cm3}}{12}$ *6.02*10²³*1.079% =9.5*10²⁰個/cm³。 再將其結果帶回(式 1.1),得出 ¹⁴C 原子數目為 3.38*10¹⁵個,將 上述結果帶回(式 1.3),最後得出活度:Activity = N* λ = 1.3x10⁴ Bq/cm³。或是 7.3x10³ Bq/g。此一活度正好與 ¹⁴C 豁免管制量 1x10⁴ Bq/g 相當接近,但是這使以熱中子通量為 1x10¹³ n.cm⁻² s⁻¹估算, 大部分石墨反射體之熱中子通量應該低於此一值。

(4)以石墨中之間隙為空氣¹⁴N(n,p)¹⁴C反應進行計算:

假設石墨表面並不吸附氮原子或氧原子而以一大氣壓空氣存在於 石墨中之間隙:以1 atm 下1 cm³的空氣來進行運算,並假設孔 隙率為 22%,利用理想氣體方程式 PV=nRT,將 P=1 atm, V=0.001L*22%,R=0.0821($\frac{atm.L}{mol.K}$),T=300 K,可得出的空氣分子 數目=5.4*10¹⁸個分子/cm³,以氮-14 原子數目來看為 8.6*10¹⁸個, 氧-17 原子為 8.23*1016 個,再乘以該元素的中子截面以及中子通 量和實際運轉時間,帶回 (式 1.1)、計算出生成 ¹⁴C 的原子數量, 結合衰減常數 λ ,可計算出 1atm 下的空氣在 22% 孔隙率生成 ¹⁴C 的活度。氮原子數目為 8.6x10¹⁸ 個/cm³,經由式 (1.1) 可得每 cm³ $= N^* \lambda = 1.5^* 10^5 \text{ Bq/cm}^3 \circ$

(5)以石墨中之間隙為空氣¹⁷O(n,α)¹⁴C 反應進行計算

假設石墨 22 % 之縫隙以一大氣壓空氣存在於石墨中,氧-17 原 子數目為 8.23x10¹⁶ 個/cm³,經由(式 1.1) 可得每 cm³有 ¹⁴C:5*10¹³ 個,將結果帶回(式 1.3),最後得出活度: Activity = N*λ = 192 Bq/cm³可以不用考慮。

(6)假設有氮原子溶於石墨計算¹⁴N(n,p)¹⁴C反應

以元素分析儀測得保守之估計為 0.2%,每一 cm³ 有 1.8x10²⁰ 個氮 原子,將結果帶回(式 1.3),最後得出活度: Activity = N* λ = 3x10⁶ Bq/cm³ = 3 TBq/m³ 這個數量相當龐大,已經遠超過放射廢棄物 A 類之標準 10 倍。元素分析儀之結果也與 SIMS, EPMA, XPS 之結 果大不相同,同時也不明瞭氮原子是否吸附於石墨縫隙之表面或 溶入塊材中。由於元素分析儀之靈敏度約 0.1%,兩次實驗一次未 檢出,另一次為 0.14 % (atom) 以 0.2%氮含量融入石墨中之估計 過於保守些。EPMA 10 次量測也有八次未檢出,最大值為 0.165% 氮含量融入石墨中(表二)也是過於保守。要注意的是 EPMA, XPS 以及 SIMS 之表面均需抽高真空,而元素分析儀則置於空氣中雖 經過氣體 purge 仍舊有較高的表面氮氣。SIMS 縱深量測(圖 18)CN⁻ 離子可以說明氮含量以表面為主,內部較少,我們仍舊可以去除 表面較強之¹⁴C以達減容之目標。

(7) 假設有氧原子溶於石墨計算¹⁷O(n,α)¹⁴C 反應

同樣的我們假設有氧原子溶於石墨之中以元素分析儀測得保守之 估計為 0.02%,每一 cm³ 有 $0.18x10^{20}$ 個氧原子亦即約有 $6.9x10^{15}$ 個 ¹⁷O 原子,將結果帶回(式 1.3),最後得出活度: Activity = N* λ = 13 Bq/cm³,可以不用考慮。

(8) 假設有氯原子溶於石墨計算 ${}^{35}Cl(n, \gamma){}^{36}Cl 反應$

假設有氣原子溶於石墨之中,其含量為氧原子溶於石墨之 1/80 倍 (SIMS 結果),若以元素分析儀測得保守之氧原子估計為 0.02%, 則每一 cm³ 有 0.18x10²⁰ 個氧原子,因此我們假設每一 cm³ 有 $1.7x10^{17}$ 個 ³⁵Cl 原子(Abundance 75.77%),將其結果帶回(式 1.3), 最後得出活度: Activity = N* λ = 1390 Bq/cm³ = 969 Bq/g,遠比放 射性物質氣原子之豁免管制量 1x10⁴ Bq/g 低了十倍以上,也可以 不用考慮。

核種	原子濃度	熱中子吸	14C 數目	活度
	(cm ⁻³)	收截面	(atoms)	Bq/cm ³
		(cm ²)		
¹⁴ N-吸附單層	3.99*10 ¹⁹	1.8*10 ⁻²⁴	1 .87*10 ¹⁷	7.2 *10 ⁵
¹⁴ N-吸附單層	3.99*10 ¹⁸	1.8*10 ⁻²⁴	1.87*10 ¹⁶	7.2*10 ⁴
(覆蓋率 10%)				
¹⁷ O 吸附單層	1.37*10 ¹⁶	2.35 *10 ⁻²⁵	8.37*10 ¹²	32
¹³ C 塊材	9.5*10 ²⁰	1. 37 *10 ⁻²⁷	3.28*10 ¹²	1.3*10 ⁴
¹⁴ N-間隙空氣	8.6*10 ¹⁸	1.8*10 ⁻²⁴	4.0*10 ¹⁶	1.5*10 ⁵
¹⁷ O-間隙空氣	8.23*10 ¹⁶	2.35 *10 ⁻²⁵	5.0*10 ¹³	192
¹⁴ N-元素分析	1.8*10 ²⁰	1.8*10 ⁻²⁴	8.4*10 ¹⁷	3.0*10 ⁶
儀 0.2%				
¹⁷ O-元素分析	6.9*10 ¹⁵	2.35 *10 ⁻²⁵	4.2*10 ¹²	13
儀 0.02%				

表 七、¹⁴C 計算所用之各項數據

此活度之計算可以發現若假設 0.2%之¹⁴N 原子溶於石墨塊材之 間,以1.0*10¹³ n.cm⁻²s⁻¹之熱中子計算所得之¹⁴C 最為大宗,將超 過放射物質豁免管制量,應屬於放射廢棄物 C 類之低放廢料。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¹³C於塊材中,計算結果十分接近放射物質豁免 管制量之水準。因此,若能處理僅在石墨表面上¹⁴C 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¹⁴C 核種, 將可以大量減低核廢棄物。

(十二) 快中子衰减評估

TRR 之石墨塊可以分為接近爐心的內圈,以及第二圈石墨, 假設內圈熱中子通量最高約為 $1x10^{13}$ neutrons s⁻¹cm⁻²,第1圈石 墨厚度為 8.5 inch (21.59 cm)。TRR fuel rod 與石墨間有 6.42 inch (16.3 cm)之重水隔離。D₂O 之 ξ=0.509 (ξ 為 average gain in lethargy per elastic collision)。若假設中子由 1 MeV 降至 1 eV 平 均於重水中需要 27 次碰撞, ξ乘上巨觀散射截面(25°C), ξΣs =0.176 cm⁻¹,因此 exp(-0.176 x16.3) = exp(-2.86) = 0.057,其快中 子僅剩於 5.7%。進入石墨後, ξ=0.158,ξΣs = 0.06 cm⁻¹,第1 圈石墨厚度為 8.5 inch (21.59 cm), exp(-0.06*21.59) = 0.274,到達 第二圈石墨時,快中子再衰減為 27.4%,故第二圈石墨機械性質 變化不大, Wigner energy 儲存能量,已經不高,應可忽略不計。

(十三) 照射過石墨機械之探討

經照射過後之石墨, R.E Nightingale 整理了一些早年研究之 結果,發表於 Nuclear Graphite 一書中[10],其輻射損傷主要是 由於快中子與石墨中的碳原子碰撞產生一連串空缺及間隙原子, 輻射損傷所導致這對於作為緩和劑之石墨有相當之影響,然而一

般而言,對於作為反射體之石墨,因其主要中子為熱中子,熱中 子之輻射損傷可以忽略。國際上,以石墨作為反射體之研究用反 應器,其輻射所造成之少許機械性質變化,也多不需加以考慮, 其儲能之 Winger 效應也無安全性問題。即使如此,以下我們也 對於 TRR 經照射過後之石墨其輻射損傷其機械性質做一番探討:

TRR之石墨塊可以分為接近爐心的內圈,以及第二圈石墨, 假設內圈熱中子通量最高約為 1x10¹³ neutrons s⁻¹cm⁻²,第二圈石 墨最高約為 0.7x10¹³ neutrons s⁻¹cm⁻²。TRR 總共操作 2557012 MWh (106542 MWd),假設所有的鈾均貢獻輻射損傷合計鈾共有 約 33.1 T (5916 cm² area x 290 cm height x 19.3 g cm⁻²),其操作照 射為 3219 MWd/At. (At 為 adjacent uranium ton),TRR 共操作 72350 h (3014.6 d)。在假設最接近爐心之石墨反射體之中子通率 為 1.0x10¹³ neutron cm⁻²s⁻¹,則總共之中子照射為 2.6x10²¹ neutron cm⁻²,1 MWD/At=8.1x10¹⁷ neutron cm⁻²,但是這個估計為 總中子量,若僅考慮快中子部分,因為石墨反射體之中子已經經 過 16.5 cm 之重水緩和,僅假設只有 5.7%之快中子對於石墨反 射體最接近爐心部分之貢獻,我們以 3219*0.057=183 MWd/At 來 與文獻中照射石墨後機械性質做比較:

(a) 微觀部分:石墨經照射後 X 光繞射可以發覺其 c 軸 (001) 會變大,而 a 軸及 basal 面之晶格不受影響,足見石墨層狀結構 受到回跳碳原子 intercalate 至石墨層狀結構之影響,此一影響可 以經退火消除。在(002),繞射峰除了會往低角度偏移之外,其強 度也會隨照射輻射損傷而降低,繞射峰寬度也變增加,以 c 軸晶 格可以由原有的 0.67 nm 變成 0.678 nm 增加約 6% (183)

MWd/At, 30°C)(參考文獻[10]中,圖 9.6) 或增加至 7.27 nm (3219 MWd/At)(參考文獻[10]中圖 9.4)而繞射峰之半高寬變化在 183 MWd/At 下無太大變化,若考慮 3219 MWd/At 則將由 0.2 度增 至 5.2 度(3219 MWd/At)([10]圖 9.4),足見快中子輻射損傷之程 度將降低石墨晶粒之程度,是否將影響材料強度,造成拆解之問 題必須考慮。

(b) 巨觀尺寸方面之變化:沿著材料製程擠壓方向之不同, 約小 0.02-0.4% (183 MWd/At) 或是可達 1-3.5% (3219 MWd/At) 之尺寸變化(參考文獻[10]中,圖 9.12,9.14,9.15)。這些尺寸的變 化對於已經拆解之石墨塊應力應該無影響。

(c)彈性係數部分 (Young's Modules): 依據參考文獻 10 中 圖 11.1、11.3 照射過後其楊式係數應增加約 3 倍 (183 MWd/At), 或是小於 2.5 倍 (1600 MWd/At)。因此材料變成更硬,快中子回 跳之碳原子將卡住石墨差排(dislocation)之移動,造成楊氏彈性係 數增加,但是經長久之照射缺陷逐漸上升,楊氏彈性係數緩緩下 降。研究石墨由於其輻射損傷其機械性質之改變,最重要的部分 為強度之變化,由於彈性係數受快中子輻射照射而增加 2-3 倍, 對於拆解石墨塊是更增加其安全性。但是有些文獻認為僅會有 20% 強度變化[11],另外也有文獻報導[12]Vicker'shardness 經 過 1.15x10²¹ neutron/cm²(約 1400 MWd/At)快中子照射 Vicker's 硬度由 20 kg/mm² 提升至 140 kg/mm²。綜合以上,石墨機械強 度於 TRR 快中子照射量下應無顯著性的安全疑慮。

(d) 能量儲存 (Wigner energy 或 stored energy): 依據參考文
 獻[10],圖 12.2 為照射過後石墨能量儲存之能量約為 80 cal/g(183)

MWd/At),或是 570 cal/g(3219 MWd/At)這些能量再退火 200°C 時將會放出,導致石墨溫度更上升。不過以石墨當為反射體之研 究用反應器根據文獻上之報導皆不必考慮此一問題。例如以加拿 大 NRX 反應器經過6年之運轉累積了 81 cal/g之 Wigner 能量 於退火 100-240°C 時僅造成溫度上升 50°C (參考文獻[10], 350 頁)。

(e)除了快中子之外,爐心之加馬射線劑量可達 10 kGy/h 以上。TRR 於 72350h之運轉也累積了相當輻射損傷。石墨接近爐 心之加馬射線輻射損傷部分,文獻之探討極少。Z. Xu 等人[13], 利用鈷六十照射石墨粉末 2 MGy 其結果(002)繞射峰強度增加約 20%其峰值也由 26.5 度變成於 26.55 度亦即晶格間距變小,石墨 長得更好,顯示加馬射線不見得產生比快中子強大之輻射損傷, 反而有退火之功能。

(f) 長期快中子輻射照射也對石墨形貌有所影響,譬如對於 石墨表面積 (BET 測量法) 將會縮減 12% (183 MWd/At),58% (2500 MWd/At)連帶著孔隙大小也率為縮減 (參考文獻[10],圖 9.9 與 9.10)。這對於氮氣吸附於石墨表面上有所助益,產生更少 的¹⁴C。至於加馬射線是否會改變石墨表面之形貌,所產生之缺 陷是否更容易產生吸附氮原子,反而導致更多的¹⁴C產生,則必須 進一步加以研究。

(十四) 石墨與其他材料化學性質之探討

石墨於高溫下將與與其他材料起化學作用,石墨與金屬及金屬 氧化物化學反應之性質於 Nuclear Graphite 書[10]中也列出一些早期

回顧之結果,(參考文獻[10]中表 6.10 與 6.11)這些金屬及金屬氧化物 化學反應之溫度均為 200°C,因此石墨廢料儲存上應無安全上疑慮。

四、照射過後石墨之處理

由上述之說明,照射過後之石墨主要之安全考量為¹⁴C之處理。至於 常見之⁶⁰Co以及³⁶Cl在本次石墨之中子活化分析中均低於可偵檢量。 處理¹⁴C之方法很多,例如最新之回顧性文獻[15]。建議最佳之方法為 將石墨分類後再減量。接近爐心的內圈之石墨,由於主要的¹⁴C之來 源來自外界¹⁴N(n,p)¹⁴C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,如此減量後,再考慮長 期儲存之方式[16]。所剩下去除表面的石墨僅來自 ¹³C(n,γ)¹⁴C之貢 獻或許核廢料比較容易處置之。¹⁴C在石墨表面氧化速率可以用重量 測量或表面分析方法以及X-ray Tomography等方法分析及測定,如參 考文獻 [17,20] 可以參考之。

肆、 主要發現與結論

TRR 石墨材料在進行除役時,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 C-14 等)。本計 畫利用 TRR 建廠時的石墨備品-核能級石墨為分析樣品,進行相關的 物理、化學等特性研究。本研究已完成相關核設施除役石墨廢棄物特 性之文獻研析及彙整,並將核能研究所提供之 TRR 未受照射石墨樣 品進行分切處理後,進行相關 XPS SEM/EDS, EPMA, SIMS, X-ray tomography, 中子活化分析, 元素分析儀等實驗量測, 其量測結果顯 示,TRR 石墨樣品中附著於石墨表面之碳-14 產生量必需加以考慮 以進行適當的廢棄物管理。由實驗及理論計算數據指出,外層遠離爐 心之石墨反射體之放射性活度可能低於 7.2 x 10⁴ Bq/cm³;接近爐心 之石墨反射體其碳-14 活度則可能較高。參照國際經驗,建議石墨表 面的除汙方式,可以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。以上結果假設熱中子通率為 1*10¹³ n. cm⁻²s⁻¹. 然而 大部分反射體石墨內的熱中子並不如此高。而在機械性質方面,石墨 材料經 TRR 快中子輻射損傷所產生之機械性質改變,經文獻評估結 果, 並部會有重大之影響。

本研究為未受 TRR 中子照射之石墨樣品初步評估結果,更精確 之佐證數據,仍待未來以 TRR 內之石墨進行取樣分析。

參考文獻

- 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] 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.
- [4] Daniel LaBrier, Mary Lou Dunzik-Gougar, "Identification and location of ¹⁴C-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.
- [5] 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.

- [6] G.Holt, "Radioactive Graphite management at UK Magnox", https://www-pub.iaea.org/MTCD/publications, 1991.
- [7] Adel Fisli, Deni Mustika, Sudirman, Torowati, Th. Rina Mulyaningsih, Arbi Dimyati, I. Made Joni, "Determination of Elements in Acid Leaching of Graphite Using Instrumental Neutron Activation Analysis", International Journal of Chemistry; 12, (2020)89.
- [8] Z.Q. Li, C.J. Lu, Z.P. Xia, Y. Zhou, Z. Luo, "X-ray diffraction patterns of graphite and turbostratic carbon", Carbon, 45 (2007)1686.
- [9] Sabina Drewniak, Roksana Muzyka, Agnieszka Stolarczyk, Tadeusz Pustelny, Michalina, Kotyczka-Moranska and Maciej Setkiewicz, "Studies of Reduced Graphene Oxide and Graphite Oxide in the Aspect of Their Possible Application in Gas Sensors, Sensors", 16 (2016) 103.
- [10] Nuclear graphite, Nightingale, R E, New York, NY : Academic Press, (1962).
- [11] H.W. Davidson and H.H. W. Losty, 2nd Internal Conf. on peaceful use of atomic energy, 7 (1958) 307.
- [12] R.G. Brown, carbon, 6 (1968) 27.

- [13] Zhiwei Xu, Liangsen Liu a, Yudong Huang, Ying Sun, Xiaoqing Wu, Jialu Li, Material Letter, 63 (2009) 1814.
- [14] Bin Li, Yi Feng, Kewang Ding, Gang Qian, Xuebin Zhang, Jingcheng Zhang, carbon, 60 (2013)186
- [15] Junfeng Li , Mary Lou Dunzik-Gouga , Jianlong Wang, Recent advances in the treatment of irradiated graphite: A review, Annuals Nucl Energy 110 (2017) 140.
- [16] Antti Raty, Tiina Lavonena, Anumaija Leskinen, Jari Likonen, Cristian Postolache, Viorel Fugaru, George Bubueanu, Cristian Lungu, Adrian Bucsa, Nucl. Eng. Design 353 (2019) 110198.
- [17]Liam Payne, Peter J. Heard, Thomas B. Scott, PLOS one, Nov. 17 (2015).
- [18]台大 EA-vario cube 原理說明。(2018)。元素分析儀簡介。檢自 <u>https://www.hic.ch.ntu.edu.tw/EA/EA-</u> <u>vario%20cube%E5%8E%9F%E7%90%86%E8%AA%AA%E6%98</u> %8E-2018.pdf

[19]台大元素分析儀-氧元素分析原理。檢自:

https://www.hic.ch.ntu.edu.tw/EA/%E6%B0%A7%E5%85%83%E7 %B4%A0%E5%88%86%E6%9E%90%E5%8E%9F%E7%90%86.p df

- [20] Yongqi Zhu, Qing Huang, Cheng Li, et al., Journal of Nondestructive Evaluation, 39(2020)17.
- [21]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。

附錄一 節錄「低放射性廢棄物最終處置及其設施安全管理規則」

低放射性廢棄物依其放射性核種濃度分類規定如下:

一、A 類廢棄物:指低放射性廢棄物所含核種濃度低於(含)附表一濃

度值之十分之一倍及低於(含)附表二第一行之濃度值者;或廢棄

物所含核種均未列入附表一及附表二者。

- 二、B 類廢棄物:指低放射性廢棄物所含核種濃度高於附表二第一行之 濃度值且低於(含)第二行之濃度值者。
- 三、C 類廢棄物:指低放射性廢棄物所含核種濃度高於附表一濃度值十 分之一倍且低於(含)附表一之濃度值者;或高於附表二第二行之

濃度值且低於(含)第三行之濃度值者。

四、超C類廢棄物:指低放射性廢棄物所含核種濃度高於附表一之濃度

值者;或高於附表二第三行之濃度值者

附表一:單一長半化期核種濃度值

核種	濃度值
¹⁴ C	0.30 TBq/m ³
¹⁴ C (活化金屬內)	3.0 TBq/m ³
⁵⁹ Ni(活化金屬內)	8.1 TBq/m ³
⁹⁴ Nb(活化金屬內)	0.0074 TBq/m ³
⁹⁹ Tc	0.11 TBq/m ³
¹²⁹ I	0.0030 TBq/m ³
TRU(半化期大於5年之超 鈾阿伐放射核種)	3.7 kBq/g
²⁴¹ Pu	130 kBq/g
²⁴² Cm	740 kBq/g

附表二:單一短半化期核種濃度值

14 14	濃度值(TBq/m3)					
个 <u>久</u>	第一行	第二行	第三行			
半化期小於5年之所有核種	26	計一	计一			
總和	20					
³ H	1.5	註一	註一			
⁶⁰ Co	26	註一	註一			
⁶³ Ni	0.13	2.6	26			
⁶³ Ni(活化金屬內)	1.3	26	260			
⁹⁰ Sr	0.0015	5.6	260			
¹³⁷ Cs	0.037	1.6	170			

註一: B 類廢棄物及C 類廢棄物並無此核種濃度值之限制。可從實 際執行運送、吊卸與最終處置作業時,考量體外輻射與衰變 熱,而限制這些核種之濃度。除非由本表內其他核種決定廢 棄物歸於C 類廢棄物,否則應歸於B 類廢棄物。

註二:多核種之分類:

若低放射性廢棄物中含有多核種時,其分類應按下式判斷。

$$\sum_{i=1}^{n} \frac{C_i}{C_{i,0}} \leq 1$$

上式中

C_i:第i個核種之濃度。

C_{i,0}:第i個核種第0(0=A,B,C)類之濃度值。

n:所含核種之數目。

若满足上式,則可歸為第0(0=A,B,C)類廢棄物。

附錄二 節錄「輻射源豁免管制標準」

放射性物質之豁免管制量

1	2	3	1	2	3
核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
氦			Si-31	1.E+3	1.E+6
含氚化合物	1.E+6	1.E+9	Si-32	1.E+3	1.E+6
氚元素	1.E+6	1.E+9	磷		
鈹			P-32	1.E+3	1.E+5
Be-7	1.E+3	1.E+7	P-33	1.E+5	1.E+8
Be-10	1.E+4	1.E+6	硫		
碳			S-35	1.E+5	1.E+8
C-11	1.E+1	1.E+6	S-35(有機)	1.E+5	1.E+8
C-11(單氧化物)	1.E+1	1.E+9	S-35(蒸氣)	1.E+6	1.E+9
C-11(雙氧化物)	1.E+1	1.E+9	氯		
C-14	1.E+4	1.E+7	C1-36	1.E+4	1.E+6
C-14(單氧化物)	1.E+8	1.E+11	C1-38	1.E+1	1.E+5
C-14(雙氧化物)	1.E+7	1.E+11	C1-39	1.E+1	1.E+5
氮			氢		
N-13	1.E+2	1.E+9	Ar-37	1.E+6	1.E+8
氧			Ar-39	1.E+7	1.E+4
O-15	1.E+2	1.E+9	Ar-41	1.E+2	1.E+9
氣			鉀		
F-18	1.E+1	1.E+6	K-40	1.E+2	1.E+6
氛			K-42	1.E+2	1.E+6
Ne-19	1.E+2	1.E+9	K-43	1.E+1	1.E+6
鈉			K-44	1.E+1	1.E+5
Na-22	1.E+1	1.E+6	K-45	1.E+1	1.E+5
Na-24	1.E+1	1.E+5	鈣		
鎂			Ca-41	1.E+5	1.E+7
Mg-28+	1.E+1	1.E+5	Ca-45	1.E+4	1.E+7
鉊			Ca-47	1.E+1	1.E+6
A1-26	1.E+1	1.E+5	鈧		
矽			Sc-43	1.E+1	1.E+6

				1	
核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Sc-44	1.E+1	1.E+5	Co-56	1.E+1	1.E+5
Sc-44m	1.E+2	1.E+7	Co-57	1.E+2	1.E+6
Sc-46	1.E+1	1.E+6	Co-58	1.E+1	1.E+6
Sc-47	1.E+2	1.E+6	Co-58m	1.E+4	1.E+7
Sc-48	1.E+1	1.E+5	Co-60	1.E+1	1.E+5
Sc-49	1.E+3	1.E+5	Co-60m	1.E+3	1.E+6
鈦			Co-61	1.E+2	1.E+6
Ti-44+	1.E+1	1.E+5	Co-62m	1.E+1	1.E+5
Ti-45	1.E+1	1.E+6	鎳		
釠			Ni-56	1.E+1	1.E+6
V-47	1.E+1	1.E+5	Ni-57	1.E+1	1.E+6
V-48	1.E+1	1.E+5	Ni-59	1.E+4	1.E+8
V-49	1.E+4	1.E+7	Ni-63	1.E+5	1.E+8
鉻			Ni-65	1.E+1	1.E+6
Cr-48	1.E+2	1.E+6	Ni-66	1.E+4	1.E+7
Cr-49	1.E+1	1.E+6	銄		
Cr-51	1.E+3	1.E+7	Cu-60	1.E+1	1.E+5
錳			Cu-61	1.E+1	1.E+6
Mn-51	1.E+1	1.E+5	Cu-64	1.E+2	1.E+6
Mn-52	1.E+1	1.E+5	Cu-67	1.E+2	1.E+6
Mn-52m	1.E+1	1.E+5	鋅		
Mn-53	1.E+4	1.E+9	Zn-62	1.E+2	1.E+6
Mn-54	1.E+1	1.E+6	Zn-63	1.E+1	1.E+5
Mn-56	1.E+1	1.E+5	Zn-65	1.E+1	1.E+6
鐵			Zn-69	1.E+4	1.E+6
Fe-52	1.E+1	1.E+6	Zn-69m	1.E+2	1.E+6
Fe-55	1.E+4	1.E+6	Zn-71m	1.E+1	1.E+6
Fe-59	1.E+1	1.E+6	Zn-72	1.E+2	1.E+6
Fe-60+	1.E+2	1.E+5	鎵		
鈷			Ga-65	1.E+1	1.E+5
Co-55	1.E+1	1.E+6	Ga-66	1.E+1	1.E+5

	1	1	1	1	I	Г
核 種 名 稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)		核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免 活 (貝
Ga-67	1.E+2	1.E+6]	Se-81m	1.E+3	1.E+7
Ga-68	1.E+1	1.E+5]	Se-83	1.E+1	1.E+5
Ga-70	1.E+3	1.E+6		溴		
Ga-72	1.E+1	1.E+5		Br-74	1.E+1	1.E+5
Ga-73	1.E+2	1.E+6		Br-74m	1.E+1	1.E+5
鍺				Br-75	1.E+1	1.E+6
Ge-66	1.E+1	1.E+6		Br-76	1.E+1	1.E+5
Ge-67	1.E+1	1.E+5		Br-77	1.E+2	1.E+(
Ge-68+	1.E+1	1.E+5		Br-80	1.E+2	1.E+5
Ge-69	1.E+1	1.E+6		Br-80m	1.E+3	1.E+7
Ge-71	1.E+4	1.E+8		Br-82	1.E+1	1.E+(
Ge-75	1.E+3	1.E+6		Br-83	1.E+3	1.E+(
Ge-77	1.E+1	1.E+5		Br-84	1.E+1	1.E+:
Ge-78	1.E+2	1.E+6		氪		
љф				K1-74	1.E+2	1.E+9
As-69	1.E+1	1.E+5		K1-76	1.E+2	1.E+9
As-70	1.E+1	1.E+5		K1-77	1.E+2	1.E+
As-71	1.E+1	1.E+6		Kr-79	1.E+3	1.E+:
As-72	1.E+1	1.E+5		Kr-81	1.E+4	1.E+
As-73	1.E+3	1.E+7		Kr-81m	1.E+3	1.E+1
As-74	1.E+1	1.E+6		Kr-83m	1.E+5	1.E+1
As-76	1.E+2	1.E+5		Kr-85	1.E+5	1.E+4
As-77	1.E+3	1.E+6		Kr-85m	1.E+3	1.E+1
As-78	1.E+1	1.E+5		K1-87	1.E+2	1.E+9
硒				Kr-88	1.E+2	1.E+9
Se-70	1.E+1	1.E+6		釛		
Se-73	1.E+1	1.E+6		Rb-79	1.E+1	1.E+5
Se-73m	1.E+2	1.E+6		Rb-81	1.E+1	1.E+0
Se-75	1.E+2	1.E+6		Rb-81m	1.E+3	1.E+3
Se-79	1.E+4	1.E+7		Rb-82m	1.E+1	1.E+6
Se-81	1.E+3	1.E+6		Rb-83+	1.E+2	1.E+(

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Rb-84	1.E+1	1.E+6	Zr-86	1.E+2	1.E+7
Rb-86	1.E+2	1.E+5	Zr-88	1.E+2	1.E+6
Rb-87	1.E+4	1.E+7	Zr-89	1.E+1	1.E+6
Rb-88	1.E+1	1.E+5	Zr-93+	1.E+3	1.E+7
Rb-89	1.E+1	1.E+5	Zr-95	1.E+1	1.E+6
鍶			Zr-97+	1.E+1	1.E+5
Sr-80	1.E+3	1.E+7	鈮		
Sr-81	1.E+1	1.E+5	Nb-88	1.E+1	1.E+5
Sr-82+	1.E+1	1.E+5	Nb-89	1.E+1	1.E+5
Sr-83	1.E+1	1.E+6	(2.03 時)		
Sr-85	1.E+2	1.E+6	Nb-89	1.E+1	1.E+5
Sr-85m	1.E+2	1.E+7	(1.01 時)		
Sr-87m	1.E+2	1.E+6	Nb-90	1.E+1	1.E+5
Sr-89	1.E+3	1.E+6	Nb-93m	1.E+4	1.E+7
Sr-90+	1.E+2	1.E+4	Nb-94	1.E+1	1.E+6
Sr-91	1.E+1	1.E+5	Nb-95	1.E+1	1.E+6
Sr-92	1.E+1	1.E+6	Nb-95m	1.E+2	1.E+7
釔			Nb-96	1.E+1	1.E+5
Y-86	1.E+1	1.E+5	Nb-97	1.E+1	1.E+6
Y-86m	1.E+2	1.E+7	Nb-98	1.E+1	1.E+5
Y-87+	1.E+1	1.E+6	鉬		
Y-88	1.E+1	1.E+6	Mo-90	1.E+1	1.E+6
Y-90	1.E+3	1.E+5	Mo-93	1.E+3	1.E+8
Y-90m	1.E+1	1.E+6	Mo-93m	1.E+1	1.E+6
Y-91	1.E+3	1.E+6	Mo-99	1.E+2	1.E+6
Y-91m	1.E+2	1.E+6	Mo-101	1.E+1	1.E+6
Y-92	1.E+2	1.E+5	鎝		
Y-93	1.E+2	1.E+5	Tc-93	1.E+1	1.E+6
Y-94	1.E+1	1.E+5	Tc-93m	1.E+1	1.E+6
Y-95	1.E+1	1.E+5	Tc-94	1.E+1	1.E+6
鋯			Tc-94m	1.E+1	1.E+5

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Tc-95	1.E+1	1.E+6	Pd-101	1.E+2	1.E+6
Tc-95m+	1.E+1	1.E+6	Pd-103	1.E+3	1.E+8
Tc-96	1.E+1	1.E+6	Pd-107	1.E+5	1.E+8
Tc-96m	1.E+3	1.E+7	Pd-109	1.E+3	1.E+6
Tc-97	1.E+3	1.E+8	銀		
Tc-97m	1.E+3	1.E+7	Ag-102	1.E+1	1.E+5
Tc-98	1.E+1	1.E+6	Ag-103	1.E+1	1.E+6
Tc-99	1.E+4	1.E+7	Ag-104	1.E+1	1.E+6
Tc-99m	1.E+2	1.E+7	Ag-104m	1.E+1	1.E+6
Tc-101	1.E+2	1.E+6	Ag-105	1.E+2	1.E+6
Tc-104	1.E+1	1.E+5	Ag-106	1.E+1	1.E+6
釘			Ag-106m	1.E+1	1.E+6
Ru-94	1.E+2	1.E+6	Ag-108m+	1.E+1	1.E+6
Ru-97	1.E+2	1.E+7	Ag-110m	1.E+1	1.E+6
Ru-103	1.E+2	1.E+6	Ag-111	1.E+3	1.E+6
Ru-105	1.E+1	1.E+6	Ag-112	1.E+1	1.E+5
Ru-106+	1.E+2	1.E+5	Ag-115	1.E+1	1.E+5
銠			鎘		
Rh-99	1.E+1	1.E+6	Cd-104	1.E+2	1.E+7
Rh-99m	1.E+1	1.E+6	Cd-107	1.E+3	1.E+7
Rh-100	1.E+1	1.E+6	Cd-109	1.E+4	1.E+6
Rh-101	1.E+2	1.E+7	Cd-113	1.E+3	1.E+6
Rh-101m	1.E+2	1.E+7	Cd-113m	1.E+3	1.E+6
Rh-102	1.E+1	1.E+6	Cd-115	1.E+2	1.E+6
Rh-102m	1.E+2	1.E+6	Cd-115m	1.E+3	1.E+6
Rh-103m	1.E+4	1.E+8	Cd-117	1.E+1	1.E+6
Rh-105	1.E+2	1.E+7	Cd-117m	1.E+1	1.E+6
Rh-106m	1.E+1	1.E+5	銦		
Rh-107	1.E+2	1.E+6	In-109	1.E+1	1.E+6
鈀			In-110	1.E+1	1.E+6
Pd-100	1.E+2	1.E+7	(4.9 時)		

核種名稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)		核種名稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免箭 活 (貝克
In-110	1.E+1	1.E+5	1	Sb-117	1.E+2	1.E+7
(69.1 分)				Sb-118m	1.E+1	1.E+6
In-111	1.E+2	1.E+6	1	Sb-119	1.E+3	1.E+7
In-112	1.E+2	1.E+6]	Sb-120	1.E+1	1.E+6
In-113m	1.E+2	1.E+6]	(5.76日)		
In-114	1.E+3	1.E+5]	Sb-120	1.E+2	1.E+6
In-114m	1.E+2	1.E+6		(15.89 分)		
In-115	1.E+3	1.E+5]	Sb-122	1.E+2	1.E+4
In-115m	1.E+2	1.E+6		Sb-124	1.E+1	1.E+6
In-116m	1.E+1	1.E+5		Sb-124m	1.E+2	1.E+6
In-117	1.E+1	1.E+6		Sb-125	1.E+2	1.E+6
In-117m	1.E+2	1.E+6		Sb-126	1.E+1	1.E+5
In-119m	1.E+2	1.E+5		Sb-126m	1.E+1	1.E+5
錫				Sb-127	1.E+1	1.E+6
Sn-110	1.E+2	1.E+7		Sb-128	1.E+1	1.E+5
Sn-111	1.E+2	1.E+6		(9.01 時)		
Sn-113	1.E+3	1.E+7		Sb-128	1.E+1	1.E+5
Sn-117m	1.E+2	1.E+6		(10.4 分)		
Sn-119m	1.E+3	1.E+7		Sb-129	1.E+1	1.E+6
Sn-121	1.E+5	1.E+7		Sb-130	1.E+1	1.E+5
Sn-121m+	1.E+3	1.E+7		Sb-131	1.E+1	1.E+6
Sn-123	1.E+3	1.E+6		碲		
Sn-123m	1.E+2	1.E+6		Te-116	1.E+2	1.E+7
Sn-125	1.E+2	1.E+5		Te-121	1.E+1	1.E+6
Sn-126+	1.E+1	1.E+5		Te-121m	1.E+2	1.E+6
Sn-127	1.E+1	1.E+6		Te-123	1.E+3	1.E+6
Sn-128	1.E+1	1.E+6		Te-123m	1.E+2	1.E+7
绨				Te-125m	1.E+3	1.E+7
Sb-115	1.E+1	1.E+6		Te-127	1.E+3	1.E+6
Sb-116	1.E+1	1.E+6		Te-127m	1.E+3	1.E+7
Sb-116m	1.E+1	1.E+5		Te-129	1.E+2	1.E+6

1			1	1	· · ·	
核 種 名 稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	
Te-129m	1.E+3	1.E+6	Xe-129m	1.E+3	1.E+4	
Te-131	1.E+2	1.E+5	Xe-131m	1.E+4	1.E+4	
Te-131m	1.E+1	1.E+6	Xe-133	1.E+3	1.E+4	
Te-132	1.E+2	1.E+7	Xe-133m	1.E+3	1.E+4	
Te-133	1.E+1	1.E+5	Xe-135	1.E+3	1.E+10	
Te-133m	1.E+1	1.E+5	Xe-135m	1.E+2	1.E+9	
Te-134	1.E+1	1.E+6	Xe-138	1.E+2	1.E+9	
碘			銫			
I-120	1.E+1	1.E+5	Cs-125	1.E+1	1.E+4	
I-120m	1.E+1	1.E+5	Cs-127	1.E+2	1.E+5	
I-121	1.E+2	1.E+6	Cs-129	1.E+2	1.E+5	
I-123	1.E+2	1.E+7	Cs-130	1.E+2	1.E+6	
I-124	1.E+1	1.E+6	Cs-131	1.E+3	1.E+6	
I-125	1.E+3	1.E+6	Cs-132	1.E+1	1.E+5	
I-126	1.E+2	1.E+6	Cs-134	1.E+1	1.E+4	
I-128	1.E+2	1.E+5	Cs-134m	1.E+3	1.E+5	
I-129	1.E+2	1.E+5	Cs-135	1.E+4	1.E+7	
I-130	1.E+1	1.E+6	Cs-135m	1.E+1	1.E+6	
I-131	1.E+2	1.E+6	Cs-136	1.E+1	1.E+5	
I-132	1.E+1	1.E+5	Cs-137+	1.E+1	1.E+4	
I-132m	1.E+2	1.E+6	Cs-138	1.E+1	1.E+4	
I-133	1.E+1	1.E+6	鋇			
I-134	1.E+1	1.E+5	Ba-126	1.E+2	1.E+7	
I-135	1.E+1	1.E+6	Ba-128	1.E+2	1.E+7	
氙			Ba-131	1.E+2	1.E+6	
Xe-120	1.E+2	1.E+9	Ba-131m	1.E+2	1.E+7	
Xe-121	1.E+2	1.E+9	Ba-133	1.E+2	1.E+6	
Xe-122+	1.E+2	1.E+9	Ba-133m	1.E+2	1.E+6	
Xe-123	1.E+2	1.E+9	Ba-135m	1.E+2	1.E+6	
Xe-125	1.E+3	1.E+9	Ba-137m	1.E+1	1.E+6	
Xe-127	1.E+3	1.E+5	Ba-139	1.E+2	1.E+5	
1		1	1	1		1
--------------------	------------------------	---------------------	---	---------------------	------------------------	---------------------
核 種 名 稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)		核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Ba-140+	1.E+1	1.E+5		Pr-145	1.E+3	1.E+5
Ba-141	1.E+1	1.E+5		Pr-147	1.E+1	1.E+5
Ba-142	1.E+1	1.E+6		釹		
鐗				Nd-136	1.E+2	1.E+6
La-131	1.E+1	1.E+6		Nd-138	1.E+3	1.E+7
La-132	1.E+1	1.E+6		Nd-139	1.E+2	1.E+6
La-135	1.E+3	1.E+7		Nd-139m	1.E+1	1.E+6
La-137	1.E+3	1.E+7		Nd-141	1.E+2	1.E+7
La-138	1.E+1	1.E+6		Nd-147	1.E+2	1.E+6
La-140	1.E+1	1.E+5		Nd-149	1.E+2	1.E+6
La-141	1.E+2	1.E+5		Nd-151	1.E+1	1.E+5
La-142	1.E+1	1.E+5		鉕		
La-143	1.E+2	1.E+5		Pm-141	1.E+1	1.E+5
鈰				Pm-143	1.E+2	1.E+6
Ce-134	1.E+3	1.E+7		Pm-144	1.E+1	1.E+6
Ce-135	1.E+1	1.E+6		Pm-145	1.E+3	1.E+7
Ce-137	1.E+3	1.E+7		Pm-146	1.E+1	1.E+6
Ce-137m	1.E+3	1.E+6		Pm-147	1.E+4	1.E+7
Ce-139	1.E+2	1.E+6		Pm-148	1.E+1	1.E+5
Ce-141	1.E+2	1.E+7		Pm-148m+	1.E+1	1.E+6
Ce-143	1.E+2	1.E+6		Pm-149	1.E+3	1.E+6
Ce-144+	1.E+2	1.E+5		Pm-150	1.E+1	1.E+5
绪				Pm-151	1.E+2	1.E+6
Pr-136	1.E+1	1.E+5		釤		
Pr-137	1.E+2	1.E+6		Sm-141	1.E+1	1.E+5
Pr-138m	1.E+1	1.E+6		Sm-141m	1.E+1	1.E+6
Pr-139	1.E+2	1.E+7		Sm-142	1.E+2	1.E+7
Pr-142	1.E+2	1.E+5		Sm-145	1.E+2	1.E+7
Pr-142m	1.E+7	1.E+9		Sm-146	1.E+1	1.E+5
Pr-143	1.E+4	1.E+6		Sm-147	1.E+1	1.E+4
Pr-144	1.E+2	1.E+5		Sm-151	1.E+4	1.E+8

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Sm-153	1.E+2	1.E+6	Tb-147	1.E+1	1.E+6
Sm-155	1.E+2	1.E+6	Tb-149	1.E+1	1.E+6
Sm-156	1.E+2	1.E+6	ТЪ-150	1.E+1	1.E+6
銪			Tb-151	1.E+1	1.E+6
Eu-145	1.E+1	1.E+6	Tb-153	1.E+2	1.E+7
Eu-146	1.E+1	1.E+6	Tb-154	1.E+1	1.E+6
Eu-147	1.E+2	1.E+6	Tb-155	1.E+2	1.E+7
Eu-148	1.E+1	1.E+6	Tb-156	1.E+1	1.E+6
Eu-149	1.E+2	1.E+7	Tb-156m	1.E+3	1.E+7
Eu-150	1.E+1	1.E+6	(24.4 時)		
(34.2 年)			Tb-156m	1.E+4	1.E+7
Eu-150	1.E+3	1.E+6	(5時)		
(12.6 時)			ТЪ-157	1.E+4	1.E+7
Eu-152	1.E+1	1.E+6	Tb-158	1.E+1	1.E+6
Eu-152m	1.E+2	1.E+6	Tb-160	1.E+1	1.E+6
Eu-154	1.E+1	1.E+6	Tb-161	1.E+3	1.E+6
Eu-155	1.E+2	1.E+7	鏑		
Eu-156	1.E+1	1.E+6	Dy-155	1.E+1	1.E+6
Eu-157	1.E+2	1.E+6	Dy-157	1.E+2	1.E+6
Eu-158	1.E+1	1.E+5	Dy-159	1.E+3	1.E+7
釓			Dy-165	1.E+3	1.E+6
Gd-145	1.E+1	1.E+5	Dy-166	1.E+3	1.E+6
Gd-146+	1.E+1	1.E+6	釱		
Gd-147	1.E+1	1.E+6	Ho-155	1.E+2	1.E+6
Gd-148	1.E+1	1.E+4	Ho-157	1.E+2	1.E+6
Gd-149	1.E+2	1.E+6	Ho-159	1.E+2	1.E+6
Gd-151	1.E+2	1.E+7	Ho-161	1.E+2	1.E+7
Gd-152	1.E+1	1.E+4	Ho-162	1.E+2	1.E+7
Gd-153	1.E+2	1.E+7	Ho-162m	1.E+1	1.E+6
Gd-159	1.E+3	1.E+6	Ho-164	1.E+3	1.E+6
鉽			Ho-164m	1.E+3	1.E+7

1		1	 1	1	
核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Ho-166	1.E+3	1.E+5	Lu-173	1.E+2	1.E+7
Ho-166m	1.E+1	1.E+6	Lu-174	1.E+2	1.E+7
Ho-167	1.E+2	1.E+6	Lu-174m	1.E+2	1.E+7
鉺			Lu-176	1.E+2	1.E+6
Er-161	1.E+1	1.E+6	Lu-176m	1.E+3	1.E+6
Er-165	1.E+3	1.E+7	Lu-177	1.E+3	1.E+7
Er-169	1.E+4	1.E+7	Lu-177m	1.E+1	1.E+6
Er-171	1.E+2	1.E+6	Lu-178	1.E+2	1.E+5
Er-172	1.E+2	1.E+6	Lu-178m	1.E+1	1.E+5
鉣			Lu-179	1.E+3	1.E+6
Tm-162	1.E+1	1.E+6	鉿		
Tm-166	1.E+1	1.E+6	Hf-170	1.E+2	1.E+6
Tm-167	1.E+2	1.E+6	Hf-172+	1.E+1	1.E+6
Tm-170	1.E+3	1.E+6	Hf-173	1.E+2	1.E+6
Tm-171	1.E+4	1.E+8	Hf-175	1.E+2	1.E+6
Tm-172	1.E+2	1.E+6	Hf-177m	1.E+1	1.E+5
Tm-173	1.E+2	1.E+6	Hf-178m	1.E+1	1.E+6
Tm-175	1.E+1	1.E+6	Hf-179m	1.E+1	1.E+6
鏡			Hf-180m	1.E+1	1.E+6
Yb-162	1.E+2	1.E+7	Hf-181	1.E+1	1.E+6
Yb-166	1.E+2	1.E+7	Hf-182	1.E+2	1.E+6
Yb-167	1.E+2	1.E+6	Hf-182m	1.E+1	1.E+6
Yb-169	1.E+2	1.E+7	Hf-183	1.E+1	1.E+6
Yb-175	1.E+3	1.E+7	Hf-184	1.E+2	1.E+6
Yb-177	1.E+2	1.E+6	鉭		
Yb-178	1.E+3	1.E+6	Ta-172	1.E+1	1.E+6
鎦			Ta-173	1.E+1	1.E+6
Lu-169	1.E+1	1.E+6	Ta-174	1.E+1	1.E+6
Lu-170	1.E+1	1.E+6	Ta-175	1.E+1	1.E+6
Lu-171	1.E+1	1.E+6	Ta-176	1.E+1	1.E+6
Lu-172	1.E+1	1.E+6	Ta-177	1.E+2	1.E+7

					-	
核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)		核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Ta-178	1.E+1	1.E+6	1	Re-187	1.E+6	1.E+9
Ta-179	1.E+3	1.E+7	1	Re-188	1.E+2	1.E+5
Ta-180	1.E+1	1.E+6]	Re-188m	1.E+2	1.E+7
Ta-180m	1.E+3	1.E+7]	Re-189+	1.E+2	1.E+6
Ta-182	1.E+1	1.E+4]	鋨		
Ta-182m	1.E+2	1.E+6]	Os-180	1.E+2	1.E+7
Ta-183	1.E+2	1.E+6		Os-181	1.E+1	1.E+6
Ta-184	1.E+1	1.E+6		Os-182	1.E+2	1.E+6
Ta-185	1.E+2	1.E+5		Os-185	1.E+1	1.E+6
Ta-186	1.E+1	1.E+5		Os-189m	1.E+4	1.E+7
鎬				Os-191	1.E+2	1.E+7
W-176	1.E+2	1.E+6		Os-191m	1.E+3	1.E+7
W-177	1.E+1	1.E+6		Os-193	1.E+2	1.E+6
W-178+	1.E+1	1.E+6		Os-194+	1.E+2	1.E+5
W-179	1.E+2	1.E+7		銥		
W-181	1.E+3	1.E+7		Ir-182	1.E+1	1.E+5
W-185	1.E+4	1.E+7		Ir-184	1.E+1	1.E+6
W-187	1.E+2	1.E+6		Ir-185	1.E+1	1.E+6
W-188+	1.E+2	1.E+5		Ir-186	1.E+1	1.E+6
鋉				(15.8 時)		
Re-177	1.E+1	1.E+6		Ir-186	1.E+1	1.E+6
Re-178	1.E+1	1.E+6		(1.75 時)		
Re-181	1.E+1	1.E+6		Ir-187	1.E+2	1.E+6
Re-182	1.E+1	1.E+6		Ir-188	1.E+1	1.E+6
(64 時)				Ir-189+	1.E+2	1.E+7
Re-182	1.E+1	1.E+6		Ir-190	1.E+1	1.E+6
(12.7 時)				Ir-190m	1.E+1	1.E+6
Re-184	1.E+1	1.E+6		(3.1 時)		
Re-184m	1.E+2	1.E+6		Ir-190m	1.E+4	1.E+7
Re-186	1.E+3	1.E+6		(1.2 時)		
Re-186m	1.E+3	1.E+7		Ir-192	1.E+1	1.E+4

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Ir-192m	1.E+2	1.E+7	Hg-194+	1.E+1	1.E+6
Ir-193m	1.E+4	1.E+7	Hg-195	1.E+2	1.E+6
Ir-194	1.E+2	1.E+5	Hg-195m+(有機)	1.E+2	1.E+6
Ir-194m	1.E+1	1.E+6	Hg-195m+(無機)	1.E+2	1.E+6
Ir-195	1.E+2	1.E+6	Hg-197	1.E+2	1.E+7
Ir-195m	1.E+2	1.E+6	Hg-197m(有 機)	1.E+2	1.E+6
鉑			Hg-197m(無機)	1.E+2	1.E+6
Pt-186	1.E+1	1.E+6	Hg-199m	1.E+2	1.E+6
Pt-188+	1.E+1	1.E+6	Hg-203	1.E+2	1.E+5
Pt-189	1.E+2	1.E+6	鉈		
Pt-191	1.E+2	1.E+6	T1-194	1.E+1	1.E+6
Pt-193	1.E+4	1.E+7	T1-194m	1.E+1	1.E+6
Pt-193m	1.E+3	1.E+7	T1-195	1.E+1	1.E+6
Pt-195m	1.E+2	1.E+6	T1-197	1.E+2	1.E+6
Pt-197	1.E+3	1.E+6	T1-198	1.E+1	1.E+6
Pt-197m	1.E+2	1.E+6	T1-198m	1.E+1	1.E+6
Pt-199	1.E+2	1.E+6	T1-199	1.E+2	1.E+6
Pt-200	1.E+2	1.E+6	T1-200	1.E+1	1.E+6
金			T1-201	1.E+2	1.E+6
Au-193	1.E+2	1.E+7	T-202	1.E+2	1.E+6
Au-194	1.E+1	1.E+6	T1-204	1.E+4	1.E+4
Au-195	1.E+2	1.E+7	鉛		
Au-198	1.E+2	1.E+6	Pb-195m	1.E+1	1.E+6
Au-198m	1.E+1	1.E+6	Рb-198	1.E+2	1.E+6
Au-199	1.E+2	1.E+6	Рb-199	1.E+1	1.E+6
Au-200	1.E+2	1.E+5	Рb-200	1.E+2	1.E+6
Au-200m	1.E+1	1.E+6	Рb-201	1.E+1	1.E+6
Au-201	1.E+2	1.E+6	Рь-202	1.E+3	1.E+6
汞			Pb-202m	1.E+1	1.E+6
Hg-193	1.E+2	1.E+6	Рb-203	1.E+2	1.E+6
Hg-193m	1.E+1	1.E+6	Рb-205	1.E+4	1.E+7

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Рь-209	1.E+5	1.E+6	Fr-223	1.E+2	1.E+6
Pb-210+	1.E+1	1.E+4	氡		
Рb-211	1.E+2	1.E+6	Rn-220+	1.E+4	1.E+7
Pb-212+	1.E+1	1.E+5	Rn-222+	1.E+1	1.E+8
Pb-214	1.E+2	1.E+6	鐳		
鉍			Ra-223+	1.E+2	1.E+5
Bi-200	1.E+1	1.E+6	Ra-224+	1.E+1	1.E+5
Bi-201	1.E+1	1.E+6	Ra-225	1.E+2	1.E+5
Bi-202	1.E+1	1.E+6	Ra-226+	1.E+1	1.E+4
Bi-203	1.E+1	1.E+6	Ra-227	1.E+2	1.E+6
Bi-205	1.E+1	1.E+6	Ra-228+	1.E+1	1.E+5
Bi-206	1.E+1	1.E+5	錒		
Bi-207	1.E+1	1.E+6	Ac-224	1.E+2	1.E+6
Bi-210	1.E+3	1.E+6	Ac-225+	1.E+1	1.E+4
Bi-210m+	1.E+1	1.E+5	Ac-226	1.E+2	1.E+5
Bi-212+	1.E+1	1.E+5	Ac-227+	1.E-1	1.E+3
Bi-213	1.E+2	1.E+6	Ac-228	1.E+1	1.E+6
Bi-214	1.E+1	1.E+5	釷		
針			Th-226+	1.E+3	1.E+7
Po-203	1.E+1	1.E+6	Th-227	1.E+1	1.E+4
Po-205	1.E+1	1.E+6	Th-228+	1.E+0	1.E+4
Po-206	1.E+1	1.E+6	Th-229+	1.E+0	1.E+3
Po-207	1.E+1	1.E+6	Th-230	1.E+0	1.E+4
Po-208	1.E+1	1.E+4	Th-231	1.E+3	1.E+7
Po-209	1.E+1	1.E+4	Th-232	1.E+1	1.E+4
Po-210	1.E+1	1.E+4	Th-天 然	1.E+0	1.E+3
砈			Th-234+	1.E+3	1.E+5
At-207	1.E+1	1.E+6	鏷		
At-211	1.E+3	1.E+7	Pa-227	1.E+3	1.E+6
鍅			Pa-228	1.E+1	1.E+6
Fr-222	1.E+3	1.E+5	Pa-230	1.E+1	1.E+6

	动力在战斗子	的历代的月		动力放动了	100 to 100 (-1)
核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免官制 活度濃度 (貝克/克)	豁免官制 活 度 (貝克)	核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免官制 活度濃度 (貝克/克)	豁免 官制 活 度 (貝克)
Pa-231	1.E+0	1.E+3	鈽		
Pa-232	1.E+1	1.E+6	Pu-234	1.E+2	1.E+7
Pa-233	1.E+2	1.E+7	Pu-235	1.E+2	1.E+7
Pa-234	1.E+1	1.E+6	Pu-236	1.E+1	1.E+4
鈾			Pu-237	1.E+3	1.E+7
U-230+	1.E+1	1.E+5	Pu-238	1.E+0	1.E+4
U-231	1.E+2	1.E+7	Pu-239	1.E+0	1.E+4
U-232+	1.E+0	1.E+3	Pu-240	1.E+0	1.E+3
U-233	1.E+1	1.E+4	Pu-241	1.E+2	1.E+5
U-234	1.E+1	1.E+4	Pu-242	1.E+0	1.E+4
U-235+	1.E+1	1.E+4	Pu-243	1.E+3	1.E+7
U-236	1.E+1	1.E+4	Pu-244	1.E+0	1.E+4
U-237	1.E+2	1.E+6	Pu-245	1.E+2	1.E+6
U-238+	1.E+1	1.E+4	Pu-246	1.E+2	1.E+6
U-夭 然	1.E+0	1.E+3	鋂		
U-239	1.E+2	1.E+6	Am-237	1.E+2	1.E+6
U-240	1.E+3	1.E+7	Am-238	1.E+1	1.E+6
U-240+	1.E+1	1.E+6	Am-239	1.E+2	1.E+6
錼			Am-240	1.E+1	1.E+6
Np-232	1.E+1	1.E+6	Am-241	1.E+0	1.E+4
Np-233	1.E+2	1.E+7	Am-242	1.E+3	1.E+6
Np-234	1.E+1	1.E+6	Am-242m+	1.E+0	1.E+4
Np-235	1.E+3	1.E+7	Am-243+	1.E+0	1.E+3
Np-236	1.E+2	1.E+5	Am-244	1.E+1	1.E+6
(1.15E+5 年)			Am-244m	1.E+4	1.E+7
Np-236	1.E+3	1.E+7	Am-245	1.E+3	1.E+6
(22.5 時)			Am-246	1.E+1	1.E+5
Np-237+	1.E+0	1.E+3	Am-246m	1.E+1	1.E+6
Np-238	1.E+2	1.E+6	鋦		
Np-239	1.E+2	1.E+7	Cm-238	1.E+2	1.E+7
Np-240	1.E+1	1.E+6	Cm-240	1.E+2	1.E+5

核 種 名 稱 、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)	核種名稱、 符號、同位素	豁免管制 活度濃度 (貝克/克)	豁免管制 活 度 (貝克)
Cm-241	1.E+2	1.E+6	Es-254m	1.E+2	1.E+6
Cm-242	1.E+2	1.E+5	鑽		
Cm-243	1.E+0	1.E+4	Fm-252	1.E+3	1.E+6
Cm-244	1.E+1	1.E+4	Fm-253	1.E+2	1.E+6
Cm-245	1.E+0	1.E+3	Fm-254	1.E+4	1.E+7
Cm-246	1.E+0	1.E+3	Fm-255	1.E+3	1.E+6
Cm-247	1.E+0	1.E+4	Fm-257	1.E+1	1.E+5
Cm-248	1.E+0	1.E+3	卶		
Cm-249	1.E+3	1.E+6	Md-257	1.E+2	1.E+7
Cm-250	1.E-1	1.E+3	Md-258	1.E+2	1.E+5
釓			其他未列之放射	1.E-1	1.E+3
Bk-245	1.E+2	1.E+6	性核種(註1)		
Bk-246	1.E+1	1.E+6	註1:本表未列之	放射性核種	之豁免管制
Bk-247	1.E+0	1.E+4	量,除主管	於機關另有公	告者外,係
Bk-249	1.E+3	1.E+6	以本列之伯	直為準。	
Bk-250	1.E+1	1.E+6	註2:本表中核種	重字尾標示「	「+」或「天
鉲			然」者,代	表母核與子	核處於平衡
Cf-244	1.E+4	1.E+7	狀態,如下	- 表所列。此	時,本表係
Cf-246	1.E+3	1.E+6	只列出母相	亥之活度濃度	E及活度,但
Cf-248	1.E+1	1.E+4	業已考量于	子核的存在。	
Cf-249	1.E+0	1.E+3			
Cf-250	1.E+1	1.E+4			
Cf-251	1.E+0	1.E+3			
Cf-252	1.E+1	1.E+4			
Cf-253	1.E+2	1.E+5			
Cf-254	1.E+0	1.E+3			
鑁					
Es-250	1.E+2	1.E+6			
Es-251	1.E+2	1.E+7			
Es-253	1.E+2	1.E+5			
Es-254	1.E+1	1.E+4			