專題研究計畫成果報告 (□期中進度報告/☑期末報告)

放射性物質生產設施除污及除役規劃暨安全審查技術研究(1/2)

Studies on radiation protection aspects in decontamination and decommissioning of radioisotope production facilities (1/2)

定稿

計畫類別: ☑個別型計畫 □整合型計畫

計畫編號:AEC10812050L

執行期間: 109 年 02 月 04 日至 110 年 12 月 31 日

執行機構及系所:國立清華大學核子工程與科學研究所

計畫主持人: 許榮鈞

共同主持人:高潘福

計畫參與人員:房博文、謝瀅憶、王冠文、台灣醫用迴旋加速器學會成員

目錄

目	錄		I
圖	目	錄	Ш
表	目	錄	X
摘	要	`	1
Al	BS	TRACT	2
1	•	前言	3
2	•	目的	6
3	•	預期完成之工作項目與時程規劃	7
4 ·		結果與討論	9
	4.	1 規劃與文獻收集	9
		4.1.1 資料庫與驗證 (反應截面、中子/核種產率、劑量驗證)	
		4.1.2 模擬計算方法	
		4.1.3 設施活化計算(加速器本體、混凝土、環境空氣/水、自屏蔽效果)	
		2 諸經驗國資料收集	
		4.2.1 文獻處理經驗與處理導則	
		4.2.2 法規管制要求	
		4.2.2.1 迴旋加速器除役計畫之研討會-日本專家桝本和義	
		4.2.2.2 澳洲國家醫用迴旋加速器	
		4.2.2.3 日本國家精神病學與神經醫學研究中心小型醫用迴旋加速器拆卸工作報告	47
		4.2.2.4 歐盟委員會輻射防護 122 號報告 Radiation Protection 122	48
	4.3	3 國內設施資料收集	.51
		4.3.1 國內設施資料填寫與收集	.51
		4.3.2 國內設施資料匯總	.53
		4.3.3 國內生產設施特性統計	.62
	4.4	4 蒙地卡羅技術建立	.63
		4.4.1 中子產率驗證	.64
		4.4.2 核種活化驗證	.65
		4.4.3 劑量評估驗證	.67
		4.4.4 中子產率、中子劑量與氟-18 產率關聯性驗證	.69

冬考文獻	131
5、 結論與未來方向	127
4.7 109 年度會議論文	125
4.6 辦理教育訓練	
4.5.11 結論	120
4.5.10.5 1 年照射: 設施有	無自屏蔽之比較119
4.5.10.42 小時照射:設施	有無自屏蔽之比較118
4.5.10.3 有自屏蔽設施 ::	2 小時照射與 1 年照射之比較118
	2 小時照射與 1 年照射之比較116
4.5.10 混凝土中雜質的沒	舌化115
	· 注自屏蔽之比較114
	「無自屏蔽之比較112
	小時照射與 1 年照射之比較
	小時照射與1年照射之比較105
	小時照射與1年照射之比較
	N時照射與1年照射之比較94
	狀況93
	91
	一
	子分布狀況87
-	单能量的角度依存性86
_)反應截面與 TENDL-2019 的比較85
	面與 ¹⁸ O(p,xn)反應截面的關係82
4.5.3 靶材厚度對氟-18 /	奎率的影響81
4.5.2 靶材厚度對 ¹⁸ O(p,r	n) ¹⁸ F 反應截面的影響80
4.5.1 質子能量對 ¹⁸ O(p,r	n) ¹⁸ F 反應截面的影響78
4.5 參數靈敏度分析	78
4.4.6 有自屏蔽迴旋加速	器設施活化分析77
4.4.5 無自屏蔽迴旋加速	器設施活化分析74

圖目錄

邑	1.1. GE Healthcare (左) PETtrace 800 cyclotron、(右) MINItrace cyclotron。3
圖	1.2. IAEA 提出之除役計畫建立導則 [4.2.5]
圖	4.1. 30MeV 質子撞擊碳、鐵、銅及鉛靶產生之各角度中子能譜量測與模擬計
	算比較圖[4.1.1]14
圖	4.2. 經由中子量測和活化量測而得的 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面[4.1.2]15
圖	4.3. 模擬計算長期運轉後,混凝土牆內不同深度活化的長半衰期核種比活度
	[4.1.6]16
圖	4.4. MCNP6 模擬數據(帶圓圈的連續線)與經由 SAND II 程式處理不同照射位
	置的實驗數據(帶方形符號的虛線)對於中子通量率能譜的比較。[4.1.5] 18
圖	4.5. PHITS 加上輔助程式 DCHAIN-SP 模擬計算之流程圖[4.1.8]19
圖	4.6. Ar-40 捕獲中子量與室內空間體積邊緣長度的關係31
圖	4.7. 典型的深度比活度剖面圖(VUB 迴旋加速器照射室 2)[4.2.1]33
圖	4.8. 一個總體廢棄物管理策略的範例及相對應廢棄物處理步驟
圖	4.9. IAEA 安全標準導則 49 號報告中除役計畫整體重要概念與需求之範例
	[4.2.5]
圖	4.10. 左圖為 FLUKA 使用之模型,利用 $30~MeV$ 質子束轟擊銅靶,並在 $0~度$
	至 90 度分別計讀中子通量,中圖之中子通量與右圖中紅線之趨勢吻合。
	65
圖	4.11. 文獻量測、理論計算與 FLUKA 計算結果比較[4.4.4]
圖	4.12. FLUKA 模擬製藥期間以 16.5 MeV, 1.6 - 5 nA 質子照射一小時,照射室
	內劑量分布,數字為 FHT-752 中子劑量計的放置位置[4.1.7]70
圖	4.13. Angelo Infantino 等人於照射室中的偵檢器擺放位置,FLUKA 模擬中的
	周圍等效劑量計讀位置與此圖相同。[4.1.4]71
圖	4.14. FHT-752 中子劑量計的量測結果與 FLUKA 的結果比較,在計讀的 12 個
	位置當中,實驗與模擬的結果均在一個標準差之內。[4.1.4]71
圖	4.15. CR39 TLD 中子劑量計的量測結果與 FLUKA 的結果比較,在計讀的 12
	點位置當中,實驗與模擬的結果均在一個標準差之內。[4.1.4]72
圖	4.16. 參考 Cyclone® KIUBE 於 FLUKA 建立之氧-18 水靶,單位為 mm74
圖	4.17. 加速器剖面圖 (左) 上視圖 (右) 側視圖 縱坐標及橫坐標為 50 cm/格75

4.18. 無自屏蔽加速器室剖面圖 (左)上視圖 (右)側視圖 縱坐標及橫坐標為
100 cm/格76
4.19. 加速器室剖面圖 (左)上視圖 (右)側視圖 縱坐標及橫坐標為 100 cm/格,
加速器本體設計與無自屏設定中之加速器相同,惟增加含硼之聚乙烯(紛
色)、鉛(灰色)、含硼之水(橘色)做為自屏蔽78
4.20. 利用 2-30 MeV 質子束轟擊 $10/50~\mu m$ 的氧- $18~\kappa$ 靶,計算生成氟- $18~\kappa$
反應截面,2-10 MeV 結果差距較大是肇因於 FLUKA 物理模型限制,15
MeV 以上兩者數值大致相符79
4.21. 圖 4.20 局部放大,紅點對應到入射質子能量,誤差線則代表出口端質子
平均能量,利用 10 μm 的靶材厚度不會造成過多的質子能量損失80
4.22. 質子轟擊氧-18 水靶之氟-18 生成量,紅線為 IAEA-TECDOC-1211 報告,
藍色為 FLUKA 模擬結果82
4.23. 質子能量對 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面與中子生成反應截面的關係,以 9 MeV
為分界點呈現不同的趨勢82
4.24. ENDF 資料針對質子轟擊氧-18 可能生成中子之反應及反應截面,除了標
注 IAEA 資料庫者,其餘皆為 TENDL-2019 資料83
4.25. ENDF 資料庫針對質子轟擊氧-18 產生中子的重要反應截面,10 mb 以上
之反應共有七種,藍標處為生成物同為 16O 的反應,在決定中子產率時需
額外注意84
4.26. 針對 $^{18}O(p,n+D)^{16}O$ 、 $^{18}O(p,2n+p)^{16}O$ 反應的中子生成加權因子訂定,約
色虛線分別為 10 MeV 及 13 MeV, 紫色實線為利用 RESNUCLE CARD 及
(4.5.2)式計算後之中子生成反應截面85
4.27. USRBDX/RESNUCLE/TENDL-2019 三者針對中子生成截面之比較,中
子生成加權因子已納入,上圖只考慮如圖 4.5.6 中之七種反應86
4.28. 中子計數模型,綠色為計數區間之球面帶,灰色虛線為每一個計數區間
邊界86
4.29.18 MeV 質子入射氧-18 水生成中子之角度分布及通量,可以發現前向散
射明顯,且能量多落在快中子區間87
4.30. 無自屏蔽設施之二次中子分布情形,質子由左而右轟擊氧-18 水靶,可
以觀察到較多的中子進入前向混凝土88

画	4.31.	前向混	凝土的口	P于/快车	一于/超熱	中于/熱口	P于迪重	随深度	的分布	,於淺僧
	8	寺以快中	子最多	,並逐漸	減少;超	熱中子與	與熱中子	-則可觀	察到明紀	顯的增建
	F	益,該增	建區為物	央中子因	碰撞減速	後進入	超熱中子	與熱中	子能群	的貢獻。
										89
置					子/超熱					
	白	り増建 區	仍然存	在,但走	B熱中子:	增建區則]因中子	能量的	軟化而き	丘乎消失
										90
昌	4.33.	屋頂混	凝土的口	中子/快中	'子/超熱	中子/熱口	中子通量	隨深度	的分布	,表面混
	冼	是土的平	·均中子角	能量高於	側牆混凝	是土表面	中子能量	量,但低	於前向沒	昆凝土表
	重	面中子能	量。超熱	热中子增	建區的效	に 應亦介な	於側牆泪	2凝土與	前向混	疑土之間
										91
昌	4.34.	有自屏	蔽設施之	之二次中	子分布情	形,在自	自屏蔽中	依然可	以發現經	顯著的中
	于	子前向 散	射特性	,二次中	子經過自	屏蔽的作	乍用後到	達混凝	土的中-	子通量亦
	н)	月顯降低	, 顯示	自屏蔽設	:計有助方	冷降低混	凝土活化	t		92
置	4.35.	有自屏	·蔽設施=	之二次中	子分布的	青形(側視	儿圖),在	足夠的	自屏蔽-	下以前向
	背	 致射之中	子最多	,地面方	向則因屏	 蔽較薄	弱,中子	進入混	凝土的起	趨勢顯著
										92
昌	4.36.	地面混	凝土的口	中子/快中	'子/超熱	中子/熱口	中子通量	隨深度	的分布	,由於混
	冼	是土表面	1快中子	通量較低	,超熱中	'子增建[區不明縣	頁,但熱	中子增强	建區仍然
	清	青晰可見	,							93
昌	4.37.	靶材的	活化分析	听組件位	置如左圖	副箭頭所 :	示。右圖	圓則為 5	0 毫安均	音連續照
	身	寸 1 年(紅色) 與	連續照	射 2 小日	寺(藍色)的	内靶材 活	化結果	隨冷卻日	時間的變
	11	上,冷箚	1時間大力	於 115.7	天(10 ⁷ 秒)後比活	度即趨方	 徐定。		95
圖	4.38.	50 毫安	培連續則	烈射2小	時(左圖)	與連續	照射14	年(右圖)	的靶材注	舌化核種
	E.	 查冷卻時	間的變色	化,較短	的冷卻日	寺間組件	比活度	主要由釔	こ-90 所]	貢獻,較
					4 貢獻組					
		•								
圖					分析。右					
—					· 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20					
			_	. , ,	件比活度					

圖 4.40.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的銅組件活化核
種隨冷卻時間的變化,較短的冷卻時間組件比活度主要由銅-64 及銅-66 所
貢獻,較長的冷卻時間則為由鈷-60及鎮-63貢獻組件比活度。鈷-60為文
獻建議之重要核種,故以紅字標示。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省
略。97
圖 4.41. 加速器組件中的氧化鐵活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅
色) 與連續照射 2 小時(藍色)的靶材活化結果隨冷卻時間的變化。98
圖 4.42. 50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的氧化鐵組件活
化核種隨冷卻時間的變化,2小時照射時短半衰期核種對於組件比活度仍
有貢獻,但在1年照射情節下,長半衰期核種累積之比活度已大幅超越短
衰期核種之比活度。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。98
圖 4.43. 無自屏蔽照射室中,(左)2 小時照射後加速器組件與混凝土的比活度比
較。(右)1 年照射後加速器組件與混凝土的比活度比較。冷卻時間在到達
30 年時(10 ⁹ 秒),比活度由高至低依序為靶材>銅組件>氧化鐵組件≈前向混
凝土>屋頂混凝土≈側牆混凝土99
圖 4.44. 靶材(左)、銅組件(中)及氧化鐵組件(右)在經過 2 小時照射後活度隨冷卻
時間的變化,紅線為無自屏蔽之照射室組件活化,藍線則為有自屏蔽之照
射室組件活化,除了靶材的比活度有些微的差異外,銅及氧化鐵組件的活
化在兩種屏蔽設計下無明顯差異100
圖 4.45. 靶材(左)、銅組件(中)及氧化鐵組件(右)在經過1年照射後活度隨冷卻時
間的變化,紅線為無自屏蔽之照射室組件活化,藍線則為有自屏蔽之照射
室組件活化,除了靶材的比活度有些微的差異外,銅及氧化鐵組件的活化
在兩種屏蔽設計下無明顯差異100
圖 4.46. 自屏蔽組件中的含硼聚乙烯活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1
年(紅色) 與連續照射2小時(藍色)的含硼聚乙烯活化結果隨冷卻時間的變
化。101
圖 4.47. 50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的含硼聚乙烯組
件活化核種隨冷卻時間的變化。由於鋰-8 經貝他衰變後生成鈹-8,又鈹-8
半衰期遠小於鋰-8,根據衰變連鎖反應,鈹-8的衰變曲線會與鋰-8重合。
對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。102

圖 4.48. 目屏敝組件甲的鉛屏敝沽化分析。右圖則為 50 毫妥培連續照射 I 年(紅
色) 與連續照射 2 小時(藍色)的鉛屏蔽活化結果隨冷卻時間的變化。103
圖 4.49.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的鉛屏蔽活化核
種隨冷卻時間的變化。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。103
圖 4.50. 自屏蔽組件中的含硼水屏蔽活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1
年(紅色)與連續照射2小時(藍色)的含硼水屏蔽活化結果隨冷卻時間的變
化。104
圖 4.51. 50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的含硼水屏蔽活
化核種隨冷卻時間的變化。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。104
圖 4.52. 有自屏蔽設計之照射室在 2 小時照射(左圖)與 1 年照射(右圖)後,各個
組件的活化狀況,加速器組件包含靶材、銅組件、氧化鐵組件的比活度依
然最高,自屏蔽材料包含含硼聚乙烯、鉛屏蔽、含硼水屏蔽的比活度則最
低。地面混凝土的活化狀況約略介於加速器組件與自屏蔽材料之間。105
圖 4.53. 無自屏設施中 0-1 公分的前向混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連
續照射1年(紅色)與連續照射2小時(藍色)的前向混凝土活化結果隨冷卻
時間的變化。106
圖 4.54.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施
中 0-1 公分前向混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。照射結束時,主要貢
獻核種為鋁-28,隨著冷卻時間增加逐漸改為由鈉-24、氫-37、鐵-55、氫-
39 等核種。錳-54 及鐵-55 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對
於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。107
圖 4.55. 無自屏設施中 0-1 公分的側牆混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連
續照射1年(紅色) 與連續照射2小時(藍色)的側牆混凝土活化結果隨冷卻
時間的變化。108
圖 4.56. 50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施
中 0-1 公分側牆混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為
鋁-28、鈉-24、鈣-45 及鐵-55,在1年照射中在長冷卻時間下氫-39的貢再
次變得重要。鐵-55 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對於比活
度貢獻較低核種已在圖中省略。108
圖 4.57. 2654Fe(n,p)2554Mn之反應截面, 錳-54 的產生由快中子貢獻, 反應能

	量閾值為 0.7 MeV109
昌	4.58. 無自屏設施中 0-1 公分的屋頂混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連
	續照射1年(紅色) 與連續照射2小時(藍色)的屋頂混凝土活化結果隨冷卻
	時間的變化。11(
圖	4.59.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施
	中 0-1 公分屋頂混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為
	鋁-28、鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39。鐵-55 及錳-54 為文獻中建諱
	之重要活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。
	110
圖	4.60. 有自屏設施中 0-1 公分的地面混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連
	續照射1年(紅色) 與連續照射2小時(藍色)的地面混凝土活化結果隨冷卻
	時間的變化。11
邑	4.61.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的有自屏蔽設施
	中 0-1 公分地面混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為
	鋁-28、鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39。鐵-55 為文獻中建議之重要
	活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。112
圖	4.62. 2 小時連續照射後無自屏蔽的前向混凝土(紅線)有自屏蔽的前向混凝土
	(藍線)的比活度比較,有自屏蔽的前向混凝土在 10° 個粒子的結果中沒有
	計讀到任何活化核種。113
圖	4.63. 2 小時連續照射後無自屏蔽的屋頂混凝土(紅線)有自屏蔽的地面混凝土
	(藍線)的比活度比較,有自屏蔽的地面混凝土活化分析結果中可以發現在
	冷卻時間較短時比活度均低於無自屏的地面混凝土,冷卻時間到達 30 年
	後比活度近乎相等114
圖	4.64. 1 年連續照射後無自屏蔽的前向混凝土(紅線)有自屏蔽的前向混凝土(藍
	線)的比活度比較,有自屏蔽的前向混凝土在 10 ⁹ 個粒子的模擬結果中沒有
	計讀到任何活化核種。114
圖	4.65. 1 年連續照射後無自屏蔽的屋頂混凝土(紅線)有自屏蔽的地面混凝土(藍
	線)的比活度比較,有自屏蔽的地面混凝土活化分析結果中可以發現在冷
	卻時間較短時比活度均低於無自屏的地面混凝土,此趨勢直到冷卻時間到
	達 30 年仍存在115

圖 4.66. 利用(4.5.5)式計算無自屏蔽模型的前向混凝土雜質比活度隨時間的變化
左圖為等效於 50 毫安培連續照射 2 小時後的雜質活化狀況,右圖為等效
於 50 毫安培連續照射 1 年後的雜質活化狀況。由於鐵-54 為 FLUKA 中波
特蘭水泥的固有材質,因此經過中子活化生成鐵-55 及錳-54,針對鐵-55
及錳-54的活化狀況,FLUKA模擬結果與理論計算差異小,確立理論計算
的可行性。117
圖 4.67. 利用(4.5.5)式計算所得之雜質比活度隨時間的變化。左圖為等效於 50 毫
安培連續照射2小時後地面混凝土表面的雜質活化狀況,右圖為等效於50
毫安培連續照射 1 年後地面混凝土表面的雜質活化狀況。FLUKA 模擬中
沒有計讀到錳-54 的活化,預期可以利用增加模擬次數的方式解決之。
118
圖 4.68. 利用 50 毫安培,18 MeV 質子連續照射 2 小時後的混凝土活化結果。左
圖為無自屏蔽的屋頂混凝土,右圖為有自屏蔽的地面混凝土。雜質的活化
結果與塊材活化結果有相近的趨勢,即無自屏蔽的活化較多,但差異並不
顯著119
圖 4.69. 利用 50 毫安培,18 MeV 質子連續照射 1 年後的混凝土活化結果。左圖
為無自屏蔽的屋頂混凝土,右圖為有自屏蔽的地面混凝土。雜質的活化結
果與塊材活化結果有相近的趨勢,即無自屏蔽的活化較多,但差異並不顯
著120
圖 4.70. 活動照片-許榮鈞老師向與會人員介紹蒙地卡羅的理論基礎124
圖 4.71. 109 年 11 月 21 日於台北榮民總醫院舉行之臺灣醫用迴旋加速器學會年
會之議程表125

表目錄

表 3.1. 專案進度及查核時程表	8
表 4.1. 收集文獻分類表(資料庫與驗證)	12
表 4.2. E. Hess 等人文獻中使用到的照射設施[4.1.2]	15
表 4.3. 該文獻模擬值與其參考的量測值之比較[4.1.6]	17
表 4.4. MCNP6 模擬得出迴旋加速器周圍三個不同位置的總中子通量	2率和熱中子
通量率(模擬統計誤差皆小於 1%)[4.1.5]	18
表 4.5. 飽和產率(實驗量測、Geant4 計算及 FLUKA 計算)之比較	與截面數據
(TENDL 與 EXFOR)之比較[4.1.9]	20
表 4.6. 收集文獻分類表(模擬計算方法)	22
表 4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)	26
表 4.8. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種[4.2.1]	33
表 4.9. 該報告所探討的三種加速器整個除役計畫預估之金額表(以	千歐元表示)
[4.2.1]	34
表 4.10. 放射性廢棄物分類	35
表 4.11. 常見醫用迴旋加速器產生正子放射性核種的核反應式	37
表 4.12. 加速器本體組件中常見的長半衰期活化核種	38
表 4.13. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種	38
表 4.14. 牆壁誘發活化核種與比活度[4.2.4]	39
表 4.15. 在屏蔽牆和地板處,因中子誘發反應產生的半衰期大於 30	天放射性的
核種[4.2.4]	40
表 4.16. 磁鐵殘餘活化核種比活度[4.2.4]	41
表 4.17. 加速腔中活化核種[4.2.4]	41
表 4.18. 基於 General clearance level 各核種在吸入、攝入、皮膚污染	《及體外曝露
路徑上所造成的個人年有效劑量率[4.2.8]	50
表 4.19. 放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史調查表設施單	-位填寫數據
	51
表 4.20. 設施運轉歷史使用狀況填寫數據表	52
表 4.21. 設施運轉歷史使用狀況匯總表	53
表 4.22. 各設施文件收集狀況、設備特性與運轉參數表	54

表 4.23. 各設施對應靶號、生產核種、靶材、照射能量、靶電流與最大生產活度
I(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)55
表 4.24. 各設施對應靶號、生產核種、靶材、照射能量、靶電流與最大生產活度
II(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)56
表 4.25. 各設施對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質與靶窗厚度 I(為保護
各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)57
表 4.26. 各設施對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質與靶窗厚度 II(為保護
各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)58
表 4.27. 各設施對應靶號、生產核種、歷年資料、靶電流、照射時間與生產活度
(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)59
表 4.28. 國內生產設施廠牌及型號分類62
表 4.29. 各設施加速粒子能量統計62
表 4.30. 各設施使用的靶體材料統計63
表 4.31. 各設施靶所採用的最大靶電流統計63
表 4.32. 利用 30 MeV 轟擊 50μm 之銅靶之結果[4.4.2]66
表 4.33. 利用 30 MeV 轟擊 20μm 之鐵靶之結果[4.4.3]67
表 4.34. 三種不同的預設模物理模型與質子遷移能量閾值表格與 IAEA 報告比較
之結果。以 NEW-DEFA, 1 MeV 設定是最有效率的設定[4.1.7]69
表 4.35. FLUKA 模擬中子劑量率與實驗之比較結果, FLUKA 與 FHT-752 量測比
值約為 1.01[4.1.7]70
表 4.36.18-20 μA 13 MeV 質子束轟擊氧-18 液態水靶產率實驗量測結果與 FLUKA
模擬結果比較73
表 4.37. Y _{CS} 為利用理論計算之氟-18 產率,FLUKA 模擬計算與理論計算約有 20%
的氟-18 產量高估;實驗量測結果與理論計算結果則約有 73%的誤差。
[4.1.3]74
表 4.38. FLUKA 波特蘭水泥材料組成76
表 4.39. 參考文獻中建議之混凝中重要活化核種,由於下列核種均源於混凝土中
之雜質,因此在活化分析中需要額外計算之77
表 4.40. 每年外釋過一公噸之廢棄物比活度限值(貝克/克)(節錄)99
表 4.41. 文獻中建議在分析混凝土活化時必須關注的長半衰期核種,其半衰期短

至約1年,長至約13.5年。	116
表 4.42. 參數靈敏度分析中影響二次中子生成及混凝土活化之重要參數	122
表 4.43. 教育訓練課程大綱	123
表 4.44. 陳皇龍與房博文與 109 年 11 月 21 日臺灣醫用迴旋加速器學會年	會之講
師簡歷與報告摘要	126

摘要

目前國內共設有13部迴旋加速器放射性物質生產設施,其粒子能量介在9.6-30 MeV 之間,且其中過半數設施自投入營運迄今已逾 15 年。由於迴旋加速器生 產設施在運轉過程中因核反應誘發二次中子生成,二次中子輻射再造成迴旋加速 器本體、屏蔽或建築物結構體等不同程度的活化。隨著設施建物或加速器本身逐 漸接近使用生命規劃週期,終將面臨永久停用問題,關於放射活化殘存量評估技 術及設施除役技術將是未來管制的重點,國內有必要逐步建置生產設施除役相關 導則與技術建議,包括:除役規劃策略與放射活化殘存量的評估量測等等。本計 畫目標對國內迴旋加速器放射性物質生產設施進行運轉歷程調查、放射性活化評 估與量測驗證,據以提出除役計畫撰寫導則建議與除役輻射安全審查導則建議。 其中放射性活化評估使用先進的蒙地卡羅模擬分析,依設施參數調查結果,用以 模擬評估加速器設施之放射活化污染潛勢情形,據以探討加速器組件、設施周遭 介質與建物結構體等的活化影響。依照計劃書規畫,本年度已完成國際文獻、諸 經驗國資料與國內設施運轉歷史的收集,另外有關放射性活化評估技術的部分, 本團隊成功建立蒙地卡羅分析技術並進行一系列相關參數靈敏度分析。最後彙整 研究成果辦理一場迴旋加速器放射性物質生產設施除役放射活化分析技術的教 育訓練,有利結合產官學界力量共同建立國內自主管理與審查技術。

Abstract

At present, there are 13 cyclotron-based radionuclide production facilities in Taiwan, whose particle energies are between 9.6-30 MeV, and more than half of them have been in operation for more than 15 years. Secondary neutrons are generated through nuclear reactions during the cyclotron operation and those secondary neutrons potentially induce material activation in the cyclotron body and shield structure to varying degrees. As many of these facilities are approaching the end of their lifetime, studies on radiation protection aspects in decontamination and decommissioning of radioisotope production facilities are deemed to be important and necessary for both the facility owners and regulatory agencies. The project aims to collect the operation history, to quantify the potential of material activation, to develop verification techniques for decommissioning of domestic cyclotron facilities. Assessment of radioactive residual activities in materials around the cyclotrons is the focus of this project. In addition, related guidelines and technical recommendations supporting for decommissioning activities will be proposed, including decommissioning planning strategies, assessment, and measurement of radioactive residual activities, etc. According to the survey result of machine specifications and technical parameters, advanced Monte Carlo simulation codes were used to predict the magnitude and trend of material activation for domestic cyclotrons. At this moment, we have finished the following working iterms: literature collection and review including data from various countries with experience and operation histories of domestic facilities. Two major tasks related to technology development, i.e., Monte Carlo techniques and sensitivity studies for material activation, were also successfully conducted. The results and experience obtained in this study will be beneficial to all parties involved in decommissioning of radioisotope production facilities.

1、前言

回顧我國迴旋加速器放射性物質生產設施之運轉歷史,國內首座生產設施, 係民國 81 年臺北榮民總醫院興建之國家多用途迴旋加速器中心,自興建運轉迄 今已逾28年。其後隨國家全民健康保險政策的興辦,國人對健康日益重視,高 階醫療對輻射應用的需求也隨之增加,近年仍陸續有生產設施投入營運,截至 109 年 11 月止,國內按地理位置自北而南、由西向東分布,包括臺北榮民總醫 院、新光醫療財團法人新光吳火獅紀念醫院、國立臺灣大學醫學院附設醫院、三 軍總醫院、士宣生技股份有限公司、長庚醫療財團法人林口長庚紀念醫院、行政 院原子能委員會核能研究所、中山醫學大學附設醫院、臺灣新吉美碩股份有限公 司、義大醫療財團法人義大醫院、阮綜合醫療社團法人阮綜合醫院,以及佛教慈 濟醫療財團法人花蓮慈濟醫院等,合計有 12 家公私立機構(設施經營者),共設 有 13 部迴旋加速器放射性物質生產設施,最大加速能量介在 9.6-30 MeV 之間, 且其中過半數設施自投入營運迄今已逾 15 年。以美國 GE 公司所提供的迴旋加 速器放射性物質生產機型為例,圖 1.1 左邊顯示 PETtrace 迴旋加速器,圖右邊顯 示 MINItrace 迴旋加速器。從輻射屏蔽設計的角度來看, PETtrace 本體若無自屏 蔽的設計,則必須仰賴建物以達到屏蔽的功能;MINItrace 本身具有自屏蔽的設 計,可以大幅減輕建物屏蔽的負擔。從物質潛在活化的角度來看,具有自屏蔽設 計的迴旋加速器應可大幅減少建物被活化的程度。





圖1.1. GE Healthcare (左) PETtrace 800 cyclotron、(右) MINItrace cyclotron。 [資料來源:https://www.gehealthcare.com]

由於迴旋加速器生產設施在運轉過程中因核反應誘發二次中子生成,二次中子輻射再造成迴旋加速器本體、屏蔽或建築物結構體等不同程度的活化。隨著設施建物或加速器本身逐漸接近使用生命規劃週期,終將面臨永久停用問題,或因應設施場所利用目的變更而有拆遷變更場址的需求問題,關於活化殘存量評估技術及設施除役技術,已在業界逐漸形成討論焦點,因此在未來幾年,國內有必要逐步建置生產設施除役的相關處理導則與技術建議,包括:除役規劃策略、活化殘存量的評估量測與決策、拆除方法、清理(除污)方法等,同時,亦應建立除役相關審檢查技術與外釋規範,俾利輔導設施經營者完成設施除役作業,供場所再利用。

參考 IAEA SSG-49 號報告[4.2.5],放射性物質生產設施之除役,其最高指導原則即確保參與除役人員、民眾及環境三大方面的安全,並確立安全基準(safety standards)。安全基準包含:基本安全原則(Fundamental safety principles)、安全要求(safety requirement)、安全指南(safety guides)。基本安全原則規範針對工作人員、大眾及環境的防護及安全目標(objective)及原則(principles),並提供安全要求建立的依據(basis);安全要求依照基本安全原則建立,規範除役工作必須透過合理措施確立在除役期間及未來的民眾及環境安全之基準。安全指南包含國際間的除役經驗及建議,可供除役從業人員參考並實施,以追求符合安全要求規範的除役措施。

有鑑於 IAEA 報告中對於除役相關工作安全的重視,針對除役工作的計畫建立亦提出如圖 1.2 的計畫建立導則,IAEA 建議於設施興建時提出第一期設施除役報告,其中包含設施生命週期屆滿時之初步除役規劃;於設施開始運轉之後,提出第二期設施除役報告,第二期內容建立在第一期的基礎之上,並針對設施運轉之狀況、特性、運轉歷史資料作紀錄,以供未來除役工作時之參考;第三期報告則在設施停止運轉前提出,其內容包含除役工作時可能造成的環境衝擊評估及人員安全評估,同時第三期報告應送交審查,以供主管機關持續管制。文中並指出現今運轉中設施但尚未建立除役報告者,更應盡早為之。

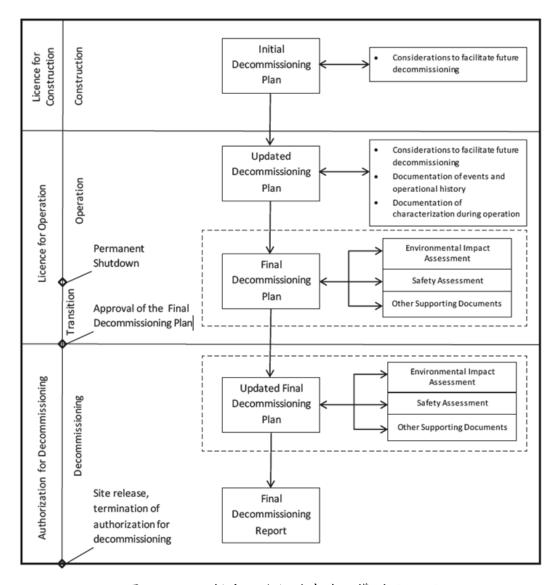


圖1.2. IAEA 提出之除役計畫建立導則 [4.2.5]

2、目的

鑒於目前國內共設有 13 部迴旋加速器放射性物質生產設施,其粒子能量介 在 9.6-30 MeV 之間,且其中過半數設施自投入營運迄今已逾 15 年。由於迴旋加 速器生產設施在運轉過程中因核反應誘發二次中子生成,二次中子輻射再造成迴 旋加速器本體、屏蔽或建築物結構體等依序有著不同程度的活化,成為輻射防護、 場所除污與設施除役的一大難題。隨著加速器本身逐漸接近使用生命週期期限, 終將面臨永久停用的問題,或因應設施場所利用目的變更而有拆遷變更場址的需 求問題,這些關於活化殘存量評估技術及設施除役技術,早已是世界上醫療先進 國家與國際組織重視之問題(如:IAEA 國際原子能總署於 SSG-49 號報告提出 多項關於設施除役的指導原則與安全基準),且在業界逐漸形成討論焦點,因此 在未來幾年,國內有必要逐步建置生產設施除役的相關處理導則與技術建議,於 是活化殘存量評估技術及設施除役技術將是未來管制的重點,包括:除役規劃策 略、活化殘存量的評估量測與決策、拆除方法、清理除污方法等。本研究將引入 最先進的蒙地卡羅模擬分析方法,依照設施參數的調查結果,用以模擬評估加速 器設施之活化污染潛在情形,據以探討加速器組件、設施周遭介質與建物結構體 等的活化影響程度。本計書目標對國內迴旋加速器放射性物質生產設施進行運轉 歷程調查、放射性活化情形評估與量測驗證,據以提出除役計書撰寫導則建議與 除役輻射安全審查導則建議,俾利輔導設施經營者順利完成設施除役作業。

3、預期完成之工作項目與時程規劃

本年度(109年)主要工作項目包括:(1)針對迴旋加速器放射性物質生產設施, 蒐集研析放射性活化分析影響或除役相關之國際學術文獻或技術報告;(2)針對 迴旋加速器放射性物質生產設施,探討諸經驗國對除役之法規管制要求、技術措 施與處理實例,擷取相關經驗回饋我國以利參考;(3)蒐集並參考國內迴旋加速器 放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史狀況,歸納建立模擬參數基礎資料庫; (4)引入蒙地卡羅數值模擬運算分析方法,依前述模擬參數基礎資料庫,用以模擬 評估加速器設施之活化污染潛勢情形,據以探討加速器組件、設施周遭介質與建 物結構體等的活化影響;(5)對上述模擬參數基礎資料庫,進行參數靈敏度分析, 歸納靈敏性參數類別及說明;(6)根據本研究的成果與經驗,辦理迴旋加速器放射 性物質生產設施除役活化分析技術教育訓練。

為了達成上述事項並達到計畫預期目標,本計畫採取下列方法與步驟進行:

- 針對迴旋加速器放射性物質生產設施的除役管理與規劃,本團隊蒐集研析相關原廠商的技術規格、國際學術文獻包括期刊與會議論文、諸經驗國(例如:日本、歐洲等)管制法規或技術報告、以及國際核能與輻射相關組織文件,例如 IAEA、ICRP或 NCRP等。
- 2. 本計畫透過台灣醫用迴旋加速器學會來調查並蒐集國內迴旋加速器放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史狀況,歸納建立模擬參數基礎資料庫。根據執行活化分析計算所需相關資訊,設定收集項目包括:加速器型式、加速器本體與周圍組件主要材質、屏蔽建物主要材質、靶材類型與使用狀況說明、核准之最大加速能量、實際最大生產活度與照射時間、實際平均生產活度與照射時間,及加速器附自體屏蔽之有無。蒐集調查方法以電話諮詢或問卷調查為主,若有需求或設施有意願配合則前往訪視。針對設施資訊收集的項目,計畫執行期間,視實際狀況若有增刪擴充之需求時,則會同主管機關召開技術討論會議議訂之。
- 3. 針對建立蒙地卡羅活化分析的技術,本研究先利用一系列有相對可靠性的實驗數據支持活化案例,以有系統的方式驗證蒙地卡羅遷移程式用在計算中子產率與物質活化的模擬能力。
- 4. 立基於上述驗證過之物理模型與參數設定,本研究建立不同能量射束與不同

靶材作用產生中子與物質活化情形的蒙地卡羅評估模式。

- 5. 本研究透過一系列參數靈敏性的研究,連結加速器組件活化程度與眾多因子 間的影響程度,相關結果預期可做為醫用迴旋加速器除役規劃之參考。
- 6. 彙整年度成果與經驗,邀請講員辦理迴旋加速器放射性物質生產設施除役活 化分析技術教育訓練。

針對前述工作項目,本團隊規劃下表 3.1 時程並順利完成規劃中的各個項目:

表3.1. 專案進度及查核時程表

R.													
年月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	備註
工作項目													
規劃與文獻收集			*										*期初查核點
諸經驗國資料收集													
國內設施資料收集							*						*期中查核點
蒙地卡羅技術建立													
參數靈敏度分析											*		*期末查核點
辦理教育訓練													
工作進度估計百分													*對應的項目為各
比	5%	10%	15%	20%	30%	40%	50%	60%	70%	80%	90%	100%	查核點重點討論
(累積數)													項目

4、結果與討論

4.1 規劃與文獻收集

針對迴旋加速器放射性物質生產設施,蒐集研析放射性活化分析影響或除役相關之國際學術文獻或技術報告,例如:IAEA Specific Safety Guide No. SSG-49:「Decommissioning of Medical, Industrial and Research Facilities」等,同時,利用文獻回顧的機會,瞭解蒙地卡羅模擬程式處理放射性活化分析時的適用性及準確度,確立本年度蒙地卡羅技術模型建立的參考及依據。並參照文獻中的理論計算、實驗量測、蒙地卡羅模擬三者間的結果差異,以實驗量測結果為參照,瞭解理論計算及蒙地卡羅模擬結果之必要的修正及討論。

由於 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應已表明利用質子轟擊氧-18 製備氟-18 時,一單位的氟-18 等效於一單位的中子生成,針對中子可能造成的環境活化,除了直接分析氟-18 製備生產期間的中子通量,亦可以間接利用氟-18 的生產活度(End of Bombardment, EOB)得到中子產率,基於上述想法,針對文獻的收集亦可自氟-18 的產率出發,俾利文獻收集的豐富以及相互驗證之可行性。

本項工作亦收集國外已除役設施之相關技術文件,藉由其除役過程之報告及數據分析,了解除役過程之關鍵任務及活化物產出之分析及數量,以作為日後國內相關設施除役導則撰寫之參考。已除役設施之相關技術文件以盡可能涵蓋10/20/30MeV不同加速能量之設施,以適應國內現有13部設施加速能量涵蓋範圍,同時亦盡可能收集有自屏蔽及無自屏蔽的設施除役文獻,俾利國內不同屏蔽設計之設施有所依循。

目前本團隊已蒐集 20 餘篇針對迴旋加速器活化分析相關的國際文獻。射束能量涵蓋範圍從 7~52 MeV,領域應用包含醫療用途及研究用途。針對這幾篇文獻的相關性大致以三個主題作為分類—【資料庫與驗證 (反應截面、中子/核種產率、劑量驗證)】、【模擬計算方法】及【設施活化計算(加速器本體、混凝土、環境空氣/水、自屏蔽效果)】,分別依序作討論。

收集之文獻以下表 4.1~表 4.7 作分類, 俾利國內設施可快速參考。

4.1.1 資料庫與驗證 (反應截面、中子/核種產率、劑量驗證)

在計算迴旋加速器活化之前,應先考量最初始迴旋加速器加速荷電粒子與物質元素產生核反應的相關資訊,故在本節主要參考國際文獻有關迴旋加速器在 ¹⁸O(p, n)¹⁸F 的反應截面、照射室內周圍中子通量、反應核種產率與室內周圍劑量驗證的量測與計算。

收集之文獻以表 4.1 作分類,文獻抬頭(英文)、文獻抬頭(中文)、作者、出處年代、國家、加速器相關:機型、能量(MeV)、使用年限、射束損失(μA*hr)/yr、自屏蔽有無;活化:活化模擬計算有無、活化量測數據有無;除役過程說明有無;法規管制要求/章節有無;資料庫與驗證(反應截面、中子/核種產率、劑量驗證);摘要。 俾利國內設施可快速參考,並額外或選擇其中相關文獻加以文字說明。

整體而言,摘要文獻中與本計畫相關的結論如下:

- (1) 量測而得的反應截面,也被 IAEA 組織所採用,可提供正確或合理的反應截面資料庫或核模型以供驗證。(E. Hess et al.,2001)
- (2) 大的水靶體積導致 F-18 放射性同位素的產率更高,並且導致的中子劑量更低, 中子能譜較弱。(Ming-Jay Kuo et al.,2011)
- (3) 利用 FLUKA version2011.2b.6 分析醫用迴旋加速器相關的核種產率及周圍等效劑量,與活化上參數的最佳化分析。提供我們將來在使用 FLUKA 模擬活化分析上信心及參考。(Angelo Infantino et al.,2015)
- (4) 在 TRIUMF 的 TR13 迴旋加速器上收集的產率實驗數據與直接模擬的數據相差 0.6±0.4 倍,除了 Co-55 的產率。在 Co-55 的模擬中,低估實驗值 3.4±0.4 的倍數。總體而言,證實了 FLUKA 在 13 MeV 質子束能量下模擬放射性核種產生的 適用性。(Angelo Infantino et al.,2016)
- (5) 中子周圍等效劑量 H*(10)的評估結果與實驗測量結果非常吻合:在 12 個測量位置中的 10 個中,FLUKA 模擬與所有三組不同的實驗數據在不確定性範圍內一致。(Angelo Infantino et al.,2016)
- (6) 使用 PHITS 蒙地卡羅計算程式 (用於中子遷移)和 DCHAIN-SP (用於活化計算)來模擬迴旋加速器室內中子的空間劑量分佈和活化事件。 計算結果與測量值的有相當的一致性,在 3 倍以內。(Kazuyoshi Masumoto et al,2017)
- (7) 實驗值與 MCNP6 模擬計算值得到之中子能譜非常吻合,可在此基礎上進行進一步的研究。(D. Alloni et al.,2017)

- (8) 使用 Geant4 MC code 模擬 13MeV 醫用迴旋加速器產生正子放射性核種之產率。 其結果與其他文獻研究使用過的 FLUKA 模擬計算值與文獻實驗值做比較。比 較結果中顯示在不同核種間有很大不同程度的吻合。(T. Amin et al.,2018)
- (9) 可利用 MCNP6 模型來改善迴旋加速器靶系統的性能或相關驗證。(Amy Hall et al..,2020)

表4.1. 收集文獻分類表(資料庫與驗證)

								加速器				活化				
文獻抬頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出表	年代	田家	機型	能量 (MeV)	使用年限		界蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化量测数键有集	除役 過程説明 有無	法规管制 要求/章 節 有無	資料库與驗證(反應截面、中子, 核種產率、劑量驗證)	稍要
Excitation function of the ¹⁸ O(p,n) ¹⁸ F nuclear reaction from threshold up to 30MeV	的 ¹⁸ O(p,n) ¹⁸ F核反應	E. Hess et al.	Radiochimica Acta 89(6)	2001	Germany	CV28	4~21		<u>*</u>	,		有	無	無	量测而得的反應截面,也被IAEA 組織所採用,可供日後驗證各 Monte Carlo code 內是各有正確或 合理的反應截面資料庫或核模 型。	●嚴格審查目前透過中子能踏研究和活化測量實驗數據獲得的有關18F產量。反應路徑為18O(p,n)18 F。在菜些能量範圍,發現最面數據庫相當薄弱或離數,為了填補這些空白進消除菜些差異,使用含有高濃度18O的不同國體也最體靶,從關値至30MeV整新測量了激發函數。為此,使用了范德格拉夫機van de Graaff (Ep<4MeV) 和幾個迴旋加速器 (Ep=4-30MeV)。新的實驗數據有助於作為推薦的數據集。在Ep=14MeV時,根據鄉的激發傳練計算出的18F的積分產率比迄今公認的數據集略高;當Ep>14MeV時,此處呈現的產率是公認的數據集內沒有的新數據。
Evaluation of neutron spectra in the SK cyclotron room under different operation parameters	新定在不同運轉方 式下中子能譜的評 估	Ming-Jay Kuo, Fang-Yuh Hsu , Ching-Han Hsu , Ching-Huang Lo , Tai-Yu Chen and Kuo-Wei Yin	Radiation Measurements 46 (2011) 1745e1749	2011	Taiwan	Œ MINItrace	9.6		有	,	MCNP 5	使用了雙TLD芯片、裸露的金箔及覆盖有115Q的金箔,來測量迴暖加速 器自我屏蔽以外位置的熱中子劑量 和通量率		**	大的水和體積(紀1)等致18F放射 性同位生的產率更高,並且等致 的中子劑量更低,中子能譜較 弱。	●這項工作評估了由醫用遊裝加速器引起的中子光譜。由於9.6 MeV買予來搜擊180水配並在北SK翅裝加速器中引起 (p·n) 反應。中子於是在185%軟件性同位素產生期間產生。 高了評估迎旋加速器室內的中子劑量,分別使用了雙TLD芯片、裸露的全箔及覆蓋有113Cd的会宿。來測量 翅坡加速器宣自我屏蔽以外位置的熱中子劑量和過量率,並分別在使用不同執的情况下量測。 此外,使用具有GLII (Eu) 探測器的Bonner球,將其放置在迴旋加速器室內的特定位置,以估計使用不同 機件參數時的中子光譜。 結果,在使用配的情况下,迴旋加速器的自屏蔽之外的位置處的熱中子劑量小於使用靶2的情况。但使用 靶1的情况下,自屏蔽內部的熱中子劑量要高於使用靶2的情况。 非估自屏蔽內部和外部的中子光端以確認劑量結果。 在這項研究中對論了180大數性體積的影響。他之,在本研究中採用的相同操作參數下,大的水靶體積(配1) 等数18下放射性同位素的產車更高,並且等致的中子劑量更低,中子能譜較弱。
Accurate Monte Carlo modeling of cyclotrons for optimization of shielding and activation calculations in the biomedical field	精磷的迴旋加速器 Monte Carlo建模,可像化生物醫學領域的屏蔽和活化計算	Angelo Infantino et al.	Radiation Physics and Chemistry 116 (2015) 231 - 236	2015	Italy	GE PETtrace The ACSI TR19	8. 4/16. 5 13-19		A		無 模擬核種產 率及周圍等 效劑量	無在輻照期間,使用效量在加速器室中四個不同位置,距線形1 m的中子 計數器FIT-752 (Thermo Scientic) 進行測量。 在EC PETtrace延捷加速器周圍測量 了中子周围突執着量排 (10) : 發 現實檢測量與模擬之間的平均比率 為0,997±0,07。	無		析醫用迴旋加速器相關的核種產車及開圍等效劑量,與活化上參數的最佳化分析。 實驗測量與模擬之間的平均比率 為0.997±0.07。180 (p·n) 18F 反應產生的18F能加產率,與IAEA 推薦值進行了比較:發現與IAEA 的比率模擬為1.01±0.10。	●用於生產正電子發射斷層掃描 (PET) 放射性核種並利用強子或離子進行放射治療的生物醫學超變加速 器,在醫院以及工業設施和研究場得到廣泛的應用和建立。一些國際文件中給出了場地規劃和安裝以及輻射防護評估的指南:但是,這些完善的指南通常以近似或理想的幾何形狀設置的條件下,提供屏蔽和材料活化的分析方法。蒙特卡洛代碼具有事項且最新的資料庫 可用於能量低於250 MeOF的數學相對於經濟和在作用,以及當今計模做內部聯盟的功能。能夠為她利用具形數學性模型,對於輻射環條件,屏蔽要求以及與輻射防護有關的所有數量值,進行政備和現場特定評估。 在這項工作中,果所因如的蒙特卡洛代碼FILIK被用於模擬兩個用於生產PET放射性核極的遊校加速路循問關助有效則量分析。每個人對資子產生的有效數量的中子和靶材料的活化,超較加速器的結構,能量衰減器,加速器室輪和土壤。該模型針對實驗測量進行了強變、並與公認的參考數據進行了比較。在CEPTETTTaceE或檢加速器開間創至中予開盟等效劑量除(101 發現實驗資與模擬之間的予助企業的。0.9972的.07。計算了由果所開知的180 (p, n) 18F反應產生的18F舱和產率,並與IAEA推薦值進行了比較、最保期以到180 (p, n) 18F反應產生的18F舱和產率,並與IAEA推薦值進行了比較、最限的120 (p, n) 18F反應產生的18F舱和產率,並與IAEA推薦值進行了比較、最限的120 (p, n) 18F反應產生的18F舱和產率,並與IAEA推薦值進行了比較、最現與IAEA的比率模與為1.0120.10。
Assessment of the production of medical isotopes using the Monte Carlo code PLUKA: Simulations against experimental measurements		: Angelo Infantino et al.	Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 366 (2016) 117–123	2016	Italy	TR13 TRIUMF	13		有		有	有	Æ	無	在TRIUMF的TRI3迎坡加速器上收 樂的產者實驗數據與直接模擬的 數據相差0:60-464 網 所 55C0 的產 車 - 在55C0 的模擬中,依估實驗 值34-0.466 停敷。 實檢數據也與播積模擬質予過量 中文數最面的相吻合,為0.8:0.6 倍 總體而言,這證實了FLUKA在13 MCU買予來能量下模擬放射性核 種產生的適用性。	●在小型醫用迴旋加速器上,質子東能量為13 MeV。以蒙特卡洛代碼FLUKA模擬許多工電子發射放射性核 性18F、13N、94Tc、44Sc、68Ca、86Y、9Zr、52Mn、61Cu和55Co的產生。 在TRIUMF的TRI認變加速器上收集的產業實驗數據與直接模擬的數據相差0.6±0.4倍,除了55Co的產率。在 55Co的模擬中,低估實驗值3.4±0.4的倍數。 實驗數據也與穩積模擬質子通量和文敵最面的相吻合,為0.8±0.6倍。 總體而言,這證實了FLUKA在13 MeV質子來能量下模擬放射性核種產生的適用性。

表 4.1. 收集文獻分類表(資料庫與驗證)(續)

								加速器				活化	除役	除役 法规管制		
文獻抬頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出桌	年代	画家	機型	集量 (NeV)	使用年限		自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化 量测數樣 有無	過程説明	要求/章 節 有無	· 資料库與敬證 (反應截面、中子) 核種產率、劑量敬證)	摘要
Assessment of the neutron dose field around a biomedical cyclotron: FLUKA simulation and experimental measurements	評估一台警用迎旋 加速器附近的中子 劑量場:FLUKA 模 擬與實驗量測	Angelo Infantino et al.	Physica Medica 32 (2016) 1602- 1608	2016	Italy	GE PETtrace	16.5			ŧ	無 模擬周圍等 效劑量	無 使用有主動(申子計數器)和檢動 ((R39) 探测器在38個方向定位的 [2個點中期單十門間單數對量計 (10):重新評估了我們小姐使用 TLD劑量計進行的一系列測量計程結 聚與實驗測量結果非常均合:在12 個測量位置中的10個中、FLDKA模擬 與所有三組不同的實驗數據在不確 定性範圍內一致:在其餘個職位 中,持合公別到量值。		無	中子周圍等效劑量H×(10)的評估 結果與實驗測量結果非常物合: 在12個測量位置中的10個中。 FLIKA模凝與所有三組不同的實驗 數據在不確定性範圍內一致: 在 其餘2個職位中,符合2/3的測量 值。	在規劃新的迴旋加速器設施時,準確了解加速器周圍的輻射場對於設計屏蔽,保護工人,公果和環境至關重要。 蒙特卡洛模擬在此過程中可能非常有用,並且其使用在不斷增加。但是到目前為止,關於蒙特卡羅模擬相對於實驗測量值的正確驗理 特別是在生物醫學迴旋加速器的能量範圍內,迄今尚未發表任何數據。 在這項工作中,使用FLUKA發展現有已要裝的GE PETtrace 16.5 MeV迴旋加速器的對細模型。 使用neutron rem-counter probe計數器区FII 40 G-L10 survey meter with its neutron rem-counter probe FIIT-752)和CR39中于限測器對迴旋加速器周围標註的位置由中于周围等效劑量目 * (10) 進行了廣 泛的測量。我們小無已進行了重新評估,對於之前使用TLD執行的測量數據。 然後遭過將高統計模擬結果與實驗數據追行比較來驗證FLUKA模型。在12個測量位置中的10個中,FLUKA模 與與所有三組不同的實驗數據均在不確定性範圍內。在剩下的2個位置中,一致性是測量值的2/3。 我們的工作可以定量驗證我們的FLUKA模擬裝置,並確認蒙特卡洛技術可以在生物醫學迴旋加速器的能量 範圍內產生準確的結果。
Neutron transport calculation for Activation Evaluation for Decommissioning of PET cyclotron Facility	對於PET迴坡加速器 設施之活化評估的 中子遷移計算		EPJ Web of Conferences 153, 04007 (2017)	2017	Japan	CYPRIS- HM18	18	20	50 μA for one hour in every morning on weekday.		PHITS, Version 2.82+ DCHAIN-SP模 擬逕旋中之 鹽空間和遊 分傳和活化 事件。	使用有和沒有結(Cd)覆蓋層(厚度為1mm)的全(Au)落(直径為6mm・厚度為2mm)用於測量熱和起熱中予延量(圖2):和紹(Al)板用於透過27Al(n a)24Na反應檢測按達中予通量(圖3)。使用TLD UD-813FQ4(圖4)測量中子劑量。		無	模擬迴坡加速器室內中子的空間 剛量分佈和活化事件。 计算結果 與測量值的有相當的一致性,在3 倍以內。 已發現具有質予活化截面庫的更 新版本的PHITS / DCHAIN-SP可用 於評估PET迴坡加速器设施的放射 性。 因此,事實證明,採用先速的對 估報式評估設施活化程度,對於 這些設施的退役計劃報重要。	為了評估用於PET放射診斷生產放射性同位素的迴旋加速器設備的活化狀態,我們使用金箔和TLD测量了中 子通量。然後,使用PIITS蒙特卡羅計算代碼,同於中子傳輸)和DCIAIN-SP(用於活化計算)來報擬迴旋 加速器室內平分的室間制量分佈污化。學學一計 計算結果測量值的有相當的一致性,在3倍以內。因此, 事實證明,採用先進的評估程式評估設施活化程度,對於這些設施的退役計劃很重要。
Characterisation of the secondary neutron field generated by a compact PET cyclotron with MCNP6 and experimental measurements	籍由MCNP6模擬計 算與實驗量測 Compact PET 迴旋加 遠器誘發的二次中 子產率的特性	D. Alloni et al.	Applied Radiation and Isotopes 128 (2017) 204–209	2017	Italy	IBA	18	N/A	● nominal 30 µ A beam current ● maximum value of 38 µA on the large volume target		MCNP6 was used for Energy spectrum of neutrons	Experimental data of neutron field spectra, obtained from Neutron Activation Analysis (NAA) of thin target foils, after their processing with the SAND II code	無	無	比較在不同位置,經SAND II code 處理過之實驗值與MCNP6模擬計 算值得到之中子能譜。 這項工作獲得的實驗數據與MC模 擬非常吻合。 在此基礎上進行進一步的研究, 可從而獲得對係健物理程序有用 的信息。	當質子來轟擊富含180的水時,可從180 (p·n) 18F核反應獲得具有商業迴裝加速器的最常用的PET放射性 同位素FBuorine-18·通過比較MCNP6貸對卡洛根擬結果,和中子活化分析(NAA)所獲得的不同材料的薄 靶箔的實驗數據。介紹了由該反應在迴旋加速器周圍不同位置產生的次級中子場先端的特性,
Validating production of PET radionuclides in solid and liquid targets: Comparing Geant4 predictions with FLUKA and measurements	撤證在固態或液態 靶中PET正子放射性 核種基率:Geant 4 和 FLUKA MC code 問模級預測比較、 實驗量測	T. Amin et al.	Applied Radiation and Isotopes 133 (2018) 61 - 67	2018	Canada	TR13	13 (negative hydrogen ion)		currents of routinely up 有 to 25 μΛ		使用Geant4 MC code 模I3MeV BE E Note of the ME I3MeV BE E Note of the ME I SMEV	引用多考文献的實驗量測值	無	無	使用Geant4 MC code 模擬13MeV 醫用迴旋加速器產生正子放射性 核種之產事。其結果與其他欠敵 研究使用認的FLUKA 模拟計算值 與文獻實驗值做比較。在這兩種 程式模擬計算中、吻合度皆有類 沒計與使用的Cross Section database。Geant4 因仍在可接受 的範圍內,整體而言。Geant4已 經可以是用來評估低能量質子誘 發放射性核種產生之產率評估的 工具。	使用Geant4 MC code 模擬13MeV醬用迴號加速器產生正子放射性核種13N, 18F, 44Sc, 52Mn, 55Co 61Cu, 68Ga, 86Y, 89Zr and 94Tc之產率。其結果與其他文獻研究使問題的FLURA 模擬計算值與文藏實驗值做比較、比較結果中顯示在不同核種問有能大不同程度的物合。這些物合度(模擬與實際比值)在FLURA 1.4 ± 1.6; 在Geant4括配QGSP-BIC-Al1HP财是 0.7 ± 0.5。在這兩種程式模擬計算中,物合度皆有很大的變化,可能原因是來自實驗設計與使開的Cross section database。Geant4 因仍在可接受的範圍內,整體而言,Geant4已经可以是用來評估做能量質子誘發放射性核種產生之產率評估的工具。
Development of an Experimentally Validated MCNP6 Model for 11°C Production via the 11°N(pt.ol) Reaction Using a GE PETtrace Cyclotron	發展一個可適用GE PETtrace Cyclotron 地 行 ¹⁴ N(p,a) 走生 ¹¹ C反 應的實驗檢證 MCNP6模型	Amy Hall et al.	NUCLEAR TECHNOLOGY (2020)	2020	USA	GE PETrace	16.4 MeV(麻 商) 14.6± 0.2MeV(實 驗)	:			有	有		無	量。磷光板成像 (Phosphor plate imaging) 用於對銅箔內放射性同位素產生的分佈進行射線照相成	(GE®) PETITICE 860迴坡加速器在密蘇里大學反應器 (MURR) 投能中被廣泛用於醫學和研究用放射性同位素的生產。但是,尚未有限型可以認明其性能,並且無法測量實可来的能量和空間分佈。迴坡地速器影響,無地電客用於研究和醫學放射性同位素生產。在此處,開發了MCNPG模型來改善迴旋地速器配應就的稅能。由於迴旋加速器架內份實效軟性同位素生產的故事和特性有很大的影響,故藉由使用高熱度網接廣消不住法 (high-punity copper stacked foil activation) 量测MURR迴旋加速器置于來能量為146-02 MeV, 地藏前公定的164階化 7億個極Ve能量。成熟在減 使 (Phosphor plate imaging) 用於對朝前內放射性同位素產生的分佈進行射線照相成像,並呈現射來的空間和強度分佈。透過速稅11C在固體吸附劑上並測量游離腔中的量來定量總和活度,計算剩余電流在5年40以之間,輪照時的有效和程度,測得的射束和靶特性用於建立11C在基金的KNPK的模型。透過使用減模型,可以確定配作為學歷收得到應數數率與4%。

以下額外選取上表其中相關文獻加以文字說明:

1983 年,Takashi Nakamura [4.1.1]等人利用研究型迴旋加速器,其射束能量分別主要為 30 及 52MeV 分別撞擊碳、鐵、銅及鉛靶,再藉由 NE-213 閃爍偵檢器進行量測後進行反解(unfolding),得到夾射束方向 0 ,15 ,30 ,45 ,75 及 135 度的中子能譜,並以 MECC-3 code 進行中子能譜模擬,發現 75 度角度的中子能譜是最為吻合,而在前向角度(小於 75 度)分布上,則是模擬值大於實驗值;在反向角度(大於 75 度)分布上,結果則實驗值大於模擬值,如圖 4.1 所示。

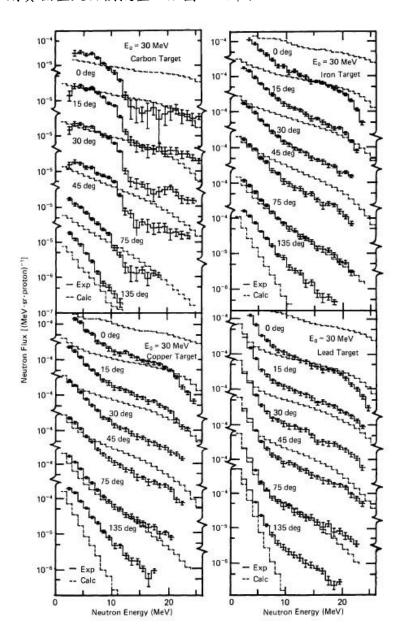


圖4.1. 30MeV 質子撞擊碳、鐵、銅及鉛靶產生之各角度中子能譜量測與模擬計算比較圖[4.1.1]

2001年,E. Hess [4.1.2]等人則是利用多台加速器,如表 4.2 所示,依序使用多種能量的質子射束撞擊含氧-18 化合物的靶,並在照射結束後使用高純鍺偵檢器對靶進行量測。從照射條件資訊、反應速率與反應截面之間的關係式,可計算得到 ¹⁸O(p, n) ¹⁸F 反應截面。有關質子能量與反應截面之間的關係,如圖 4.2 所示。此文獻的反應截面量測而得且受 IAEA 所採用,可供日後驗證各模擬程式內是否有正確或合理的反應截面資料庫或核模型。

表4.2. E. Hess 等人文獻中使用到的照射設施[4.1.2]

Energy range	Accelerator	Targets used	Beam current monitoring
2.7-4 MeV	van de Graaff, Debrecen	Al ₂ ¹⁸ O ₃	Faraday cup
5-7 MeV	MGC-20E, Debrecen	Al ₂ 18 O ₃	Faraday cup
4-21 MeV	CV 28, Jülich	¹⁸ O ₂ , Si ¹⁸ O ₂ , Al ₂ ¹⁸ O ₃	Monitor reaction
20-30 MeV	Injector of COSY, Jülich	Si ¹⁸ O ₂ , Al ₂ ¹⁸ O ₃	Monitor reaction

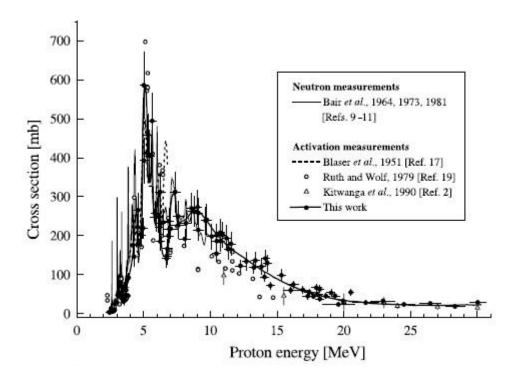


圖4.2. 經由中子量測和活化量測而得的 $^{18}O(p, n)^{18}F$ 反應截面[4.1.2]

2010年 J. Javier [4.1.6] 等人利用 MCNPX v2.6.0 分析 GE PETtrace 18MeV 醫用

迴旋加速器室內混凝土牆的活化計算,其運轉情況是運轉 10 年,每年 35000 μA*hr 的射束損失。主要模擬方式是藉由粒子在空間內的平均徑跡長度除上體積所得的通量乘上內掛的截面資料庫(ENDF/B-VII.0)所提供之特定核種活化截面得到反應速率,則可求得對應的活化核種活度,其殘餘比活度之結果依序為鈧-46、鈷-60、銪-152、鋅-65、銫-134、銪-154 與錳-54 為混凝土中的主要活化核種,如圖 4.3 所示。在 10年的運行中估計的最高比活度處於豁免管制標準之下。該文獻參考實驗量測值與其運算的模擬計算值,在長期運轉(10年)中的鈷-60與鈧-46其比活度有較高的吻合性,如表 4.3 所示。

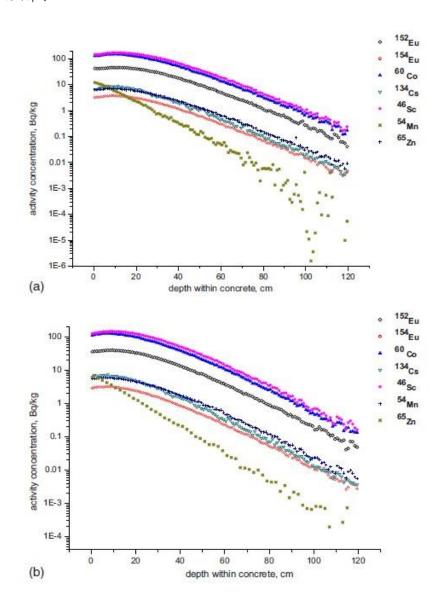


圖4.3. 模擬計算長期運轉後,混凝土牆內不同深度活化的長半衰期核種比活度 [4.1.6]

表4.3. 該文獻模擬值與其參考的量測值之比較[4.1.6]

MCNPX, P1	Kimura et al., Da	Radionuclide
41.5 ± 5.3	105	¹⁵² Eu
129 ± 12	135	⁶⁰ Co
7.3 ± 4.2	6	¹³⁴ Cs
145 ± 16	130	⁴⁶ Sc
10.6 ± 1.0	36	⁵⁴ Mn
6.7 ± 0.4	10	⁶⁵ Zn

^aResults given without uncertainties in the original paper by Kimura et al.

2015 年 Angelo Infantino [4.1.7]等人利用 FLUKA version2011.2b.6 分析 GE PETtrace 16.5 及 19 MeV 醫用迴旋加速器相關的核種產率及周圍等效劑量,並進行 FLUKA 在計算活化上參數的最佳化分析。其結果顯示 GE PETtrace 迴旋加速器的模擬計算與實驗量測分析,其周圍等效劑量結果兩者的比值 (0.99 ± 0.07) ;而模擬計算 得到的氟-18 飽和產率與 IAEA 提供之實驗計算數值做比較,其飽和產率在兩者的比值 (1.01 ± 0.10) 。提供將來在使用 FLUKA 模擬活化分析上信心及參考。

2016年,Angelo Infantino [4.1.3]等人利用 FH40 G-L10 偵檢器加上中子侖目探頭(FHT-752,BF3 比例計數器加上聚乙烯緩和劑)以及 TLD(材質為 PADC(polyallyl diglycol carbonate),又稱 CR-39 來進行周圍等效劑量 H*(10)的量測實驗,H*(10)的量測值監總共 12 處,其中 10 處有高度的吻合性,僅 2 處與先前實驗值比較相差約66.7%。同年,也以 FLUKA 模擬 TR13 迴旋加速器產生 13 MeV 質子轟擊各式靶材產生正子造影藥物所需之正子核種(如:氟-18、氮-13、鎝-94、鉻-44、鎵-68、釔-86、銛-89、錳-52、銅-61 與銛-55)的產率[4.1.4],實驗量測結果氟-18 的產率約為4920 MBq/μA,可以發現利用 FLUKA 模擬的結果與實驗值相比低估約略60%,;而在質子射束通量與反應截面與文獻相比較比值約 0.8 ± 0.6。故可證實 FLUKA 應用於13MeV 質子產生正子放射性核種產率的可行性。

2017年, D. Alloni [4.1.5]等人比較 MCNP6 蒙地卡羅程式模擬之結果,與在 IBA 18MeV 迴旋加速器周圍數個位置放置薄片並藉由中子活化得到之量測數據,以分析各位置表現的中子能譜的特徵及中子通量率,如圖 4.4 和表 4.4 所示。

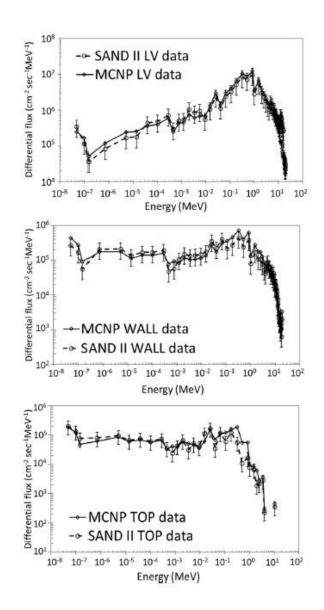


圖4.4. MCNP6 模擬數據(帶圓圈的連續線)與經由 SAND II 程式處理不同照射位置的實驗數據(帶方形符號的虛線)對於中子通量率能譜的比較。[4.1.5] 註: LV 為靶處; WALL 為牆壁; TOP 為天花板處。

表4.4. MCNP6 模擬得出迴旋加速器周圍三個不同位置的總中子通量率和熱中子通量率(模擬統計誤差皆小於 1%)[4.1.5]

Tally position	Total flux (cm $^{-2}$ s $^{-1}$)	Thermal flux $(cm^{-2} s^{-1})$
LV WALL TOP	7.4973×10^{7} 6.4102×10^{6} 2.4485×10^{6}	4.9872×10^{5} 5.1303×10^{5} 8.1576×10^{5}

2017年Fumiyoshi Nobuhara [4.1.8]等人先利用金箔活化分析及TLD分析中子通量率,在這之後則利用PHITS加上輔助程式DCHAIN-SP分析CYPRIS-HM18 18MeV醫用迴旋機加速器室中子能譜及其誘發的活化,流程如圖 4.5 所示。其運轉情況是運轉 20 年,每年 10000μA*hr 的射束損失。其模擬計算結果與實驗量測結果有不錯的吻合性(計算值與量測值的比值在 3 倍以內)。

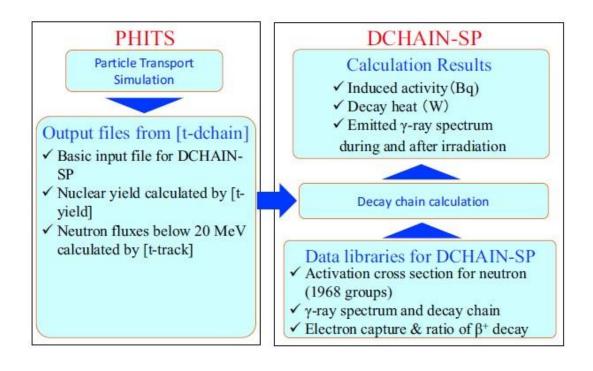


圖4.5. PHITS 加上輔助程式 DCHAIN-SP 模擬計算之流程圖[4.1.8]

2018年 T. Amin [4.1.9]等人使用 Geant4 分析 TR13 TRIUMF 13MeV 醫用迴旋加速器產生正子放射性核種氮-13、氟-18、鉻-44、錳-52、銛-55、銅-61、鎵-68、釔-86、銛-89 與鎝-94 之產率。其結果與其他文獻研究使用過的 FLUKA 模擬計算值與文獻實驗值作比較。比較結果中顯示在不同核種間有很大不同程度的吻合,如表 4.5 所示。這些吻合度(計算與量測比值)在 FLUKA 為 1.4±1.6;在 Geant4 搭配 QGSP-BIC-AllHP 則是 0.7±0.5。在這兩種程式模擬計算中,吻合度皆有很大的變化,可能原因是來自實驗設計與程式使用的反應截面資料庫。Geant4 因仍在可接受的範圍內,整體而言,Geant4 已經可以是用來評估低能量質子誘發放射性核種產生之產率評估的工具。

表4.5. 飽和產率(實驗量測、Geant4 計算及 FLUKA 計算)之比較與截面數據(TENDL 與 EXFOR)之比較[4.1.9]

Isotope	Number of measurements	Y_{exp} [MBq/ μ A]	Y_F/Y_{exp}	Y_G/Y_{exp}	X_T/X_E	Ref.
¹³ N	12	259 ± 3 Infantino et al. (2016)	5.92 ± 0.01	2.73 ± 0.01	2.34	IAEA-NDS (2015a)
¹⁸ F	9	4920 ± 60 Infantino et al. (2016)	1.66 ± 0.01	0.53 ± 0.01	0.94	IAEA-NDS (2015b)
⁴⁴ Sc	3	4.9 ± 0.3 Hoehr et al. (2014)	2.35 ± 0.06	2.1 ± 0.1	1.0	Levkovsky (1991) de Waal et al. (1971)
⁵² Mn	5	900 ± 100 Topping et al. (2013)	4.62 ± 0.11	1.1 ± 0.1	0.93	Tanaka and Furukawa (1959)
⁵⁵ Co	4	180 ± 20 Ferreira et al. (2007)	0.3 ± 0.1	0.7 ± 0.1	0.88	Kaufman (1960)
⁶¹ Cu	3	130 ± 20 Infantino et al. (2016)	3.13 ± 0.15	0.6 ± 0.2	0.55	Levkovsky (1991)
⁶⁸ Ga	3	138 ± 2 Infantino et al. (2016)	1.03 ± 0.02	0.84 ± 0.02	0.75	Levkovsky et al. (1990b) Johnson et al. (1964) Vinogradov et al. (1993) Zhuravlev et al. (1995)
⁸⁶ Y	3	40 ± 50 Infantino et al. (2016)	0.9 ± 1.30	2.5 ± 1	1.0	IAEA-NDS (2015c)
⁸⁹ Zr	6	346 ± 2 Infantino et al. (2016)	0.87 ± 0.01	0.69 ± 0.01	1.22	Levkovsky et al. (1990a) Mustafa et al. (1988) Wenrong and Cheng (1982) Michel et al. (1997) Omara et al. (2009) Khandaker et al. (2012)
⁹⁴ Tc	3	49 ± 6 Hoehr et al. (2012)	1.5 ± 0.1	1.7 ± 0.1	1.16	Levkovsky (1991) Zhuravlev et al. (1994)

4.1.2 模擬計算方法

前段主要參考相關射束參數及反應截面驗證,而在設施除役計畫階段,不僅只 是量測,如何進行模擬計算驗證,則需參考國際上各文獻在模擬時所使用的模擬計 算程式或方法,來確保在使用模擬程式或方法進行案例研究時,有可以對照的標準 以及加深對於程式或方法使用的信心。

收集之文獻以表 4.6 作分類,文獻抬頭(英文)、文獻抬頭(中文)、作者、出處年代、國家、加速器相關:機型、能量(MeV)、使用年限、射束損失(μA*hr)/yr、自屏蔽有無;活化:活化模擬計算有無、活化量測數據有無;除役過程說明有無;法規管制要求/章節有無;模擬計算方法;摘要。俾利國內設施可快速參考。

整體而言,摘要文獻中與本計畫相關的結論如下:

- (1) 在約 100 MeV 以下的能量區域,原子核的結構對中子產生有很大影響,不適用 於基於 Fermi 費米自由氣體計算模型的蒙地卡羅計算(MECC-7)。透過將測得的 較高能量的光譜擬合到馬克士威 Maxwellian 分佈來估算幾個 MeV 以下的中子 產量,進一步利用幾個 MeV 以下的中子產量估算出總中子產量,並且與其他實 驗結果顯示出良好的一致性。(Takashi Nakamura et al.,1983)
- (2) 耦合 TORT 和 MCNP 程式以加快計算速度的過程以及原始和改進屏蔽設計的計算結果。(R. J. Sheu et al., 2005)
- (3) 權重視窗的變異數降低技術用於通量上,使 MCNP 計算迴旋加速器室外的劑量率更為容易。(R. D. Sheu et al.,2005)

表4.6. 收集文獻分類表(模擬計算方法)

						加速器 活化							应 有	法规管制		
文獻拾頭(英文)	文獻括頭(中文)	作者	赤龙	车代	车代	國家	機型	能量 (MeV)	使用 年限	岩 東 類 失 (μA*hr)/yr	自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化 量湖数據 有無	等仪 過數說明 有無	安康/章節 有無	
Neutron Production from Thick Targets of Carbon, Iron, Copper, and Lead by 30- and 52- MeV Protons	30MeV及52MeV質子射來照射厚肥材 (碳/振/納/納)之中子產率	Takashi Nakamura et al.	Nuclear Science and Engineering, 83:4, 444-458	1983	Japan	*For reasearch	30 52			*	有	有	*	*	●實驗結果表明,在~100 MeV以下的能量医域,尽干核 的結構對中于產生有很大影響,不適用於基於Permin費求 自由或體計算(AIECC-7)。 ●透過所測得的較高能量的 光谱擬合到馬克士威 Maxwellian分佈來信算是個 MeV以下的中子產量,進一步 利用幾個MeV以下的中子產量,也上步 传算出總中子產量,並且與 其他實驗結果顯示出良好的 一般性。	
Adjoint acceleration of monte carlo simulations using TORT MCNP coupling approach: a case study on the shielding improvement for the cyclotron room of the buddhist tzu chi general hospital	擬計算佛教总濟綵	Sheu, S. H. Jiang	Radiation Protection Dosimetry (2005) Vol. 113, No. 2, pp. 140– 151	2005	Taiwan	PETtrace	16.5(proton) 8.4(deutron)	installation		*	A	A	St.	*	基於Consistent Adjoint Driven Importance Sampling(CADIS) 方法的TORT-coupled MCNP	
The refined shielding design for the cyclotron room of the buddhist tzu chi general hospital	鄉教总濟総合醫院 迎歇加速器室的屏 蔽優化設計	Chen, R. J. Sheu,	Radiation Protection Dosimetry (2005), Vol. 115, No. 1–4, pp. 216–221	2005	Taiwan	PETtrace	16.5(proton) 8.4(deutron)	installation		<u>*</u>	æ		A	A	MCNP with weight window variance reduction	

以下額外選取上表其中相關文獻加以文字說明:

2005 年 R. J. Sheu[4.1.10]等人利用蒙地卡羅模擬計算程式—MCNP,針對醫用生產型迴旋加速器設施的輻射屏蔽進行計算,並且從中改良原先不良的屏蔽設計(多增加一扇 PE 內門並減少內側迷宮走道寬度等……)。該作者特別提到全值蒙地卡羅計算(full-scale Monte Carlo simulations)雖然較符合真實情況的計算,但在屏蔽設計越好越厚的要求下,能夠到達預計讀區域的輻射線也就越少;若想得到較理想的答案(統計誤差小),則需要更長的時間作計算。故該研究引入基於 CADIS(Consistent Adjoint Driven Importance Sampling)概念的 TORT 自計算決定性函數套用在 MCNP的方式,來達到偏重(biasing)遷移及取樣,讓預期有興趣的方向上,出現的輻射線次數或機率增加,來降低統計誤差及減少計算時間並利用權重窗來不失原先結果的真實性。且經空間依存及能量依存相關參數的反覆驗證其變異數降低的使用正確性後,將其技術應用於輻射防護屏蔽的優化及強化上,來改善醫用迴旋加速器室內屏蔽迷宮的設計。表 4.6 為改善後屏蔽設計的案例下,不同 CADIS-biased 設定加速程度上的差別。

同年,R.D.Sheu[4.1.11]等人同一研究團隊,藉先前著重於變異數降低技術加速 運算時間的分析後,將其應用其中,計算實際應用上會出現的 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 方位角及 能量二階微分中子通量分布及經轉換因子而得的有效劑量等……並設計幾種不同的 屏蔽來觀察這些參數在不同設計上的差異,進而量化說明改善對於屏蔽優化的程度。

4.1.3 設施活化計算(加速器本體、混凝土、環境空氣/水、自屏蔽效果)

在參考參數驗證與模擬計算之可行性後,也需回顧多篇與本次計畫相關主題的文獻之結果,以作為日後可供參考與實驗方向目標的依據。

收集之文獻以表 4.7 作分類,文獻抬頭(英文)、文獻抬頭(中文)、作者、出處年代、國家、加速器相關:機型、能量(MeV)、使用年限、射束損失(μA*hr)/yr、自屏蔽有無;活化:活化模擬計算有無、活化量測數據有無;除役過程說明有無;法規管制要求/章節有無;設施活化計算;摘要。俾利國內設施可快速參考。

整體而言,摘要文獻中與本計畫相關的結論如下:

- (1) 在迴旋加速器運行終止 12 個月後,發現加速器外周圍的材料中,中子誘發 γ 射線的放射性同位素活度程度低,與自然放射活性相當,且所有測量混凝土樣品中的活度濃度均低於豁免管制濃度(exempt concentrations)。(A. B. Philips et al.,1986)
- (2) 透過比較放射性同位素活度和中子通量分佈,我們可以根據短期活度測量結果, 估算長期運行後混凝土中的長壽命放射性。(K. Kimura et al.,1994)
- (3) 主要針對除役計畫中拆解加速器過程中,人員接受的人員劑量進行討論。其結果顯示工作人員(工程師、磚瓦工、吊運工及拆除工人)的有效劑量皆小於 20 μSv,且攝入的體內有效劑量太小可忽略,表示幾乎沒有風險,但仍需在除役拆解的過程中,加入保健物理人員來監控及調查,來達到除役的安全效果。意大利目前的限制和法律規定要求客戶將活化部件無限期地存储在授權區域以進行放射性廢物處置。(R. Calandrino et al.,2006)
- (4) MCNPX 估算活化與測量結果在 Sc-46 和 Co-60 有可接受的一致性,但低估了其餘中子誘發的放射性核種的活性。活度測量揭示了牆混凝土原子組成的不均勻性,因為在具有相似中子通量的兩個鄰近壁表面位置發現了活度值的巨大差異。這種不均勻性無法用考慮材料成分均勻的程序建模。(J. Javier et al.,2010)
- (5) 模擬計算照射室內混凝土牆內的放射性活化程度。混凝土牆內明顯的活化核種 殘餘比活度將於放置 15 年後降至與背景值相同;其迴旋加速器的總活度也降至 37 MBq (1 mCi) 以下。(J. J. Sunderland et al.,2012)
- (6) 結果顯示對於有使用自屏蔽的機型而言,周邊器材與牆壁的中子活化皆可被忽略。(Kazuyoshi Masumoto et al.,2014)
- (7) 模擬計算照射室內混凝土牆內的放射性活化程度及除役計畫過程中工作人員的

- 人員劑量。對於工作人員而言,累積的體外曝露劑量皆小於 $20~\mu$ Sv,而攝入的體內有效劑量太小可忽略。(L. D'Ambrosio et.al.,2016)
- (8) 使用 4 公分厚的塑膠材質加上硼包鋁片可有效降低熱中子通量約 78%。因此如加上這種設計的屏蔽,可有效降低中子在混凝土牆上的活化程度。(Masaaki Kumagai et al.,2017)
- (9) 在加速器室中提供通風,則由於空氣活化而引起的輻射風險不是很大,並且可以大大降低。屏蔽混凝土的活化是一個長期的問題。仔細選擇骨料和水泥的類型似乎不足以解決該問題,而將在產生中子的靶周圍使用可移除的硼酸聚乙烯局部屏蔽將減少活化。最好在施工或操作的早期階段就對用於屏蔽的混凝土進行分析。(Dodd, A. C et al.,2017)
- (10)分析中,在偏轉磁鐵與磁極通道有最大的活化程度。活化核種 60Co, 57Co, 65Zn, and 54Mn 被偵測到。其餘部分很低的活化放射性核種可能低於背景值。1 cm 等價劑量率為 $1.25\,\mu\text{Sv/h}$,因此退役工人要小心避免曝露於迴旋加速器的 γ 射線。 (Toshioh Fujibuchi et al.,2017)

表4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)

								加速器				活化				
文獻抬頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出真	年代	画家	機型	能量 (MeV)	使用年限	射束 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽有無	活化 模擬計算 有無	活化 量测象排 方集	除役 過程說明 有無	法規管制 要求/章節 有無	微施活化計算	摘要
Cyclotron and its	迴旋加速器與其 環境的残餘放射 性活度	A. B. Philips, et al	Health Physics Vol 51, No. 3(September) 337-342		USA	*For reasearch	1-43 25	21	250000		Æ	在迴旋加速器運行終止12個 月後、發現加速器外周围的 材料中,中子誘發耐線的故 射性同位素洗度程度、與 自然放射活性相當,即所有 测量混凝土核品中的活度混 定均低於粉层中刻濃度exempt concentrations。	儘管所測量的中子誘發r射線的放 射性同位素活度摄為均低於豁免密 制水平,但不會將與加速器室相關 且具有可被測量到的放射性同位素 均期關材料定數便便放到對於 場。大部分材料搭接接移到用於處 理低放射性活動的場所或實驗室。	.	中子誘發r射線的放射性同位素 活度程度低,與自然放射活性相	●用Ge(Li)和HPGe債檢器,測量料羅拉多大學1.3-m扇形聚焦迴旋加速器的無件和周圍環境中,中于誘發的T射衰變的放射性核種。 ●這些測量是在迴旋加速器退役、批准釋放加速器無件和改建為其他空間之前進行的。 ●除了以前發表的工作中預測的活動外、在混凝土屏蔽層中選發現了半衰期13.3年152Eu和8.6年154Eu,其北活度為數十Bq/kg(約幾個nCi/kg)。
Residual long-lived radioactivity distribution in the inner concrete wall of a cyclotron vault	迴旋加速器設施 中內層混凝土牆 內残餘長半衰期 放射活度的分布	K. Kimura et al.	Health Physics. 1994 ;67(6):621- 631.	1994	Japan	*For reasearch	1~40	11	150000	無	有	有	A	≜	期放射性的深度分佈,並透過活 度價檢器(means of activation detectors)估算混凝土牆內中子通 量的分佈。 ■透過比較放射性同位素活度和	●我们這過湖定混凝土芯泉測量迴號加速器內混凝土牆內殘餘長半衰期放射性的深度分佈,並這過活度偷粮器(means of activation detectors)條單混凝土牆內中子通量的分佈。 ●撒搖在混集柱構品中測得的物品轉換素計。鑑定出九種長壽令放射性核素(46Sc, 59Fc, 60Co, 65Zn, 134Cs, 15ZEu, 154Eu, 22Na, and 54Mn)。 ●已經證實,熱中子透過 (n · r) 反應誘導的放射性核發占主導地位,並且熱中子的引發的活化在5至10 m的深度廣東。而不是在混凝土表面。深度建過20 m檢 是指數下降。 ●這過比較放射性同位素活度和中子通量分佈,我們可以根據輻期活度測量結果,估算長期運行後混凝土中的長壽命放射性。
Predicting long- lived, neutron- induced activation of concrete in a cyclotron vault	预测迦旋加速器 室混凝土中的中 子誘發活化的長 半衰期核種	Carroll, L. R.	AIP Conference Proceedings 576, 301	2001	USA	In 1981 a Model CP-42 H-ion cyclotron, designed and built by the Cyclotron Corporation of Berkeley, CA	(simulation) • 42 MeV protons on a Cu target, target located ~18 inches from surface of the	15(CP-42 H- ion cyclotron) (This volume of concrete was assayed in 1992 and finally removed and shipped to a rad-waste site for disposal in 1996.)	80000(17Me V)(simulation)) 100000(42M eV) 200uAfor - 500 hours	無	transport code TART98	有	h	<u>.</u>	量测及模拟计算照射室内混凝土 糖内的放射性活化程度。	●超級加速器中的中子可活化混凝土中的許多元素,但只有少數活化產物是長壽命的。其中最突出的 是Eu-152, Eu-154, Co-60和Cs-134, 它們隨著時間的流逝兩由 (n,r) 反應積累,其來自微量穩定的 鎮Eu-MCO中經Cs,通常在混凝土中的濃度為高篇分之幾或更少。對與先前的超級加速器退役有關的數 報上行四關化分析,再加上獨立發表的數據,可以估算出混凝土性逐步无意的濃度。以該估計為基準 ,然後我們使用蒙特卡羅程武來估計任意輻射條件下混凝土的長期活化曲線。
Decommissioning procedures for an approximate 11 MeV self-shielded medical cyclotron after 16 years of working time	工作16年後的11 MeV自屏蔽醫用 遊檢加速器的遊 侵程序		Health Physics. 2006 Jun;90(6):588- 96.		Italy	CTI RDS112 Eclipse	11	shut down at the end of December 2003	80~180 (μ A*hr)/w 18F: 60 min irradiation at 40μA yield about 1,200mCi 11C: 50 min irradiation at 40 μA yield about 1,400mCi	有	MCNPX, MCNP4C2	有	有	●意大限和 表示	進行計論。其結果顯示工作人員新除工人、為實工及將 除工人的有效劑量的外20 µ SN·且編入的體內有效劑量於外20 µ 可念率、表示幾乎沒有服除。 如何為在於投标解的過程中,加入 建對除投的安全效果。 達到除投的安全效果。 ◆表入目目前的限制和未採規定 要表案申解於心部件無限期地存	模械確定了屏蔽層和地面混凝土中的正個放射性核素: 55Fef+45Ca (β射源,總比活度: 2.29E+04 Bqkg), #152Ea (54E) 在 60Cc (中操源,德比活度: 1.62Ea (64E) Bqkg)。

表 4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)(續)

								加速器				活化				
文獻抬頭(英文)	文獻拾頭(中文)	作者	出集	44		模型	集量 (MeV)	使用 年限	射束 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽	活化 模擬計算 有無	活化 量测敏排 有無	除役 過程説明 有無	法规管制 要求/章節 方無	設施活化計算	稍要
Prediction of neutron induced radioactivity in the concrete walls of a PET cyclotron vent room with MCNPX	利用MCNPX code 模擬預測遊鼓加 远是跨地中混凝 去跨沟国中去 發產生的放射活 性	J. Javier et al.	Medical Physics 3 6015	7, 2010	Spain	GE PET TRA	C 18	2006(opera ion)	30000(\(\mu \) A*hr)/yr for average During 2006 and 2007. the cyclotron runs 1 h/day Friday . From January 2008 until present, the cyclotron using rate has been 4 h/day Monday - Friday . The cyclotron did not run on weekends.	有	MCNPX v2.6.0 code	李辛文獻的實驗量測值與本 實驗的模擬計算值,在長期 選轉(10年)中的結-50與 鎮-46獎比活度有較高的一致 吻合性。	A	在10年的運的運的人工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工工	利用MCNPX v2.6.0 code模擬計 算長期運轉後混凝土牆內不同深 度活化的長半衰期核種比活度	●目的:作者希望評估CIMES(馬拉加大學)PET迴旋加速器的加速器空混凝土的中子活化的相關性 透過預測需輸和超級加速器主義目的年後,加速器室中主要活化產物的具體活度及其變化情况與混凝土活 化深度的函数。 ●方法:雙質子超越加速器主要用於18F的PET同位素生產。 在2006年和2008年期間,單來40uX的使用 車為每天1 h。從2008年1月間始,變來80u的使用車為每天4小時。 超坡加速器置子如的鑑量為18 MCV 在每個總點位置,從總表面到混凝土內部120 cm深度計估中于誘發的添射性植種的比活度。 使用基於繁計子必需或低MCV (v2.6 0) 通行下模擬。 ●结果:根據MCNPX的計算,所研究的活化產物的活化深度曲線(54Mn除外),在距離表面深度不超過 12 cm處具有最大值。在所有研究的插體混凝土深度旋間內,54Mn活性呈脂並實際152Eu·154Eu, 60Co、134Cs、46Sc和55Cn的经在進度、混凝上深度旋間內,54Mn活性呈脂並實際152Eu·154Eu, 60Co、134Cs、46Sc和56Cn的定性在進入混凝上测度。 持續下源,表減長應為21cm。根據MCNPX的估計,超速加速器室中的需需活化主要轉图於46Sc和60Co、 表面輸附近的46Sc与60Co/底度測量值與估计值存在可接受的範圍內。但其他放射性植變的不是到量值完 全超過了MCNPX估計值。 遊放加速器運行10年限的計算預測,半衰期級的放射性核種46Sc·54Mn和65Zn會鳴有增加。 然而,長半後期的中于消發的放射性核種人其是50Co力152Eu為重要的活化核種。這些放射性核種和 46Sc對10年內檢的計算預測,半衰期級的放射性核種46Sc·54Mn和65Zn會鳴有增加。 然而,長半後期的中于消發的放射性核種人其是50Co力152Eu為重要的活化核種。這些放射性核種和 46Sc對10年內檢的計算預測,半衰期級的放射性核種46Sc·54Mn和65Zn會鳴有增加。 然而,長半後期的中衛動物上至條用。 個計遊放加速器運行10年內最高的46Sc+60Co方度與測量結果一致, 但是MCNPY計算出的與素物質核核積極的形象呈現紙信。 ●线論:MCNPX估算活化與測量差異在46Sc和60Co有可接受的一致效,但低估了其餘中子誘發的放射性 核種的活性。溶液與實施不可能使力不可能使力不可能使力不可能使力。 ●线論:MCNPX估算活性與過程指揮的需要的複數形式。
Considerations, measurements and logistics associated with low-energy cyclotron decommissioning	速器退役相關的 注意事項,测量	J. J. Sunderland, C. E. Erdahl, B. R. Bender, L. Sensoy, and G. L. Watkins	AIP Conference Proceeding 1509, 16		USA	Scanditronix	17	20	300000(μ A*hr)/20yr totaled close to 300,000 μA- hours over its lifetime	<u></u>	*	通過經式撥機從混凝土艙的 不同位置在混凝土牆的多個 點採麥個線品,並收奪混 凝土粉磨。個獨立的高純度 結價檢器,量測整夜以計數 分析,評估中子活化產物的 讓度	A	無	放射性活化程度。混凝土牆內明 顯的活化核種殘餘比活度將於放 置15年後降至與背景值相同;其 迴旋加速器的總活度也降至37	愛荷華大學擁有20年歷史的17 MeV Scanditronix迴旋加速器於2011年夏天退後。 為滿足地方,明却聯邦法規中關於清除。運輸和大學的全環保的處置規定,針對22噸活化迴旋加速器中 有關配以及終的完就是抽輸付了一条列機能識測量、以解於22種變加速30質子和中子溶化的性質 和程度。混凝土輸的中子活化程度極小且低於豁免濃度(exempt concentrations),可做為標準的垃圾填埋處 環。迴旋加速器評估顯示了,預期的短期和中期放射性核極的設況。隨後的計算表明,有代表性程度的 授留活度將在15年後實際上降低到資景,整個迴旋加速器的總幾留活度降至37 MBq (1 mCi) 以下。
Effectiveness of self-shielding type cyclotrons	自屏蔽迴旋加速器的實效	Kazuyoshi Masumoto et.al	Progress in Nuclear Science and Technology Volume 4 (2014) pp.		Japan	five cyclotro facilities	7~20			有	有	.	無	無	结果顯示對於有使用自屏蔽的機 型而言, 周邊器材與牆壁的中子 活化皆可被忽略。	
Decommissioning procedures for a 17 MeV medical cyclotron	一台17MeV的警 用週旋加速器之 除役程序	L. D'Ambrosio et.al	Physica Medica 32(1):118 February 20		Italy	MC17	17	10		無	有	有	有	<u> </u>	模擬计算照射室內混旋土牆內的 放射性活化程度及除役計畫過程 中工作人員的人員劑量。對於工 作人員而言,累積的體外碾露劑 量皆小於20 以 v · 而攝 · 的體內 有效劑量太小可忽略。	

表 4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)(續)

								加速器				活化				
文獻拾頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出處	牟代	調家	機型	集量 (MeV)	使用 年限	射束 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽	活化 模擬計算 有無	活化 量测量排 有無	除役 過程說明 方無	法规管制 要求/章節 有無	設施活化計算	摘要
Activation Reduction Method for a Concrete Wall in a Cyclotron Vault	設施內混凝土牆	Masaaki Kumagai et al.	Journal of Radiation Protection and Research 2017;42(3):14	2017	Japan		30		單次實驗125 µA 約8 hours	A	A	使用Ge檢測器(Canberra, GL2018)結合多通道分析儀 (MCA, Inspector 2000)測量 金箔構品的活性。	£.	<u>A</u>	的數重非常重要。因此,我们技 出了一種簽略,在運輸與申中 減少迴旋加速器申混凝土變中子 活化。 使用4公分厚的整膠材質加上硼 包紹片可有效降低熱中子遍量的 78%。因此如加上這種設計的解 就, 可去炒配相士五份784。	避败加速器甲混凝土壁甲干活化。 ●方法:將聚之粉練石排移的利(信格的30 wg%、厚度為2.5 mm)放在製藥用放射性同位素生產设施的 避較加速器室的牆壁源。靶是蒸X金裹、並使用了一塊砌塊作為質于阻擋塊。輻照時間、質于能量和来流 分別為8小時、30 MeV和25µA。為了確定設置在特勢路成前面的聚乙烯板的合適厚度、透過解排B路板指 人聚乙烯板每餐中的不同深度,排估所獲用的中工減少效果。 使用活化價檢器以及有和沒有覆蓋0.5mm厚Cd箱的20g去Au宿樣品上比影測中子通量。將每個Au宿樣品貼 助到聚乙烯板布B排雜的Al片的中去,並且使用Ge檢測器將一個Au宿樣品的吃對活性作為標准進行測 畫。透過計算每個指樣品與標準Au宿的光刻散發光(photostimulated luminescence)之比,可以獲得所得的相 對活性。
Activation of air and concrete in medical isotope production facilities	当用 門位 京産生 設施 中空 氣與混	Dodd, A. C., Shackelton, R. J., Carr, D. A., & Ismail, A.	AIP Conference Proceedings 1845	2017		Scanditronix 17 MeV	17	20	500μA for 1500 hours per year		MCNP5 was used for Energy spectrum of neutrons	A	●從反應堆中子研究混凝土樣品 [13]种爱枯華大學的迴旋加速器退 從演習[14]中可以知道,放射性是 的形混凝土中的迴步亦計之的。 病填研究均排配。1524年CO-60(確定 為主要流性。活化的程度將取決於 ●大多點混凝土結構過色。會解 ●大多點混凝土結構過色。會解 ●大多點混凝土結構過色。會解 時期不可以將的 研究表明。納納中始的全量的 研究表明。納納中始的全量的 可以將的總活候記述是編集過去 可以將的總活候記述是編集過去 一個於一個是。 一個於一個是。 一個於一個是。 一個的 一個的 一個的 一個的 一個的 一個的 一個的 一個的	<u>₩</u>	空泉於他而引起的輻射風險不是 保大,並且可以大大降低。 解放設在,也所常代是一個係。 期的 短便今定及以解決該問題。 在產业子的於別關便用可移除 的刪酸聚乙烯局部屏蔽蔣級少落 化。 提供作的單稱於可能的解析 發射用於解放的混凝土進行分析。	长期以來,在10到25 MeV質子能量範圍內運行的醫學同位素改纯已被用來產生放射性同位素,用於醫學診斷成像。在過去的幾年中,可商購的迴旋加速器中可用的來遊急虧增加,因此迴旋加速器拱頂內材料的活化現在可能構成更嚴重的放射危害。这將影響對迴旋加速器打,迴旋加速器條棒和未來退役活動的監管。 至氣活化可能會對迴旋加速器人員造成危害。隨著迴旋加速器對來電流的增加,有必要更仔細地研究該問題。因此,考慮了連過中子反應和中計模、在空氣中活化成放射性積極的方式,並且發現主要機制是在Ar-401上中有關度,他們仍別緊發計亦經對進過迎於超過別Ar-401。即不利賴度也可以仍於實力,就所使用的中子源能請來自於廣泛使用的F-18 PETI的位素的生產。結果表明,迴旋加速器房室內的空氣活化一會對當前使用的財產度達成重大的放射性成本。並且表明過至的影響結果。這行了第二次MCPF研究。新研究通由中于指揮表示允認致加速器房室中的普遍混凝土,因此有效計學經濟之時的最低學是,以減少房室內表面和生產和開閉的中污亦化。這在迴旋加速點進發化學原理就是此一個則此有效計學的變化學不可以發生學不可以也可以使用學不可以可以可以使用學不可以可以使用學不可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以可以
Evaluation of the distribution of activation inside a compact medical cyclotron	評估一台compact 醫用超檢加速器 內活化分布情 形。		Applied Radiation and Isotopes 124 (2017) 27–31	2017	Japan	BC1710	17 (proton) 10 (deutrons)		average beam intensity during operation was 20.7 μA	A	有	●磷光板成像(Phosphor plate imaging)ST-VN ST-VA(14×1 美十、富士那月)今5T-VI(17×14美十、富士那月)故置 在加进場中,以檢測發生在 遊談●加速器內部活化產生 的對線。 使價CAI(TI) 閃爍檢測器測 量1 cm等價劑量率,以確定加速場附近的劑量率。	Á	無	分析中,在偏轉磁振與磁極通道 有最大的落化程度。活化核種 60Cc,57Cc,65Za,and54Mn脏債 测到,其餘部分很低的活化放射 性核極軍能於背景值。1 cm等 價劑禁率為1.25 pSv/h、因此退 投工人學小心避免曝露於迴裝加 速器的分射線。	量測1cm等價劑量率與r-ray能錯条評估一台醫用翅裝加速器內部的活化分布情形。分析中,在偏轉磁鐵與磁極通進有最大的活化程度。活化核種60C0,57C0,65Zm,amd54Mm被偵測到。不同的放射性核種在不同組件中產生,其餘部分很低的活化放射性核種可能低於背景值。

以下額外選取上表其中相關文獻加以文字說明:

1986年A. B. Philips [4.1.12]等人分析一台研究型迴旋加速器,能量從1~43 MeV,多種粒子射束種類,其運轉情況是運轉21年,每年250000 μA*hr 的射束損失,量測其照射室內混凝土牆內的活化程度。特別提到該篇研究的實驗量測時間點約在迴旋加速器停機後的一年。針對半衰期為13.3年的銪-152及8.6年的銪-154在混凝土牆中比活度約每公斤數十個貝克(約每公斤數個奈居里)。

1994 年 K. Kimura [4.1.13]等人分析一台研究型迴旋加速器,能量從 1~40 MeV,多種粒子射束種類,其運轉情況是運轉 11 年,每年 150000 μA*hr 的射束損失,量測及模擬計算照射室內混凝土牆內的活化程度。藉由對混凝土樣品量測其加馬能譜,有 9 種長半衰期的活化核種(鈧-46、鐵-59、鈷-60、鋅-65、銫-134、銪-152、銪-154、鈉-22 與錳-54)是明顯被確定的,這些活化核種大部分都經由中子捕獲所產生的活化核種,且觀察到在混凝土深度為 5~10 公分處的地方可發現有各核種的最大殘餘比活度值,且約在 20 公分處後比活度呈現指數衰減。

2001年 Carroll, L. R. [4.1.14]分析一台研究型迴旋加速器,能量有 17 及 42 MeV 的質子射束,其運轉情況未提供,但每年 80000 (17MeV) 或 100000 (42MeV) μA*hr 的射束損失,量測及模擬計算照射室內混凝土牆內的活化程度。混凝土中的元素被中子活化為許多種類,但只有這些來自混凝土占比很低的穩定同位素被活化產生的長半衰期核種做為主要考量(如:銪-152、銪-154、鈷-60 與銫-134等中子捕獲的活化核種)。作者建議應採取刨除近 18 英吋的牆壁深度來維持活化核種濃度造成之周圍等價劑量可在一般背景值。

2006 年 R. Calandrino [4.1.15]等人分析一台含有自屏蔽的醫用迴旋加速器(CTI RDS112 Eclipse),能量為 11MeV 的質子射束,其運轉情況是運轉 16 年,並無提供 射束損失之資訊,主要針對除役計畫中拆解加速器過程中,人員接受的人員劑量進行討論。其結果顯示工作人員(工程師、磚瓦工、吊運工及拆除工人)的有效劑量 皆小於 20 μSv,且攝入的體內有效劑量太小可忽略,表示幾乎沒有風險,但仍需在 除役拆解的過程中,配有保健物理人員來監控及調查,來達到除役的安全效果。

2012 年 J. J. Sunderland [4.1.16]等人分析一台含有自屏蔽的醫用迴旋加速器 (Scanditronix), 能量為 17MeV 的質子射束, 其運轉情況是運轉 20 年, 每年 300000 μA*hr 的射束損失,模擬計算照射室內混凝土牆內的放射性活化程度。混凝土牆內

明顯的活化核種殘餘比活度將於放置 15 年後降至與背景值相同;其迴旋加速器的總活度也降至 37 MBq (1 mCi) 以下。

2014 年 Kazuyoshi Masumoto [4.1.17]等人分析五台含有自屏蔽的醫用迴旋加速器,能量從 7~20MeV 的質子射束,量測及模擬這些設施運轉時到達混凝土牆前的中子通量率並進行中子活化分析,其結果顯示對於有使用自屏蔽的機型而言,周邊器材與牆壁的中子活化皆可被忽略。

2016年 L. D Ambrosio [4.1.18]等人分析一台型號 MC17 醫用迴旋加速器,能量為 17MeV 的質子射束,其運轉情況是運轉 10 年,無提供射束損失之資訊,模擬計算照射室內混凝土牆內的放射性活化程度及除役計畫過程中工作人員的人員劑量。 銪-152、銪-154、鈷-60 與銫-134 這些活化核種的比活度在表面處值為 89 Bq/kg。對於工作人員而言,累積的體外曝露劑量皆小於 20 μSv,而攝入的體內有效劑量太小可忽略。

2017年 Masaaki Kumagai [4.1.19]等人分析一台醫用迴旋加速器,能量為 30MeV 的質子射束,量測及模擬設施運轉時到達混凝土牆前的中子通量率。其結果顯示,使用 4 公分厚的塑膠材質加上硼包鋁片可有效降低熱中子通量約 78%。因此如加上這種設計的屏蔽,可有效降低中子在混凝土牆上的活化程度;

2017 年 Toshio Fujibuchi [4.1.20]等人分析一台型號 BC1710 醫用迴旋加速器,能量為 17MeV 的質子射束及 10MeV 的氘子射束,其運轉情況是運轉 27 年加上 6 年的停機後,運轉期間每年 10350 μA*hr 的射束損失,量測距離一公分之等效劑量率與加馬能譜來評估一台醫用迴旋加速器內部的活化分布情形。其結果顯示偏轉磁鐵與磁極通道有最大的活化程度。活化核種鈷-60、鈷-57、鋅-65 和錳-54 可被偵測到。不同的放射性核種在不同組件中產生,且部分很低的活化放射性核種可能低於背景值。

同年 2017 年,Adam C. Dodd [4.1.21]等人利用 MCNP 分析醫用迴旋加速器室內 混凝土牆的活化程度以及室內空氣的活化程度(特別針對氫-40)。發現 Ar-40 捕獲 的數量與室內空間體積的立方根成正比,如圖 4.6 所示。結果表明,捕獲數量與空 氣中的中子路徑長度成正比。進一步發現導致 Ar-40 捕獲的中子是熱中子。因此, 實際的中子源是已在混凝土中被緩和的中子。

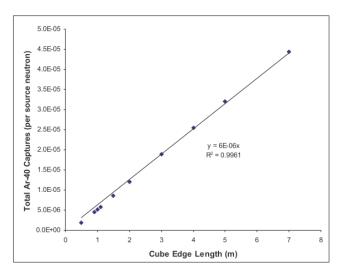


圖4.6. Ar-40 捕獲中子量與室內空間體積邊緣長度的關係

4.2 諸經驗國資料收集

針對迴旋加速器放射性物質生產設施,探討諸經驗國(例如:日本、歐盟等)及國際知名機構(例如:IAEA、ICRP、NCRP等)對除役之法規管制要求、技術措施與處理實例,擷取相關經驗回饋我國以利參考。

目前本團隊已蒐集包括日本、澳洲及歐盟國家等近 10 餘篇針對迴旋加速器除役計畫相關的文獻報告,其中包含【處理經驗與處理導則】及【法規管制要求】兩大類探討與說明。

4.2.1 文獻處理經驗與處理導則

2000 年 Sonck, M 等人[4.2.1]於 IRPA(國際輻防協會年會)中發表的一篇相關文獻報告:帶電粒子加速器除役的活化及經濟上的影響(原文:Radiological and Economic Impact of Decommissioning Charged Particle Accelerators),該報告所提及的計畫目標可以歸納為 5 個主要方面:歐盟加速器除役問題清單、3 種參考加速器類型的活化特性及其屏蔽、拆卸技術估算、經費成本和潛在廢物量評估以及有關的活化預防建議。該報告參考的三台加速器分別為 200 MeV 電子直線加速器(IRMM)、43MeV 加速質子的迴旋加速器(VUB)以及 6GeV 加速質子的同步加速器(SATURNE),室內混凝土牆的活化程度大小依序為 200 MeV 電子直線加速器(因為此加速器主要用途為製作中子射源)、6GeV 加速質子的同步加速器與 43MeV 加速質子的迴旋加速器。在該報告中特別提到一些與本研究相關值得注意:

(1) 經過γ光譜分析後,在混凝土中檢測到的放射性核種,如表 4.8 所示: 鉻-46、 銀-133、鈷-60、銫-134、銫-137、銪-152、銪-154、鈉-22 與錳-54。混凝土中的 金屬微量元素 (例如 euro)的活化產生了放射性核種。這些主要是由具有高中 子捕獲截面和較低產率的閾值反應產生的。

表4.8. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種[4.2.1]

Radionuclide	Possible Reaction	Cross section	Half life	
¹⁵² Eu	^{15 1} Eu (n,γ) ¹⁵² Eu	9198 barn	13.33 years	
¹⁵⁴ Eu	^{15 3} Eu (n,γ) ¹⁵⁴ Eu	312 barn	8.8 years	
¹³⁴ Cs	¹³³ Cs (n,γ) ¹³⁴ Cs	29 barn	2.06 110010	
	134 Ba (n,p) 134 Cs	9 mbarn at $E_n = 16 \text{ MeV}$	2.06 years	
⁶⁰ Co	⁵⁹ Co (n,γ) ⁶⁰ Co	37 barn	5.3 years	
⁴⁶ Sc	⁴⁵ Sc (n,γ) ⁴⁶ Sc	27 barn	83 days	
¹³³ Ba ^a	¹³² Ba (n,γ) ¹³³ Ba	7 barn	10.5 years	
⁵⁴ Mn	⁵⁵ Mn (n,2n) ⁵⁴ Mn	910 mbarn at $E_n = 18 \text{ MeV}$	212 dorm	
IVIII	54 Fe (n,p) 54 Mn	590 mbarn at $E_n = 10 \text{ MeV}$	312 days	
²² Na	²³ Na (n,2n) ²² Na	40 mbarn at $E_n = 15 \text{ MeV}$	2.6 years	
ING	27 Al (n,2p4n) 22 Na	10 mbarn at $E_n = 25 \text{ MeV}$	2.0 years	
¹³⁷ Cs	136 Ba (n,γ) 137m Ba \rightarrow 137 Cs	0.4 barn	20 magra	
CS	¹³⁷ Ba (n,p) ¹³⁷ Cs	3.7 mbarn at $E_n = 16 \text{ MeV}$	30 years	

- (2) 典型深度活化剖面(Typical in-depth activation profile):顯示 10~20 cm 深處會出現活化核種之最大比活度。其中圖 4.7 顯示了 VUB 迴旋加速器照射室 2 的典型分佈圖,從中可以得出結論,在近表面 15 cm 內有活化增建區域,隨後呈指數衰減。在 VUB 迴旋加速器和 IRMM 電子直線加速器也都發現了這種現象。但在 SATURNE 同步加速器並無發現此現象。
- (3) 經費花費估計:該報告選用 3 種參考的加速器機型,觀察其活化程度,並將情形套用在歐洲各國對於除役規範之情形,來估計大概的除役費用(約為建造同一台加速器之價格的50%~100%)(以德國為例,除役報告提到的43MeV質子的迴旋加速器(VUB設施),採立即拆除行動計畫則預計要花費2.6億台幣),相關金額評估如表4.9所示。

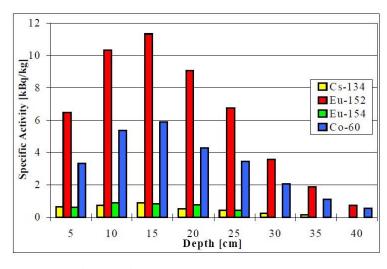


圖4.7. 典型的深度比活度剖面圖(VUB 迴旋加速器照射室 2)[4.2.1]

表4.9. 該報告所探討的三種加速器整個除役計畫預估之金額表(以千歐元表示)

[4.2.1]

	SCENARIO		ACCELERA	TOR
	SCLNARIO	VUB	IRMM	SATURNE
I m m	German scenario	7700	16010	6870
e d i	French scenario	4340	6320	1445
t e	British scenario	3550	4540	1820
D e f e r r e d	British scenario	980	1340	875
I m m	German costs, EC- recommended clearance levels	1545	х	X
e d i	French costs, EC- recommended clearance levels	810	х	X
a t e	British costs, EC- recommended clearance levels	830	X	X

2003 年 IAEA 組織給出技術報告系列 414 號報告:小型醫用/工業/研究設施之除役建議書(原文:Decommissioning of Small Medical, Industrial and Research Facilities) [4.2.2]該報告的主要目的是為決策者、管制者和小型設施經營者提供適當的資訊、經驗及幫助。目的是在設施使用壽命結束時,促進及時、有效花費的除役和廢棄物管理,以使此類設施無危害。在該報告中特別提到一些與本研究相關值得注意的是一廢棄物管理與處置:

- (1) 廢棄物管理原則:「除役的所有階段都應盡量減少放射性廢物的數量」、「防止混合不同類別的廢棄物」及「符合所有相關廢棄物處理、儲存及處置的相關法條」。
- (2) 放射性廢棄物區分:如表 4.10 所示。

表4.10. 放射性廢棄物分類

Waste class	Typical characteristics	Disposal options
1. Exempt waste (EW)	Activity levels at or below clearance levels that are based on an annual dose to members of the public of less than 0.01 mSv	No radiological restrictions
2. Low and intermediate level waste (LILW)	Activity levels above clearance levels and thermal power below about 2 kW/m ³	
2.1. Short lived waste (LILW–SL)	Restricted long lived radionuclide concentrations (limitation of long lived alpha emitting radionuclides to 4000 Bq/g in individual waste packages and to an overall average of 400 Bq/g per waste package)	Near surface or geological disposal facilities
2.2. Long lived waste (LILW–LL)	Long lived radionuclide concentrations exceeding the limitations for short lived waste	Geological disposal facilities
3. High level waste (HLW)	Thermal power above about 2 kW/m³ and long lived radionuclide concentrations exceeding the limitations for short lived waste	Geological disposal facilities

- 外釋廢棄物(exempt waste, EW): 低於解除管制標準(造成公眾之年劑量率小於
 0.01mSv (10μSv))
- 中低階廢棄物(Low and Intermediate level waste, LILW): 高於解除管制標準和熱功率低於 2kW/m³
 - ⇒ 短半衰期中低階廢棄物(LILW-SL):單一廢棄物包件不可含有 4000Bq/g 以上的 alpha decay 之長半衰期核種或平均廢棄物包件未含有 400Bq/g 以上的 alpha decay 之長半衰期核種。
 - ➡ 長半衰期中低階廢棄物(LILW-LL):超過 LILW-SL 的限制
- 高階廢棄物(High level waste, HLW): 熱功率高於 2kW/m³和超過 LILW-SL 的限制。
- (3) 除役場所常見伴隨在放射性廢棄物旁的非放射性廢棄物:[鹼金屬(例如鈉和鉀)]、

- [石墨]、[鈹]、[鉛]、[石棉]、[各種有機材料(例如甲醇和聚合物)]、[實驗室使用的各種化學藥品]及[含氯塑料]。
- (4) 總體廢棄物管理策略:參考該報告 FIG 5.(page53)[4.2.2]後,總體廢棄物管理策略通常包括以下幾個或全部步驟:[最小化及分離(Minimization and segregation)]、[特性分類及監控(Characterization and monitoring)]、[處理(Treatment)]、[調整(Conditioning)]及[運輸與處置(Transport and disposal)]。總體廢棄物管理策略經整理說明的範例如圖 4.8 所示。

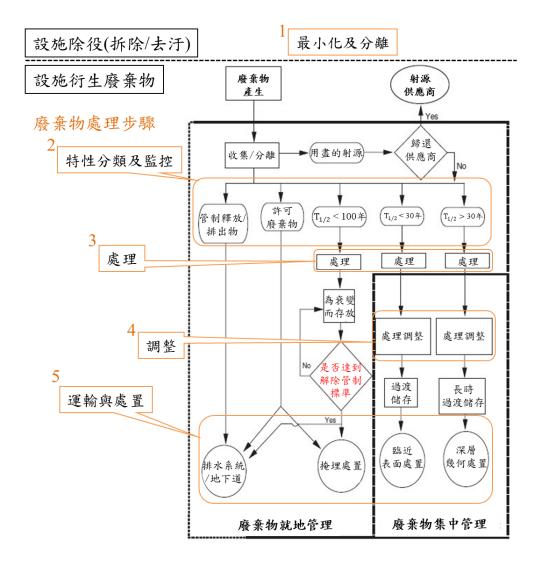


圖4.8. 一個總體廢棄物管理策略的範例及相對應廢棄物處理步驟

2016年 Anne M. J. Paans 和 Johan R. de Jong [4.2.3]出的一本專門為核醫領域的教科書—Quality in Nuclear Medicine,於第九章節提到核醫領域中產生放射性核種之迴旋加速器設施除役,統整了多篇文獻後,給出了幾點結論與參考方向:

- (1) 迴旋加速器設施的退役中,有兩個主要組成部分需要討論:迴旋加速器本體以 及迴旋加速器室內的室內屏蔽隔牆(vault)。
- (2) 醫療領域常見正子放射性核種的核反應式。參考該報告表 9.1(page153)[4.2.3]後, 經整理說明如表 4.11 所示。
- (3) 迴旋加速器本體組件殘存的長半衰期活化核種。參考該報告表 9.2 (page154)[4.2.3]後,經整理說明如表 4.12 所示。
- (4) 室內屏蔽牆(混凝土)殘存的長半衰期活化核種。參考該報告表 9.3 (page156)[4.2.3] 後,經整理說明如表 4.13 所示。
- (5) 評估每一間迴旋加速器室照射室的混凝土牆,應以個案處理,因為混凝土的組成在現今都沒有統一定義。
- (6) 受活化的混凝土組成元素大多為微量元素(濃度為 ppm 等級)。

表4.11. 常見醫用迴旋加速器產生正子放射性核種的核反應式

Nuclear reaction	Q-value (MeV)	E _{threshold} (MeV)
$^{18}O(p,n)^{18}F$	-2.4	2.5
20 Ne(d, α) 18 F	2.8	0.0
$^{14}N(p,\alpha)^{11}C$	-2.9	3.1
$^{16}\mathrm{O}(\mathrm{p,}\alpha)^{13}\mathrm{N}$	-5.2	5.5
$^{14}N(d,n)^{15}O$	5.1	0.0
$^{15}N(p,n)^{15}O$	-3.5	3.7
⁶⁴ Ni(p,n) ⁶⁴ Cu	-0.8	0.8
$^{90}Y(p,n)^{89}Zr$	-3.6	3.6
¹⁰⁰ Mo(p,2n) ^{99m} Tc	-7.7	7.8
$^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$	-5.5	5.5

表4.12. 加速器本體組件中常見的長半衰期活化核種

Nuclide	Half-life	Reaction channel
⁷ Be	53 days	$^{10}\mathrm{B}(\mathrm{p,}\alpha)^{7}\mathrm{Be}$ (Havar)
²² Na	2.6 years	25 Mg(p, α) 22 Na (Havar)
⁵¹ Cr	27 days	54 Fe $(n,\alpha)^{51}$ Cr 50 Cr $(n,\gamma)^{51}$ Cr 52 Cr $(n,2n)^{51}$ Cr (Havar and other)
⁵² Mn	5.6 days	⁵² Cr(p,n) ⁵² Mn (Havar)
⁵⁴ Mn	312 days	⁵⁴ Cr(p,n) ⁵⁴ Mn (Havar)
⁵⁹ Fe	44 days	⁵⁹ Co(n,p) ⁵⁹ Fe ⁵⁸ Fe(n,γ) ⁵⁹ Fe
⁵⁶ Co	77 days	⁵⁶ Fe(p,n) ⁵⁶ Co (Havar)
⁵⁷ Co	272 days	⁵⁷ Fe(p,n) ⁵⁷ Co (Havar and other)
⁵⁸ Co	71 days	⁵⁸ Fe(p,n) ⁵⁸ Co (Havar and other)
⁶⁰ Co	5.3 years	63 Cu(n, α) 60 Co
⁶⁵ Zn	244 days	⁶⁵ Cu(p,n) ⁶⁵ Zn

表4.13. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種

Nuclide	Half-life	Reaction channel
$^{40}\mathrm{K}$	$1.28 \times 10^9 \text{ years}$	Natural
⁵⁴ Mn	312 days	54 Fe(n,p) 54 Mn
⁵⁵ Fe	2.7 years	54 Fe(n, γ) 55 Fe
⁵⁹ Fe	44 days	58 Fe(n, γ) 59 Fe
⁶⁰ Co	5.3 years	⁵⁹ Co(n,γ) ⁶⁰ Co
$^{134}\mathrm{Cs}$	2.07 years	$^{133}\text{Cs}(n,\gamma)^{134}\text{Cs}$
¹⁵² Eu	13.6 years	$^{151}{\rm Eu}(n,\gamma)^{152}{\rm Eu}$
¹⁵⁴ Eu	8.8 years	$^{153}{\rm Eu}({\rm n}{,}\gamma)^{154}{\rm Eu}$

2017年 Riccardo Calandrino [4.2.4] 於 Modern Physics Letters A 雜誌中發表的一篇相關文獻報告:醫用迴旋加速器安全使用與除役輻射防護指引(原文:Radioprotection guidelines for the safe use and decommissioning of a medical cyclotron),該報告第三部分提到有關迴旋加速器除役輻射防護建議,給出了幾點結論與參考方向:

- 1. 於迴旋加速器工作壽命結束時,須面對設施的拆除和退役有關的複雜問題。在義大利,對除役計畫進行審閱並對迴旋加速器和屏蔽進行活化評估(如果部分或全部迴旋加速器室屏蔽有必要拆除時),則必須由許可證頒發機構(Ministero dello Sviluppo Economico,義大利經濟發展部)批准這些程序。
- 2. 關於此類主題的參考文獻非常有限。在作者小組進行的一項開創性研究中,通過蒙地卡羅模擬估算了質子或中子對幾種迴旋加速器部件誘發的活化。通過對收集的樣品進行伽馬光譜分析來估計和測量由牆壁上的中子通量引起的活化。結果簡要記錄在表4.14和表4.15中。根據表4.14和表4.15中報告的數據,可以通過一個簡單的衰減方程來計算,拆除這些牆體所產生的瓦礫在10至20年內可以達到大多數此類設施的解除管制水平(clearance level)。因此,設施經營單位應將對混凝土樣品進行測量。

表4.14. 牆壁誘發活化核種與比活度[4.2.4]

			Specific activit	ty (Bq \times kg ⁻¹)	
Isotope	Decay	Simulated Mean over 80 cm	Simulated @10 cm	Measured lab1 @10 cm	Measured lab2 @10 cm
¹⁴ C	EC	1.63×10	1.11×10		
$^{41}\mathrm{Ca}$	EC	2.34×10	1.58×10		
$^{39}{ m Ar}$	β^-	2.80×10	2.17×10		
$^{45}\mathrm{Ca}$	β^-	8.05×10^2	5.45×10^3		
$^{55}\mathrm{Fe}$	EC	2.45×10^3	1.66×10^4		
$^{59}\mathrm{Fe}$	β^-	7.62×10	5.18×10		
$^{152}\mathrm{Eu}$	EC; β^+ ; β^-	1.32×10^2	8.95×10^2	3.6×10	3.0×10
$^{154}\mathrm{Eu}$	EC; β^-	7.56×10	5.21×10		
$^{60}\mathrm{Co}$	β^-	4.80×10	3.28×10^2	2.2×10	2.1×10
$^{35}\mathrm{S}$	β^-	4.56×10	3.08×10		
$^{54}{ m Mn}$	EC			5.1×10	5.2×10
Other		1.67×10^{-1}	8.28×10^{-1}		

表4.15. 在屏蔽牆和地板處,因中子誘發反應產生的半衰期大於30天放射性的核種 [4.2.4]

Target nuclei	Reaction	Produced radionuclide	Half-life (y)
¹⁷ O	(n, α)	¹⁴ C	5.73×10^{3}
$^{40}\mathrm{Ca}$	(n,γ)	$^{41}\mathrm{Ca}$	103.00×10^3
$^{40}\mathrm{Ca}$	(n,p)	$^{40}{ m K}$	1.28×10^{9}
$^{42}\mathrm{Ca}$	(n, lpha)	$^{39}\mathrm{Ar^a}$	2.69×10^2
$^{44}\mathrm{Ca}$	(n,γ)	$^{45}\mathrm{Ca}$	1.63×10^2
$^{54}\mathrm{Fe}$	(n,γ)	$^{55}\mathrm{Fe}$	0.27×10
$^{58}\mathrm{Fe}$	(n,γ)	$^{59}{ m Fe}$	4.46×10
$^{151}\mathrm{Eu}$	(n,γ)	$^{152}\mathrm{Eu}$	1.36×10
$^{153}\mathrm{Eu}$	(n,γ)	$^{154}\mathrm{Eu}$	0.88×10
$^{59}\mathrm{Co}$	(n,γ)	$^{60}\mathrm{Co}$	0.53×10
$^{34}\mathrm{S}$	(n,γ)	$^{35}\mathrm{S}$	8.75×10
$^{39}\mathrm{K}$	(n,γ)	$^{40}{ m K}$	1.28×10^{9}
$^{39}\mathrm{K}$	(n,p)	$^{39}\mathrm{Ar}$	2.69×10^2
$^{39}{ m K}$	(n, lpha)	$^{36}\mathrm{Cl}$	3.01×10^{5}
$^{2}\mathrm{H}$	(n,γ)	$^3\mathrm{H}$	1.23×10

3. 蒙地卡羅模擬在估算同位素的誘發活化方面非常有用,對於無法以伽馬能譜法追踪的同位素的活化核種,特別是那些有高誘發活化百分比和中等到長的半衰期的核種,例如Fe-55。

從測量或MC模擬獲得的結果可以與EU Radiation Protection 114或其他EU準則 (例如,歐洲放射防護Euratom 2013/59報告)的數據進行比較。以驗證達到解除 管制水平(clearance level)的等待時間。

根據我們的經驗,迴旋加速器周圍的五個屏蔽體罩(由混凝土,聚乙烯和硼的混合物構成)在最後照射射束結束之後,可於十年內達到解除管制水平(clearance level)。

迴旋加速器本身,考量體積和重量,可以分為兩個主要部分。

- •磁鐵。
- ·加速室,包括Dees,磁峰,磁谷等

目前尚無法對這些零件的各個零件的樣品進行直接測量,但是參考文獻中報告了磁體,靶材,提取器和準直器的MC模擬結果。

表4.16中列出了十年後磁體中剩餘比活度的計算結果。根據第5列中報告的值,合理預期十年後可以清除磁鋼。

表4.16. 磁鐵殘餘活化核種比活度[4.2.4]

$^{63}\mathrm{Ni}$	(100.1 y) (44.64 d)	1.14E+01 1.29E+00 0.00E+00	1.00E+03 1.00E+02	1.14E-02 1.29E-02	and 5 keV β $70 \text{ keV } \beta$ $\beta \text{ and } \gamma$
⁵⁸ Co	(70.81 d)	0.00E+00	$1.00\mathrm{E}{+00}$	0.00E+00	β and γ
60 Co	(5.271 y)	6.22E-02	1.00E-01	6.22E-01	β and γ β and γ

4. 電磁線圈本身的銅活化程度不高,除了由銅合金中的Co-59雜質引起的Co-60形成之外。因此,必須進行準確的測量以評估銅的活化程度。在分析加速腔的活化時會遇到相同的問題,表4.17中報告了預期的活化核種。

但是,當腔室環周圍的位置改變幾公分時,誘發的活化水平會迅速變化,並且銅和其他雜質可能導致額外的長半衰期核種。因此,在定位最熱(活化)的區域之後必須非常準確地進行採樣。

表4.17. 加速腔中活化核種[4.2.4]

Isotope	Half-life
$^{60}\mathrm{Co}$	5.3 y
$^{57}\mathrm{Co}$	$271 \mathrm{d}$
$^{58}\mathrm{Co}$	70 d
$^{54}{ m Mn}$	$312 \mathrm{d}$
$^{65}\mathrm{Zn}$	244 d

5. 結論:考慮到測量和/或計算出的誘發活化的表格,似乎可以得出合理的結論,即在足夠的時間後,迴旋加速器的大部分以及屏蔽牆都可以達到解除管制水平 (clearance level)。設施經營單位的選擇是將拆卸下來的設備臨時暫存於一安全場

所一段時間,或是在拆卸後立即將其轉移到授權的機構,該機構將在這段時間內對其進行存放,然後再熔化以進行後續回收。考慮到前一種方案的成本約為50,000歐元,而後者為500,000歐元,這兩種方案之間的成本差異約為一個數量級。考慮到醫療迴旋加速器的數量眾多(在義大利大約有40台),能使歐盟所有成員國都可接受的最新指南將具有重要價值。

2019年 IAEA 組織長年累積經驗後給出安全標準導則 49 號報告:醫用/工業/研究設施之除役(原文:Decommissioning of Medical Industrial and Research Facilities) [4.2.5]該報告的目的是為管制機關(主管機關或立法機構)、設施許可證持有者、設施所有者、技術支援組織和其他有關方面提供導則,對於醫療、工業和研究設施來進行除役行動(包括特性調查)以滿足除役計畫的要求,展現一個完整的除役以及終止對其設施的授權許可。旨在協助各國確保按照國際良好做法,以安全和環境上可接受的方式對這些設施進行除役。在該報告中特別提到一些與本研究相關值得注意的是-

- (1) 除役計畫之重要架構及指標:[地點與設施描述]、[除役策略]、[除役行動]、[廢棄物與材料之管理]、[財務資源]、[輻射防護]、[安全評估]、[環境影響評估]、[緊急狀況管理]、[對於計算及控制核材料之物理防護及管控]及[最終的輻射調查]。
- (2) 除役計畫所需的相關輔助文件:[歷史現場評估]、[特性調查報告]、[除役限制和條件]、[安全評估報告]、[環境影響評估]、[輻射防護計畫]、[工業健康及安全計畫]、[緊急應變計畫]、[品質管理計畫]、[計算及控制核材料之物理防護及管控]、[經費準備和費用估算]及[公共民眾關係計畫]。

該報告相關概念整理如圖 4.9。

除役計畫 所需文件之範例 重要架構及指標 歷史現場評估 特性調查報告 地點與設施描述 除役計畫之內容 輻射調查之內容 退役限制和條件 除役策略 (1) 最後的除役計劃中更 除役 (一) 進行輻射調查和其結果: 安全評估報告 新和任何有關的授權 (1) 總結其輻射調查,並 除役行為 (2) 最終輻射調查報告 比較最初的輻射調查與最 環境影響評估 廢棄物與材料之管理 (3) 描述退役完成後對場 終報告之變化。 輻射防護計畫 財務資源 址本身以及與場址上其餘 (2) 表示進行如何取樣 設施有關的剩餘限制,並 (3) 量測與分析結果 輻射防護 工業健康及安全計劃 說明必要的控制措施和計 (4) 與國家法規限值比較 安全評估 劃,以供日後拆除 緊急應變計畫 (4) 提供有關工人輻射曝 (5) 輻射調查之品管 環境影響評估 品質管理計劃 露的紀錄 (二)總和與結論: (5) 提供有關向環境排放 緊急狀況管理 (1) 對於設施最終放射化 計算及控制核材料 放射性物質的紀錄 結果進行簡要說明 (未調 之物理防護及管控 對於計算及控制核材料 (6) 提供放射性廢棄物和 查區域也需註明) 之物理防護及管控 放射性物料管理的紀錄 經費準備和費用估算 (2) 確認相關組件、系統 (7) 提供退役期間異常事 及場地結構皆可外釋不受 最終的輻射調查 公共關係計劃 件和事件的詳細資訊 限制地使用 (3) 尚未外釋之區域需描 述且包含概括地圖表示

圖4.9. IAEA 安全標準導則 49 號報告中除役計畫整體重要概念與需求之範例[4.2.5]

4.2.2 法規管制要求

4.2.2.1 迴旋加速器除役計畫之研討會-日本專家桝本和義

2019 年,日本專家桝本和義(Kazuyoshi Masumoto)先生曾受本計畫委託單位 一行政院原子能委員會(簡稱 AEC)[4.2.6]邀請,於「迴旋加速器除役計畫研討會」 演講,報告中的第一至第三部分,引述日本除役經驗從法規層面再到量測與模擬計 算技術最終到實際拆除現場案例,一系列的報告給予了許多重要的觀點,非常值得 本計畫參考。

第一部分,主要討論日本管制因可發生游離輻射設備造成之活化的源頭及法規 演進至今的重要轉折點;此外也有提到日本管制這些設備造成活化時法規相關限值。 在此也提到一個較概觀的整體加速器分類,其中以加速粒子種類、粒子能量及使用 目的來推估整體設施造成活化的高低及廣泛程度。此部分皆為概念性及原則的觀點 指導:

(1) 將被活化之物質外釋至一般社會環境中時,須確保每一個核種對公眾之劑量皆低於 10μSv/y (低於背景年劑量 100 倍)。

- (2) 2010 年日本放射線障害防止法,定義活化物:被從可發生游離輻射設備產生之 放射線而受活化的物質。
- (3) 活化物大致有機器本體、屏蔽物、空氣、水及結構建物。
- (4) 醫用迴旋加速器的空氣與水活化須注意:空氣活化核種-氫-41;水活化核種-氮-16。
- (5) 活化物管理原則:1.室內整頓整潔,確保活化物的處理方法、2.追蹤已登錄的活 化物及3.執行放射線管理。

第二部分,則統計日本 PET 迴旋加速器之使用狀況及生產照射相關資訊,並討論負氫離子加速型及質子加速型的不同及特性,還有有無自屏蔽的迴旋加速器的特性及往後的活化問題。並舉多個 PET 迴旋加速器實際測量案例來討論照射室內中子通量分布以及劑量分布。「桝本和義先生之研究團隊並利用 PHITS 2.13 +MCNP5 +JENDL-3.3 聯合程式,以蒙地卡羅分析方法近似重現 IAEA 所提供之 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面中子能譜,以及利用 PHITS 2+DCHAIN-SP 聯合程式,進行活化模擬計算」,請卓參。以下謹自桝本和義先生之演講,就本計畫值得參考之內容摘要如下:

正子核種生成量(活度)與特定參數之關係為,當加速粒子能量(特定比例關係)、照 射時間(考量飽和曲線)及射束電流量(成正比關係)上升,生成量(活度)隨之上升。

- (1) 「據日本全國資料,日本生產之正子核種以氟-18 為主,每日平均生產 50 GBq 活度量,使用射束電流量為 30~40 μA,照射時間約為每日 1 小時(一年約 250 小時)」,請卓參
- (2) 「桝本和義先生之研究團隊利用 PHITS 2.13 +MCNP5 +JENDL-3.3 聯合程式, 以蒙地卡羅分析方法近似重現IAEA所提供之18O(p,n)18F反應截面中子能譜」, 請卓參。
- (3) 「探討"自屏蔽 PET 迴旋加速器"之中子生成情形,在靶周邊之中子通量率約 $10^6 \sim 10^7$ (單位: #/cm2/s)數量級,在自屏蔽體內側約 $10^5 \sim 10^6$ 數量級,自屏蔽體外測則幾乎沒有中子生成」,請卓參
- (4) 「探討 "無自屏蔽 PET 迴旋加速器"之中子生成情形,在靶周邊之中子通量率約 10^7 (#/cm²/s)數量級,在照射室內則約 10^5 ~ 10^6 數量級」,請卓參
- (5) 「混凝土內之主要活化核種包括氚-3、鈷-60、銪-152、鉻-46、銫-134,主要都是由中子捕獲反應而來。經分析,最大比活度約出現在距混凝土表面 10 公分深處(例外:錳-54 從混凝土表面就開始呈指數衰減),且每增加 30 公分深度,比

活度強度就約以10的一次方級數遞減;此外,在1.5公尺厚之屏蔽牆之後方, 幾乎可確保已低於日本法規限值」,請卓參

(6) 依桝本和義先生之經驗,量測值(M)與模擬計算值(C)之結果比較,在中子通量上, C/M 比值約為 1.0~2.8,在活化核種之放射活度上,C/M 比值則約為 1.3~2.4

「桝本和義先生以其研究團隊在日本大阪大學附設大學醫院之醫用迴旋加速器照射室(機型:HM18)所做的實際量測成果,作為實際案例分享。量測方法上,先使用高純鍺偵檢器(HPGe)搭配金箔活化法,用以量測照射室內空間的中子通量分布,並於照射室內牆上探鑽鑽心混凝土樣品,用以分析量測混凝土牆內之活化核種及其放射活度量。」請卓參。桝本和義先生提及,傳統方法是利用探鑽取樣來量測,而在此案例報告則試就實際量測操作面,另外提出"直接利用 HPGe 偵檢器量測放射活性搭配使用 survey meter 輻射偵檢器量測周圍等效劑量"之方法,並就量測結果與傳統探鑽取樣量測方法相比較,來評估其直接量測法可否成為另一更快速輕便之量測方法之選擇。此外,此部分演講亦建議加速器本體金屬零件活化及混凝土牆活化之除污方式,以及日後新建 PET 迴旋加速器時可在靶周邊的屏蔽設計和混凝土牆10 公分內添加塑膠或硼材質,用以降低混凝土活化;並就其觀察結論指出,不同PET 迴旋加速器所產生的周邊中子通量和活化情形其實差異不大,所以建議可先做事前評估,有助於日後檢驗的方便性。以下謹摘錄桝本和義先生所述對於傳統量測方法與直接量測法之缺點比較經驗,以資參考:

- (1) "傳統量測法(金箔活化+探鑽取樣法)"之缺點為(1)只能進行點的量測,(2)無法探鑽太多點,(3)作業方法複雜及(4)無法立刻知道結果; "直接量測法(HPGe值檢器偵測核種+survey meter測量劑量率方法)"之缺點則為(1)survey meter需要外加鉛屏蔽並調整原先放射活度跟劑量率不成正比的關係,(2)量測系統很重及(3)要確保能夠量測到低於清潔標準之活度濃度。
- (2) 桝本和義先生提及,實施量測時應講求目標為:設備重量輕、量測時間短、解析時間短,以及高敏感度(亦即可偵測到低於清潔標準之水平),並分享其設計一小型 survey meter 偵檢器之經驗,係利用 TACT-SP2 碘化銫(CsI) 閃爍偵檢器作為 survey meter,但做了一些規格修正,使達到前述目標。

4.2.2.2 澳洲國家醫用迴旋加速器

澳洲於2010年有一部生產核醫同位素迴旋加速器的除役經驗,其政府網站已公開詳細的相關文件,可供本計畫參考。綜整其除役過程相關文件,概述如下:

澳洲核科學技術組織(ANSTO)之國家醫用迴旋加速器(NMC)在生產核醫同位素約20年後,於2009年10月停止運轉,並於2010年9月9日向澳洲主管當局(輻射防護與核安全局,ARPANSA,Australian Radiation Protection and Nuclear Safety Agency)提出除役申請。依據1999年《澳洲輻射防護與核安全管理辦法,Australian Radiation Protection and Nuclear Safety Regulations 1999》第40條規定 [註: 2018年該條文已修正為第45-48條],ARPANSA執行長(CEO)應於收到設施許可證申請後,在合理盡快的時間內,在全國性日報和公報上(現行法規為"全國性日報和ARPANSA官網上")發布公告,周知民眾擬對該申請案做出決定,倘該申請案又與核設施有關時,則其公告內還應邀請民眾和人民團體對該申請案提出意見。針對ANSTO的除役申請,ARPANSA執行長遂依前述規定於2010年11月10日在《澳大利亞人報》和《澳大利亞政府公報》上發布公告,再於11月11日公共論壇媒體上以及於11月23日在西部快遞報上廣布相關消息。2010年11月30日,ARPANSA執行長為該申請案舉辦一場公聽會,收集民眾意見,並收到三份民眾意見;2010年12月16日,ANSTO對這些意見做出回應。

依據1998年《澳洲輻射防護和核安全法,Australian Radiation Protection and Nuclear Safety Act 1998》(該法)第32條規定,ARPANSA執行長在做出決定時需考慮:

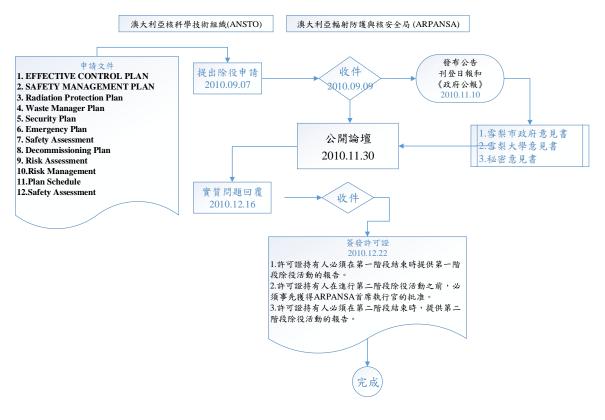
- 在關閉Camperdown設施的情況下在輻射防護和核安全方面的國際最佳實 務做法
- 2. 公眾根據本申請書提交的公眾意見書的內容
- 3. 申請書內容是否已聲明可以對Camperdown設施進行除役,而又不會對人員的健康和安全以及對環境造成不當風險
- 4. 申請人是否已聲明該除役行為有淨利益
- 申請人是否已考慮社會和經濟因素,說明劑量大小,接觸的人數以及發生 接觸的可能性是否合理抑低
- 6. 申請人是否能遵守這些法規以及根據該法令第35條要求的許可條件
- 7. 申請書是否已由申請人的持有人簽署。

綜上考慮後,ARPANSA執行長於2010年12月22日核發F0230號設施許可證,許可ANSTO除役Camperdown設施及其國家醫用迴旋加速器,並要求ANSTO於除役期間遵守法令、施行細則以及以下規定:

- 1. 應於第一階段結束時提交第一階段除役活動報告。
- 2. 在進行第二階段除役活動前,應先取得ARPANSA執行長的核准。
- 3. 應在第二階段結束時,提交第二階段除役活動報告。

ARPANSA 執行長之決策信(許可公文)及其決策說明以及 F0230 號設施許可證之申請程序相關文件等,均可自 ARPANSA 官方網站獲取相關訊息。

其申請及核准過程,流程如下圖說明:



4.2.2.3 日本國家精神病學與神經醫學研究中心小型醫用迴旋加速器拆卸工 作報告

日本國家神經病學和精神病學中心(前身為國家神經病學和神經病學中心)的小型醫用迴旋加速器,為 OXFORD 生產的超導迴旋加速器(加速粒子:H-,提取粒子:H+,能量:12 MeV,東流:運行期間 $50\,\mu$ A),從 1993 年到 2008 年使用約 15 年,主要用於生產氣-2-脫氧-D-葡萄糖(FDG)組成的 PET 藥物。

該報告將設施拆卸工作計畫分為拆卸前調查、拆卸工作和拆卸後報告。放射性物質的活化評估、貯存管理以及應遵守之法律準則,主要依據日本科學技術廳原子力安全局放射線安全課長的通知"放射線發生裝置使用設施內放射性物質處理和儲存準則"(「放射線発生装置使用施設における放射化合物の取り扱いについて」)進行處理。

經該報告的量測結果,劑量最高的部位是靶部位的真空箔,分析活化核種為 Na-22, Co-57, Co-60, Zn-65 等。該報告最後盛裝卸除放射性廢棄物之容器總容積為 200 公升桶裝共 13 桶以及 50 公升桶裝共 1 桶,而該總量小於最初除役計畫所預估的數量,據該報告之原因說明,主要是因為該部迴旋加速器有先經過超過一年的冷卻期。

該報告結論認為,為了減少伴隨加速器除役而產生的放射性廢棄物的數量,認為有必要檢查並確認冷卻時間並改善處理方法。

4.2.2.4 歐盟委員會輻射防護 122 號報告 Radiation Protection 122

2000 年歐盟委員會提出輻射防護 122 號報告:一般解除管制標準之實踐指引 (原文:Radiation Protection 122_Guidance on General Clearance Levels for Practices Part 1&2) [4.2.8],該指引之內容包含對解除管制和豁免管制此二概念的定義以及二者之間的關係說明,以及其在實踐上的具體指引。該指引引入適用任何類型材料之一般解除管制標準概念,以及任何可能的處置、回收或再利用途徑。根據根據《歐洲原子能條約》第 31 條專家組拆除核設施的導則經驗,包括材料的回收(金屬和建築物的碎石)或其無限制的再利用(金屬工具,建築物)等……提供特定核種之解除管制標準的限值。從該指引,與本計畫相關而值得參考的部分摘要如下:

- (1) Exemption level (豁免管制標準):對於放射性活度或活度濃度低於特定放射性核種豁免值的使用,豁免其管制。
- (2) General clearance level(一般解除管制標準):在此情況下,不定義材料的目的性。 這意味著在解除管制之後可以對材料進行回收、再利用或其他處置,因此在得 出解除管制標準時必須考慮這些可能性,並且必須確保一般解除管制標準等於 或高於特定解除管制標準的限制。考量各種清除行為所訂定之標準,其限值較 嚴格。

- (3) Specific clearance levels(特定解除管制標準):此選項的基本功能不是追踪材料的任何位置,而是清除材料以用於特定用途或目的,且無需進一步跟踪。因此此級別的概念適用於從管制制度中釋放,在管制制度中,僅對已清除材料的第一步進行控制,以確保其遵循規定的方案。監管的控制不應超出此範圍,因為進一步控制的需求將與解除管制的概念相矛盾(=解除管制需求)。因此,可追溯性僅限於第一步,例如在某些條件下將材料處置在垃圾填埋場,將粉煤灰混合到混凝土中,或者例如,可以僅允許特定用途的方式來製備材料。具體的解除管制途徑應在實施前得到監管部門的認可和批准。該程序應包括對技術限制和可追溯性的清晰描述,與一般解除管制標準相比,可允許更高的許可限值。
 - 根據特定清除行為所訂定之標準,其限值較不嚴格。對於拆除建築物可適用的 行為如:重複利用或拆除(Reuse or Demolition)、僅拆除(Demolition only)及粉粹 處理(Rubble)。
- (4) 年劑量計算推導 General clearance level:以參考情境(enveloping scenarios)考量吸入(Inhalation)、攝入(Ingestion)、體外曝露(External exposure)及皮膚污染(Skin contamination)而來的劑量,進而推導各核種的解除管制標準。本報告推導遵循以下方案。其中推導各核種 General clearance level 的結果,如表 4.18 所示
 - I. 選擇要進行計算的核種;
 - II. 定義合適的"參考"情境(enveloping scenarios),即選擇及說明有代表性的情境限制和參數;
 - III. 計算與每種核種單位活性有關的年劑量(即1Bq/g);
 - IV. 通過將參考年劑量水平 10 μSv/a 除以每年計算的 1 Bq/g劑量;得出核種解除管制標準;
 - V. 對解除管制標準四捨五入,並與現有的解除管制標準進行比較。

表4.18. 基於 General clearance level 各核種在吸入、攝入、皮膚污染及體外曝露路徑上所造成的個人年有效劑量率[4.2.8]

Table 3–1: Results of dose calculations for all nuclides (in $[(\mu Sv/a)/(Bq/g)]$)

			rradiation		Inhalation		Ingestion		Skin	Max.	limiting
Nuclide	T _{1/2} [a]	EXT-A	EXT-B	EXT-C	INH-A	INH-B	ING-A	ING-B	SKIN		scenario
H-3	1.2E+01	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	8.9E-05	7.1E-06	8.4E-04	1.2E-02	0.0E+00	1.2E-02	ING-B
Be-7	1.5E-01	1.4E+00	3.8E-01	1.3E-01	9.3E-05	5.3E-06	5.6E-04	2.8E-03	7.4E-05	1.4E+00	EXT-A
C-14	5.7E+03	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	1.3E-03	1.7E-04	1.2E-02	1.6E-01	2.4E-02	1.6E-01	ING-B
F-18	2.1E-04	3.5E-03	7.6E+00	0.0E+00	1.9E-04	8.6E-06	9.8E-04	1.1E-09	7.2E-02	7.6E+00	EXT-B
Na-22	2.6E+00	7.0E+01	1.9E+01	7.9E+01	4.3E-03	2.0E-04	6.4E-02	1.3E+00	6.8E-02	7.9E+01	EXT-C
Na-24	1.7E-03	4.7E+01	3.7E+01	0.0E+00	1.1E-03	4.8E-05	8.6E-03	1.8E-04	7.9E-02	4.7E+01	EXT-A
Si-31	3.0E-04	5.3E-05	8.0E-03	0.0E+00	2.4E-04	1.5E-05	3.2E-03	7.7E-08	8.0E-02	8.0E-02	SKIN
P-32	3.9E-02	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	6.3E-03	4.6E-04	4.8E-02	1.0E-01	7.4E-02	1.0E-01	ING-B
P-33	7.0E-02	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	2.8E-03	1.3E-04	4.8E-03	1.8E-02	4.3E-02	4.3E-02	SKIN
S-35	2.4E-01	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	2.4E-03	1.2E-04	1.5E-02	1.8E-01	2.4E-02	1.8E-01	ING-B
C1-36	3.0E+05	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	1.1E-02	6.5E-04	1.9E-02	6.3E-01	6.8E-02	6.3E-01	ING-B
C1-38	7.1E-05	1.3E-10	1.4E+01	0.0E+00	1.6E-04	9.9E-06	2.4E-03	0.0E+00	2.1E-01	1.4E+01	EXT-B
K-40	1.3E+09	5.3E+00	1.4E+00	6.8E+00	6.5E-03	5.0E-04	1.2E-01	4.2E+00	6.5E-02	6.8E+00	EXT-C
K-42	1.4E-03	2.4E+00	2.5E+00	0.0E+00	4.3E-04	3.4E-05	8.6E-03	1.6E-04	1.9E-01	2.5E+00	EXT-B
K-43	2.6E-03	1.4E+01	7.4E+00	0.0E+00	5.6E-04	2.7E-05	5.0E-03	2.5E-04	6.3E-02	1.4E+01	EXT-A
Ca-45	4.5E-01	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	5.0E-03	2.5E-04	1.5E-02	2.5E-01	4.3E-02	2.5E-01	ING-B
Ca-47	1.2E-02	3.1E+01	9.6E+00	1.1E-07	5.2E-03	2.5E-04	3.7E-02	1.6E-02	1.3E-01	3.1E+01	EXT-A
Sc-46	2.3E-01	6.5E+01	1.8E+01	1.3E+01	1.0E-02	5.9E-04	3.0E-02	2.5E-01	5.6E-02	6.5E+01	EXT-A
Sc-47	9.2E-03	1.9E+00	2.3E-01	0.0E+00	1.6E-03	8.4E-05	1.1E-02	4.2E-03	4.3E-02	1.9E+00	EXT-A
Sc-48	5.0E-03	7.6E+01	3.0E+01	0.0E+00	3.5E-03	1.6E-04	3.4E-02	4.6E-03	6.6E-02	7.6E+01	EXT-A
V-48	4.4E-02	9.1E+01	2.5E+01	1.1E-01	5.8E-03	2.9E-04	4.0E-02	6.7E-02	1.1E-01	9.1E+01	EXT-A
Cr-51	7.6E-02	8.3E-01	1.9E-01	1.2E-02	7.3E-05	5.5E-06	7.6E-04	2.5E-03	4.0E-04	8.3E-01	EXT-A
Mn-51	8.8E-05	1.3E-08	7.7E+00	0.0E+00	1.5E-04	8.4E-06	1.9E-03	0.0E+00	1.3E-01	7.7E+00	EXT-B
Mn-52	1.5E-02	9.9E+01	3.0E+01	1.1E-05	3.9E-03	1.8E-04	3.6E-02	1.7E-02	2.5E-02	9.9E+01	EXT-A
Mn-52m	4.0E-05	0.0E+00	2.1E+01	0.0E+00	1.1E-04	5.9E-06	1.4E-03	0.0E+00	1.6E-01	2.1E+01	EXT-B
Mn-53	3.7E+06	0.0E+00	0.0E+00	0.0E+00	7.8E-05	9.7E-06	6.0E-04	2.2E-02	2.3E-06	2.2E-02	ING-B

4.3 國內設施資料收集

4.3.1 國內設施資料填寫與收集

蒐集並參考國內現有 13 部迴旋加速器放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史狀況,歸納建立模擬參數基礎資料庫,收集資料例如:加速器型式、加速粒子類型、加速器本體與周圍組件主要材質及厚度、屏蔽建物主要材質及厚度、靶材類型與使用狀況(數量/材質/體積/靶電流說明)、核准最大加速能量、實際最大生產活度與照射時間、每週/每年生產活度與照射時間及加速器附自體屏蔽之有無等。針對上述對於加速器的資料收集需求,本報告設計表 4.19~表 4.21,俾利各個醫療、學術單位協助運轉歷史資料的填寫與收集。

表4.19. 放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史調查表設施單位填寫數據

	か 油 型 2	中北山	生與運轉	展山細オ	ト主		
	加迷品	建垣符1	生典理特	歷艾铜色	至衣	版本:202	00201 37
en ek di dû	新光醫院			- 如木 乜			
設施名稱 加速器廠牌		型號		調查者序號		完成日期	
加速 加速 和速 粒子			└ 【擇「H(氫)」			J	
加速器附自體屏蔽之有無			[14				
加速品附日服开服之有無	H	9.6	MeV	.」 以 無日併	一用之」		
核准最大加速能量	D D	NA	MeV				
·····································]			
中速器出東試運轉日(年月日)				-			
中速器正式運轉日(年月日)							
中可證字號.				•			
可效日(年月日)]			
前合格運轉人員數量		人		•			
		1					
靶材類型與使用狀況說明	L 文 1 左 1 任	#m 11	體積	最大靶電流	照射時間	最大生產活度	
	生產核種	靶材	(c.c.)	(μA)	(h)	EOB (mCi)	
例	F-18	鈮	2.2	40	2	4500	
1號靶	F-18						
2號靶	C-11						
3號靶	N-13						
4號靶	O-15						
5號靶	NA						
6號靶	F-18						
7號靶	C-11						
8號靶	N-13						
氧-18水豐度		%					
加速器本體資訊	(請就已知:	填寫)或參考	輻射安全評估	報告相關廠商	文件填入		
中速器本體材質(由內而外)	鋼鐵	黄銅					
u速器本體材質厚度(cm)	24	12					
加速器自屏蔽體資訊	(請就已知:	填寫,如無自	屏蔽填無)或		評估報告相	關廠商文件填入	
1 屏蔽體周圍組件材質	鉛	鐵	高密度水泥	PE	含硼水		
由內而外)							
日屏蔽體周圍組件材質厚度(cm)							
· 京大變更說明	如:本設施方高到5000m		日起靶電流由)μA 生產活	度由3500mCi提	

表4.20. 設施運轉歷史使用狀況填寫數據表

		20)19年	
拉锤	平均靶電流	照射時間	週射束損失	週生產活度
核種	(µA)	(h/w)	(µA-h/w)	(mCi/w)
F-18	40	10	400	4500
2019-w1				
2019-w2				
2019-w3				
2019-w4				
2019-w5				
2019-w6				
2019-w7				
2019-w8				
2019-w9				
2019-w10				
2019-w10				
2019-w11				
2019-w12				
2019-w13 2019-w14				
2019-w14 2019-w15				
2019-w15 2019-w16				
2019-w17				
2019-w18				
2019-w19				
2019-w20				
2019-w21				
2019-w22				
2019-w23				
2019-w24				
2019-w25				
2019-w26				
2019-w27				
2019-w28				
2019-w29				
2019-w30				
2019-w31				
2019-w32				
2019-w33				
2019-w34				
2019-w35				
2019-w36				
2019-w37				
2019-w38				
2019-w39				
2019-w40				
2019-w41				
2019-w42				
2019-w43				
2019-w44				
2019-w45				
2019-w46				
2019-w47				
2019-w48				
2019-w49				
2019-w50				
2019-w51				
2019-w52				
2019-w53				

表4.21. 設施運轉歷史使用狀況匯總表

設施	輻射安全評估	配置平面圖	射束生產條件	歷年各靶射束電流 時間乘積(μA-h)	歷年各靶生產總活度 (Ci)	更換活化物數量/重量
北榮						
核研所						
中山						
新光						
三總						
花蓮慈濟						
義大						
阮綜合						
台大						
林口長庚-S						
林口長庚-GE						
士宣						
新吉美碩						

4.3.2 國內設施資料匯總

經由各設施單位提供之數據,藉由表 4.19~表 4.21 填寫內容,經匯總各設施之 建造、設備特性與運轉歷史狀況如下。

- 1. 表 4.22 歸納出各設施文件收集狀況、設備特性與運轉參數表。
- 2. 表 4.23 及表 4.24 歸納出各設施對應靶號、生產核種、靶材、照射能量、靶電流 與最大生產活度。
- 3. 表 4.25 及表 4.26 歸納出各設施對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質與靶窗厚度。
- 4. 表 4.27 歸納出各設施對應靶號、生產核種、歷年資料、靶電流、照射時間與生產活度。

表4.22. 各設施文件收集狀況、設備特性與運轉參數表

設施代碼	廠牌	型號	序號	能量 (MeV)	加速粒子	有無 自屏蔽
A	Scanditronix	MC-17F	18013	17.2/17	H-	X
				8.6/8	D-	
В	ACSI	TR-30/15		15~30	H-	X
				7.5~15	D-	
C	CTI	RDS 111	DV17	11	H-	Y
D	GE	Minitrace		9.6	H-	Y
E	IBA	CYCLONE 18/9		18	H-	X
				9	D-	
F	GE	PETtrace	335UP0	16.5/16	H-	X
				8.4/8	D-	
G	GE	PETtrace		16.5	H-	X
				8.4	D-	
Н	Sumitomo	HM-12S	6	12	H-	Y
				6	D-	
I	GE	PETtrace	644UP5	16.5	H-	Y
				8.4	D-	
J	Sumitomo	HM-12S	WWCF2200	12	H-	Y
				6/NA	D-	
K	GE	PETtrace 880S	2169UP1	16.5/16.4	H-	Y
				NA	D-	
L	Sumitomo	HM-12S		12	H-	Y
				NA	D-	
M	IBA	KIUBE 100		18	H-	X

名詞說明:

- 1. 能量(MeV):加速粒子的最大能量。
- 2. 加速粒子: 迴旋加速器加速粒子的種類。
- 3. 有無自屏蔽: X表示迴旋加速器無自屏蔽, Y表示迴旋加速器有自屏蔽。

表4.23. 各設施對應靶號、生產核種、靶材、照射能量、靶電流與最大生產活度 I(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

設施代碼	總靶數	安裝靶號	生產核種	生産 核種反應	靶材	靶材 型態	照射 能量 (MeV)	照射/靶 體積 (c.c.)	最大 靶電流 (μA)	最大生產 活度 EOB (mCi)
A										
В										
Б										
G	_									
С										
D	-									
E	-									
F	_									
G										

表4.24. 各設施對應靶號、生產核種、靶材、照射能量、靶電流與最大生產活度 II(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

設施代碼	總靶數	安裝靶號	生產 核種	生產 核種反應	靶材	靶材 型態	照射 能量 (MeV)	照射/靶 體積 (c.c.)	最大 靶電流 (μA)	最大生產 活度 EOB (mCi)
Н									N /	
I										
J										
K										
M										

名詞說明:

- 1. 總靶數:迴旋加速器可安裝的總靶數。
- 2. 安裝靶號:設施迴旋加速器可安裝的靶編號。
- 3. 生產核種:設施迴旋加速器於特定靶號可生產之核種。
- 4. 生產核種反應:設施迴旋加速器於特定靶號可生產之核種的反應式。
- 5. 靶材:迴旋加速器於特定靶號,加速粒子所撞擊之靶材。
- 6. 靶材型態:靶材的三相(固、液或氣態/Solid、water或 gas)型態。
- 7. 照射能量(MeV): 設施迴旋加速器於特定靶號選用之粒子能量。
- 8. 照射/靶體積(c.c.):靶材被照射到的體積或是靶材總體積。
- 9. 最大靶電流(µA):設施迴旋加速器於特定靶號選選用之最大靶電流。
- 10. 最大生產活度 EOB (mCi): EOB 為 End of Bombard。

表4.25. 各設施對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質與靶窗厚度 I(為保護各 設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

設施代碼	總靶數	安裝 靶號	生產 核種	靶體 材料	靶窗材質	靶窗厚度 (μm)
A						
В						
Б						
С						
D						
Е						
F						
1						
G						

表4.26. 各設施對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質與靶窗厚度 II(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

設施代碼	總靶數	安裝靶號	生產 核種	靶體 材料	靶窗材質	靶窗厚度 (μm)
Н						
I						
J						
K						
L						
M						

名詞說明:

1. 靶體材料:支撐靶材的靶體材質。

2. 靶窗材質:設施迴旋加速器加速粒子出口與靶材間設置之靶窗材質。

3. 靶窗厚度(µm): 靶窗的厚度。

表4.27. 各設施對應靶號、生產核種、歷年資料、靶電流、照射時間與生產活度(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

設施代碼	製數	安裝靶號	生產核種	歷資起始	歷年 資料 结尾 年份	平均 靶電流 (µA)	平均 靶電流 (µA) (最小~最大)	平均 毎周 照射 (h/w) (平均 毎期 東 損失 (µA-h/w)	平均 每年 總照射 時間 (h/年)	每年 總照射 時間 (h/年) (最小~最大)	平均 毎年 總射束 損失 (µA-h/年)	毎年 總射束 損失 (μA-h/年) (最小~最大)	平均 毎年 總生產 活度 (mCi/年)	每年 總生產 活度 (mCi/年) (最小~最大)
A															
В															
С															
D E															

F	6
G	6
Н	4
I	6
J	8
K	6
L	
M	8

名詞說明:

- 1. 歷年資料起始年份:設施提供之歷年資料起始年份。
- 2. 歷年資料结尾年份:設施提供之歷年資料结尾年份。
- 3. 平均靶電流(μA)/平均靶電流(μA)(最小~最大):設施迴旋加速器於特定靶號 每次生產特定核種時平均靶電流/使用靶電流的最小至最大值範圍。
- 4. 平均每周照射時間(h/w):設施迴旋加速器於特定靶號每周生產特定核種時 周平均照射時間。不含因研究、維修、保養或設備測試等非常規或單獨用途 之紀錄。
- 5. 平均每周射束損失(μA-h/w):設施迴旋加速器於特定靶號每周生產特定核種時之周平均射束損失電流。
- 6. 平均每周生產活度(mCi/w):設施迴旋加速器於特定靶號每周生產特定核種時之周平均生產活度。
- 7. 平均每年總照射時間(h/年):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷年資料起始 ~結尾年份之間,平均每年總照射時間。不含因研究、維修、保養或設備測 試等非常規或單獨用途之紀錄。
- 8. 每年總照射時間(h/年)(最小~最大):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷年資料起始~結尾年份之間,每年總照射時間最小至最大值範圍。
- 9. 平均每年總射束損失(μA-h/年):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷年資料 起始~結尾年份之間,平均每年總射束損失。
- 10. 每年總射束損失(μA-h/年)(最小~最大):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷 年資料起始~結尾年份之間,每年總射束損失最小至最大值範圍。
- 11. 平均每年總生產活度(mCi/年):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷年資料起始~結尾年份之間,平均每年總生產活度。
- 12. 每年總生產活度(mCi/年)(最小~最大):設施迴旋加速器於特定靶號,於歷年 資料起始~結尾年份之間,每年總生產活度最小至最大值範圍。

以上統計皆不含因研究、維修、保養或設備測試等非常規或單獨用途之紀錄。

4.3.3 國內生產設施特性統計

蒐集並參考國內現有 13 部迴旋加速器放射性物質生產設施之生產與設備特性:

- (1) 生產 F-18 為主;國內資料平均每日平均生產活度 4431.55 mCi(164 GBq);射 東電流量約 30~60 μA;照射時間約每日 2 小時(一年約 500 小時)。
- (2) 有自屏蔽體設備數為7部,無自屏蔽體設備數為6部。
- (3) 依據廠牌及型號分類,國內設有6種廠牌與8種型號,如下表4.28統計。
- (4) 除了B設施H⁻加速粒子能量為15~30 MeV與D⁻加速粒子能量為7.5~15 MeV外,其餘設施H⁻加速粒子能量落在9.6~18 MeV之間,D⁻加速粒子能量落在6~9 MeV,如下表4.29 統計。
- (5) 目前各設施使用的靶體材料統計如下表 4.30,其中以鈮靶採用為最多。
- (6) 目前各設施靶所採用的最大靶電流介於 10~200 μA,統計如,其中以採用 40 μA 為最多如表 4.31。

表4.28. 國內生產設施廠牌及型號分類

廢牌	型號	設備數
Scanditronix	MC-17F	1
ACSI	TR-30/15	1
CTI	RDS 111	1
GE	Minitrace	1
IBA	CYCLONE 18/9	1
GE	PETtrace	4
Sumitomo	HM-12S	3
IBA	KIUBE 100	1

表4.29. 各設施加速粒子能量統計

設施代碼	A	A]	3	С	D	F	Ξ	I	7	G	r	F	ł	I			ſ	K]	L	M
能量 (MeV)	17	8	15~30	7.5~15	11	9.6	18	9	16	8	16.5	8.4	12	6	16.5	8.4	12	6	16.4	NA	12	NA	18
加速粒子	H-	D-	Н-	D-	H-	Н-	H-	D-	H-	D-	Н-	D-	H-	D-	Н-	D-	H-	D-	Н-	D-	H-	D-	H-

表4.30. 各設施使用的靶體材料統計

靶體材料	設施使用數目(個)				
Ag 銀	4				
Al 鋁	8				
Ni 鎳	1				
Nb 鈮	16				

表4.31. 各設施靶所採用的最大靶電流統計

最大靶電流(μA)	10	12	30	35	40	45	50	60	65	85	120	160	200
採用靶數	1	1	9	1	16	7	2	4	2	1	1	2	1

4.4 蒙地卡羅技術建立

傳統的活化採用公式計算評估活化狀況,評估方式係以到達特定材料表面之中子全數歸類為熱中子,並以材料的熱中子活化反應截面相乘之,即可初步估算材料的活化狀況,然而公式計算有幾項不足之處:

- 無法精確呈現活化隨材料深度的變化,由於二次中子生成為混合中子場,交雜著快中子,超熱中子及熱中子的情形下,熱中子在材料表面數公分內存在增建區,對於估算活化與深度的關係必然造成偏差。
- 2. 由於材料的活化反應截面在熱中子區間呈現較大的數值,因此必然 高估活化狀況,雖然保守高估有利於輻射防護,但若能更精確的描 述實際狀況,可以在安全無虞的前提下降低除役成本。

綜上所述,利用蒙地卡羅計算評估活化的狀況可以有效的彌補上述的不 足之處,且蒙地卡羅有能力針對特定設施建立精確的模型,彈性與準確性均 高於使用公式計算的評估方式,但蒙地卡羅需要更長的時間供電腦運算,但 在本研究中,使用蒙地卡羅計算更有利於解析眾多重要參數之間的主次關係, 因此選用蒙地卡羅模擬程式作為分析本研究之工具。

目前常見的蒙地卡羅軟體包含 MCNP、Geant4、PHITS、FLUKA,蒙地卡羅軟體之間在邏輯、編譯等基礎上存在一定差異,但針對分析粒子遷移等問題則可視為相互通用的軟體,而 FLUKA 相較於其他三者在分析活化問題時更易於操作,毋須增加其他外掛程式即可使用,因此本研究使用 FLUKA

作為分析工具。

4.4.1 中子產率驗證

本驗證利用 30 MeV 單能量質子束,實驗設計以點射源朝靶材呈單一方向入射, 靶材選用銅, 其中 30 MeV 質子束入射銅的射程為 1.446 平方公分/克 [4.4.1],銅以密度 8.96 克/立方公分計算之,射程為 0.16 公分,靶材的幾何以圓柱定義,考量入射質子必須全數沉積於靶材中,同時考慮帶電粒子在物質中的射程離散(Range straggling)及能量歧離(Energy straggling), 故將靶材厚度設計為 0.19 公分,約為射程的 1.2 倍,確保質子會在靶材中全數停止。而靶材的半徑則定為 0.095公分,為靶材厚度的一半,由於質子在減速的過程中前向散射(Forward scattering)的趨勢明顯, 且半徑太大的靶材可能影響生成中子的傳播。因此半徑 0.095 公分,厚度為 0.19 公分是足以做為驗證 30 MeV 質子入射銅靶所生成中子的靶材設計。

中子的產率計數,設計上以一個 100 公分的真空球殼包覆靶材及質子射束,並針對 0°、15°、30°、45°、75°及 90°六組不同的發散角作記讀。為了增加模擬效率,將特定發散角±5°之球殼面積均視為有效入射面積,解決入射中子數量過少所造成的模擬時間過長及不確定度過大的問題,同時 10°的偵檢面積,仍足以有效區別各個立體角間的中子空間分布,就結果而言,是可以接受的中子產率計數模型設定。

結果如圖 4.10 所示,由於六個角度的中子產率部份重疊不易判讀,因此對 六個角度的計讀結果分別給予不同的加權。觀察單一發散角時,可以發現快中子 的產率相較於該發散角的總中子產率,在 0°角時最大,而在 90°時的快中子產率 與 90°的總中子產率比值則明顯下降,如上所述之模擬結果與 Nakamura 等人於 1983 年實驗量測文獻[4.1.1]比對亦可發現相似的趨勢,確立吾人在本驗證中的靶 材設計、數據分析的正確性。

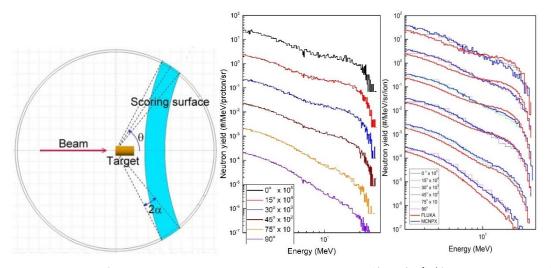


圖4.10. 左圖為 FLUKA 使用之模型,利用 30 MeV 質子束轟擊銅靶,並在 0 度至 90 度分別計讀中子通量,中圖之中子通量與右圖中紅線之趨勢吻合。

4.4.2 核種活化驗證

散裂產物產生截面(Production Cross Section of Spallation Products)是活化問題中相當重要的物理量。其中,活化產物的計算有賴於(4.4.1)式,利用已知的反應截面、靶材特性、質子數量,即可得到活化產物的產量。因此針對反應截面的驗證即為優先工作。關於 30 MeV 質子的驗證計算,由於 30 MeV 質子能量較低,能夠進行的核反應管道較少,單一物質作用能夠比對的截面數據不多,因此我們選擇兩種加速器組件常見的材料銅(Mills et al., 1992 [4.4.2])與鐵(Daum, 1997 [4.4.3])做為比較的目標,以增加對蒙地卡羅計算結果的信心。本驗證利用 FLUKA參考上述兩篇文獻中的實驗設置,模擬 30 MeV 單能質子東分別轟擊 50μm 之銅靶及 20μm 鐵靶,由於 FLUKA 無法直接輸出模擬中所使用的活化反應截面資訊,因此利用靶材中之活化核種種類及活度與(4.4.2)式的計算,回推反應截面並與文獻實驗值比對,如表 4.32 及表 4.33。

$$R = \sigma \times N_a \times t \tag{4.4.1}$$

$$\sigma = R/N_a \times t \tag{4.4.2}$$

σ :活化反應截面 (cm²)

R :活化產物產率 (#/proton)

 N_a : 靶材原子密度 (#/cm³)

t : 靶材厚度 (cm)

銅靶的模擬結果與文獻比較可以發現,除了鈷-57模擬-文獻的活化反應截面 比值達到 2.4 倍以外,其餘的差異均在 65%以下,其中鋅-63 的模擬計數值已可 重現實驗結果;而鐵靶的模擬結果與文獻的比較中,同樣是鈷-57 的差異最為明 顯,其餘活化核種,扣除錳-52,差異可控制在 40%以下。由此可以推斷,利用 FLUKA模擬質子轟擊銅靶與鐵靶可以預測靶材中可能生成之活化產物種類以及 產率,且準確率尚可接受,但其中幾類核種,例如鈷-57 及錳-52 則需要特別注 意。

表4.32. 利用 30 MeV 轟擊 50µm 之銅靶之結果[4.4.2]

Isotope	Mills et al.	FLUKA	Ratio (FLUKA/Exp)
⁶² Zn	29.3±2.4	36.05 ± 0.87	1.23
⁶³ Zn	42.1±3.7	42.41±0.93	1.01
⁶⁵ Zn	8.19±0.66	9.14±0.38	1.12
⁶¹ Cu	110.2±9.3	129.36±1.94	1.17
⁶⁴ Cu	73.3±8.1	57.96±1.28	0.79
⁵⁷ Co	0.05 ± 0.01	0.12 ± 0.05	2.40
⁵⁸ Co	15.5±1.2	25.45±0.79	1.64
⁶⁰ Co	0.74 ± 0.08	0.92 ± 0.15	1.24

除了鈷-57 有較大的差異以外,其餘的核種活化模擬結果(FLUKA)與實驗結果(Mills et al., 1992)誤差都在 65%以下。

表4.33. 利用 30 MeV 轟擊 20µm 之鐵靶之結果[4.4.3]

Isotope	Daum	FLUKA	Ratio (FLUKA/Exp)
⁵² Mn	30.8±7.7	47.83±1.72	1.55
⁵³ Fe	14.6±2.2	17.20±1.01	1.18
⁵⁴ Mn	38.3±5.7	40.12±1.44	1.05
⁵⁵ Co	50.3±8.3	32.93±1.22	0.65
⁵⁶ Co	35.9±6.2	42.47±2.21	1.18
⁵⁷ Co	2.2±0.34	0.94 ± 0.22	0.43
⁵⁸ Co	0.18 ± 0.09	0.12 ± 0.08	0.67

除了鈷-57 及錳-52 的誤差約為 60%以外,其餘的核種活化模擬結果(FLUKA) 與實驗結果(Daum, 1997)誤差都在 40%以下。

4.4.3 劑量評估驗證

加速器環境的劑量評估,其重要性在於針對日後的除役工作人員可能造成的人員劑量可以先行評估,其中FLUKA在計算活化產物的劑量貢獻時,導入「時間」此一重要參數,在此基礎上,可以導入加速器運轉時的照射時間、射束強度、冷卻時間等一系列評估活化及活化產物衰變的重要訊息,而FLUKA亦參照周圍等效劑量轉換因子(Ambient dose equivalent conversion factor),將模擬結果中的粒子通量乘上轉換因子,以劑量率的形式輸出結果,極大程度幫助使用者計算周圍等效劑量。

參考 Tanaka 等人[4.4.4]以 IRAC (Induced Radioactivity Analysis Code)程式評估鈹靶經質子射束照射後,靶材對環境之殘存劑量率隨時間變化。由於該文獻中並沒有詳述靶材的設計,因此我們自行將鈹靶定義為一個 0.7 公分厚,半徑 0.35 公分的圓柱。射束則參照文獻定義為 30 MeV 點射源質子束,每天以 1 mA 的射束強度照射靶材 2 個小時,照射時間持續一年,並記錄距離靶材表面 1 公分處之殘存劑量率變化。

結果如圖 4.11 上圖,黑線為 Tanaka 等人模擬之結果,藍色為理論計算結果, 紅色則為 FLUKA 計算結果,由於理論計算與 FLUKA 計算採用相同靶材設計, 因此結果大致相同;而 FLUKA 的計算結果雖然於 Tanaka 等人模擬之結果相去 甚遠,推斷即肇因於殘存劑量率與活化核種產率直接相關,而活化核種產率則於 靶材的幾何有關,如(4.4.1)式,但可以觀察到在第0至第365天的照射期間,周 圍等效劑量的成長趨勢相似,自第365天開始的冷卻時間則呈現相同的衰變曲線。圖4.11下圖為FLUKA的驗證結果,上下圖中的紅色呈現高度相似,均為鈹靶中被質子活化的鈹-7對周圍等效劑量的貢獻,下圖的綠線則呈現考慮其他的 衰變核種所產生的光子貢獻時,周圍等效劑量會顯著上升。

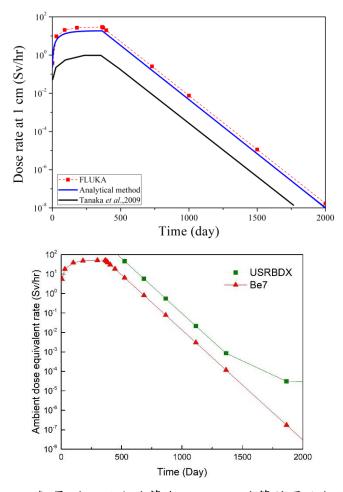


圖4.11. 文獻量測、理論計算與 FLUKA 計算結果比較[4.4.4]

上圖黑線為文獻量測結果,藍線為理論計算結果,紅線為 FLUKA 計算結果, 可觀察到此案例中, FLUKA 的結果與理論計算結果較吻合;下圖為驗證結果, 可觀察到上下圖紅線大致吻合,且在考慮其他能量的光子貢獻時,周圍等效劑量 率會顯著提高。

4.4.4 中子產率、中子劑量與氟-18 產率關聯性驗證

2015 年由 Angelo Infantino 等人利用 FLUKA 模擬 16.5 MeV 質子加速器轟擊氧-18 液態水靶時的氟-18 產率作驗證[4.1.7],針對不同的 FLUKA 物理模型設定及質子遷移能量閾值作測試,如表 4.34,發現以 NEW-DEFA 作為預設物理模型,以 1 MeV 質子做為遷移能量下限,其結果準確且所需時間最少,做為更進一步的模擬是最有效的設定。

表4.34. 三種不同的預設模物理模型與質子遷移能量閾值表格與 IAEA 報告比較 之結果。以 NEW-DEFA, 1 MeV 設定是最有效率的設定[4.1.7]

物理模型	HADROTHE	HADROTHE	PRECISIO	PRECISIO
質子遷移能量閾值 (MeV)	0.1	10	0.1	10
18F 飽和產量比值 (FLUKA/IAEA)	1.01 ± 0.10	0.50 ± 0.05	1.01 ± 0.10	0.50 ± 0.05
模擬時間 (時)	25.17	4.43	25.48	2.26

物理模型	NEW-DEFA	NEW-DEFA	NEW-DEFA
質子遷移能量閾值 (MeV)	10	0.1	1
18F 飽和產量比值 (FLUKA/IAEA)	0.50 ± 0.05	1.01 ± 0.10	1.01 ± 0.10
模擬時間 (時)	1.05	5.04	3.12

Angelo Infantino 等人也在某一間義大利醫院量測一台質子加速器於製藥時的中子周圍等效劑量,質子束為 16.5 MeV,以 1.6-5 nA 照射 1 個小時,照射期間在照射室內放置 4 臺 FHT-752 中子劑量值檢器,記錄其平均劑量率,並在FLUKA 中建立相同的照射條件,結果如表 4.35、圖 4.12,針對 4 個不同的量測點,FLUKA 與實驗的結果差異均在 10%以內。除此之外,於圖 4.12 中亦可發現

在既有加速器設施存在而造成的屏蔽影響下,中子的前向散射較高,在往後的劑量與活化評估中需要多加注意。

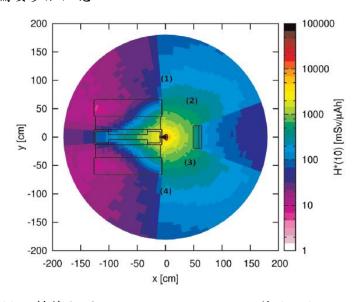


圖4.12. FLUKA 模擬製藥期間以 16.5 MeV, 1.6-5 nA 質子照射一小時,照射室內劑量分布,數字為 FHT-752 中子劑量計的放置位置[4.1.7]

表4.35. FLUKA 模擬中子劑量率與實驗之比較結果, FLUKA 與 FHT-752 量測比值約為 1.01[4.1.7]

位置	模擬結果 (mSv/μAh)	實驗結果(mSv/μAh)
(1)	307.9 ± 2.9	330 ± 50
(2)	454 ± 3	430 ± 70
(3)	460 ± 3	420 ± 60
(4)	316.9 ± 2.7	330 ± 50
平均	384.7 ± 2.9	377.5 ± 58.1

2016 年由 Angelo Infantino 等人針對同一台質子加速器質子束轟擊氧-18 液態水靶時產生的中子劑量作實驗及模擬的驗證[4.1.4],相較於前一次的實驗設置,Angelo Infantino 等人於照射室中放置 12 台 FHT-752 中子劑量值檢器負責值檢 0.025 eV - 20 MeV 的中子周圍等效劑量,並額外放置 12 個 CR39 TLD 中子劑量計,值檢 200 keV - 14 MeV 中子周圍等效劑量,如圖 4.13,量測製藥期間的周圍等效劑量,質子能量為 16.5 MeV,由於考慮到值檢器的無感時間(Dead time)可能造成的量測誤差,本次照射設定為 1.6 - 5 nA 照射 1 個小時,並與 FLUKA 模

擬結果比較,FLUKA 使用的物理模型設定與[4.1.7]中相同,結果如圖 4.14、圖 4.15,由於 FHT-752 與 CR39 TLD 中子劑量計分別有各自的適用中子能量範圍, FHT-752 中子偵檢器是可以囊括全域中子能量, CR39 TLD 則是針對 200 keV 以上的快中子能量區間,因此在 FLUKA 模擬時即將入射偵檢器的中子能量納入計數條件,可以發現 FLUKA 與 FHT-752 劑量計的實驗結果差異均在一個標準差以內,FLUKA 與 CR39 TLD 劑量計的實驗結果差異亦在一個標準差以內,其中幾個量測點的實驗數據不確定度較大,猜測是肇因於質子束電流過小,造成數據量不足所致。

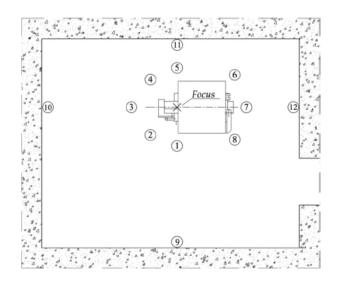


圖4.13. Angelo Infantino 等人於照射室中的偵檢器擺放位置,FLUKA 模擬中的 周圍等效劑量計讀位置與此圖相同。[4.1.4]

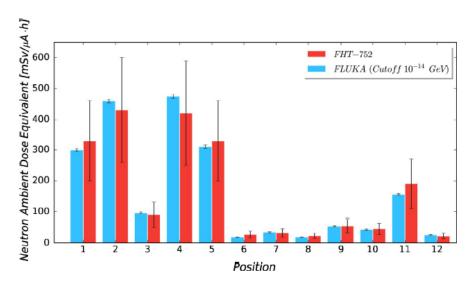


圖4.14. FHT-752 中子劑量計的量測結果與 FLUKA 的結果比較,在計讀的 12 個位置當中,實驗與模擬的結果均在一個標準差之內。[4.1.4]

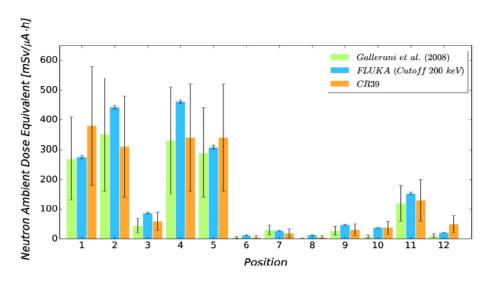


圖4.15. CR39 TLD 中子劑量計的量測結果與 FLUKA 的結果比較,在計讀的 12 點位置當中,實驗與模擬的結果均在一個標準差之內。[4.1.4]

同年 Angelo Infantino 亦針對另一台 TR13 質子加速器轟擊各式靶材產生正子造影藥物[4.1.3],我們針對文獻中氣-18 產量的理論計算、實驗量測及利用蒙地卡羅模擬程式,FLUKA 計算之結果作討論,該文獻中的 FLUKA 物理模型設定與[4.1.7]相同,射束端利用兩種不同能量定義加速質子,分別是單能 13 MeV 質子及半高全寬 298.3 keV,中心能量 13 MeV 質子,質子射束強度為 1μA,照射 1 個小時,射東分布分為筆型射東及高斯分布兩種,高斯分布的 x 方向半高全寬為 0.69 公分,y 方向為 0.41 公分;實驗量測部份以九次常規性製藥的結果平均,射束能量為 13 MeV,射束強度介於 18 – 20 μA,照射時間則介於 10-21 分鐘,如表 4.36,由於活化核種的產率與質子的射束強度呈正相關,為了將實驗量測與 FLUKA 模擬結果統一,因此將單位訂為 (MBq/μA),移除射束強度對產率的影響。實驗量測結果氟-18 的產率約為 4920 MBq/μA,可以發現利用 FLUKA模擬的結果低估約略 60%的氟-18 產率,其中,利用單一能量及筆型射束所得到的結果與使用高斯能量分布及空間分布射束所得結果相近。

表4.36. 18-20 μA 13 MeV 質子束轟擊氧-18 液態水靶產率實驗量測結果與 FLUKA 模擬結果比較

Isotope	Y_{exp} [MBq/ μ A]	Number of irradiations	Y_{exp}/Y_P	Y_{exp}/Y_{SE}
Liquid to	irgets			
⁶⁸ Ga	138 ± 2	3	0.97 ± 0.01	0.97 ± 0.01
⁸⁶ Y	40 ± 50	3	1.11 ± 0.02	1.11 ± 0.02
⁹⁴ Tc	49 ± 6	see [5]	0.65 ± 0.08	0.65 ± 0.08
⁸⁹ Zr	346 ± 2	6	1.152 ± 0.008	1.151 ± 0.008
¹⁸ F	4920 ± 60	9	0.601 ± 0.007	0.601 ± 0.007
¹³ N	259 ± 3	12	0.169 ± 0.002	0.166 ± 0.002
⁴⁴ Sc	4.9 ± 0.3	see [6]	0.43 ± 0.03	0.42 ± 0.03
Solid tar	gets			
⁵² Mn	900 ± 100	see [35]	0.21 ± 0.02	0.21 ± 0.02
⁶¹ Cu	130 ± 20	3	0.32 ± 0.04	0.32 ± 0.04
⁵⁵ Co	180 ± 20	see [36]	3.3 ± 0.4	3.4 ± 0.4

Yexp 為利用 18-20 μA 13 MeV 質子束轟擊氧-18 液態水靶 10-21 分鐘的九次實驗平均之氟-18 產率, Yp 為使用 FLUKA 模擬筆型射束轟擊氧-18 液態水靶之產率, YsE 為使用空間及能量均為高斯分布之質子束轟擊氧-18 液態水靶之產率。實驗量測結果與 FLUKA 模擬結果比較約有 60%的誤差。[4.1.3]

文獻中也提出利用理論計算得知活化核種的做法,如(4.4.3)式:

$$A_{sat} = \int_{E_{out}}^{E_{in}} n_x \phi(E) \sigma_{xy}(E) dE$$
 (4.4.3)

 A_{sat} :活化子核產率 (#/s)

 n_x :靶材母核數量 (#)

 $\phi(E)$:質子通量 (#/cm² × s × MeV)

 $\sigma_{xy}(E)$:靶材母核活化反應截面 (cm^2)

其中,正確的活化反應截面即可參考 IAEA-TECDOC-1211[4.4.5],利用(4.4.3) 式即可在已知靶材母核數量、質子通量、活化反應截面等參數,計算活化子核的 產率,如表 4.37。可以發現 FLUKA 的模擬結果較理論計算高估約略 20%,實驗 量測與理論計算相比則有 73%的誤差。

表4.37. Y_{CS} 為利用理論計算之氟-18 產率, FLUKA 模擬計算與理論計算約有 20%的氟-18 產量高估;實驗量測結果與理論計算結果則約有 73%的誤差。

[4.1.3]

Isotope	ECSM Ref.	Reaction	Y _{CS} [MBq/μA]	Y_P/Y_{CS}	Y_{exp}/Y_{CS}		
Liquid targets							
⁶⁸ Ga	[40]	$^{\text{nat}}$ Zn(p,x)	92 ± 2	1.79 ± 0.04	1.50 ± 0.04		
⁸⁶ Y	[32]	86 Sr(p,n)	154 ± 3	0.213 ± 0.004	0.24 ± 0.01		
⁸⁹ Zr	[42]	$^{89}Y(p,n)$	850 ± 20	0.354 ± 0.007	0.41 ± 0.01		
¹⁸ F	[31]	¹⁸ O(p,n)	6800 ± 100	1.21 ± 0.02	0.73 ± 0.02		

根據現有的文獻回顧與驗證,針對利用 FLUKA 模擬製藥期間的中子劑量、 氟-18 產率等對於環境活化的重要參數,均可呈現合理的預測與估計,對於本研 究未來蒙地卡羅技術的建立給予極為有力的支持。

4.4.5 無自屏蔽迴旋加速器設施活化分析

加速器模型的建立,參考 Cyclone® KIUBE 型號加速器,該加速器最大質子加速能量為 18 MeV。圖 4.16 為 Cyclone® KIUBE 中製備氟-18 之靶材模型,紅色部份為直徑 30 mm,厚度 30 mm 之圓柱型外殼,主要材料為鈮,綠色部份為直徑 10 mm,最大深度 20 mm 之彈頭型氧-18 水靶,藍色部份則為冷卻用液態水。

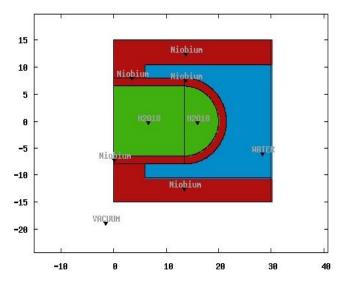


圖4.16. 參考 Cyclone® KIUBE 於 FLUKA 建立之氧-18 水靶,單位為 mm

針對加速器的模型,如圖 4.17, 黃色部份為磁鐵,材料設定以三氧化二鐵代替; 棕色部份為銅,材料設定即以天然銅定義; 白色部份為真空, 藍色則為空氣。

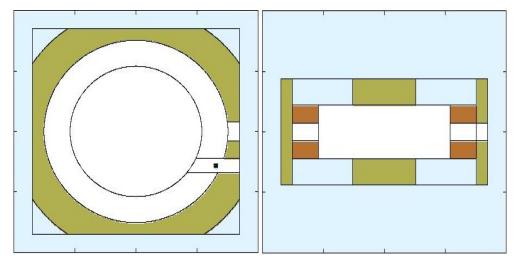


圖4.17. 加速器剖面圖 (左) 上視圖 (右) 側視圖 縱坐標及橫坐標為 50 cm/格

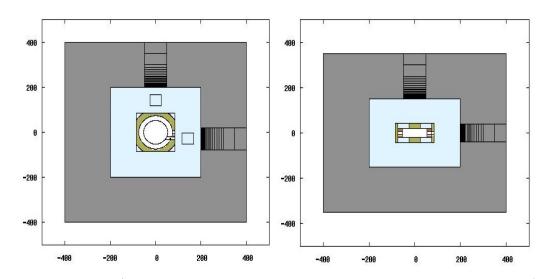


圖4.18. 無自屏蔽加速器室剖面圖 (左)上視圖 (右)側視圖 縱坐標及橫坐標為 100 cm/格

表4.38. FLUKA 波特蘭水泥材料組成

FLUKA 波特蘭水	泥 密度:2.3 g/cm ³
元素	重量百分比 (%)
氫 (H)	1
碳 (C)	0.1
氧 (O)	52.9
鈉 (Na)	1.6
鎂 (Mg)	0.2
鋁 (Al)	3.4
矽 (Si)	33.7
鉀 (K)	1.3
鈣 (Ca)	4.4
鐵 (Fe)	1.4
Total	100

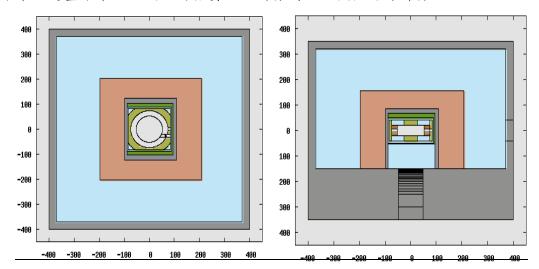
表4.39. 參考文獻中建議之混凝中重要活化核種,由於下列核種均源於混凝土中之雜質,因此在活化分析中需要額外計算之

Ref.	⁵⁴ Mn	⁶⁰ Co	¹³⁴ Cs	¹⁵² Eu	¹⁵⁴ Eu
Glaudemans (2017)	✓	✓	√	✓	√
Philips(1986)		✓	✓	✓	√
Kimura(1994)	✓	✓	✓	✓	✓
EUR(1999)	✓	✓	✓	✓	✓
Carroll(2001)		✓	✓	✓	✓
Calandrino (2006)		√		✓	√
Javier(2010)	✓	✓	✓	✓	✓
Sunderland (2012)	√	√	√	✓	✓
KEK(2019)	✓	✓	✓	✓	
This study	✓	✓	✓	✓	✓

4.4.6 有自屏蔽迴旋加速器設施活化分析

考量在部份迴旋加速器設施在設計建造時,在加速器與混凝土之間構築一層 屏蔽材料,謂之加速器自屏蔽。該屏蔽的主要目的包括屏蔽加速器產生之中子及 伽傌射線,以有效降低加速器室外的劑量率及加速器混凝土牆的活化。自屏蔽的 設計由內而外,分別是含重量百分濃度 3%天然硼的聚乙烯,鉛屏蔽,含重量百 分濃度 3.5%天然硼的水組成,如圖 4.19,其中聚乙烯厚度為 4cm 至 15cm,鉛屏 蔽厚度為 8.5cm 至 20cm,水屏蔽厚度則為 70cm 至 100 cm,在實務上,具有自 屏蔽的加速器設施會適度的減少混凝土厚度,因此在側向及屋頂方向的混凝土厚度修改為 30cm,以求符合實際狀況,惟地面方向因屏蔽相對薄弱,故地面混凝土厚度維持 200cm 設計。

参考無自屏蔽時的模擬架構,有自屏蔽的模擬同樣以 RESNUCLE CARD 計讀各個塊材中的活化核種及活度,並利用 USRTRACK 及 USRBIN 計讀中子的能量分布及通量分布。混凝土的雜質活化同樣獨立於模擬另外計算。



4.5 參數靈敏度分析

對上述模擬參數基礎資料庫,進行參數靈敏度分析,歸納靈敏性參數類別及 說明。由於活化的狀況受粒子射束最大加速能量、照射時間、靶材種類、靶材厚 度、自屏蔽的有無、混凝土中雜質濃度等多個面向的影響。往後亦將針對各個參 數的變動及模擬結果作靈敏度分析,瞭解各個參數間對於活化狀況的影響。

4.5.1 質子能量對 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面的影響

¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面隨著質子能量不同,會呈現不同的趨勢,如圖 4.20 中代表 IAEA 資料的藍色線,自質子能量 2.5 MeV 開始至 10 MeV, ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面呈現明顯的共振區間,自 10 MeV 以上反應截面則持續降低。

我們設計兩組模擬驗證 FLUKA 中質子能量與氟-18 產量反應截面之間的關係,第一組是 2-15 MeV 的點射源單能量質子束,轟擊 10 μm 的氧-18 水靶,第二組則是 10-30 MeV 的點射源單能量質子束,轟擊 50 μm 的氧-18 水靶,使用不同厚度的靶材會在下一節詳述設計理念,由於 FLUKA 中不能直接輸出反應截面的數值,只能針對靶材中的氟-18 數量計數,因此反應截面以(4.5.1)式計算之,結果如圖 4.20 虛線所示。FLUKA 肇因於使用物理模型描述 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面,物理模型是由一系列的方程式描述反應截面,因此 FLUKA 的模擬結果與IAEA 報告比較雖然趨勢大致相符,但無法準確的呈現 10 MeV 以下的共振現象,而在 15 MeV 以上的反應截面 FLUKA 計算結果則大抵符合 IAEA 報告的數值。

$$\sigma = R/N_a \times t \tag{4.5.1}$$

 σ : ¹⁸O(p,n) ¹⁸F反應截面 (cm²)

R: 18F產率 (#/proton)

 N_a :靶材原子密度 (#/cm³)

t : 靶材厚度 (cm)

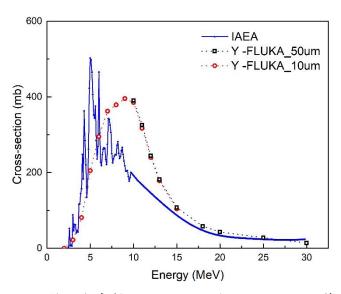


圖4.20. 利用 2-30 MeV 質子束轟擊 10/50 μm 的氧-18 水靶,計算生成氟-18 的 反應截面,2-10 MeV 結果差距較大是肇因於 FLUKA 物理模型限制,15 MeV 以上兩者數值大致相符

4.5.2 靶材厚度對 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面的影響

前述 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面會隨著質子能量改變而改變,因此在設計靶材時 必須考量靶材厚度對質子能量的影響,若使用太厚的靶材,質子能量改變的現象 過於顯著,對於反應截面的計算結果便流於非單能質子的平均反應截面。若使用 了厚度不足的靶材,模擬計數值較低導致誤差增加,而利用大量的樣本數彌補不 確定度則使得效率低下;在質子能量 2-15 MeV 區間,採用 10 μm 厚度靶材用於 驗證 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面,對於 15 MeV 以下使用 $10 \mu m$ 的靶材,我們利用質子 入射的能量及出口能量作計數,驗證質子能量變化狀況,避免反應截面的大幅度 變化,結果如圖 4.20 紅色虛線及圖 4.21,由於入射質子能量愈低,能量損失愈 明顯,因此檢視 2 MeV 入射質子,其平均出口能量為 1.84 MeV ± 0.02 %,約有 $0.16 \, \text{MeV}$ 的能量損失,然而 $2 \, \text{MeV}$ 以下的 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面已經很小,對於 0.16 MeV 的質子能量改變並不會造成任何顯著影響;而 5 MeV 入射質子,其出 口能量則為 4.91 MeV ± 0.01 %, 能量損失降到 0.09 MeV, 根據 IAEA 報告, 5 MeV 與 4.9 MeV 的反應截面約有 80 mb 的差距,上述差距肇因於 10 MeV 以下 的共振區間帶來的反應截面劇烈變化,然而可以預期的是,更高的質子能量通過 相同厚度的靶材,其能量損失會持續減少,對於反應截面受能量偏離而造成的影 響亦會持續下降。

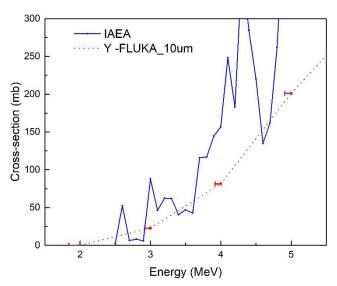


圖4.21. 圖 4.20 局部放大,紅點對應到入射質子能量,誤差線則代表出口端質子 平均能量,利用 10 μm 的靶材厚度不會造成過多的質子能量損失

在 10-30 MeV 能量區間,我們也嘗試利用 50 μ m 靶材驗證 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 的反應截面,結果如圖 4.20 黑色虛線,前述高能量質子在 10 μ m 靶材中的能量損失不明顯,因此可用於驗證反應截面,而 10-15 MeV 區間之 50 μ m 靶材的反應截面驗證結果與 10μ m 靶材相同,代表 $10 \, \text{MeV}$ 以下質子用 $50 \, \mu$ m 靶材即可得到正確的結果,且由於靶材較厚,更多的氟-18 計數值可有效降低不確定度,對於驗證 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面也會更有效率。

4.5.3 靶材厚度對氟-18 產率的影響

前述利用不同能量的質子束轟擊 10 μm 及 50 μm 的材料,用以驗證 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面,本團隊亦利用質子轟擊厚靶驗證氟-18 的產率,根據 PSTAR NIST,20 MeV 質子於水中的射程為 0.4252 g/cm²,以水的密度 1 g/cm³ 計算之,即為 0.4252 cm[4.5.1],靶材設計如圖 4.16,圖中的氧-18 水靶厚度為 1.5-2 cm,足以沉積所有 20 MeV 以下質子,利用 2-20 MeV 點射源單能質子束轟擊氧-18 水靶,並計數氧-18 水靶中所生成之氟-18 產量,結果如圖 4.22,紅色實線為 IAEA-TECDOC-1211 號報告中針對利用氧-18 水製備氟-18 的產量與質子能量之關係[4.5.2],藍色虛線為 FLUKA 模擬之結果,在質子能量低於 10 MeV 時,FLUKA 模擬結果與 IAEA 比較略為低估,而在質子能量高於 10 MeV 後,FLUKA 模擬結果則略高於 IAEA 報告呈現之數值,但整體高估均控制在 10%以下,對於預測 10-30 MeV 的 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應有極佳的表現。

參考圖 4.20,由於質子能量大於 20 MeV 以後, ¹⁸O(p,n)¹⁸F 的反應截面已顯著下降,換言之,質子能量大於 20 MeV 並不會再顯著提高氟-18 產量,故預期質子能量在 20-30 MeV 區間時,氟-18 的產率會趨於平緩,因此未於 FLUKA 中做更進一步的模擬驗證。

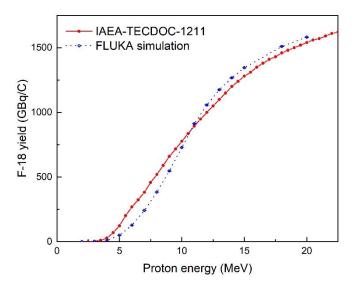


圖4.22. 質子轟擊氧-18 水靶之氟-18 生成量,紅線為 IAEA-TECDOC-1211 報告,藍色為 FLUKA 模擬結果

4.5.4 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面與 ¹⁸O(p,xn)反應截面的關係

利用 $10~\mu m$ 的氧- $18~\chi$ 靶驗證 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面時,除了計數氟-18~o18 的數量以回推其反應截面,以同樣的方法計數中子即可回推 $^{18}O(p,xn)$ 反應截面,如圖 4.23。在質子能量介於 2-9~MeV 時, $^{18}O(p,n)^{18}F$ 與 $^{18}O(p,xn)$ 反應截面完全重合,即在該質子能量區間,所有的中子均由 $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應所貢獻,但質子能量高於 9~MeV 時, $^{18}O(p,n)^{18}F$ 反應截面開始下降,而 $^{18}O(p,xn)$ 反應截面則呈相反趨勢上升,亦即隨著能量上升,有其他的反應貢獻中子生成。

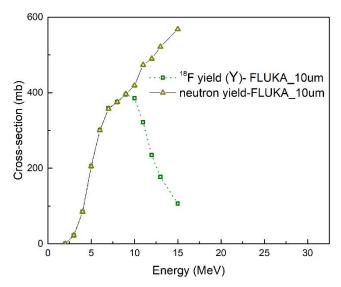


圖4.23. 質子能量對 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面與中子生成反應截面的關係,以 9 MeV 為分界點呈現不同的趨勢

為了瞭解高能量質子入射氧-18 的 $^{18}O(p,xn)$ 反應截面,參考 ENDF 資料庫將相關生成中子的反應描繪如圖 4.24,自 2.5 MeV 開始,由 $^{18}O(p,n)^{18}$ F 反應主要貢獻中子生成,至 8 MeV 開始, $^{18}O(p,n+\alpha)^{14}$ N 反應發生,並在約 11 MeV 時反應截面超過 $^{18}O(p,n)^{18}$ F,後續隨著質子能量升高,中子生成的反應也愈趨複雜,對於中子產生的貢獻度也開始更迭。

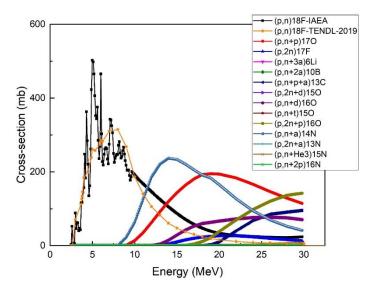


圖4.24. ENDF 資料針對質子轟擊氧-18 可能生成中子之反應及反應截面,除了標注 IAEA 資料庫者,其餘皆為 TENDL-2019 資料

而對於FLUKA 中模擬 ¹⁸O(p,xn)反應的正確性驗證,本團隊從活化生成物及中子計數兩方向驗證,利用 2-30 MeV 質子轟擊 10μm 氧-18 水靶,記錄在照射期間的活化核種生成數量(RESNUCLE CARD)及中子產量(USRBDX CARD),並計算其反應截面,兩者之間的生成截面關係應符合(4.5.2)式:

$$\sigma_n = \sum_{i=1}^{i} w_i \sigma_i \tag{4.5.2}$$

$$\sigma_n = (N_t \times t)/R_n \tag{4.5.3}$$

$$\sigma_i = (N_t \times t)/R_i \tag{4.5.4}$$

 σ_n :中子生成反應截面 (cm²)

W;:中子產率/活化核種(中子生成加權因子)

σ; :活化核種生成反應截面 (cm²)

N_t:靶材原子密度(/cm³)

t :靶材厚度 (cm)

 R_n :中子產率(/pr)

 R_i :活化核種產率(/pr)

為了簡化計算,針對反應截面低於 10 mb 以下之反應予以省略,保留之反應如圖 4.25 所示,共計有七種反應較為重要,分別為 18 O(p,n) 18 F、 18 O(p,n+p) 17 O、 18 O(p,2n) 17 F、 18 O(p,n+D) 16 O、 18 O(p,2n+p) 16 O、 18 O(p,n+ α) 14 N、 18 O(p,n+p+ α) 13 C。

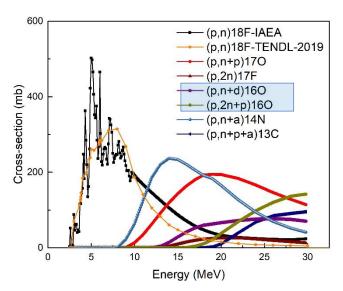


圖4.25. ENDF 資料庫針對質子轟擊氧-18 產生中子的重要反應截面,10 mb 以上之反應共有七種,藍標處為生成物同為 16O 的反應,在決定中子產率時需額外注意

值得注意的是,七種反應中 ¹⁸O(p,n+D)¹⁶O、¹⁸O(p,2n+p)¹⁶O 兩組反應的生成物皆為 ¹⁶O,如圖 4.25 藍色標示,前者於反應中生成 1 個中子,而後者為 2 個,但在 FLUKA 中無法辨別活化核種的生成途徑,即針對一顆 ¹⁶O 無法確定其反應過程生成之中子數量,又兩反應之反應截面之間的關係隨能量改變,無法以加權平均的方式得到 (4.5.2)式的中子生成加權因子之值,根據 ENDF 資料, ¹⁸O(p,n+D)¹⁶O 反應閱值為 10.6 MeV,而 ¹⁸O(p,2n+p)¹⁶O 則為 13 MeV,因此針對中子生成加權因子在 10 MeV 以下時,訂為 0;10-13 MeV 訂為 1.0;13 MeV 以上則訂為 1.5,如圖 4.26 所示,實線為利用 RESNUCLE CARD 計算之生成物反應截面,紫色實線則為利用 (4.5.2)式計算之中子生成截面,黃色虛線為利用USRBDX CARD 計數之中子生成截面,利用 RESNUCLE CARD 及 USRBDX CARD 的計讀結果在 7 MeV 以下時相符,但隨著能量上升反應愈趨複雜,RESNUCLE CARD 的結果賴為高估,推測為部份生成物經由其他反應進入計數區間,造成中子計數偏高,當質子能量高於 25 MeV 時,物經由其他反應進入計數區間,造成中子計數偏高,當質子能量高於 25 MeV 時,

RESNUCLE CARD 的結果低於 USRBDX 計數結果,應是肇因於 ¹⁶O 的中子生成 加權因子在該能量區間已大於 1.5,造成中子計數偏低。

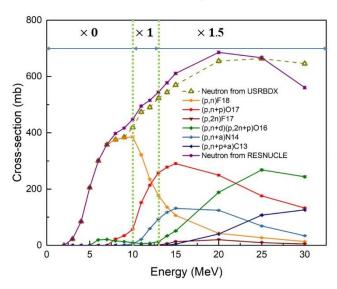


圖4.26. 針對 ¹⁸O(p,n+D)¹⁶O、¹⁸O(p,2n+p)¹⁶O 反應的中子生成加權因子訂定,線 色虛線分別為 10 MeV 及 13 MeV,紫色實線為利用 RESNUCLE CARD 及 (4.5.2)式計算後之中子生成反應截面

4.5.5 FLUKA 中 ¹⁸O(p,xn)反應截面與 TENDL-2019 的比較

由於 ENDF 中的 ¹⁸O(p,xn)反應截面資料均源於 TENDL-2019,因此選用 TENDL-2019 資料庫作為檢視 ¹⁸O(p,xn)反應的參考。將 USRBDX CARD 及 RESNUCLE CARD 的計數經(4.5.2)式的計算結果與 TENDL-2019 的反應截面資料比較,如圖 4.27,在 5 MeV 以下低能量區間,FLUKA 模擬結果與 TENDL-2019 截面大致相符,5-25 MeV 區間 FLUKA 模擬結果呈現高估,除了 10 MeV 高估約 70%,其餘皆在 30%以下,而 25-30 MeV 的反應截面則再次重合。整體而言,FLUKA 模擬結果與 TENDL-2019 的中子反應截面趨勢相符,且差距均在可接受的範圍內,對於活化評估上預期不會有劇烈的影響。

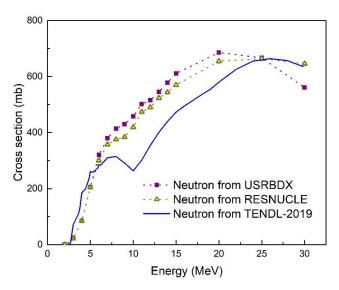


圖4.27. USRBDX/RESNUCLE/TENDL-2019 三者針對中子生成截面之比較,中子生成加權因子已納入,上圖只考慮如圖 4.5.6 中之七種反應

4.5.6 ¹⁸O(p,xn)中子產率與能量的角度依存性

承(三)節,利用質子轟擊較厚的氧-18 水靶除了驗證氟-18 的產量,同樣的模型亦可用於驗證中子產量及中子的方向性,利用點射源單能量 18 MeV 質子轟擊如圖 4.16 之靶材,而 1.5 - 2 cm 的靶材設計足以讓所有 18 MeV 質子沉積,為了滿足角度的解析度及可接受的計數不確定度,以入射點為中心建立一個半徑 10公尺的球面偵測產生的中子,在球面每 15°畫分一個計數區間,該角度的 ± 7.5° 寬度囊括之球面帶為計數有效區間,詳如圖 4.28。

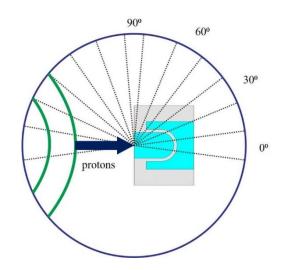


圖4.28. 中子計數模型,綠色為計數區間之球面帶,灰色虛線為每一個計數區間 邊界

結果如圖 4.29 所示,以點射源單能量 18 MeV 質子入射氧-18 水中,可以發現中子分布大致呈現均向性,惟前向散射較較平均高出約 25%,30°-60°中子通量相仿,但低於前向散射;側向散射效應則較弱,另外,生成之中子大部份均落在 0.1-10 MeV 的快中子區間,熱中子與超熱中子數量則非常稀少。本模擬中子生成總量為 5.29 x 10⁻³ ± 0.05% (中子/質子),即每 1000 顆質子入射,約生成 5.3 個中子。

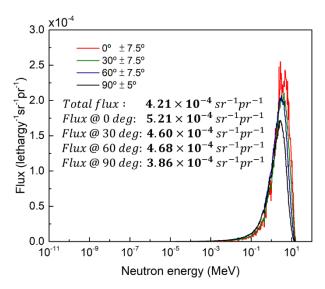


圖4.29.18 MeV 質子入射氧-18 水生成中子之角度分布及通量,可以發現前向 散射明顯,且能量多落在快中子區間

4.5.7 設施運轉期間之中子分布狀況

4.5.7.1 無自屏蔽設施

承 4.4.5 節,無自屏蔽設施在設計上以厚度 200cm 之波特蘭水泥做為加速器室外牆,靶材填充氧-18 水並以 18 MeV 質子轟擊之,二次中子在無自屏蔽設施模型中的分布結果圖 4.30 所示,深紅色的部份為靶材位置,18 MeV 質子貼附於靶材表面向右側轟擊靶材,造成大量的二次中子生成;由於靶材的後方缺乏加速器材料屏蔽,且根據圖 4.29 所示,二次中子前向散射約高出平均通量 25%,二次中子生成後往前向(相對於射東方向)空間散射之中子通量較高,呈現橘紅色;加速器側向空間及後向空間則有銅、鐵等固有加速器組件的減速與吸收,中子通

量較低,呈現黃色。

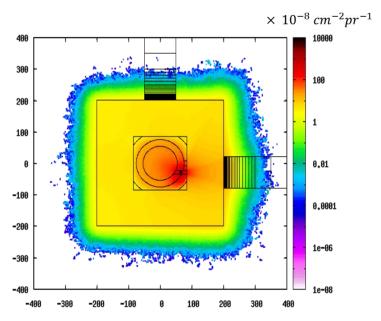


圖4.30. 無自屏蔽設施之二次中子分布情形,質子由左而右轟擊氧-18 水靶,可 以觀察到較多的中子進入前向混凝土

由於混凝土中的中子特性與中子通量與活化狀況息息相關,因此針對混凝土中的中子做了額外的紀錄與分析,圖 4.31 為前向混凝土的中子通量分布,混凝土的表面中子主要為能量較高的快中子,隨著深度增加快中子通量逐漸減少,而超熱中子及熱中子的通量則進入增建區,意謂著快中子開始頻繁的碰撞與減速為能量較低的超熱中子或熱中子,而超熱中子的碰撞與減速同樣會進入熱中子能量區間,其中超熱中子通量在約略 5 公分深的混凝土中達到最大值,而熱中子的通量最大值則出現在 10 公分深的位置,而在深度 20 公分之後,三種能群的中子通量均隨著深度的增加而減少,在混凝土的 150-200 公分位置,三種能群的中子通量均降至 10⁻¹³/平方公分/質子 以下。

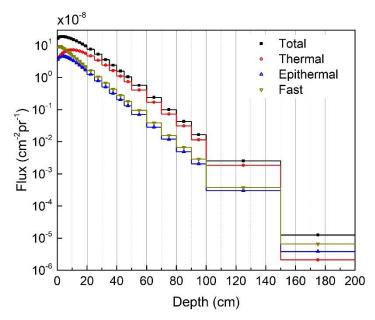


圖4.31. 前向混凝土的中子/快中子/超熱中子/熱中子通量隨深度的分布,於淺層 時以快中子最多,並逐漸減少;超熱中子與熱中子則可觀察到明顯的增建區, 該增建區為快中子因碰撞減速後進入超熱中子與熱中子能群的貢獻。

圖 4.32 為側牆混凝土之中子通量分布,相較於前向混凝土的中子能量,側牆中子經過加速器固有組件的碰撞減速後快中子通量明顯較低,由於快中子在混凝土中減速至超熱中子區間的數量降低,超熱中子的增建區變得不明顯,但超熱中子減速至熱中子而形成熱中子增建區的效應仍然存在,而熱中子通量的最大值在側牆中則出現在約略 5 公分的位置,相較於前向混凝土的位置略向表層移動。由上述現象可以推論:到達混凝土表層的中子能量改變,會影響混凝土中的快中子/超熱中子/熱中子通量隨深度的分布。而在側牆混凝土中,約在 10 公分以後的中子通量即開始穩定隨深度增加而下降,而在 100-150 公分深的位置,快中子與超熱中子通量即降低至 10-13/平方公分/質子 以下,在 150-200 公分深的位置,在 10¹⁰ 個質子的模擬條件下已無法計讀到中子。

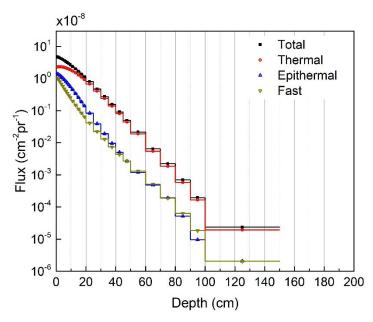


圖4.32. 側牆混凝土的中子/快中子/超熱中子/熱中子通量隨深度的分布,熱中子的增建區仍然存在,但超熱中子增建區則因中子能量的軟化而近乎消失

圖 4.33 為屋頂混凝土之中子通量分布,屋頂表面之快中子通量高於側牆表面之快中子通量,但低於前向混凝土表面之快中子通量,在圖中可觀察超熱中子增建區再次出現,而超熱中子通量最大值則位於混凝土深度約 5 公分位置,而熱中子通量的最大值則位於深度約 10 公分位置。而在深度 150-200 公分位置,熱中子通量降至 10-13/平方公分/質子 以下,超熱中子及快中子則已無計讀值。

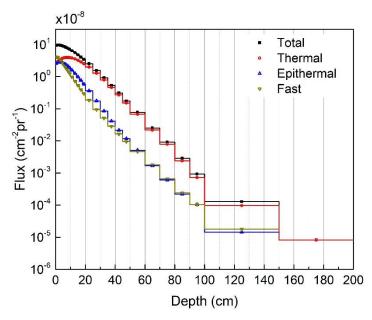


圖4.33. 屋頂混凝土的中子/快中子/超熱中子/熱中子通量隨深度的分布,表面混凝土的平均中子能量高於側牆混凝土表面中子能量,但低於前向混凝土表面中子能量。超熱中子增建區的效應亦介於側牆混凝土與前向混凝土之間。

4.5.7.2 有自屏蔽設施

承 4.4.6 節,有自屏蔽設施即在加速器周圍加上中子與伽馬屏蔽材料,設計理念為減少二次輻射對人員的劑量曝露,而減少混凝土的活化則是其邊際效益。模擬同樣採用 18 MeV 質子轟擊氧-18 水靶,二次中子在有自屏蔽設施模烈中的分布上視圖如圖 4.34 所示,在屏蔽材料內依然可以觀察到中子的前向性散射,側向及後向的中子通量較低則肇因於二次中子散射潛勢及加速器組件的屏蔽影響。相較於無自屏蔽設施,在有足夠厚度的自屏蔽下(含硼聚乙烯4至15公分,鉛屏蔽 8.5至20公分,含硼水屏蔽70至100公分),大部份的中子均可以在屏蔽材料內沉積,惟有前向及地面方向散射需要額外注意,如圖 4.34,由於地面方向僅有薄弱的含硼聚乙烯屏蔽,大部份的二次中子仍有能力穿透屏蔽材料並進入地面混凝土中,如圖 4.36,由於快中子通量較低,超熱中子增建區效應不顯著,但熱中子增建區仍在 0-20公分深的混凝土中出現,熱中子通量最大值則位於約10公分深的位置,在 150-200公分深度的位置,在 10¹⁰ 個質子的模擬條件下已無法計讀到中子。

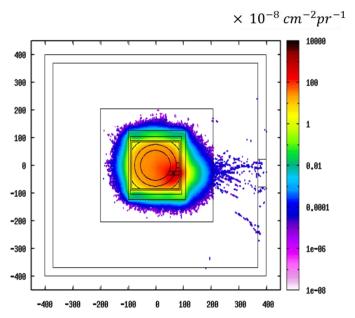


圖4.34. 有自屏蔽設施之二次中子分布情形,在自屏蔽中依然可以發現顯著的中子前向散射特性,二次中子經過自屏蔽的作用後到達混凝土的中子通量亦明顯 降低,顯示自屏蔽設計有助於降低混凝土活化

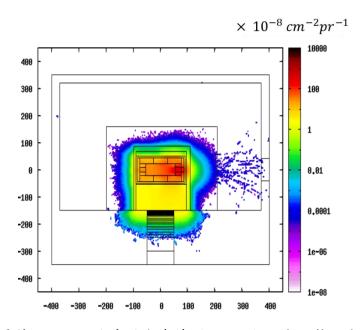


圖4.35. 有自屏蔽設施之二次中子分布情形(側視圖),在足夠的自屏蔽下以前向 散射之中子最多,地面方向則因屏蔽較薄弱,中子進入混凝土的趨勢顯著

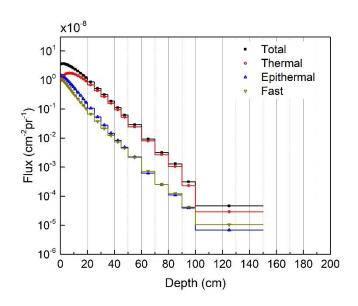


圖4.36. 地面混凝土的中子/快中子/超熱中子/熱中子通量隨深度的分布,由於混凝土表面快中子通量較低,超熱中子增建區不明顯,但熱中子增建區仍然清晰可見

4.5.8 加速器組件的活化狀況

承 4.4.5 節,加速器組件主要由鈮、氧化鐵及銅組成,利用 18 MeV 質子轟擊氧-18 水靶製備氟-18 的過程中伴隨著二次中子的生成,二次中子與加速器組件作用後會再造成加速器組件的活化。

活化分析中有兩個重要參數需要決定:質子射東強度以及照射時間。參考表 4.23 及表 4.24,85%以上用於製備氟-18 之迴旋加速器質子射東強度均介於 30-65 毫安培,因此本團隊選擇以 50 毫安培分析整體活化狀況;考量在實務上,每日的照射時間為 2 小時,因此本團隊首先分析在一次的日常照射對加速器組件的活化貢獻、活化核種種類,以及在不同的冷卻時間下活度的變化。另一方面,迴旋加速器日復一日的週期性照射亦會造成活化核種的累積,為了減化計算並確立合理的假設,假定每日照射 2 小時,一年照射 365 天,連續照射 15 年,累積的照射時間約為 1 年,因此在模擬中比較 2 小時照射與 1 年照射對於活化狀況的影響,即比較一次的日常照射與 15 年的日常照射對於活化狀況的影響。

4.5.8.1 無自屏蔽設施:2小時照射與1年照射之比較

圖 4.37 為靶材經過 50 毫安培連續照射 2 小時與連續照射 1 年後的活化結果 比較,為了避免低估活化狀況,靶材的活化分析選用距離二次中子生成位置最近 (綠色為氧-18 水)的區域。

首先觀察連續照射 1 年之結果,在結束照射時,組件比活度約為 2.7×10⁶ ± 24.5% 貝克/立方公分,冷卻時間到達 115.7 天(10⁷ 秒)時,組件比活度降為 1.8× 10⁴ ± 1.1% 貝克/立方公分,且隨著冷卻時間增加比活度已趨於穩定;連續照射 2 小時之組件在結束照射時的比活度約為 7.4×10⁴ ± 23.0% 貝克/立方公分,組件比活度同樣在冷卻時間到達 115.7 天(10⁷ 秒)時趨於穩定,約為 4.1 ± 1.2% 貝克/立方公分。

比較連續照射 1 年與 2 小時的差異時,發現在照射結束時,兩者的比活度差異約為 37 倍,但經過約 1 年時間 $(3.16\times10^7$ 秒)的冷卻後,兩者的比活度差異則高達 4400 餘倍,此差異是源於不同的冷卻時間,其主要活度的核種貢獻也不同,如圖 4.38,在較短的冷卻時間內,比活度主要源於短半衰期的 $\Omega-90(t_{\frac{1}{2}}=2.7$ 天),較長的冷卻時間則因為 $\Omega-90$ 的衰變,比活度轉由長半衰期的 $\Omega-94(t_{\frac{1}{2}}=2\times10^4$ 年)所貢獻。

在長時間的照射中,短半衰期的核種會迅速達到飽和活度,換言之更長的照射時間並不會讓短半衰期核種數量劇烈增長,但長半衰期核種則會持續累積,因此在圖 4.38 可觀察到在 1 年照射下與 2 小時照射下釔-90 的比活度上升較少,但銀-94 的比活度則大幅增加。長時間照射對於長半衰期核種數量的累積及以活度的提升在後續的分析中均觀察到相似的趨勢,對於長時間運轉之加速器設施,由於等效的照射時間更長,長半衰期的核種累積應更為嚴重,在除役前的活化分析與對人體的劑量評估必須尤為審慎。

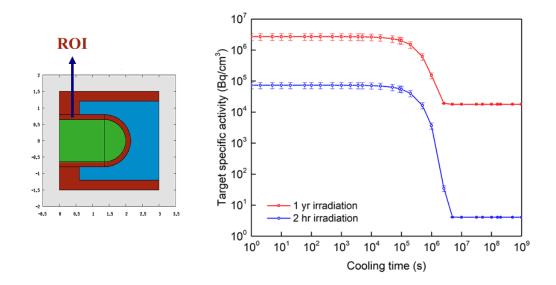


圖4.37. 靶材的活化分析組件位置如左圖箭頭所示。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的靶材活化結果隨冷卻時間的變化,冷卻時間大於 115.7 天(10⁷ 秒)後比活度即趨於穩定。

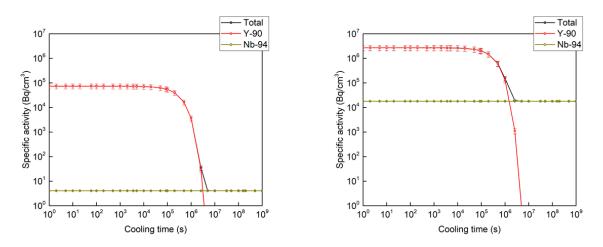


圖4.38.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的靶材活化核種 隨冷卻時間的變化,較短的冷卻時間組件比活度主要由釔-90 所貢獻,較長的冷 卻時間則為由鈮-94 貢獻組件比活度。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略

圖 4.39 為加速器中的銅組件在利用 50 毫安培連續照射 1 年與連續照射 2 小時的活化結果隨冷卻時間的變化,連續照射 1 年結束時,比活度約為 8.0×10⁵ ± 0.1% 貝克/立方公分,冷卻時間大於 115.7 天(10⁷ 秒)後組件比活度即趨於穩定,約為 515.0 ± 0.9% 貝克/立方公分;連續照射 2 小時結束時,比活度約為 2.2×10⁵ ± 0.2% 貝克/立方公分,冷卻時間大於 115.7 天(10⁷ 秒)後組件比活度即趨於穩定,

約為 $0.1 \pm 1.2\%$ 貝克/立方公分。比較照射結束時,照射 1 年的比活度約為照射 2 小時比活度的 4 倍,而經過 115.7 天的冷卻後,兩者的差異則為 4290 倍。圖 4.40 可以發現在較短的冷卻時間下主要由銅- $64(t_{\frac{1}{2}}=12.7$ 小時)及銅- $66(t_{\frac{1}{2}}=5.12$ 分)貢獻組件活度;在較長的冷卻時間下則為鈷- $60(t_{\frac{1}{2}}=5.27$ 年)及鎳- $63(t_{\frac{1}{2}}=100.1$ 年)為主要活化核種,值得注意的是,在銅組件中同樣可以發現短半衰期的核種在經過 1 年照射後的上升幅度較小,以銅-64 為例,在連續照射 1 年後的比活度約為 6.4×10^5 ± 0.2% 貝克/立方公分;照射 2 小時則為 6.6×10^4 ± 0.2% 貝克/立方公分,約上升 10 倍,銅-66 在經過 1 年照射及 2 小時照射後比活度幾乎相同,表示銅-66 核種在經過 2 小時照射後即達到飽和活度。反觀長半衰期核種的表現,鈷-60 在照射 1 年後的比活度約為 $187.0 \pm 2.0\%$ 貝克/立方公分,相較於 2 小時照射後的 $0.05 \pm 2.0\%$ 貝克/立方公分上升 4150 倍;鎳-63 的比活度變化也有相似的趨勢,照射時間的改變使比活度上升 4400 倍。

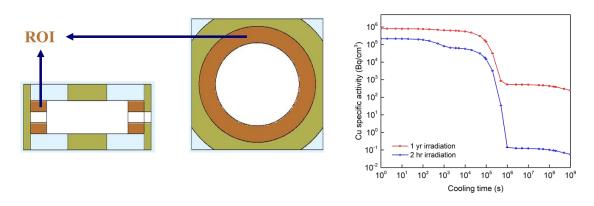


圖4.39. 加速器組件中的銅活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的靶材活化結果隨冷卻時間的變化,冷卻時間大於 115.7 天(10⁷ 秒)後銅組件比活度即趨於穩定。

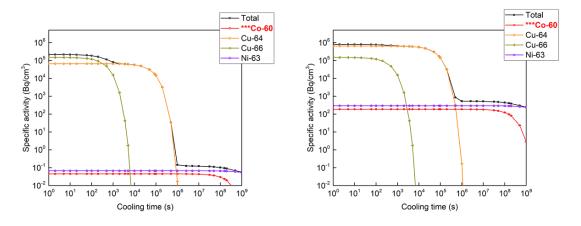
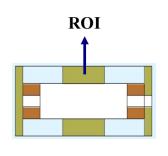


圖4.40.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的銅組件活化核種隨冷卻時間的變化,較短的冷卻時間組件比活度主要由銅-64 及銅-66 所貢獻,較長的冷卻時間則為由鈷-60 及鎳-63 貢獻組件比活度。鈷-60 為文獻建議之重要核種,故以紅字標示。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

圖 4.41 為加速器中的氧化鐵組件在利用 50 毫安培連續照射 1 年與連續照射 2 小時的活化結果隨冷卻時間的變化,圖 4.42 則為氧化鐵組件中不同的冷卻時間下主要貢獻之核種種類。在 2 個小時照射條件下,較短半衰期的核種包括錳-56(t½ = 2.58 小時)及鐵-59(t½ = 44.6 天),較長半衰期核種鐵-55(t½ = 2.73 年)是氧化鐵組件活化的重要核種,但隨著照射時間變為 1 年,長半衰期的核種數量開始累積,氧化鐵組件中的重要核種則變為鐵-55、氚-3(t½ = 12.32 年)及錳-54(t½ = 312 天)。氧化鐵組件的活化分析具體的呈現了在 2 小時照射與 1 年照射下,核種半衰期的不同對於加速器組件中比活度的成份影響,在 2 小時照射下,短半衰期的核種在較短的冷卻時間內佔主要貢獻,而在 1 年照射下,組件中比活度最高的核種甚至有可能被快速累積的長半衰期核種取代,一旦長半衰期核種成為活化組件的主要輻射來源時,除了相關組件的活度上升,該組件亦無法透過長時間的靜置冷卻達到有效降低活度的目標,進而增加除役的困難及成本,因此相關除役規畫,必須更著重在長半衰期核種的定性與定量分析。



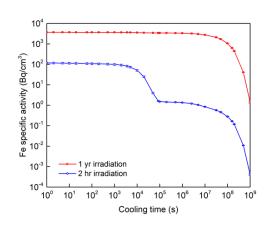


圖4.41. 加速器組件中的氧化鐵活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的靶材活化結果隨冷卻時間的變化。

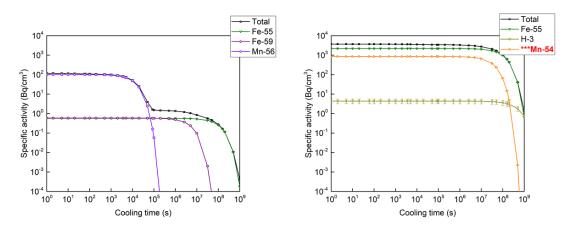


圖4.42.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的氧化鐵組件活 化核種隨冷卻時間的變化,2 小時照射時短半衰期核種對於組件比活度仍有貢 獻,但在 1 年照射情節下,長半衰期核種累積之比活度已大幅超越短衰期核種 之比活度。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

無自屏蔽的加速器組件在經過 2 小時照射與 1 年照射後的比活度隨冷卻時間的變化如圖 4.43 所示,在冷卻時間到達 1 年時(~3×10⁷ 秒)時,比活度由高至低依序為靶材>氧化鐵組件>銅組件;在冷卻時間到達 30 年時(~10⁹ 秒)時比活度排序則為靶材>銅組件>氧化鐵組件。節錄一定活度或比活度以下放射性廢棄物管理辦法之附表一,如表 4.40,可以發現在 1 年的照射情節下,30 年的冷卻時間下所有加速器組件的比活度均超過法規限值;而在 2 小時照射下靶材與氧化鐵組件在 30 年冷卻時間下的比活度亦超過法規限值,而銅組件與限值亦相去不遠,此模擬結果可以確立加速器在長時間的使用下,其組件可直接以放射性廢棄物處

理的方針。另外值得注意的是,在經過 30 年的冷卻後,2 小時照射與1 年照射 均呈現前向混凝土的比活度與銅組件的比活度相近,換言之混凝土的活化狀況已 足以造成除役規劃的困難,針對混凝土的活化分析會於後面的章節分析之。

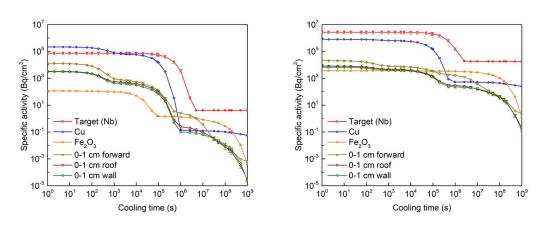


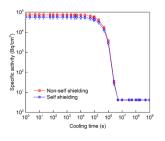
圖4.43. 無自屏蔽照射室中,(左)2 小時照射後加速器組件與混凝土的比活度比較。(右)1 年照射後加速器組件與混凝土的比活度比較。冷卻時間在到達 30 年時(10⁹ 秒),比活度由高至低依序為靶材>銅組件>氧化鐵組件≈前向混凝土>屋頂混凝土≈側牆混凝土

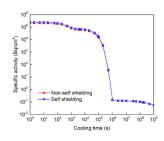
表4.40. 每年外釋過一公噸之廢棄物比活度限值(貝克/克)(節錄)

	貝克/克	密度(克/立方公分)	貝克/立方公分
鈮-94	1E-1	8.57(靶材)	1E-2
銛-60	1E-1	8.96(銅組件)	1E-2
錳-54	1E-1	5.24(氧化鐵組件)	2E-2
鐵-59	1E0	5.24	2E-1
鎳-63	1E2	8.96	1E1
鐵-55	1E3	5.24	2E2

4.5.8.2 有自屏蔽設施:2小時照射與1年照射之比較

圖 4.44 為無自屏照射室加速器組件與有自屏蔽照射室內加速器組件在照射 2 小時後的活化狀況,銅組件與氧化鐵組件的比活度隨時間的變化趨勢與絕對值 無明顯差異,意謂在照射結束時的比活度相近,且組件中的活化核種相同,因此 呈現一致的衰變趨勢,同樣的現象也出現在圖 4.45 中,圖 4.45 為無自屏照射室加速器組件與有自屏蔽照射室內加速器組件在照射 1 年後的活化狀況,銅組件與氧化鐵組件呈現同樣的變化趨勢與相近的絕對值。觀察靶材的活化狀況在 2 小時照射與 1 年照射下則呈現些微的差異,兩者的比活度衰變趨勢相同,代表在較短的冷卻時間內,主要由釔-90 貢獻活度,而在較長的冷卻時間內則由鈮-94 貢獻的模式不變,但在較短冷卻時間內的比活度絕對值差異較大,猜側肇因於釔-90 在模擬中的統計誤差較大,以 2 小時無自屏蔽為例,在照射結束時釔-90 的統計誤差高達 23.0%,在其他的三組結果中釔-90 的統計誤差均高達 20.0%以上,相關的不確定性在增加模擬時間後可以有效彌補。





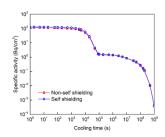
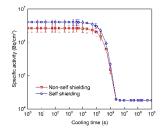
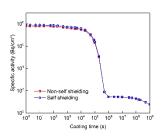


圖4.44. 靶材(左)、銅組件(中)及氧化鐵組件(右)在經過2小時照射後活度隨冷卻時間的變化,紅線為無自屏蔽之照射室組件活化,藍線則為有自屏蔽之照射室組件活化,除了靶材的比活度有些微的差異外,銅及氧化鐵組件的活化在兩種

屏蔽設計下無明顯差異





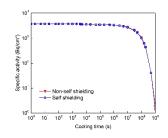


圖4.45. 靶材(左)、銅組件(中)及氧化鐵組件(右)在經過1年照射後活度隨冷卻時間的變化,紅線為無自屏蔽之照射室組件活化,藍線則為有自屏蔽之照射室組件活化,除了靶材的比活度有些微的差異外,銅及氧化鐵組件的活化在兩種屏蔽設計下無明顯差異

圖 4.46、圖 4.47 為加速器自屏蔽組件中的含硼聚乙烯在經過 2 小時照射與 1 年照射後比活度隨冷卻時間變化之趨勢,及主要貢獻之活化核種。2 小時照射, 且冷卻時間在 10 秒內時,主要貢獻核種為鋰- $8(t_{\frac{1}{2}}=839.4$ 毫秒)及鈹- $8(t_{\frac{1}{2}}=8.19\times10^{-17}$ 秒),由於鋰-8 在經過一次貝他衰變後成為鈹-8,而鈹-8 一旦生成因半衰期極短而迅速衰變,根據衰變連鎖反應,鈹-8 的衰變曲線會與鋰-8 重合,如圖 4.47 藍線(鋰-8)與橘線(鈹-8)所示;在冷卻時間超過 10 秒後,比活度貢獻轉由長半衰期的氚-3 貢獻。在連續 1 年的照射情節下,鋰-8 與鈹-8 的比活度與照射 2 小時的情節下的比活度相近,但氚-3 的比活度則明顯上升,由 $3.0\times10^{-4}\pm4.0\%$ 貝克/立方公分提升至 $1.4\pm4.0\%$ 貝克/立方公分,上升約 4700 倍。

氚-3 在每年外釋超過一公噸之廢棄物比活度限制為 100 貝克/克,若以聚乙烯密度 1.03 克/立方公分換算之,即 97.1 貝克/立方公分,而在連續 1 年照射下的模擬結果 1.4 ± 4.0% 貝克/立方公分仍遠低於法規限值,預期聚乙烯的屏蔽材料在長時間運轉下不會造成額外的除役困難。

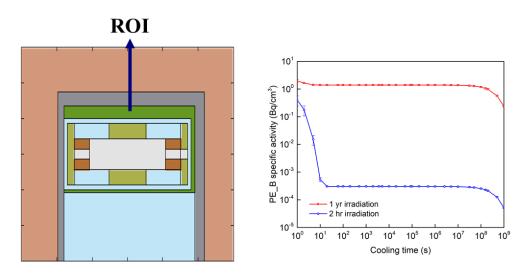
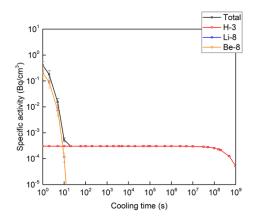


圖4.46. 自屏蔽組件中的含硼聚乙烯活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的含硼聚乙烯活化結果隨冷卻時間的變化。



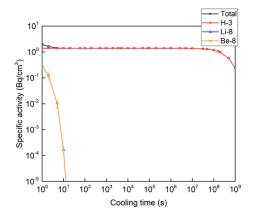


圖4.47.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的含硼聚乙烯組件活化核種隨冷卻時間的變化。由於鋰-8 經貝他衰變後生成鈹-8,又鈹-8 半衰期遠小於鋰-8,根據衰變連鎖反應,鈹-8的衰變曲線會與鋰-8 重合。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

圖 4.48、圖 4.49 為自屏蔽材料中的鉛屏蔽在經過 2 小時照射與 1 年照射後的比活度隨著冷卻時間的變化。其中主要的活化核種半衰期排列由短至長依序為鉛- $209(t_{\frac{1}{2}}=3.25$ 小時)、鉛- $203(t_{\frac{1}{2}}=51.8$ 小時)、汞- $203(t_{\frac{1}{2}}=46.6$ 天)、鉛- $205(t_{\frac{1}{2}}=1.73\times10^{7}$ 年),在 2 小時照射與 1 年照射的結果中,同樣可以觀察到半衰期的核種在長時間的照射下較不易累積,即照射結束時長短照射時間造成的比活度差異較小;但在經過長時間的冷卻後,差異則較為明顯。

針對鉛屏蔽中觀察到的活化核種且被登載於每年外釋超過一公噸之廢棄物 比活度限制者為汞-203 及鉛-203,限制分別為 100 貝克/克及 10 貝克/克。以鉛密 度 11.34 克/立方公分計算之,比活度限制為 8.8 貝克/立方公分及 0.88 貝克/立方 公分。以連續照射 1 年的結果為例,汞-203 的比活度低於法規限制;鉛-203 則在 照射結束後冷卻約 5.8 天(~5×10⁵ 秒)其比活度即低於法規限值。

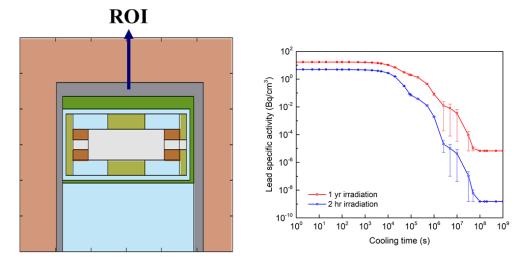


圖4.48. 自屏蔽組件中的鉛屏蔽活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的鉛屏蔽活化結果隨冷卻時間的變化。

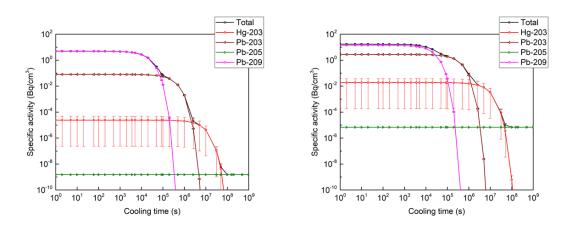


圖4.49.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的鉛屏蔽活化核種隨冷卻時間的變化。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

圖 4.50、圖 4.51 為自屏蔽材料中的含硼水屏蔽在經過 2 小時照射與 1 年照射後的比活度隨著冷卻時間的變化。其中主要活化核種為氮- $16(t_{\frac{1}{2}}=7.13$ 秒)、氟- $18(t_{\frac{1}{2}}=109.74$ 分)及氚- $3(t_{\frac{1}{2}}=12.32$ 年),與前述兩種屏蔽相似,短半衰期核種在 2 小時與 1 年照射下的比活度沒有明顯差異,而長半衰期核種的比活度則明顯上升。氚-3 的外釋標準如前述,為 100 貝克/克,氟-18 的外釋標準則為 10 貝克/克,以水密度 1.0 克/立方公分計算之,即 100 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 貝克/立方公分,10 贝克/立方公分,10 贝克/立方公

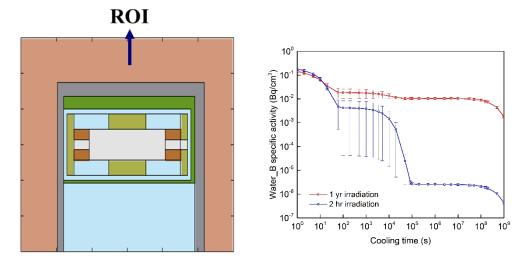


圖4.50. 自屏蔽組件中的含硼水屏蔽活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的含硼水屏蔽活化結果隨冷卻時間的變化。

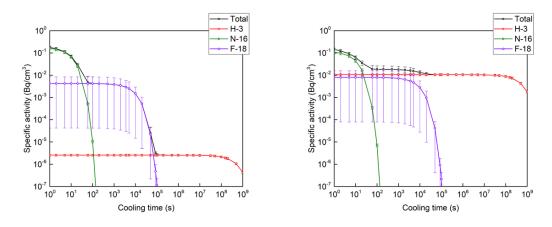


圖4.51.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的含硼水屏蔽活 化核種隨冷卻時間的變化。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

圖 4.52 為有自屏蔽設之照射室在 2 小時照射後與 1 年照射後的加速器組件、 屏蔽材料及地面混凝土的比活度隨冷卻時間的變化,加速器組件中由於二次中子 的通量最高,活化狀況最為嚴重;自屏蔽材料包含含硼聚乙烯、鉛屏蔽及含硼水 屏蔽的比活度則較低,承前所述,自屏蔽材料的活化在經過約 6 天的冷卻後即低 於廢棄物外釋限值,可以做為一般廢棄物處理之。地面混凝土的活化狀況約略介 於加速器組件與自屏蔽材料之間,由於混凝土的材料組成複雜,活化狀況將在下 一個節次詳細討論。

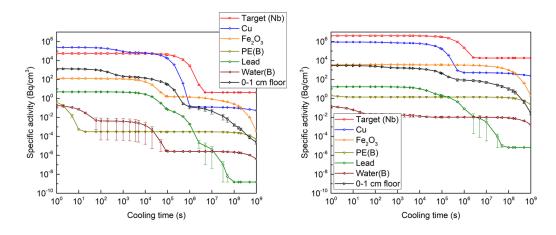


圖4.52. 有自屏蔽設計之照射室在 2 小時照射(左圖)與 1 年照射(右圖)後,各個組件的活化狀況,加速器組件包含靶材、銅組件、氧化鐵組件的比活度依然最高,自屏蔽材料包含含硼聚乙烯、鉛屏蔽、含硼水屏蔽的比活度則最低。地面混凝土的活化狀況約略介於加速器組件與自屏蔽材料之間。

4.5.9 混凝土塊材的活化

4.5.9.1 無自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較

承 4.4.5 節,無自屏蔽設施的混凝土活化分析主要針對前向混凝土、側牆混凝土及屋頂混凝土,在圖 4.30 已瞭解中子在前向混凝土中的分布是最多的,因此前向混凝土的活化分析結果即可呈現整個加速器室中混凝土活化最嚴重的狀況;側牆混凝土與屋頂混凝土在幾何分布上同為射束的 90 度方向,以二次中子產生的方向性及能量分布應為相同,但在加速器設計上,往側牆方向的二次中子在到達混凝土前較大程度通過氧化鐵組件,而屋頂方向的二次中子則在到達混凝土前受銅組件減速為主,因此利用三個方向的混凝土活化分析,確定最劇烈的混凝土活化狀況以及加速器組件對於混凝土活化的影響。除此之外,混凝土中同樣有在受中子活化後半衰期各異的活化核種種類。

圖 4.53、圖 4.54 為 0-1 公分的前向混凝土經過 2 小時照射與 1 年照射後的比活度隨冷卻時間的變化,可以發現冷卻時間由短到長,分別由鋁- $28(t_{\frac{1}{2}}=2.25$ 分)、鈉- $24(t_{\frac{1}{2}}=14.96$ 小時)、氫- $37(t_{\frac{1}{2}}=35$ 天)、鐵- $55(t_{\frac{1}{2}}=2.73$ 年)、氫- $39(t_{\frac{1}{2}}=269$ 年)所貢獻。由於鋁-28 的半衰期較短,在 2 小時照射即達到核種飽

和活度,因此1年照射對於照射結束時的鋁-28 比活度成長沒有太多貢獻,而且也沒有其他核種比活度超過鋁-28,因此2 小時照射與1 年照射下的混凝土在照射結束時比活度相當,比活度差異約為1.5 倍,但其他長半衰期核種的累積則非常明顯,隨著冷卻時間到達30年(~10⁹秒),經過1年照射的混凝土比活度為2.3±8.5% 貝克/立方公分,而經過2小時照射者則為5.8×10⁻⁴±8.1% 貝克/立方公分,比活度差異增為約4000倍。

錳- $54(t_{\frac{1}{2}}=312~\mathrm{K})$ 及鐵-55 為文獻建議之混凝土活化分析中重要核種,由於其母核多來自混凝土中 ppm 等級雜質,會在後續雜質活化的章節敘述之。

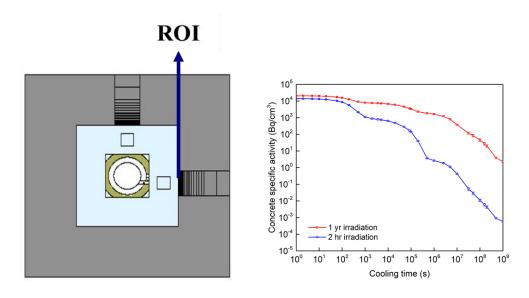


圖4.53. 無自屏設施中 0-1 公分的前向混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的前向混凝土活化結果隨冷卻時間的變化。

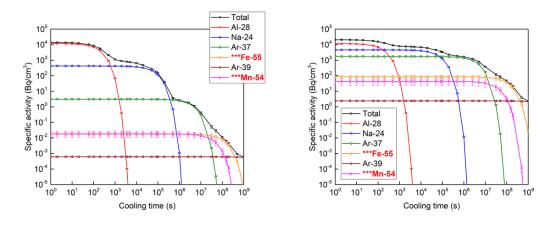


圖4.54.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施中 0-1 公分前向混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。照射結束時,主要貢獻核種為鋁-28,隨著冷卻時間增加逐漸改為由鈉-24、氫-37、鐵-55、氫-39 等核種。錳-54 及鐵-55 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

圖 4.55、圖 4.56 為 0-1 公分的側牆混凝土經過 2 小時照射與 1 年照射後的比活度隨冷卻時間的變化,由於不同方向的混凝土受不同能通量中子照射的差異,核種活化的程度也不一致,相較於前向混凝土受到較高能量通的中子照射,側牆混凝土的能通量較低,在 2 小時照射下,側牆混凝土的主要貢獻活化核種為鋁- $28(t_{\frac{1}{2}}=2.25$ 分)、鈉- $24(t_{\frac{1}{2}}=14.96$ 小時)、鈣- $45(t_{\frac{1}{2}}=162.6$ 天)及鐵- $55(t_{\frac{1}{2}}=2.73$ 年);前向混凝土在冷卻時間為 115.7 天(10^7 秒)時,氫-37 為主要貢獻的活化核種,但在側牆中冷卻時間為 115.7 天(10^7 秒)時,主要貢獻核種則變為鈣-45,此現象即肇因於中子能通量不同所致。比較在經過 2 小時照射與 1 年照射結束時,側牆混凝土的比活度差異約為 2 倍,而冷卻時間到達 30 年($\sim10^9$ 秒)時,差異增為 5500 倍,冷卻時間對比活度的差異主要來自長半衰期的鐵-55 及氫-39 活化核種在 1 年照射下的大量累積所致。

由圖 4.54 及圖 4.56 比較中,錳-54 此一重要核種之比活度在側牆混凝土中遠低於前向混凝土,參考圖 4.57 中, ${}^{54}_{26}Fe(n,p){}^{54}_{25}Mn$ 的反應截面後可以發現反應,錳-54 的生成主要由快中子貢獻,此反應的能量閾值高達 0.7 MeV,此一發現亦符合在 4.5.7 節 4.5.7.1 段落中前向混凝土的中子能量較側牆混凝土高的模擬結果。

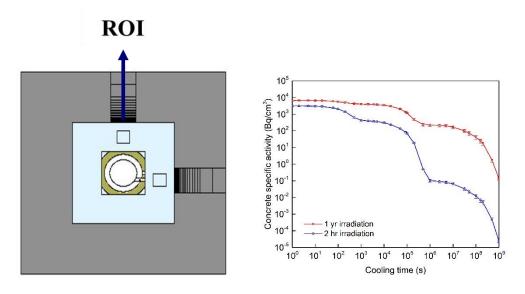


圖4.55. 無自屏設施中 0-1 公分的側牆混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的側牆混凝土活化結果隨冷卻時間的變化。

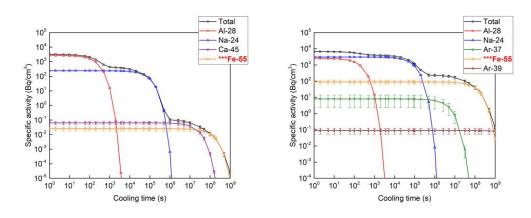


圖4.56.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施中 0-1 公分側牆混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為鋁-28、鈉-24、鈣-45 及鐵-55,在 1 年照射中在長冷卻時間下氫-39 的貢再次變得重要。鐵-55 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

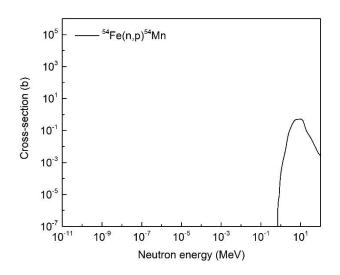


圖 $4.57._{26}^{54}Fe(n,p)_{25}^{54}Mn$ 之反應截面,錳-54的產生由快中子貢獻,反應能量閾值 為 $0.7~\mathrm{MeV}$

圖 4.58 及圖 4.59 為 0-1 公分的屋頂混凝土經過 2 小時照射與 1 年照射後的 比活度隨冷卻時間的變化,承 4.5.7 節 4.5.7.1 段落中對於中子能譜的模擬結果, 屋頂混凝土的中子能通量介於前向混凝土與側牆混凝土之間,因此在屋頂混凝土 的活化核種中可以觀察到前向混凝土與側牆混凝土活化核種的集合,保含鋁-28、 鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39 及錳-54。三個方向的混凝土在 2 小時照射與 1 年照射結束時的比活度差異均不顯著,但隨著冷卻時間的增加,1 年照射時間 對長半衰期核種的比活度累積較 2 小時照射的效應更為明顯。

在屋頂混凝土的 2 小時照射結束時,可以觀察到錳-54 的比活度為 1.9×10⁻³ ± 99.0% 貝克/立方公分,但在 1 年的照射中卻沒有計讀到任何錳-54 核種,此現象肇因於大部份的中子其能量已不足於活化產生錳-54,在統計數量極少的情况下,模擬結果即呈 1)2 小時照射模擬下的 99.0%不確定度。2)1 年照射下沒有任何的錳-54 被計讀。

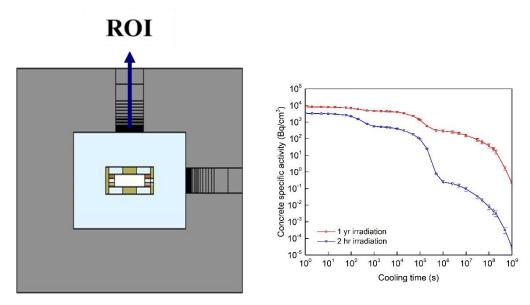


圖4.58. 無自屏設施中 0-1 公分的屋頂混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的屋頂混凝土活化結果隨冷卻時間的變化。

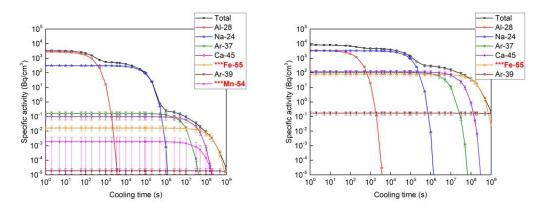


圖4.59.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的無自屏蔽設施中 0-1 公分屋頂混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為鋁-28、鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39。鐵-55 及錳-54 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

4.5.9.2 有自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較

材料的活化立基於核種與中子發生反應後成為不穩定的核種,因此環境中必須有中子的存在否則活化的可能微乎其微,於 4.5.7 節 4.5.8.2 段落中針對有自屏蔽設施的運轉期間中子分布模擬結果中敍明,由於地面方向的屏蔽較為薄弱,二次中子無法有效的被阻擋,相較於前向及側牆混凝土中稀缺的中子,地面混凝土在有自屏蔽設施中變成混凝土活化最嚴重的區域。

圖 4.60、圖 4.61 為有自屏蔽設施中利用 50 毫安培,18 MeV 質子連續照射 1 年與連續照射 2 小時後地面混凝土的活化結果與主要頁獻之活化核種,主要貢獻活化核種為鋁-28、鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39,與無自屏蔽模擬結果中的屋頂混凝土活化核種結果相近。照射結束時 2 小時照射與 1 年照射的比活度差異較小,經過 30 年後的冷卻比活度差異則達到數千倍之多,這樣的趨勢同樣也貫徹整個混凝土的活化分析結果。

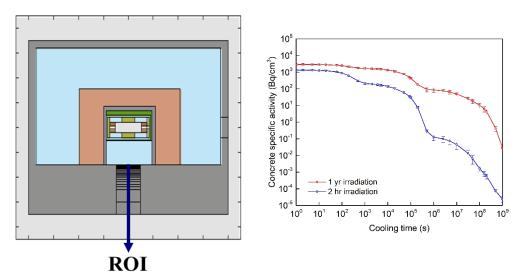


圖4.60. 有自屏設施中 0-1 公分的地面混凝土活化分析。右圖則為 50 毫安培連續照射 1 年(紅色) 與連續照射 2 小時(藍色)的地面混凝土活化結果隨冷卻時間的變化。

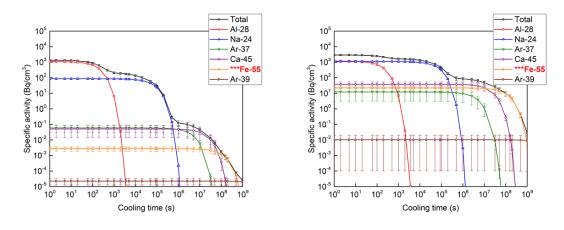


圖4.61.50 毫安培連續照射 2 小時(左圖) 與連續照射 1 年(右圖)的有自屏蔽設施中 0-1 公分地面混凝土活化核種隨冷卻時間的變化。主要核化貢獻核種為鋁-28、鈉-24、氫-37、鈣-45、鐵-55、氫-39。鐵-55 為文獻中建議之重要活化核種,故列舉之。對於比活度貢獻較低核種已在圖中省略。

4.5.9.3 2 小時照射:設施有無自屏蔽之比較

前段落所述以有無自屏蔽為出發點,觀察在2小時照射與1年照射下對混凝 土塊材的活化狀況,以下兩個段落將從相同的照射時間為出發點,觀察有無自屏 對混凝土塊材的活化影響。

圖 4.62 為利用 50 毫安培的 18 MeV 質子束,2 小時連續照射氧-18 水靶下的前向混凝土在有無自屏蔽下的比活度比較,在無自屏蔽設施中,前向混凝土在照射結束時已被明顯活化,但在有自屏蔽設計中,雖然二次中子的分布有前向散射的趨勢,但大部份的中子均被屏蔽阻擋,因此在模擬土沒有足夠的計數值可以呈現混凝土的活化狀況。此一趨勢並不代表在實務上有自屏蔽設施的前向混凝土不會有活化問題,而是利用蒙地卡羅軟體時,不足的模擬次數造成較大的統計誤差及不足的樣本數,但若要以大量的模擬次數求得有效的模擬結果卻造成曠日費時的問題,未來針對有自屏蔽的前向混凝土的活化分析,除了犧牲時間增加模擬次數外,亦可採取變異數降低的方法增加模擬的效率,未來也可投入實驗量測方法,得到有自屏蔽設施中的前向混凝土的活化狀況。而樣本數不足的狀況也同樣出現在有自屏蔽的側牆混凝土活化分析上,針對同類問題均規劃從模擬調整與實驗量測兩個方向解決之。

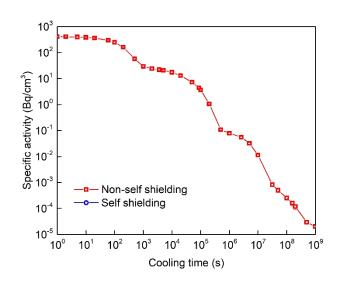


圖4.62.2 小時連續照射後無自屏蔽的前向混凝土(紅線)有自屏蔽的前向混凝土 (藍線)的比活度比較,有自屏蔽的前向混凝土在 10^9 個粒子的結果中沒有計讀到 任何活化核種。

在幾何設定上,側牆與射束夾角為 90°,地面與射束夾角亦為 90°,因此在二次中子的空間分布上可以視為同一個方向;此外,加速器的設計上,二次中子往屋頂方向與往地面方向所受到的屏蔽效果來自同樣厚度的銅組件與氧化鐵組件,因此在無自屏蔽的設施中,二次中子到達地面混凝土與屋頂混凝土的能通量應相同,在後續的活化分析中,無自屏蔽的屋頂混凝土活化可等效於無自屏蔽的地面混凝土活化,無自屏蔽的屋頂混凝土活化分析與有自屏蔽的地面混凝土活化分析比較,亦可視為有無自屏蔽的設施在經過 2 小時照射後地面混凝土的活化比較。

圖 4.63 即為 2 小時照射後無自屏蔽的屋頂混凝土活化結果與有自屏蔽的地面混凝土活化結果的比較,在無自屏蔽的設施中的屋頂混凝土的活化略高於有自屏蔽的地面混凝土活化,直到冷卻時間到達 30 年後,兩者的比活度方才相等。在圖 4.63 也可發現在有無自屏蔽的混凝土活化中,雖然兩者的比活度略有差異,但比活度隨著冷卻時間改變的趨勢是幾乎相同的,意謂著在兩者主要的活化貢獻核種是相同的,更意謂著兩種設施的混凝土受到相似能譜的中子照射,差異只源於中子的通量,但通量差異應在 10 倍以內。

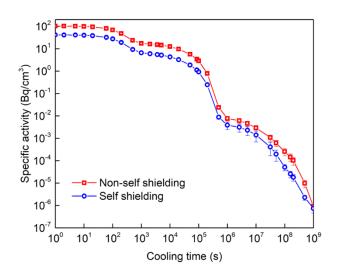


圖4.63.2小時連續照射後無自屏蔽的屋頂混凝土(紅線)有自屏蔽的地面混凝土 (藍線)的比活度比較,有自屏蔽的地面混凝土活化分析結果中可以發現在冷卻 時間較短時比活度均低於無自屏的地面混凝土,冷卻時間到達30年後比活度近 乎相等

4.5.9.4 1年照射:設施有無自屏蔽之比較

圖 4.64 為利用 50 毫安培的 18 MeV 質子東,1 年連續照射氧-18 水靶下的前 向混凝土在有無自屏蔽下的比活度比較,結果與照射 2 小時相似,由於前向散射 的足量屏蔽設計,使得有自屏蔽設施在 10^9 次模擬下仍無法計讀有效之樣本數。

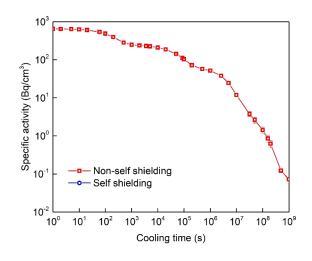


圖4.64.1 年連續照射後無自屏蔽的前向混凝土(紅線)有自屏蔽的前向混凝土(藍線)的比活度比較,有自屏蔽的前向混凝土在 10^9 個粒子的模擬結果中沒有計讀 到任何活化核種。

圖 4.65 為 1 年連續照射下的無自屏蔽的屋頂混凝土活化結果與有自屏蔽的 地面混凝土活化結果的比較,相較於照射 2 小時的結果中除了整體比活度的上升 外,最大的差異即在冷卻時間到達 30 年後無自屏蔽的屋頂混凝土比活度依然大 於有自屏蔽的地面混凝土,此差異源於 1 年的連續照射針對長半衰期核種的累積 更為劇烈,在長半衰期核種比活度上升的狀況下,兩者間的差距即呈現更顯而易 見的統計差異。

綜觀而言,有自屏蔽設施與無自屏蔽設施最大的差異,即有自屏蔽設施的前向、 側牆及屋頂混土均因屏蔽有效阻擋中子而使得混凝土活化狀況大為趨緩,而在地 面的部份,雖然有自屏蔽的設施些微的減少地面的活化,但與無自屏蔽設施的屋 頂混凝土比較其效應並不顯著,換言之,在現有的有自屏蔽設計中,地面的薄弱 屏蔽對於中子的阻擋效果極為有限,所造成的地面混凝土活化對於日後的除役可 能會造成影響。

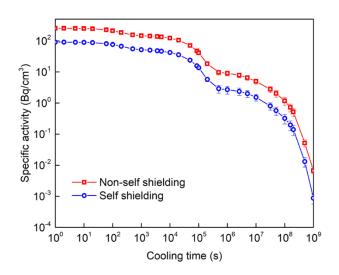


圖4.65.1年連續照射後無自屏蔽的屋頂混凝土(紅線)有自屏蔽的地面混凝土(藍線)的比活度比較,有自屏蔽的地面混凝土活化分析結果中可以發現在冷卻時間較短時比活度均低於無自屏的地面混凝土,此趨勢直到冷卻時間到達30年仍存

在

4.5.10 混凝土中雜質的活化

混凝土活化中最大的問題,即長半衰期核種經過長時間的中子照射後會大量的累積,且肇因於核種的長半衰期,經過長時間的冷卻後其活度依然可觀,表 4.41 是文獻建議的幾種長半衰期核種,其中半衰期最短的為錳-54,計要 312 天。半 衰期最長的則為鋪-152,計要 13.6 年;在表列的幾種活化核種中,除了半衰期長的特性以外,大部份活化核種的母核在混凝土的組成成份中均在 ppm 等級,如此微量的元素,或以雜質稱之,在利用蒙地卡羅模擬評估中是耗費時間且不確定度極大的,因此本團隊以中子通量乘上巨觀反應截面的方式得到混凝土經過中子照射後的活化狀況,俱以瞭解在不同的自屏蔽設計與不同的照射時間下混凝土雜質的活化表現,如式 4.5.5。

表4.41. 文獻中建議在分析混凝土活化時必須關注的長半衰期核種,其半衰期短至約1年,長至約13.5年。

核種	半衰期	活化途徑
鐵-55(⁵⁵ Fe)	2.7 年	$^{54}_{26}Fe(n,\gamma)^{55}_{26}Fe$
銪-152(¹⁵² Eu)	13.6 年	$^{151}_{63}Eu(n,\gamma)^{152}_{63}Eu$
銪-154(¹⁵⁴ Eu)	8.8 年	$^{153}_{63}Eu(n,\gamma)^{154}_{63}Eu$
銛-60(⁶⁰ Co)	5.3 年	$^{59}_{27}Co(n,\gamma)^{60}_{27}Co$
銫-137(¹³⁷ Cs)	2.07 年	$^{133}_{55}Cs(n,\gamma)^{134}_{55}Cs$
錳-54(⁵⁴ Mn)	312 天	$_{26}^{54}Fe(n,p)_{25}^{54}Mn$

$$R = \phi \times \Sigma$$

$$\Sigma = \sigma \times N_a$$
(4.5.5)

R:活化雜質比活度 (cm⁻³)

φ:中子通量 (cm⁻²)

 Σ :活化巨觀反應截面 (cm^{-1})

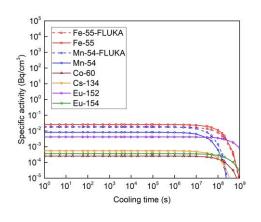
σ:活化微觀反應截面 (cm²)

 N_a : 母核濃度 (cm⁻³)

4.5.10.2 無自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較

在無自屏蔽設施中,利用(4.5.5)式計算等效於使用 50 毫安培連續照射 2 小時及連續照射 1 年後的雜質活化狀況,如圖 4.66,由於鐵-55 及錳-54 的母核均為鐵-54,而鐵-54 為 FLUKA 中波特蘭水泥的固有材質,因此針對鐵-55 及錳-54

的活化可以將 FLUKA 的模擬結果與理論計算相互比較,連續照射 2 年結東時,FLUKA 針對鐵-55 的活化模擬結果為 0.0178 ± 33.5% 貝克/立方公分,理論計算則為 0.0255 貝克/立方公分,理論計算結果高估約 43%;針對錳-54 的活化,FLUKA 的模擬結果為 0.0184 ± 40.2% 貝克/立方公分,理論計算則為 0.00827 貝克/立方公分,理論計算結果低估約 55%;在照射 1 年的狀況下,鐵-55 的理論計算結果低估約 70%,錳-54 的理論計算結果低估約 53%。利用理論計算與 FLUKA 的模擬比較結果,確立理論計算在分析雜質活化的方式可行,因此針對表 4.41 中提到的鈷-60、銫-134、銪-152 及銪-154 採用相同的理論計算方式,得到前向混凝土在經過 2 個小時連續照射後隨時間的比活度變化狀況及 1 年連續照射的比活度隨時間變化的狀況,在此案例的計算中,除了鐵-54 採用 FLUKA 模擬中的材料豐度,鈷-59、銫-133、銪-151 及銪-153 均採用 1ppm 的豐度計算其活化狀況。由於被活化的雜質均為長半衰期核種,可以在圖中觀察到 1 年照射情節下核種數量的大量累積,以半衰期最長的銪-152 為例,2 個小時照射結束後的比活度為 0.0042 貝克/立方公分,照射 1 年結束後的比活度則為 0.916 貝克/立方公分,比活度上昇了約 220 倍。



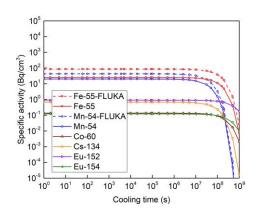
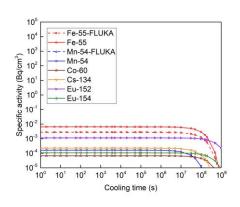


圖4.66. 利用(4.5.5)式計算無自屏蔽模型的前向混凝土雜質比活度隨時間的變化。左圖為等效於50毫安培連續照射2小時後的雜質活化狀況,右圖為等效於50毫安培連續照射1年後的雜質活化狀況。由於鐵-54為FLUKA中波特蘭水泥的固有材質,因此經過中子活化生成鐵-55及錳-54,針對鐵-55及錳-54的活化狀況,FLUKA模擬結果與理論計算差異小,確立理論計算的可行性。

4.5.10.3 有自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較

在有自屏蔽設施中,利用(4.5.5)式計算等效於使用 50 毫安培連續照射 2 小時及連續照射 1 年後的雜質活化狀況,如圖 4.67。在 2 個小時照射與 1 年照射中的 FLUKA 模擬中,均有計讀到鐵-55 的活化,在 2 個小時的照射中針對鐵-55 的理論計算高估 135%;在 1 年的照射中針對鐵-55 的理論計算則低估 71%。針對錳-54 的活化狀況,參考 4.5.9 節 4.5.9.1 段落,由於錳-54 的活化的中子能量閾值為 0.7 MeV,而在 4.5.7 的 4.5.7.2 段落中,也呈現在有自屏蔽的模擬中,地面混凝土的中子能量較低,在高能量中子稀缺的情況下,有效計讀值的呈現便需要更多的模擬迴圈,而目前的結果中即因模擬次數不足,導致無法得到錳-54 的活化結果,但仍可以利用理論計算的方式對錳-54 的活化狀況獲得初步的分析。觀察圖 4.67 所示之長半衰期重要活化核種,在經過 1 年照射後的比活度相較於 2 小時照射的比活度均明顯上升,符合前述長半衰期核種在長時間照射下的累積現象。



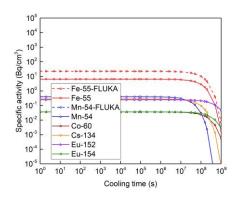
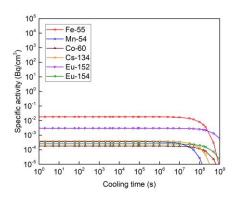


圖4.67. 利用(4.5.5)式計算所得之雜質比活度隨時間的變化。左圖為等效於 50 毫安培連續照射 2 小時後地面混凝土表面的雜質活化狀況,右圖為等效於 50 毫安培連續照射 1 年後地面混凝土表面的雜質活化狀況。FLUKA 模擬中沒有計讀到 錳-54 的活化,預期可以利用增加模擬次數的方式解決之。

4.5.10.4 2 小時照射:設施有無自屏蔽之比較

在有自屏蔽的設計中,前向混凝土及側牆混凝土因為屏蔽對中子的強烈吸收, 再加上模擬次數的不足,致使中子通量的計數值不足,無法利用理論計算的方式 獲得雜質活化的資訊,只有地面的混凝土得到了足夠的中子計數,因此本段落將 聚焦在有自屏蔽的地面混凝土雜質活化與無自屏蔽的屋頂混凝土雜質活化的比較。

圖 4.68 為利用 50 毫安培,18 MeV 質子照射 2 小時後,無自屏蔽的屋頂凝土與有自屏蔽的地面混凝土的比活度比較。承 4.5.7 節中子通量的分布狀況,在有自屏蔽的模型中,地面混凝土中的中子通量低於無自屏蔽模型中的屋頂混凝土內中子通量。因此整體的活化狀況也較少。圖 4.68 中的鐵-55 及錳-54 的活化均來自鐵-54 與中子的反應,而鐵-54 的濃度在本分析中均參考 FLUKA 模型中的波特蘭水泥成份,豐度約為 300ppm,而鈷-59、銫-133、銪-151 及銪-153 在雜質活化計算中則使用 1ppm 計算之。



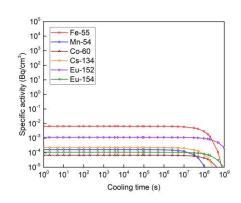
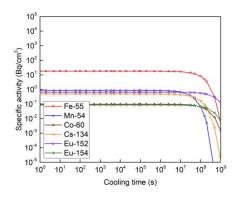


圖4.68. 利用 50 毫安培,18 MeV 質子連續照射 2 小時後的混凝土活化結果。左 圖為無自屏蔽的屋頂混凝土,右圖為有自屏蔽的地面混凝土。雜質的活化結果 與塊材活化結果有相近的趨勢,即無自屏蔽的活化較多,但差異並不顯著

4.5.10.5 1 年照射:設施有無自屏蔽之比較

圖 4.69 為利用 50 毫安培,18 MeV 質子照射 1 年後,無自屏蔽的屋頂凝土 與有自屏蔽的地面混凝土的比活度比較。有無自屏蔽的模型經過 1 年照射後的活 化趨勢與照射 2 個小時結果相近,在無自屏蔽的屋頂混凝土活化狀況略高於有自 屏蔽的地面混凝土活化,但差異並不顯著。



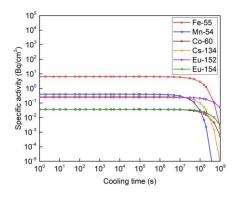


圖4.69. 利用 50 毫安培,18 MeV 質子連續照射 1 年後的混凝土活化結果。左圖 為無自屏蔽的屋頂混凝土,右圖為有自屏蔽的地面混凝土。雜質的活化結果與 塊材活化結果有相近的趨勢,即無自屏蔽的活化較多,但差異並不顯著

4.5.11 結論

放射性物質生產設施的活化問題均建立在放射性同位素製備的過程中的中子生成,而中子被周圍的材料吸收後成為不穩定的放射性核種,在本研究中發現活化問題真正的困擾之處並不在於加速器組件的活化,因為所有組件在長時間的使用下均受到大量的活化成為放射性廢棄物,而混凝土的活化狀況評估相對重要的原因在於鑑別其為放射性廢棄物與否,若大量的非放射性污染混凝土以放射性廢棄物認定之,勢必造成額外的成本與浪費,反之,放射性的混凝土若誤以一般廢棄物處理之,對於環境與相關人員必然造成危害。

以中子活化的觀點,混凝土的比活度 (Bq/cm^3) 為中子通量乘上混凝土材料的活化巨觀反應截面,考量材料的單次照射時間與冷卻時間後,混凝土材料的活化狀況可以用(4.5.6)示之,而本研究中,中子的生成肇因於放射性物質生產時的 $^{18}O(p,xn)$ 反應,檢視每一顆質子入射 $H_2^{18}O$ 靶材時,中子生成率即質子入射靶材的通量率乘上 $^{18}O(p,xn)$ 微觀反應截面,如(4.5.7)式。

$$R = \int_{E_1}^{E_2} \phi_n(E_n) \times \Sigma_{act}(E_n) \times (1 - e^{-\lambda_x t_{irr}}) \times e^{-\lambda_x t_{cool}} dE_n$$
 (4.5.6)

$$\#_{n} = \phi_{n} \times 4\pi R^{2} = \int_{0}^{E_{p}} \phi_{p}(E_{p}) \times \sigma_{(p,xn)}(E_{p}) \ dE_{p}$$
 (4.5.7)

在尚未考慮照射室的自屏蔽設計下觀察(4.5.6)式,單次照射(t_{irr})的時間愈長,活化愈嚴重;冷卻時間(t_{cool})愈長,活化程度則呈指數降低;觀察不同活化核種的衰變常數(λ_x),衰變常數為半衰期的倒數,因此半衰期愈長的活化核種,衰變常數愈小,達到飽和活度的時間需要更長,換言之,更長時間的照射對於長半衰

期核種的累積效果會更加顯著,除此之外,長半衰期核種隨時間衰變的速度也更緩慢;核種活化的巨觀反應截面 $(\Sigma_{act}(E_n))$ 是一個中子能量的函數,而中子能量愈低,活化反應截面則愈大,因此在熱中子豐度最高的區域即是分析活化時最重要的熱區之一。

在尚未考慮照射室的自屏蔽設計下觀察(4.5.7)式,前述本研究中的中子均源於 $^{18}O(p,xn)$ 反應,而中子的總產率即質子的通量率($\phi_p(E_p)$)乘上 $^{18}O(p,xn)$ 的微觀反應截面($\sigma_{(p,xn)}(E_p)$),在 4.5.4 節中,驗證隨著質子能量的上升,中子的生成截面亦會上升,但伴隨著上升的質子能量,基於能量守恆,二次中子的能量亦會上升,上升的中子能量對於混凝土活化最主要的貢獻,預期會在更深層的混凝土生成更多的熱中子,使得深層混凝土的活化加劇,不利後續除役工作。

考量照射室的自屏蔽設計,對於沒有自屏蔽的設施中,較多的中子進入混凝 土材料中,必然會造成較嚴重的混凝土活化;有自屏蔽的設施中,大部份的中子 均可以在自屏蔽內被吸收,唯地面方向的屏蔽較薄弱,二次中子屏蔽不足的狀況 下混凝土活化狀況依然嚴重。

在前述中也強調混凝土的雜質活化是除役工作中的重點之一,目前針對混凝土中的雜質均以 1ppm 計算之,若混凝土中的雜質濃度有任何增減,對於混凝土的活化狀況也會有相對應的變動。

針對參數靈敏度分析中幾個重要的參數對中子產率及混凝土活化的影響列 表如下:

表4.42. 參數靈敏度分析中影響二次中子生成及混凝土活化之重要參數

分析參數	二次中子	混凝土活化
	產率上升	
質子能量上升	產量上升	*深層混凝土活化加劇
	能量上升	
	*產率上升	
*質子電流上升	*產量上升	*所有核種活化加劇
	*能量不變	
	產量上升	
照射時間上升	產率上升	長半衰期核種活化加劇
	能量不變	
	產率不變	長半衰期核種衰變不顯
冷卻時間上升	產量不變	著
	能量不變	78
	產率不變	
雜質濃度上升	產量不變	活度呈比例增加
	能量不變	
	產率不變	
無自屏蔽設施	產量不變	全方向活化顯著
	能量不變	
有自屏蔽設施	產率不變	
(本研究模型)	產量不變	地面活化狀況顯著
(在河河水里)	能量不變	

註:*為依照中子物理之預期結果,而非模擬結果

4.6 辦理教育訓練

109年11月25日於新竹國立清華大學綠能館204會議室辦理迴旋加速器放射性物質生產設施除役放射活化分析技術教育訓練,上午針對蒙地卡羅的基本原理、FLUKA的操作說明及國內設施的運轉資料蒐集結果呈現,下午則設置兩組工作站供與會人員實際操作FLUKA,瞭解蒙地卡羅模擬軟體在評估活化問題的實務作法,表4.43為課程大網,圖4.70為活動照片。

表4.43. 教育訓練課程大綱

時間	課程主題
9:00 – 10:00	1.蒙地卡羅方法與應用
	講師:許榮鈞
10:00 – 10:30	電腦工作站
10:30 – 11:10	2-1.醫用迴旋加速器設施的活化特性與蒙地卡羅分析技術
	2-2.電腦運跑 FLUKA 蒙地卡羅程式之介面說明
	講師:房博文
11:10 – 11:20	Coffee break and discussion
11:20 – 12:00	3.國內生產設施特性基礎資料庫之調查、建立與使用說明
	講師:謝瀅憶
12:00 – 12:40	Lunch
12:40 – 14:00	案例教學與實作:
	4-1.質子撞擊靶材產製核種與伴隨中子的計算
	4-2.迴旋加速器設施物質活化的計算
	講師:房博文、王冠文、黄昱翔
14:00 - 14:20	Coffee break and discussion
14:20 - 15:00	期末成果審查





圖4.70. 活動照片-許榮鈞老師向與會人員介紹蒙地卡羅的理論基礎

4.7 109 年度會議論文

109年11月21日於台北榮民總醫院臺灣醫用迴旋加速器學會之年會中,由陳皇龍針對「國內醫用迴旋加速器設施建造特性、運轉歷程與國外設施除役經驗報告」以及房博文針對「醫用迴旋加速器設施的活化特性與蒙地卡羅分析技術」分別於會中做簡報,檢附當日節目表,如圖4.71,講師簡歷與報告摘要,如表4.44。簡報投影片另附。



臺灣醫用迴旋加速器學會

Taiwanese Society of Medical Cyclotron

http://www.cyclotron.org.tw

e-mail: tsmc20061216@gmail.com

2020臺灣醫用迴旋加速器學會年會暨第五屆第三次會員大會暨斷層掃描用正子放射同位素調製機構品質查核及管理研討會

地點:台北榮民總醫院致德樓 第四會議室

日期:109年11月21日(星期六)

時間: 08:30-17:10

報到 理事長致詞 黃蜂運:[89Zr]Zr-DFO-Atezolizumab 免疫正子斷層造影:從放射化學 到臨床生產與應用
黃蜂運:[89Zr]Zr-DFO-Atezolizumab 免疫正子斷層造影:從放射化學
座長:高潘福 理事長
陳皇龍:國內醫用迴旋加速器設施建造特性、運轉歷程與國外設施除役經驗 座長: 范盛慧 科長/許榮鈞 博士
房博文:醫用迴旋加速器設施的活化特性與蒙地卡羅分析技術 座長: 范盛慧 科長/許榮鉤 博士
會員大會
午餐
黄蜂運:美國現行正子藥物法規 座長: 魏孝萍 博士
黄仲凌:數據管理及完整性 座長: 魏孝萍 博士
詹東榮:正子藥物調製作業綜合討論 座長:魏老萍 博士
Coffee break
般國維: FDA 監督正子藥品問與答指引 座長: 張文議 博士
魏孝萍:培養基充填確效 座長:張文議 博士

主辦單位:臺灣醫用迴旋加速器學會 協辦單位:台北榮民總醫院、衛生福利部食品藥物管理署

TEL: (886)4-24739595 ext. 32077
Department of Nuclear Medicine, Chung Shan University Hospital NO. 110, Sec. 1, Jianguo N. Road, Taichung 40201, TAIWAN
40201 台中市南區建國北路一段110號 中山醫學大學附設醫院 核子醫學科轉

圖4.71.109年11月21日於台北榮民總醫院舉行之臺灣醫用迴旋加速器學會年 會之議程

表4.44. 陳皇龍與房博文與 109 年 11 月 21 日臺灣醫用迴旋加速器學會年會之講師簡歷與報告摘要

講				師	簡					歷
姓			名	陳皇龍身分證字號		M120XXX323				
服	務	單	位	臺灣醫用迴旋加速器學會		職			稱	理事
				私立中原大學-醫學工程學系學士			業			80.06.15
學			歷	國立陽明大學-醫學工程研究所碩	士	畢		日	期	82.06.15
于 ————————————————————————————————————			/IE	國立清華大學-工程與系統科學石人	研究所博士候選				劝	
				友興儀器股份有限公司-技術主任				時		82.6-94.6
經			歷	費曼科技股份有限公司-經理		服	務		間	94.6-101.7
				量子輻射科技有限公司-總經理		=				101.08-
課				程	綱	•				要
題			目	國內醫用迴旋加速器設施建造特例	生、運轉歷程與	國外	設友	拖除	役約	坚驗報告
				1. 計畫背景說明						
				2. 研究團隊介紹						
				3. 國內相關設施主要機型及規格	說明					
				4. 國外除役文獻收集說明						
摘			要	• 4-1 資料庫與驗證 (反應截	适、中子/核種	產率		劑量	验	證)
				• 4-2 模擬計算方法						
				• 4-3 設施活化計算						
				• 4-4 處理經驗與處理導則&	法規管制要求					
				• 4-5 諸經驗國除役經驗報告-以澳洲及日本為例						
				5. 國內設施資料收集成果說明						

講		師	簡			歷
姓	名	房博文	身分證字號	F128XX	XX413	
服務單	位	清華大學核子工程與科學研究所		職	稱	博士班
超	歷	清華大學核子工程與科學研究所得		- 畢 業	日 期	108.6
學	歴	清華大學工程與系統科學系學士		一	日期	103.6
		清大工科系程式語言-課程助教				108.9-109.1
經	歷	清大核工所輻射度量-課程助教		服務	時間	108.3-108.7
		清大核工所輻射度量-課程助教				107.3-107.7
課		程	綱			要
題	目	醫用迴旋加速器設施的活化特性	與蒙地卡羅分析:	技術		
摘要		國營應結劃的調速的調速 13 年 13 年 13 年 13 年 15 年 15 年 15 年 15 年	年輻活漸先設吉羅 模始二人響小設節主們綜。射化接進施構活 擬,二有,時1,要也觀上再程近的之體化 加逐中自我照整我貢利整述造度除蒙放等分 速層中屏們射整們獻用體設成的役地射的析 器分子蔽考》年觀核理分施迴處年卡活活方 照析與與量,的察核論析在旋理限羅化化法 射氟周無兩接連系種言品	運加處,模污影的 室一遭無利者續自的十品轉速置放擬染響優 中8加屏不考照射種與,過器攸射分潛。點 用產速 扁同處射 絲類 特自	程本關活析勢氣, 質率器)的長情吉等獎氟中體設化方情報類 子、组的照時節到鮮交18因、施殘法形主似 撞二件中射間以最細互8	核屏除存,,至分 擊次與子情照近長資驗生種蔽污量依據要析 氧中設分節射似長訊證成產或除評設以亦 一子施布,以設②。的至製建役估施探囊可 8產建與首允施年針方設核築的技參討氟用 水量物活先許生的對式施反物規術數加一延 產以的化分較命冷文,活

5、結論與未來方向

截至 109 年 11 月止,國內合計有 12 家設施經營者,共設有 13 部迴旋加速 器生產設施,加速能量介在 9.6-30 MeV 之間,其中過半數設施自投入營運迄今 已逾 15 年,最長逾 28 年。隨著國內生產設施逐漸接近除役年限,放射活化殘存 量評估技術及設施除役技術已在業界逐漸形成討論焦點。本計畫目標對國內迴旋 加速器放射性物質生產設施進行運轉歷程調查、放射性活化情形評估與量測驗證, 據以提出除役計畫撰寫導則建議與除役輻射安全審查導則建議。

本研究是一個二年期計畫,第一年(109 年)工作項目包括(1) 針對迴旋加速器放射性物質生產設施,蒐集研析放射性活化分析影響或除役相關之國際學術文獻或技術報告。(2)針對迴旋加速器放射性物質生產設施,探討諸經驗國對除役之法規管制要求、技術措施與處理實例,擷取相關經驗回饋我國以利參考。(3)蒐集並參考國內迴旋加速器放射性物質生產設施之建造特性與運轉歷史狀況,歸納建立模擬參數基礎資料庫。(4)引入蒙地卡羅數值模擬運算分析方法,依前述模擬參數基礎資料庫,用以模擬評估加速器設施之放射活化污染潛勢情形,據以探討加速器組件、設施周遭介質與建物結構體等的活化影響。(5)對上述模擬參數基礎資料庫,進行參數靈敏度分析,歸納靈敏性參數類別及說明。(6)根據本研究的成果與經驗,辦理迴旋加速器放射性物質生產設施除役放射活化分析技術教育訓練。本年度計畫內容已悉數完成,期末成果分項摘要說明如下:

- (1) 針對迴旋加速器活化分析相關之國際文獻已收集 27 篇論文與 12 篇報告,文獻包括 10~30MeV 加速能量之設施,包括有無自屏蔽設計二種,彙整資料有利於國內不同屏蔽設計之設施依循參考。收集之文獻的分類著重加速器機型、加速能量、以及有無自屏蔽,探討重點包括設施使用年限、射束損失量、除役過程之關鍵任務、活化物產出之分析以及量測方法等,本團隊設計了適當的資料架構分類彙整相關文獻,有利於未來取用參考。
- (2) 針對諸經驗國對於類似設施除役之管制與要求相關之文獻已收集近 10 篇, 資料來源包括日本、澳洲、及歐盟國家,本團隊選擇以處理經驗或導則以及 法規管制要求兩大面向來探討與說明,彙整內容請參閱前述 4.2 節說明。
- (3) 針對國內 13 座迴旋加速器放射性物質生產設施之建造與運轉歷史,本團隊 尊重各設施的配合調查意願,已於本年度蒐集到絕大部分設施的設備特性與

運轉歷史資料,包括各設施運作對應靶號、生產核種、靶體材料、靶窗材質、 靶窗厚度、靶電流、照射時間與生產活度等資訊,並歸納建立基礎資料庫, 未來可視案例需求直接與蒙地卡羅模擬分析連結。

- (4) 蒙地卡羅方法於加速器活化分析技術建立包括下列六個項目:中子產率驗證、核種活化驗證、劑量評估驗證、中子產率/中子劑量與氣-18產率關聯性驗證、無自屏蔽迴旋加速器設施活化分析、有自屏蔽迴旋加速器設施活化分析。本年度主要工作在於建立與測試 FLUKA 運跑環境,提高對於 FLUKA 程式使用的掌握度,利用重現文獻中的計算結果,確保在模擬時的物理模型參數選擇之正確性。本年度已完成中子產率、核種活化與劑量評估等三項基本驗證工作,並成功建立氣-18核種產率(設施有詳細的紀錄資料)與二次中子產生(設施活化的來源)的關聯性,並延伸探討了二者關係隨入射質子能量變化的趨勢,可作為未來分析案例的基礎與參考。本研究同時也建立了二種迴旋加速器放射性物質生產設施(無自屏蔽加速器設施及有自屏蔽加速器設施)的參考模型,完成比較此二種設施周遭中子分布的特性,並評估此二種設施加速器組件與其建物混凝土活化的特徵分析,成功達到計畫設定目標。
- (5) 關於蒙地卡羅模擬參數的靈敏度分析,本研究探討的參數包括射束能量、照射時間、靶材種類、靶材厚度、自屏蔽的有無、以及混凝土中雜質濃度等面向的影響。詳細分析結果如 4.5 節介紹,內容包含靶材厚度對 ¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面的影響、靶材厚度對氟-18 產率的影響、¹⁸O(p,n)¹⁸F 反應截面與 ¹⁸O(p,xn)反應截面的關係、FLUKA 中 ¹⁸O(p,xn)反應截面與 TENDL-2019 的比較、¹⁸O(p,xn)中子產率與能量的角度依存性、二種設施運轉期間之中子分布狀況、加速器組件的活化狀況、混凝土塊材與混凝土中雜質的活化。
- (6) 本計畫規劃之教育訓練已於 109 年 11 月 25 日於新竹國立清華大學順利舉辦,課程內容設計由淺而深,先針對蒙地卡羅的基本原理與應用作簡介、接續 FLUKA 的基本使用介面與電腦操作、說明本研究收集之設施活化相關文獻與本土設施運轉資訊、最後透過上機實作提供與會人員實際瞭解本研究建立之蒙地卡羅模擬技術。

總結本團隊今年度計畫執行心得,目前針對迴旋加速器放射性物質生產設施

之放射性活化分析影響或除役相關之資訊,已有足量的資料可供參考。其中日本、歐盟及澳洲的除役相關經驗及放射性廢棄物外釋規範,更是我國建立相關技術及標準的借鑑,而考量國內外可能的運轉歷史差異,本團隊對於12家設施經營者亦保持密切連繫,搜集並整理相關重要資訊。本研究引入最先進的蒙地卡羅模擬分析方法,初期著重於驗證蒙地卡羅模擬的正確性及適用性,並詳讀國外相關除役經驗及國內設施運轉參數,再依設施參數調查結果,建立用以模擬評估加速器設施之放射活化污染潛勢之蒙地卡羅模型,俾利未來建立生產設施除役相關輻射安全審查技術導則或建議。

未來方向主要依計畫書的規畫,明年度(110年)工作項目主要包括:(1)進行 迴旋加速器放射性物質生產設施放射活化情形之量測技術可行性評估與建議研究;(2)進行迴旋加速器放射性物質生產設施運轉中活化量測之驗證分析研究,歸納評析國內加速器設施之活化影響情形,並據以研析除污與除役策略方法;(3)研提迴旋加速器放射性物質生產設施除污與除役計畫撰寫導則建議;(4)研提迴旋加速器放射性物質生產設施除役輻射安全審查技術導則建議;(5)彙整本研究的成果與經驗,辦理迴旋加速器放射性物質生產設施除役輻射安全審查技術教育訓練;(6)辦理迴旋加速器放射性物質生產設施除役放射活化分析技術暨輻射安全審查技術研討會。

原能會為國內輻射安全的主管機關,感謝原能會輻防處的支持成立本研究計畫,引進先進國家之經驗,建立我國醫用迴旋加速器放射性物質生產設施除役相關分析技術,以確保日後設施除役管制之品質與輻射安全;此外,亦可及早建立國內迴旋加速器生產設施除役專業人才資料庫,並且有機會跨機構網絡協調與技術整合,以利未來除役實務作業的推動。

参考文獻

- [4.1.1] Takashi Nakamura *et al.* Neutron-production from thick targets of carbon, iron, copper, and lead by 30-MeV and 52-MeV protons. Nucl Sci Eng 83: 444-458; (1983)
- [4.1.2] E. Hess *et al.* Excitation function of the ¹⁸O(p,n)¹⁸F nuclear reaction from threshold up to 30 MeV, Radiochimica Acta 89(6) (2001)
- [4.1.3] Angelo Infantino, et al., Assessment of the production of medical isotopes using the Monte Carlo code FLUKA: simulations against experimental measurements, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, 336, 117 (2016)
- [4.1.4] Angelo Infantino, et al., Assessment of the neutron dose field around a biomedical cyclotron: FLUKA simulation and experimental measurements, Phys. Med. 32, 1602 (2016)
- [4.1.5] D. Alloni *et al.* Characterisation of the secondary neutron field generated by a compact PET cyclotron with MCNP6 and experimental measurements, Applied Radiation and Isotopes128 204–209; (2017)
- [4.1.6] J. Javier *et al.* Prediction of neutron induced radioactivity in the concrete walls of a PET cyclotron vault room with MCNPX, Medical Physics 37, 6015 (2010)
- [4.1.7] Angelo Infantino, *et al.*, Accurate Monte Carlo modeling of cyclotrons for optimization of shielding and activation calculations in the biomedical field, Radiat. Phys. Chem. 116, 231 (2015)
- [4.1.8] Fumiyoshi Nobuhara *et al.* Neutron transport calculation for Activation Evaluation for Decommissioning of PET cyclotron Facility, EPJ Web of Conferences 153, 0400 (2017)
- [4.1.9] T. Amin *et al.* Validating production of PET radionuclides in solid and liquid targets: Comparing Geant4 predictions with FLUKA and measurements, Applied Radiation and Isotopes 133 61–67 (2018)
- [4.1.10]R.J.Sheu et al.,Adjoint acceleration of monte carlo simulations using TORT/MCNP coupling approach: a case study on the shielding improvement for the cyclotron room of the buddhist tzu chi general hospital, Radiation Protection Dosimetry (2005) Vol. 113, No. 2, pp. 140–151(2005)
- [4.1.11] R.D.Sheu et al., The refined shielding design for the cyclotron room of the buddhist tzu chi general hospital, Radiation Protection Dosimetry (2005), Vol. 115, No. 1–4, pp. 216–221 (2005)
- [4.1.12] A. B. Philips, et al Residual Radioactivity in a Cyclotron and its Surroundings,

- Health Physics Vol 51, No. 3(September) 337-342 (1986)
- [4.1.13] K. Kimura *et al.* Residual long-lived radioactivity distribution in the inner concrete wall of a cyclotron vault, Health Physics 67(6):621-631. (1994)
- [4.1.14] Carroll, L. R. Predicting long-lived, neutron-induced activation of concrete in a cyclotron vault, AIP Conference Proceedings 576, 301 (2001)
- [4.1.15] R. Calandrino *et al.* Decommissioning procedures for an 11 MeV self-shielded medical cyclotron after 16 years of working time, Health Physics Jun;90(6):588-96. (2006)
- [4.1.16] J. J. Sunderland *et al.* Considerations, measurements and logistics associated with low-energy cyclotron decommissioning, AIP Conference Proceedings 1509, 16 (2012)
- [4.1.17] Kazuyoshi Masumoto *et.al* Effectiveness of self-shielding type cyclotrons, Progress in Nuclear Science and Technology Volume 4 pp. 223-227 (2014)
- [4.1.18] L. D'Ambrosio *et.al* Decommissioning procedures for a 17 MeV medical cyclotron, Physica Medica 32(1):118 (2016)
- [4.1.19] Masaaki Kumagai *et al* Activation Reduction Method for a Concrete Wall in a Cyclotron Vault., Journal of Radiation Protection and Research 42(3):141-145 (2017)
- [4.1.20] Toshioh Fujibuchi *et al.* Evaluation of the distribution of activation inside a compact medical cyclotron, Applied Radiation and Isotopes 124 27–31 (2017)
- [4.1.21] Dodd, A. C. *et al.* Activation of air and concrete in medical isotope production facilities, AIP Conference Proceedings 1845 (2017)
- [4.2.1] Sonck, M *et al.* Radiological and Economic Impact of Decommissioning Charged Particle Accelerators (2000)
- [4.2.2] Decommissioning of Medical, Industrial and Research Facilities , IAEA_TRS414 (2003)
- [4.2.3] Anne M. J. Paans and Johan R. The Decommissioning of Cyclotron Facilities for the Production of Radionuclides in Nuclear Medicine (2016)
- [4.2.4] Radioprotection guidelines for the safe use and decommissioning of a medical cyclotron, Modern Physics Letters A Vol. 32, No. 17 (2017)
- [4.2.5] Decommissioning of Medical, Industrial and Research Facilities, IAEA_SSG49 (2019)
- [4.2.6] Decommissioning of cyclotron for medical use and the associated radiation protection in Japan (partI~III), KEK(高エネルギー加速器研究機構) (2019)

- [4.2.7] Clearance levels for radionuclides in solid materials , IAEA_TECDOC-855 (1996)
- [4.2.8] Radiation Protection122_Part I_Guidance on General Clearance Levels for Practices, European Commission (2000)
- [4.4.1] https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/ap_table.pl Access date: 20200518
- [4.4.2] Mills SJ, Steyn GF, Nortier FM. Experimental and theoretical excitation-functions of radionuclides produced in proton-bombardment of copper up to 200 MeV. Appl Radiat Isot 43: 1019-1030; (1992)
- [4.4.3] Daum E. Investigation of light ion induced activation cross sections in iron. NEA-INDC(GER) 043: 4; (1997)
- [4.4.4] Tanaka H, Sakurai Y, Suzuki M, Masunaga S, Kinashi Y, Kashino G, Liu Y, Mitsumoto T, Yajima S, Tsutsui H, Maruhashi A, Ono K. Characteristics comparison between a cyclotron-based neutron source and KUR-HWNIF for boron neutron capture therapy. Nucl Instrum Methods Phys Res Sect B-Beam Interact Mater Atoms 267: 1970-1977; (2009)
- [4.4.5] Gul, K. et al., Charged Particle Cross-Section Database for Medical Radioisotope Production: Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions, IAEA-TECDOC-1211 (2001)
- [4.5.1] https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/ap_table.pl Access date: 20200518
- [4.5.2] Gul, K. et al., Charged Particle Cross-Section Database for Medical Radioisotope Production: Diagnostic Radioisotopes and Monitor Reactions, IAEA-TECDOC-1211 (2001)