## 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

中華民國 109 年 12 月 22 日

目	錄	<u>,</u> ,	I
圖	目	錄	III
表	目	錄	X
摘	要	<u>.</u>	1
AI	BS	STRACT	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	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)	.10
		4.1.2 模擬計算方法	.21
		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)	.24
	4.2	2 諸經驗國資料收集	.32
		4.2.1 文獻處理經驗與處理導則	.32
		4.2.2 法規管制要求	.43
		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	43
		4.2.2.2 澳洲國家醫用迴旋加速器	46
		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

4.4.5 無自屏蔽迴旋加速器設施活化分析	74
4.4.6 有自屏蔽迴旋加速器設施活化分析	77
4.5 參數靈敏度分析	78
4.5.1 質子能量對 <sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F反應截面的影響	78
4.5.2 靶材厚度對 <sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F反應截面的影響	80
4.5.3 靶材厚度對氟-18 產率的影響	81
4.5.4 <sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F反應截面與 <sup>18</sup> O(p,xn)反應截面的關係	
4.5.5 FLUKA 中 <sup>18</sup> O(p,xn)反應截面與 TENDL-2019 的比較	85
4.5.6 <sup>18</sup> O(p,xn)中子產率與能量的角度依存性	
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	87
4.5.7.2 有自屏蔽設施	91
4.5.8 加速器組件的活化狀況	93
4.5.8.1 無自屏蔽設施: 2 小時照射與 1 年照射之比較	94
4.5.8.2 有自屏蔽設施:2小時照射與1年照射之比較	99
4.5.9 混凝土塊材的活化	105
4.5.9.1 無自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較	105
4.5.9.2 有自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較	111
4.5.9.32小時照射:設施有無自屏蔽之比較	112
4.5.9.41年照射:設施有無自屏蔽之比較	114
4.5.10 混凝土中雜質的活化	115
4.5.10.2 無自屏蔽設施 :2小時照射與1年照射之比較	116
4.5.10.3 有自屏蔽設施 : 2 小時照射與 1 年照射之比較	118
4.5.10.42小時照射:設施有無自屏蔽之比較	118
4.5.10.51年照射:設施有無自屏蔽之比較	119
4.5.11 結論	120
4.6 辦理教育訓練	123
4.7109年度會議論文	125
5、 結論與未來方向	127
參考文獻	131

# 圖目錄

圖 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 <sup>18</sup> O(p, n) <sup>18</sup> 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
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]
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。
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]
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]
圖 4.16. 參考 Cyclone® KIUBE 於 FLUKA 建立之氧-18 水靶,單位為 mm74

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 圖 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(綠 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 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 .......80 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, 圖 4.23. 質子能量對 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面與中子生成反應截面的關係,以9MeV 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 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<sup>16</sup>O的反應,在決定中子產率時需 圖 4.26. 針對 <sup>18</sup>O(p,n+D)<sup>16</sup>O、<sup>18</sup>O(p,2n+p)<sup>16</sup>O 反應的中子生成加權因子訂定,緣 色虛線分別為 10 MeV 及 13 MeV,紫色實線為利用 RESNUCLE CARD 及 圖 4.27. USRBDX/RESNUCLE/TENDL-2019 三者針對中子生成截面之比較,中 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 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 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 

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. 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. 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。 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 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 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 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銀-94 貢獻組件比活度。對於比活度貢獻較低核種已 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 

- 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 4.46. 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 4.48. 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。..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

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 4.57. 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 MeV ......109 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。......110 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、氯-37、鈣-45、鐵-55、氯-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。 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 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、**氬-37、鈣-45、**鐵-55、氬-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 109 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109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

VIII

- 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。

會之議程表	1	2	25
	1		~

# 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]
表 4.6. 收集文獻分類表(模擬計算方法)
表 4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)
表 4.8. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種[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]
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
表 4.12. 加速器本體組件中常見的長半衰期活化核種
表 4.13. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種
表 4.14. 牆壁誘發活化核種與比活度[4.2.4]
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]
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
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

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 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 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 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 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 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 4.34. 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 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 表 4.37. Ycs 為利用理論計算之氣-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 4.39. 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 4.41. 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	
表 4.44. 陳皇龍與房博文與 10	19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	

#### 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 渐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。

4



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。
- 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。

- 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。
- 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:

年月工作項目	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	備註
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

表3.1. 專案進度及查核時程表

#### 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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F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。

9

#### 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<sup>18</sup>O(p, n)<sup>18</sup>F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			法规管制			
文獻抬頭(英文)	> 文獻抬頭(中文)	作者	出奠	牛代	圖家	機型	集量 (¥e¥)	使用 年限	射東 損失 (μ	自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化 量测数排 有条	遇程説明 方無	要求/苹 節 方無	: 實料岸與驗證(反應載面、中子) 核種產率、劑量驗證)	摘要
Excitation function of the <sup>18</sup> O(p,n) <sup>18</sup> F nuclea reaction from threshole up to 30MeV	從關值到30MeV能量 r 的 <sup>18</sup> O(p.n. <sup>18</sup> F核反應 l 的激發函数(反應截 面)	E Hess et al.	Radiochimica Acta 89(6)	2001	Germany	CV28	4~21			<b>A</b>	<u>45</u>	有	<u>#</u>	魚	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 內是否有正確或 合理的反應截面資料庫或核模 型。	● 異格審查目前透過中子能譜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。在某些能量範圍,發現截面數據庫相當薄弱或離散,為了填補這些空白並消除某些差異,使用含有高 濃度18O的不同個體和氣體率,從圓僅至30MeV重新測量了激發品載、為此。使用了范德格拉去微wan de Gnamf (Ep<4MeV)和幾個迴旋加速器(Ep=430MeV)。新的實驗數據有助於作為推薦的數據集。在Ep =14MeV時,根據新的軟件應做非算出的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	新光醫院迴旋加速 器室在不同運轉方 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	GE MINItrace	9.6			有	MCNP 5	使用了雙TLD芯片、裸露的金箔及覆 蓋有113Cd的金箔,來測量迴旋加進 器自我屏蔽以外位置的熱中子劑量 和通量率	<b>A</b>	<u>A</u>	大的水靶體積(靴1)等致18F-放射 性同位素的產率更高,並且等致 的中子劑量更低,中子能講較 弱。	●這項工作評估了由醫用迴旋加速器引起的中子先醬。由於9.6 McV質子來撞擊180次靶並在此SK迴旋加速 器中引起(p,n)反應。中子於是在187枚射性同位素產生期間產生。 為了評估迴旋加速器空內的中子劑量,分別使用了雙TID芯片,堆落的全箔及覆蓋有113Cd的全箔,來測量 迴旋加速器包積暴試以外也因約兼中子劑量中這量率,並分別在使用不同起的情況下量測。 此外,使用具有GLi(Eu)探測器的Bonner球,將其放置在迴旋加速器空內的特定位置,以估計使用不同 操作參數時的中子先墻。 結果,在使用無1的情況下,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的情況。但使用 靶1的情況下,自屏蔽內部的熱中子劑量要高於使用靶20情況。 評估自最減內部和外部的中子光谱及蠕動劑量結果。 在這項研究中對論了180-水起體動影響。總之,在本研究中採用的相同操作參數下,大的水靶體積(靶1) 导致18F-放射性同位素的產率更高,並且導致的中子劑量更低,中子能證較弱。
Accurate Monte Carlo modeling of cyclotrons for optimization of shielding and activation calculations in the biomedical field	精嘴的迴旋加速器 Monte Carlo建模, 可優化生物醫學領 成的屏蔽和活化計 算	Angelo Infantino <i>et</i> <i>al.</i>	Radiation Physics and Chemistry 116 (2015) 231 - 236	3 2015	Italy	GE PETtrace The ACSI TR19	8.4/16.5 13-19			٠	無 模擬核種產 率及周圍等 效劑量	血 在幅照期間,使用放置在加速器室 中口刻不同位置,距峰起1m的中子 计数器PHT-752(Thermo Scientic)進行測量。 在6E PETtrace迎後加速器周囲測量 了中子周間突然測量排化初之間的平均比率 為0,997±0,07。	æ	<u>ه</u>	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。 實驗測量與模擬之間的平均比率 為0.997±0.07°180(p)*10) Ka應產生的18P检約差率,與IAEA 推薦值進行了比較:發現與IAEA 的比率模擬為1.01±0.10° 提供我們將來在使用FLUKA模擬活 化分析上信心及參考。	●用於生產工電子發射斷層掃描(PET)放射性核種並利用強子或鏈子進行放射治療的生物醫學迴旋加速 高、各醫院以及工業設施和研究端得到農業的應用和建立。一些國際文件中给出了堪地規劃和安裝以及輻射防護許估的指南;但是,這些完善的指南進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。案件卡洛代碼具有率重量最新的資料庫,可用於能量低於200 №V的中子和零電中子的 連都和相互作用,以及當今以其職的不斷排證的功能,能助為統地利用具有現實發所形況進行模擬,對於 輸射源條件,屏蔽要求以及與輻射防護有關的所有數量值,進行設備和規場核定評信。 在這項工作中,眾所周知的葉特卡洛代碼PLUKA被用於供與兩個開於生產PCT或使性核種的迴旋加速固俟 之性核型,包括它們的純定一種樣式的重要提得系統。根如可得出各種或對非常認心的估计值,包括設備的 因的有效劑量分佈,每個入射質子產生的有效數量的中子和靶材料的活化,迴旋加速器的結構,能量衰減 器,加速器室牆和土壤。該模型針對實驗測量進行了驗證,並與公認的參考軟樣進行了比較。在CE PETtrace遊戲力量另件是人劑量子中子周圍等效劑量排(10);約一個素的美的學與推測之間的那些約上稱為 0,997±0,07%,計算了由菜所周知的180(0, vn)187反應應產生的186%和產率,並與1AEA和構造進行了比較 約:發現與AEA的比率模擬為1.01±0.10。
Assessment of the production of medical isotopes using the Monte Carlo code FLUKA: Simulations against experimental measurements	使用Monte Carlo cod FLUKA評估醫用同 位素的產事:模擬 與實驗量測比較	Angelo Infantino et al.	Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 366 (2016) 117–123	2016	Italy	TR13 TRIUMF	13			有	有	<i>*</i> i	<u>A</u>	Æ	在TRIUMF的TR13迴旋加速器上收 集的產車實驗數據與直接模擬的 動權相差606.04倍。除了55Co的產 車。在55Co的模擬中。低估實驗 值340.4的倍數。 實驗數據也與捲積模擬質子通量 和文獻載面的相吻合,為0.8±0.6 倍。 總體而言,這證實了FLUKA在13 MeV質子來能量下模模成射性核	●在小型醫用迴旋加進器上,質子來能量為13 MeV。以蒙特卡洛代碼FLUKA模擬計多正電子發射放射性核 種18F,13N,94Te,445、68Ga,86Y,92z,52Mn,61Cu4655Co的產生。 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55Co的產率。在 55Co的模擬中,低估質驗值34=0.46倍數。 實驗數推過與基樁模擬質了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	法规管制		
文獻抬頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出桌	年代	副家	機型	<b>集量</b> (Me∛)	使用 年限	射東 損失 (µ	自屏蔽 方兼	活化 模擬計算 有無	活化 量测数梯 方条	過程說明 方兼	安水/3 節 方無	5 頁所岸共敬世(反應吸回、甲子/ 核種產車、劑量驗證)	摘奏
Assessment of the neutron dose field around a biomedical cyclotron: FLUKA simulation and experimental measurements	評估一台醫用迴旋 加速器附近的中子 劑量場:FLUKA 模 擬與實驗量測	Angelo Infantino <i>et</i> <i>al.</i>	Physica Medica 32 (2016) 1602 - 1608	2016	Italy	GE PETtrace	16.5			£.	魚 模擬周圍等 效劑量	魚 使用有主動(中子計載器)和破動 (CR39)探測器在沿影個方向定位的 12個點中測量中子周围來或劑量計 (10):重新評估了我們小姐使用 TLD劑量計進行的一系列測量擇出的 載線。中子周围琴或劑量的評估話 果與實驗測量結果非常吻合:在12 個測量位置中的10個中,FLIKA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2個職位 中,将各2/3的測量值。	<u>A</u>	A	中子周圍等效劑量№(10)的評估 結果與實驗測量結果非常吻合: 在12個調量位置中的10個中。 PLUKA機凝與所有三級不同的實驗 軟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设施時,準確了解加速器周围的輻射場對於设計屏蔽,保護工人,公案和環境至關 重要。蒙特卡溶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,關於紫特卡羅 模擬相對於實驗測量值的正確驗證,特別是在生物醫學迴旋加速器的能量範圍內,這今尚未發表任何載 樣。 在這項工作中,使用FLUKA發展現看已安裝的GE PETtrace 16.5 MeY迴旋加速器的詳細模型。 使用neutron rem-counter probert 數器 (FH 40 G-L10 survey meter with its neutron rem-counter probe FHT-752 ArCR39 中子探測器對迴旋加速器周圍標註的位置的中子周圍等放劑量計 * (10) 進行了廣 之的測量。我們小超也造行了 靈新评估,對於之前使用TLD級行的測量数據。 然後通時高統計模與結果實驗數據進行Lik來發驗證FLUKA模型。在12個測量值中的10個中。FLUKA模 與與所有三個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。 我們的工作可以及重動總裁例的FLUKA模擬裝置,並確認愛特卡洛提納可以在生物醫學迴旋加速器的能量 範疇內產生準確的結果。
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	Kazuyoshi Masumoto <i>et</i> <i>al.</i>	EPJ Web of Conferences 153, 04007 (2017)	2017	Japan	CYPRIS- HM18	18	20	50 μA for one hour in every morning on weekday.	<u>A</u>	PHITS, Version 2.82+ DCHAIN-SP模 握退旋加速 高空間對量 分传和活化 事件。	使用有和没有編(Cd)覆盖層(厚 反為1mm)的金(Au)箔(直径為 6mm,厚度為20m)用於測量熱和超 熱中干通量(圖2):和鉛(A1) 板用於通過27A1(n,a)24Na反應 檢測快速中干通量(圖3)。 使用TLD UD-813FQ4(圖4)測量中 干劑量。	<b>*</b>	<u>A</u>	橫挺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 測測量值的有相當的一致性, 4.3 俗以內。 已發現具有質子活化最而產的更 新版本的PHITS / DCIAIN-SP可用 於評估的PITE / DCIAIN-SP可用 於評估的PITE / DCIAIN-SP可用 於評估的PITE / DCIAIN-SP可用 於評估的PITE / DCIAIN-SP可用 於評估於形況化程度, 對於 這些改施的現役計劃很重要。	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PHITS聚转卡廠訂算代碼(用於中子傳輸)和PCHAIN-SP(開於活化計算)表與擬迴超 加速器空內中子的空間簡量分佈形活化事件。計算結果與遵備的有相當的一致性。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	<ul> <li>箱由MCNP6模擬計</li> <li>算與實驗量測</li> <li>Compact PET 迴旋加</li> <li>逸器誘發的二次中</li> <li>子產率的特性</li> </ul>	D. Alloni et al.	Applied Radiation and Isotopes 128 (2017) 204–209	2017	Italy	IBΑ	18	N/A	<ul> <li>nominal 30 μ</li> <li>A beam current</li> <li>maximum</li> <li>value of 38 μA</li> <li>on the large</li> <li>volume target</li> </ul>	£	MCNP6 was used for Energy spectrum of neutrons	Experimental data of neutron field spectra, obtained from Neutron Activation Analysis (NAA) of thin targe foils, after their processing with the SAND II code	1 <u>A</u>	A	比較在不同位置,經SAND II code 處理過之實驗值與MCNP6模擬计 算值得到之中子能竭。 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, 可從而獲得對保健物理程序有用 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旋加速器的最常用的PET放射性 同位素FBuorime-18。通過比較MCNPO家持卡洛模擬結果,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。介紹了由该反應在迴旋加速器周圍不同位置產生的次級中子場光譜的特性,
Validating production of PET radionuclides in solid and liquid targets: Comparing Geant4 predictions with FLUKA and measurements	驗證在圖態或液態 乾中PET正子放射性 核種基率:Geant 和 FLUKA MC code 間模擬預測比較、 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 to 25 $\mu$ Å	) 有	使用Geant4 MC code 模 挺13MeV醫器 產生經濟之子 發展研究住用 過的BFLUKA 模與文獻比較 值做比較 值做比較	引用参考文献的實驗量測值	æ	æ	使用Geant4 MC code 採艇13MeV 醫用這處加速器產生子及射性 植種之產非。其結果與其他文獻 研究使用過的FLUKA 模拟计算值 與文獻實驗值做比較。在這兩種 和式模擬计算中,吻合度皆有很 大的變化,可能原因是來自實驗 從計與使用的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當子誘 發放射性核種產生之產非許估的 工具。	使用Geant4 MC code 模擬13MeV醫用迴旋加速菌產生正子放射性核種13%, 18F, 44Sc, 52Mn, 55Co 61Cu, 68Ga, 86Y, 88Zr and 94Tc之產率。其結果與其他文獻研究使用過句FLUKA 模擬計算值與文徵實驗值做比 粒。比較結果中顯示在不同核種問有很大不同程度的吻合。這些吻合度(模與實實做比值)在FLUKA 1.4 ± 1.6 ; 在Geant4搭配QGSP-BIC-A11BP附是 0.7 ± 0.5。在這兩種很式模擬計算中,吻合度皆有很大的變化 , 可能原因是4 實難做計與使用的cross section database ·Geant4 因仍在可是使的範圍內,整體而 言, Geant4已經可以是用來評估低能量質子诱發放射性核種產生之產率評估的工具。
Development of an Experimentally Validated MCNP6 Model for <sup>11</sup> C Production via the <sup>14</sup> N(p,a) Reaction Using a GE PETtrace Cyclotron	發展一個可適用GE PETtrace Cyclotron進 行 <sup>115</sup> V(p,a)產生 <sup>11</sup> C反 應的實驗驗證 MCNP6模型	Amy Hall et al.	NUCLEAR TECHNOLOGY (2020)	2020	USA	GE PETrace	16.4 MeV(麻 高) 14.6± 0.2MeV(實 驗)				有	有	뇲	æ	稿由使用高纯度鋼車臺箔活化法 (high-purity copper stacked foil activation)量剂MURR迎坡加速面 質子來能量為14.60-20 KeV : 比較 商公定的16.4降低了幾個MeV能 量。磷光板成像(Phosphorp plate imnging)用於對銅箔內於對結內 位素產生的分佈進行射線照相成 像。並呈現射来的空間和強度分 停。	(GEB) PETtrace 860週級加速器在密紙里大學反應器(MURR)这純中被廣泛用於醫學和研究用放射性同位素的生產。但是, 尚未有模型可以證明其性能, 並且無法測量質子來的能量和空間分佈。迴破加速器軟系統通常用於研究在醫學成射性问位素生產, 你在成, 開發了MCNP模型來改善迴坡加速器軟合的性能。由於迴致加速器來為集的性质。 金、由於迴致加速器來能量和分佈對放射性同位素生產的效率和特核有保入65%等, 或植物也使用為成是動 堆叠箔活化法(high-purity copper stacked foil activation) 量测MURR迴旋加速器質子來能量為14.6m22MeV, 比範萄公式的16.4%低了後個MV能量。端充板成像(Phosphor plate imaging)用於對銅箔內放射性问位素 產生的分佈這行射線照相成使, 並呈現射來的空間和發展分佈。這通過使用已在面積或計例上試到實辦離 腔中的量來定量總形成度, 计算射來電流在54~40AA之間, 輸照時的有效和密度, 測得的計來和輕片任用 於建立11C生產的MCNP6模型, 通過使用這模型, 可以確定都作為厚能設计的最高效率為41%, 高達11.80 MeV中均低量的 于投聲基礎, 导致因為熱描于回蹤造成的潛在污染。

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<sup>18</sup>O(p, n)<sup>18</sup>F 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。此文獻的反應截面由量測而得且受 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。

Energy range	Accelerator	Targets used	Beam current monitoring
2.7-4 MeV	van de Graaff, Debrecen	Al <sub>2</sub> <sup>18</sup> O <sub>3</sub>	Faraday cup
5-7 MeV	MGC-20E, Debrecen	Al2 <sup>18</sup> O3	Faraday cup
4-21 MeV	CV 28, Jülich	<sup>18</sup> O <sub>2</sub> , Si <sup>18</sup> O <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> <sup>18</sup> O <sub>3</sub>	Monitor reaction
20-30 MeV	Injector of COSY, Jülich	Si <sup>18</sup> O <sub>2</sub> , Al <sub>2</sub> <sup>18</sup> O <sub>3</sub>	Monitor reaction

表4.2. E. Hess 等人文獻中使用到的照射設施[4.1.2]



圖4.2. 經由中子量測和活化量測而得的<sup>18</sup>O(p, n)<sup>18</sup>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]

Radionuclide	Kimura et al., D <sup>a</sup>	MCNPX, P1
<sup>152</sup> Eu	105	41.5±5.3
<sup>60</sup> Co	135	$129 \pm 12$
<sup>134</sup> Cs	6	$7.3 \pm 4.2$
<sup>46</sup> Sc	130	$145 \pm 16$
<sup>54</sup> Mn	36	$10.6 \pm 1.0$
<sup>65</sup> Zn	10	$6.7 \pm 0.4$

表4.3. 該文獻模擬值與其參考的量測值之比較[4.1.6]

<sup>a</sup>Results 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 測位置總共 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、 鋯-89、錳-52、銅-61 與鈷-55)的產率[4.1.4],實驗量測結果氟-18 的產率約為 4920 MBq/ $\mu$ A,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 13 MeV 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。

17



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 <sup><math>-2</math></sup> s <sup><math>-1</math></sup> )	Thermal flux $(\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1})$
LV	$7.4973 \times 10^{7}$	$4.9872 \times 10^5$
WALL	$6.4102 \times 10^{6}$	$5.1303 \times 10^5$
TOP	$2.4485 \times 10^{6}$	$8.1576 \times 10^5$

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、络-44、錳-52、鈷-55、銅-61、鎵-68、釔-86、 鋯-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

Isotope	Number of measurements	Y <sub>exp</sub> [MBq/μA]	$Y_F/Y_{exp}$	Y <sub>G</sub> /Y <sub>exp</sub>	$X_T/X_E$	Ref.
<sup>13</sup> N	12	$259 \pm 3$	$5.92 \pm 0.01$	$2.73\pm0.01$	2.34	IAEA-NDS (2015a)
<sup>18</sup> F	9	$4920 \pm 60$ Infantino et al. (2016)	$1.66\pm0.01$	$0.53 \pm 0.01$	0.94	IAEA-NDS (2015b)
<sup>44</sup> Sc	3	4.9 ± 0.3 Hoehr et al. (2014)	$2.35\pm0.06$	$2.1 \pm 0.1$	1.0	Levkovsky (1991) de Waal et al. (1971)
<sup>52</sup> Mn	5	900 ± 100 Topping et al. (2013)	$4.62\pm0.11$	$1.1\pm0.1$	0.93	Tanaka and Furukawa (1959)
<sup>55</sup> Co	4	180 ± 20 Ferreira et al. (2007)	$0.3 \pm 0.1$	$0.7 \pm 0.1$	0.88	Kaufman (1960)
<sup>61</sup> Cu	3	$130 \pm 20$ Infantino et al. (2016)	$3.13\pm0.15$	$0.6 \pm 0.2$	0.55	Levkovsky (1991)
<sup>68</sup> Ga	3	138 ± 2 Infantino et al. (2016)	$1.03 \pm 0.02$	$0.84 \pm 0.02$	0.75	Levkovsky et al. (1990b) Johnson et al. (1964) Vinogradov et al. (1993) Zhurayley et al. (1995)
<sup>86</sup> Y	3	40 ± 50 Infantino et al. (2016)	$0.9 \pm 1.30$	$2.5 \pm 1$	1.0	IAEA-NDS (2015c)
<sup>89</sup> Zr	6	346 ± 2 Infantino et al. (2016)	$0.87 \pm 0.01$	$0.69 \pm 0.01$	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)
<sup>94</sup> Tc	3	49 ± 6 Hoehr et al. (2012)	$1.5 \pm 0.1$	$1.7 \pm 0.1$	1.16	Levkovsky (1991) Zhuravlev et al. (1994)

## 與 EXFOR)之比較[4.1.9]

#### 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)

	文獻拾頭(中文)	作者	出来	年代	H¥	加速器						活代		法服务制	
文獻抬项(英文)						機型	雛 彙 (MeV)	使用 车限	結ま 長失 (µA*br)/yr	自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化 量测数描 有盖	····· 過救說明 有些	水流 6 49 要求/章節 有無	模擬計算方法
Neutron Production from Thick Targets of Carbon, Iron, Copper, and Lead by 30- and 52- MeV Protons	30MeV及52MeV皆 子 射東照射厚肥材 (硫術/納/約)之中子 直中	Takashi Nakamura et al.	Nuclear Science and Engineering, 83:4, 444-458	1983	Japan	*For reasearch	30 52			*	ń	方	*	*	●實驗結果表明,在~100 MeV以下的能量医域,忍干核 的結構對中子產生有很大影 幣,不適用於基於Fermi費未 自由氣體計算化ECC-7。 ●透過將測得的較高能量的 光播減合到馬克士成 Maxwellian分傳來估算幾個 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 一錢種。
Adjoint acceleration of monte carlo simulations using TORT/ACNP coupling approach: a case study on the shielding improvement for the cyclotron room of the buddhist tru chi general hospital	使用TORT/MCND 優 化加速型MC code根 擬計算播数危滑維 含醫院迴旋加速器 室的屏蔽優化。	R. J. Sheu, R. D. Sheu, S. H. Jiang and C. H. Kao	Radiation Protection Dosimetry (2005) Vol. 113, No. 2, pp. 140– 151	2005	Taiwan	PETtrace	16.5(proton) 8.4(deutron)	installation		*	A	A	A	*	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	佛教总濟综合醫院 迴旋加這器室的屏 蔽優化版計	R. D. Sheu, C. C. Chen, R. J. Sheu, C. H. Kao and S. H. Jiang,	Radiation Protection Dosimetry (2005), Vol. 115, No. 1-4, pp. 216-221	2005	Taiwan	PETtrace	16.5(proton) 8.4(deutron)	installation		*	*	*	*	<u>*</u>	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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F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儲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匀性,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 μSv,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 μSv/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	15. AL	تم الفر الله ال	<b>N</b>	
文獻抬頭(英文)	文獻拾頭(中文)	作者	出桌	年代		模型	<b>先登</b> (MeV)	使用 牟限	射東 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有無	活化 量测数模 方条	除权 過程就明 方無	法现官制 要求/章節 方無	裁施活化計算	
Residual Radioactivity in a Cyclotron and its Surroundings	迴旋加速器與其 環境的殘餘放射 性活度	A. B. Philips, et	Health Physics Vol 51, No. 3(September) 337-342	1986	USA	*For reasearch	1-43 25	21	250000	<u>*</u>	<u>*</u>	在迴旋加速器運行终止12個 月後、發現加速器外周围的 材料中,中子誘發樹線的或 料栏间位素洗度程度,集 自然放射活性相當,且所有 測量混凝土株品中的活度混 度均低於豁及管制混度exempt concentrations;	儘管所測量的中子誘發r射線的成 射性同位素活度模品均低於豁免管 制水平,但不會將與加速器室相關 且具有可被測量封約或射性同位素 功相關材料定額金貨幣或對外界市 場。大部分材料將接轉移到用於處 建低放射性活動的場所或實驗室。	*	在迴坡加速器運行终止12個月後 ·發現加速器外周圍的材料中, 中子誘發r射線的成射性同位素 活度度度低,與自然成射活性相 當。且所有測量混凝土採品的 活度濃度均低於點免管制濃度 exempt concentrations。	●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租件和周圍環境中,中 子誘發的f射衰變的放射性積種。 ●這些測量是在迴旋加速器退役,就進釋放加速器組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的活動外,在混旋上屏蔽層中退發現了半衰期13.3年152Eu和8.6年154Eu ,其比活度為數十Bq/kg(約幾個nCi/kg)。
Residual long-lived radioactivity distribution in the inner concrete wall of a cyclotron vault	迴旋加速器设施 中內層混凝土牆 內殘餘長半衰期 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	흤	有	有	â.	*	●透過湖定混凝土結果湖量迴旋 加速器內混凝土牆內殘餘長率衰 期放掛性的深度分佈,並透過 度偷檢器(mass of activation detectors)結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 中子通量分佈,就有其同位素活度和 即活及測量分構,低算長期運行 後混凝土中的長素命放射性。	<ul> <li>●我们透過測定混凝土芯本測量迴旋加速器內混凝土編內殘餘長半衰期放射性的深度分佈,並透過活 度值被器(means of atrivation detectors)/結果混凝土編內中于通量的分佈。</li> <li>●現據在混凝土線上刷譯的局,對線洗道: 鐵定出九種長壽令放射性核素(46Sc, 59Fc, 6oCo, 65Zn, 134Cs, 15Zin, 154En, 22Na, and 54Mn)。</li> <li>●已經證實,熱中于邊邊(n·r)反應將導的放射性核種台主導地位,並且熱中子的引發的活化在5至 10 cm約深度最大,而不是是混凝土表面。深度超過20 cm度呈點下降。</li> <li>●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 凝土中的長壽令放射性。</li> </ul>
Predicting long- lived, neutron- induced activation of concrete in a cyclotron vault	預測迴旋加速器 室況接發走中的中 子诱發活化的長 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	•17 (simulation) •42 MeV protons on a Cu target, target located ~18 inches from surface of the vault wall	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	<u>*</u>	transport code TART98	Ä	A	A	董湖及模擬計算照射室內混凝土 牆內的放射性活化程度。	●迴旋加速圖中的中子可活化混凝土中的許多元素。但只有少数活化產物是長套命的。其中最突出的 是Eu-152、Eu-154、Co-60和Cu-134、它們隨著時間的流逝而由(n、r)反應積累。其來自微量穩定的 類Eu-MCO+48CS。通常在混凝土中的濃度為百萬分之處或更少。對與先前的迴旋加速圖退役有關的數 難進行回顧性分析,再加上類並屬表的凝集,可以估算出混凝土中這些不能的濃度。以讓估計為基準 ,然後我們使用紫持卡羅程式來估計任意輻射條件下混凝土的長期活化曲線。
Decommissioning procedures for an 11 MeV self- shielded medical cyclotron after years of working time	工作16年後的11 MeV自屏蔽醫用 迴旋加速器的退 役程序	R. Calandrino et al.	Health Physics. 2006 Jun;90(6):588- 96.	2006	Italy	CTI RDS112 Eclipse	11	16 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	*	●前約律家部地理公式 ●前約律家部地理行為 ○前約律家部地理行為 ○方法案 <td>●主要計對除位計畫中拆解加速 通過程中,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、導瓦工業)。不運工及約 防工人)的有效劑量官小約約 可息需,未定費升度有服款,但 有效劑量。 (小菜在除役拆解的過程中,加入 保護物理人員來堅成升度,完定費升度有 達利於在的安全效果。 ●表式利用前的限制和法律規定 要求零少將完化都件無限知法律規定 續本從裡區域以進行放射性廢物 處置。</td> <td>●本文介紹了一種聚級型、自募載11 MeV醫用迴旋加速器的退役過程。為了計劃退役時的活化,對可能的核反應進行了案持卡洛根與,在迴旋加速器拆卸過程中,對迴旋加速器無件,屏蔽和地面混凝土 構品進行了測量。使用Ge (1) 被測器分析殘留活度,並與模擬載葉進行比較,這役程序中涉及人員 的劑量車單個工D劑量比較減。 機械確定了屏蔽層不地面混凝土物白点做放射性核素:55Fer43Ca (β射漂,應此活度:2:29E+04 Bq(2) f=1522m 154Ea, 60CG (γ排漂,應此活度:1:62E+03 Bq(2)。 向局射線先還法確認了存在的你局射爆射漂,對應於德比活度為340E+02 Bq(Xg。 送週實類證實了屏蔽結構的約中,存在成射性同位素:245B、其對應的模擬比活度為9.38E+03 Bq/ kg。 交害與人員的外部爆磨中測得的對量,於20 JgS、內式預備(195/20 JgS×周的)。 編入量可忽略 不計。 最後,111 MeV迴旋加速器的退化對相關人員而言並不構成風險,但是由於存在長壽命放射性同位素, 因此迴旋加速器無件應被視為低放射性廢物,並存儲在授權的存儲區域中。</td>	●主要計對除位計畫中拆解加速 通過程中,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、導瓦工業)。不運工及約 防工人)的有效劑量官小約約 可息需,未定費升度有服款,但 有效劑量。 (小菜在除役拆解的過程中,加入 保護物理人員來堅成升度,完定費升度有 達利於在的安全效果。 ●表式利用前的限制和法律規定 要求零少將完化都件無限知法律規定 續本從裡區域以進行放射性廢物 處置。	●本文介紹了一種聚級型、自募載11 MeV醫用迴旋加速器的退役過程。為了計劃退役時的活化,對可能的核反應進行了案持卡洛根與,在迴旋加速器拆卸過程中,對迴旋加速器無件,屏蔽和地面混凝土 構品進行了測量。使用Ge (1) 被測器分析殘留活度,並與模擬載葉進行比較,這役程序中涉及人員 的劑量車單個工D劑量比較減。 機械確定了屏蔽層不地面混凝土物白点做放射性核素:55Fer43Ca (β射漂,應此活度:2:29E+04 Bq(2) f=1522m 154Ea, 60CG (γ排漂,應此活度:1:62E+03 Bq(2)。 向局射線先還法確認了存在的你局射爆射漂,對應於德比活度為340E+02 Bq(Xg。 送週實類證實了屏蔽結構的約中,存在成射性同位素:245B、其對應的模擬比活度為9.38E+03 Bq/ kg。 交害與人員的外部爆磨中測得的對量,於20 JgS、內式預備(195/20 JgS×周的)。 編入量可忽略 不計。 最後,111 MeV迴旋加速器的退化對相關人員而言並不構成風險,但是由於存在長壽命放射性同位素, 因此迴旋加速器無件應被視為低放射性廢物,並存儲在授權的存儲區域中。

# 表 4.7. 收集文獻分類表(設施活化計算)(續)

						加速器					活化		10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 1			
文獻拾順(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出桌	牟代	<b>副家</b>	模型	<b>施量</b> (MeV)	使用 年限	射東 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽 有無	活化 模擬計算 有魚	活化 量测数 <i>排</i> 有条	(* CC 通程说明 方条	层元首的 要求/章節 方集	<b>改施活化計算</b>	摘要
Prediction of neutron induced radicactivity in the concrete walls of a PET cyclotron vault room with MCNPX	利用MCNPX code 根擬預測迴旋加 進置或地中混建 路內国中混時 發產生的放射活 性	J. Javier et al.	Medical Physics 37, 6015	2010	Spain	ge pet trac	18	2006(operation)	30000( $\mu$ AMhr)/yr for average During 2006 and 2007, the cyclotron runs I h/day Wonday - 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	NCNPX v2.6.0 code	參考文獻的實驗量測值與本 實驗的模擬計算值,在長期 運轉(10年)中的結-60與 起-66其比涉度有較高的一致 吻合性。	Â	在10年约计济 最高大部分 10年付计济无限 (exemption Timits)之晚好 11mit(s)之晚好 人生爱。	利用MCNPX v2.6.0 code模拟计 算長期運轉後混凝土输內不同深 度活化的長半衰期核種比活度	<ul> <li>●目的:作者希望評估CIMES(馬拉加大學)PET迴裝加速置的加速置空洗疑土的中子活化的相關性 這過預測資料和迎裝加速置在110年後,加速置空作主要活化產物的具體活度及其變化情況與洗疑上活 化深度的高数。</li> <li>●方法:雙丁迴旋加速置主要用於18%的PET闩位生產處。在2006系和2008年期間,單來400.40依用 事為每天11,約2008年1月開始,雙來800.40依用率為每天4小時。迎旋加速置置子术的能量為18 NeV。</li> <li>在迴旋加速置空的論變上遵擇四個點位置,以評估中子誘發的放射性接種的比活度。</li> <li>在場面點加量,並接來到完設上均期120 (20%度)評估件子誘發的放射性接種的比活度。</li> <li>使用基於餐計子溶的模式(MPK)(V(26.6)),並行打模型。</li> <li>●结果:根據UNPK的計算,所研究的途燈洗掉的300%或是其最下降。152%0,154%0, 60%0,134%0,45%5,45%0,45%0,45%0,45%0,45%0,45%0,4</li></ul>
Considerations, measurements and logistics associated with low-energy cyclotron decommissioning	與低能量迴旋加 遠器退役相關的 注意事項,测量 和物流	J. J. Sunderland, C. E. Erdahl, B. R. Bender, L. Sensoy, and G. L. Watkins	AIP Conference Proceedings 1509, 16	2012	USA	Scanditronix	17	20	300000(µ A*hr)/20yr totaled close to 300,000 µA- hours over its lifetime	<u>#</u>	<b>æ</b>	通過接式鑽機從混凝土牆的 不同位置在混凝土牆的多個 點採集多個樣品,並收集混 凝土紛優品, 通過使用兩個獨立的高純度 結積檢器,量測整夜以計數 分析,詳估中子活化產物的 濃度	A	<u>#</u>	模擬計算照射室內混凝土牆內的 成射性活化程度。除出這次度將外成 置15年後降至與背景值相同;其 迴坡加速器的總活度也降至37 MBq(1 mCi)以下。	受持筆大學擁有20年歷史的17 MeV Scanditronix迴發加速器於2011年夏天退役。 為滿足地方,州和鄉將不規申關於清除。運輸內股金全環係的夏規定。針對22幅活化迴發加速器中 有關率以及終於的流堤上總出儲於了一系列線能當測導。以解約22幅迎後加速器的質子和中子活化的性質 和程度。混凝上論的中子活化程度極小且低於裕克濃度(exempt concentrations),可做為標準的边現填埋處 環。迴發加速器并佔顯示了,預期的短期和中期放射性核種的狀況。隨後的計算表明,有代表性程度的 殘留活度將在15年後實際上降低到背景,整個迴發加速器的總殘留活度降至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 <i>et.al</i>	Progress in Nuclear Science and Technology Volume 4 (2014) pp.	2014	Japan	five cyclotron facilities	7~20			有	有	<u>A</u>	<b>A</b>	Æ	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的醫 用迴旋加速器之 除役程序	L. D'Ambrosio et.al	Physica Medica 32(1):118 · February 2016	2016	Italy	MC17	17	10		<u>#</u>	有	有	有	Æ	根擬計算照射空內混凝主牆內的 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 μSv,而攝人的體內 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		<b>N</b> / <b>A</b>	لفتقعد		
文獻拾頭(英文)	文獻抬頭(中文)	作者	出處	牟代	国家	模型	<b>進量</b> (MeV)	使用 年限	射東 損失 (µA*hr)/yr	自屏蔽 有热	活化 模擬計算 方無	活化 量测敏雄 方条	☞ 化 過程就明 方集	法元官司 要求/章節 方集	被施活化計算	摘要
Activation Reduction Method for a Concrete Wall in a Cyclotron Vault	降低迴旋加速器 段桃內混凝土牆 活化的方法	Masaaki Kumagai <i>et al.</i>	Journal of Radiation Protection and Research 2017;42(3):14 1-145	1 2017 4	Japan		30		単次實驗125 μA 約8 hours	<u>A</u>	æ	使用Ge檢測器 (Canberra, GL2018) 結合多通道分析儀 (MCA, Inspectro 2000) 測量 金箔模品的活性。	A	£	在放射性同位素生產過程中,迎突 较加這個政格內的混凝上播檢及 自然的中于活化。對於乾後,或 少此腦設施中產生的放射性廢物 約載夏非常重要。因此,我們中 減少這酸加速圖中混凝土壁中子 減少。 一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一 使用40分厚的塑膠材質加上哪 包括片可有效降低熱中子通量約 78%。因此如加上這種設計的算 減。可有效降低中子在混凝土牆 上的活化程度。	<ul> <li>●背景:在成射性同位素生產過程中,迴旋加速器设施內的混凝土牆被來自転的中子活化。對於除後, 或少此額设施中產土的装持性廢物的數量非常重要。因此,我们提出了一種豪喝。在運轉過程中,或少 迴旋加速器中混凝土塑中子活化。</li> <li>今方法:將菜乙烯板石料B的AIJ(《Bib330 wi9%,厚度為25 mm)放在製藥用放射性同位素生產设施的 迴旋加速器室的總塑部, 本定是以來處,並使用了一成與操作為背子阻擋塊。範照時間,胃子能量石來流 分別為8小時、30 MKV+1250x,為了確定設置在特路依指面的聚乙烯板的合造厚度,透過將移B級板相 人聚乙烯板疊層中的不同深度,詳估所獲得的中子成少效果。</li> <li>使用活化價做器以及有和或者覆乙55mm得以因當約20gk本品獲提品上以監測中子通量。導每個Au這樣品約 転到聚乙烯板和B将種的AIJ的中央,並且使用Ge檢測器將一個Au這樣品的地對活性作為操准進行測 量。透過計算每個箔標品具標準Au這的先對激發是Chobtostimulated luminescence)之比,可以獲得所得的相 對活性。</li> <li>●結果:當使用厚度為和Emb發乙烯板和BB的AI板的組合時,整中子率降低了78%。</li> <li>●結案:4厘來厚的聚乙烯板和B接線的級板的組合有效地降低了所研究混凝土牆的中子活化。</li> </ul>
Activation of air and concrete in medical isotope production facilities	醫用同位素產生 設施中空氣與混 凝土的活化	Dodi, A. C., Shackelon, R. J., Carr, D. A., & Ismail, A.	AIP Conference Proceedings 1845	2017	Canada	Scanditronix 17 MeV	17	20	500µA for 1500 hours per year	<b>A</b>	MCNP5 was used for Energy spectrum of neutrons	*	●從反應堆中子研究混凝土樣品 [13]和愛荷華大學的迴旋加速基選 (13]和愛荷華大學的迴旋加速基選 (14)中可以知道,或射性及, 動力,就是一般的觀愛支系引起的。 而項研究均將Enu-152ACO-604家定 支生要活性。完化的程度排除決於 獲祥混凝土成分的位置。 ●太多就混凝土結構還包含銅筋, 出。市公的程度排除決於 獲祥混凝土成分的信息。 ●大多混凝土結構還包含銅筋, 出。中公的進分量以是一般的考慮出現 混凝土高的總活性不會受利明顯影響 以及其前其與混凝土混在一起,因 出。每次的總活性不會受利明顯影響 之約。注意, 僅最裡包的2027年之 方的混凝土完成一些, 高子這役 一對於規有的加速區室, 在產生中 于的範疇攝影響減少活化。 ●最好在紙工成操作的平期階段級 對用於屏蔽的混凝土進行分析。	Å	在加速器室中提供通風,則由於 室底系化而引起的輻射風險不 程大,並且可大大降低。 屏蔽混凝土的活化是一個長期的 問題。仔細選擇將該問題。 仔細選擇將該問題。仔細選擇所該問題 在加速理釋於該問題 任細選擇所該問題 使用可參加。 和 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個 一個	長期以來,在10到25 MeV質子能量範圍內運行的醫學同位素設施已被用來產生或射性同位素,用於醫學 診斷成保。在過去的幾年申,可商購的迴蹤加速器中可用的來流急劑增加,因於迴蹤加速器與頂內材料 的活化現在可能構成是最重的成射危害。這將影響對迴蹤加速器運行,迴蹤加速器燒修和未來退役活動 的監管。 空氣活化可能會對迴蹤加速器人員造成危害。這將影響對迴蹤加速器內裡一口也的中子補提其作的空氣活化 問題。因此,考慮了這過雪中子及應和中子補優。在至氣中活化成放射性操變的方式,並且發現主要機制 定在Ar-402.中子補優。使用QNP繁精下,若代感情這迴蹤蹤加速器內容一口的中子補便往行的空氣活化 進行了研究。所使用的中子環境這次使於的軟性危害,並且不可通知的不需結果。 這个方案二次MCNPm零,這研究這些或主人的是這些成本的故事從危害,並且不可通知的學態結果, 進行了第二次MCNPm零,這研究這些中子補償系活化迴蹤加速器層量中的是通訊就是,目的是處從哪 聽化聚乙烯和常規聚乙烯以及F-18和Te-99中子光谱的結果。
Evaluation of the distribution of activation inside a compact medical cyclotron	評估一台compact 醫用迴旋加速器 內活化分布情 形。	Toshioh Fujibuchi <i>et al.</i>	Applied Radiation and Isotopes 124 (2017) 27–31	2017	Japan	BC1710	17 (proton) 10 (deutrons)	27 (operation) 6 (cooling time)	average beam intensity during operation was 20.7 µA	*	有	●磷光板成像(Phosphor plate imaging) ST-VN-ST-VA (14-1- 其大十、富士膠月) 約5T-VI (17-1 17-(14) + 第士膠月) 放置 在加速場中,以識別都活化走量 的發解像。 使用C3 (11) 閃爍檢測器劃 量1 cm等償劑量率,以端定加 這場附近的劑量率。		<b>*</b>	分析中, 在偏轉磁纖與磁極通道 有最大的活化程度。活化核種 60Co, S7Co, 65Za, and S4Mm线使 测到, 果軟部分组低的活化放制 使精種可能低於背景值。1 cm等 備劑量率為1.25 µSv/h、图此通 役工人是小心理免曝露於迴旋加 達圖的γ射線。	量測1cm等償劑量率與t-ray能譜象評估一台醫用迴旋加進器內部的活化分布情形。分析中,在偏轉磁纖 與磁極通道有最大的活化程度。活化核種60Co,57Co,65Zn, and 54Mm被偵測到。不同的放射性核種在不同 血件中產生,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年的錆-152及8.6年的錆-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20μSv,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。 錆-152、錆-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、 鋇-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。

Radionuclide	Possible Reaction	Cross section	Half life	
<sup>152</sup> Eu	$^{151}$ Eu (n, $\gamma$ ) $^{152}$ Eu	9198 barn	13.33 years	
<sup>154</sup> Eu	$^{153}$ Eu (n, $\gamma$ ) $^{154}$ Eu	312 barn	8.8 years	
134	$^{133}Cs(n,\gamma)$ $^{134}Cs$	29 barn	2.04	
Cs	<sup>134</sup> Ba (n,p) <sup>134</sup> Cs	9 mbarn at $E_n = 16 \text{ MeV}$	2.06 years	
<sup>60</sup> Co	<sup>59</sup> Co (n,γ) <sup>60</sup> Co	37 barn	5.3 years	
<sup>46</sup> Sc	$^{45}$ Sc (n, $\gamma$ ) $^{46}$ Sc	27 barn	83 days	
<sup>133</sup> Ba <sup>a</sup>	$^{132}$ Ba (n, $\gamma$ ) $^{133}$ Ba	7 barn	10.5 years	
<sup>54</sup> Mn	$^{55}Mn (n,2n) {}^{54}Mn$	910 mbarn at $E_n = 18$ MeV	312 dave	
IVIII	$^{54}$ Fe (n,p) $^{54}$ Mn	590 mbarn at $E_n = 10 \text{ MeV}$	512 days	
22 <sub>NI2</sub>	$^{23}$ Na (n,2n) $^{22}$ Na	40 mbarn at $E_n = 15 \text{ MeV}$	2.6 110000	
INd	<sup>27</sup> Al (n,2p4n) <sup>22</sup> Na	10 mbarn at $E_n = 25$ MeV	2.0 years	
137 <sub>Ca</sub>	$^{136}$ Ba (n, $\gamma$ ) $^{137m}$ Ba $\rightarrow ^{137}$ Cs	0.4 barn	20	
Cs	<sup>137</sup> Ba (n,p) <sup>137</sup> Cs	3.7 mbarn at $E_n = 16 \text{ MeV}$	30 years	

表4.8. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種[4.2.1]

- (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)

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

## [4.2.1]

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— 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。

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 <sup>3</sup>	
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/m <sup>3</sup> and long lived radionuclide concentrations exceeding the limitations for short lived waste	Geological disposal facilities

## 表4.10. 放射性廢棄物分類

- 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/m<sup>3</sup>
  - ⇒ 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/m<sup>3</sup> 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:

- 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)。

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

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

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

表4.12. 加速器本體組件中常見的長半衰期活化核種

表4.13. 混凝土材質中常見的長半衰期活化核種

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

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:

- 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。

		Specific activity $(Bq \times kg^{-1})$							
Isotope	Decay	Simulated Mean over 80 cm	Simulated @10 cm	Measured lab1 @10 cm	Measured lab2 @10 cm				
$^{14}\mathrm{C}$	$\mathbf{EC}$	$1.63 \times 10$	$1.11 \times 10$						
$^{41}\mathrm{Ca}$	$\mathbf{EC}$	$2.34 \times 10$	$1.58\times10$						
$^{39}\mathrm{Ar}$	$\beta^{-}$	$2.80 \times 10$	$2.17 \times 10$						
$^{45}$ Ca	$\beta^{-}$	$8.05\times 10^2$	$5.45\times10^3$						
$^{55}\mathrm{Fe}$	$\mathbf{EC}$	$2.45\times 10^3$	$1.66\times 10^4$						
$^{59}\mathrm{Fe}$	$\beta^{-}$	$7.62 \times 10$	$5.18 \times 10$						
$^{152}\mathrm{Eu}$	EC; $\beta^+$ ; $\beta^-$	$1.32\times 10^2$	$8.95\times 10^2$	$3.6 \times 10$	$3.0 \times 10$				
$^{154}\mathrm{Eu}$	EC; $\beta^-$	$7.56 \times 10$	$5.21 \times 10$						
$^{60}\mathrm{Co}$	$\beta^{-}$	$4.80 \times 10$	$3.28\times 10^2$	$2.2 \times 10$	$2.1 \times 10$				
$^{35}S$	$\beta^{-}$	$4.56\times10$	$3.08 \times 10$						
$^{54}\mathrm{Mn}$	$\mathbf{EC}$			$5.1 \times 10$	$5.2 \times 10$				
Other		$1.67 \times 10^{-1}$	$8.28\times 10^{-1}$						

表4.14. 牆壁誘發活化核種與比活度[4.2.4]

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

Target nuclei	Reaction	Produced radionuclide	Half-life (y)
<sup>17</sup> O	(n, lpha)	$^{14}\mathrm{C}$	$5.73 \times 10^3$
$^{40}$ Ca	$(n,\gamma)$	$^{41}\mathrm{Ca}$	$103.00\times10^3$
$^{40}$ Ca	(n,p)	$^{40}$ K	$1.28\times 10^9$
$^{42}$ Ca	(n, lpha)	$^{39}\mathrm{Ar^a}$	$2.69\times 10^2$
$^{44}$ Ca	$(n,\gamma)$	$^{45}\mathrm{Ca}$	$1.63\times 10^2$
$^{54}$ Fe	$(n,\gamma)$	$^{55}\mathrm{Fe}$	$0.27 \times 10$
$^{58}\mathrm{Fe}$	$(n,\gamma)$	$^{59}\mathrm{Fe}$	$4.46 \times 10$
$^{151}\mathrm{Eu}$	$(n,\gamma)$	$^{152}\mathrm{Eu}$	$1.36\times10$
$^{153}\mathrm{Eu}$	$(n,\gamma)$	$^{154}\mathrm{Eu}$	$0.88 \times 10$
$^{59}$ Co	$(n,\gamma)$	$^{60}\mathrm{Co}$	$0.53 \times 10$
$^{34}\mathrm{S}$	$(n,\gamma)$	$^{35}\mathrm{S}$	$8.75 \times 10$
$^{39}K$	$(n,\gamma)$	$^{40}$ K	$1.28\times 10^9$
$^{39}K$	(n,p)	$^{39}\mathrm{Ar}$	$2.69\times 10^2$
$^{39}K$	(n, lpha)	$^{36}\mathrm{Cl}$	$3.01\times 10^5$
$^{2}\mathrm{H}$	$(n,\gamma)$	$^{3}\mathrm{H}$	$1.23 \times 10$

[4.2.4]

 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。

Nuclide	Half-life	Specific activity (Bq/g)	Clearance level Bq/g Euratom 2013/59	Ratio Spec. Act/ Clearance	Decay
$^{55}$ Fe	(2.7 y)	$1.14E{+}01$	1.00E + 03	1.14E-02	EC 5 keV $\alpha$ and 5 keV $\beta$
$^{63}$ Ni	(100.1 y)	$1.29E{+}00$	1.00E + 02	1.29E-02	70 keV $\beta$
$^{59}\mathrm{Fe}$	(44.64 d)	0.00E + 00			$\beta \text{ and } \gamma$
$^{58}\mathrm{Co}$	(70.81 d)	0.00E + 00	$1.00E{+}00$	0.00E + 00	$\beta \text{ and } \gamma$
$^{60}\mathrm{Co}$	(5.271  y)	6.22E-02	1.00E-01	6.22E-01	$eta$ and $\gamma$
		$1.28E{+}01$		6.46E-01	

表4.16. 磁鐵殘餘活化核種比活度[4.2.4]

 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	7活化核種	[4.2.4]
12 11 1 1	N= ZUNI	山口小小王	1.2.1

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

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-

- 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。



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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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 µ A,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<sup>6</sup>~10<sup>7</sup>(單位:#/cm2/s)數量級,在自屏蔽體內側約 10<sup>5</sup>~10<sup>6</sup>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<sup>7</sup>(#/cm<sup>2</sup>/s)數量級,在照射室內則約10<sup>5</sup>~10<sup>6</sup>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 偵檢器偵測核種+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 TAC T-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
- 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,束流:運行期間 50 µ A),從 1993 年到 2008 年使用約 15 年,主要用於生產氟-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:

- 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]

		External	rradiation		Inhalation	1	Ingestion		Skin	Max.	limiting
Nuclide	T <sub>1/2</sub> [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	0.0F+00	0.0E+00	0.0E+00	7 8E-05	9 7E-06	6 0F-04	2.2E-02	2 3E-06	2.2E-02	ING-B

Table 3-1: Results of dose calculations for all nuclides (in [(µSv/a)/(Bq/g)])

## 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。	色之建造特性與運轉歷史	調查表設施	單位填寫數據
-----------------	-------------	-------	--------

Ţ	加速器列	建造特制	生與運轉	歷史調查	重表		
						版本:2020	00301 V1.
設施名稱	新光醫院			調查者		完成日期	
加速器廠牌	GE	型號		序號			
加速粒子		請下拉式選	〖擇「H(氫)」▣	戊 「H+D(氫+斧	ħ)」		
加速器附自體屏蔽之有無		請下拉式選	建译「有自屏蔽	」或「無自屏	蔽」		
拉准最大加速能量	Н	9.6	MeV				
极准取八加还肥重	D	NA	MeV	1			
加速器開始建造日(年月日)							
加速器出束試運轉日(年月日)							
加速器正式運轉日(年月日)							
許可證字號							
有效日(年月日)							
目前合格運轉人員數量		人					
靶材類型與使用狀況說明	生產核種	靶材	體積	最大靶電流	照射時間	最大生產活度	
		1011	(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		
加速器本體材質(由內而外)	鋼鐵	黄銅					
加速器本體材質厚度(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)或後	参考輻射安全語	评估報告相	關廠商文件填入	
自屏蔽體周圍組件材質	剑	織	高密度水泥	PF	今硼水		
(由內而外)	200	224	19 41 及 14 10	10			
自屏蔽體周圍組件材質厚度(cm)							
重大變更說明	如:本設施方 高到5000m	☆105年2月1 Ci	日起靶電流由	30µA提高到40	)μA 生產活。	度由3500mCi提	

		19年				
	亚均靶雷流	昭射時間	调射束指失	调生產活度		
核種	(IIA)	(h/w)	$(\mu \Delta_{-}h/w)$	(mCi/w)		
F-18	40	10	(µ/11/w)	(110) (110)		
2010_w1	40	10	400	4500		
2019 - w1 2010 w2						
2019-w2 2010 w3						
2019-wJ 2010 w4						
2019-w4						
2019-w5 2010 w6						
2019-w0						
2019-w7						
2019-w8						
2019-W9						
2019-W10						
2019-WII						
2019-W12						
2019-w13						
2019-w14						
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 w 12						
2019_w44						
2019 w44 2019_w45						
2019						
2019-040						
2017-W47						
2019-W48						
2019-W49						
2019-WOU						
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。
- 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。
- 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。
- 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。

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

表4.22. 各設施文件收集狀況、設備特性與運轉參數表

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

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)
А										
В										
C										
D										
E										
F										
G										

I(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

#### 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

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 (uA)	最大生產 活度 EOB (mCi)
Н							(	()	( <b>F</b> )	
Ι										• • • • •
J										
K										•
L										
М										

II(為保護各設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

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。
- 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。
- 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 代碼	總 靶數	安裝 靶號	生 <i>產</i> 核種	靶體 材料	靶窗材質	靶窗厚度 (μm)
А						
В						
С						
D						
E						
E						
F						
G						

設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

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

設施代碼	總 靶數	安裝 靶號	生産 核種	靶體 材料	靶窗材質	靶窗厚度 (um)
Н						
I						
J						
K						
L						
M						
191						

設施之營運秘密,數據資料恕不公開)

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	總靶數	安裝 靶號	生產 核種	歷筆	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 每周 照時間 (h/w)	平均 毎周 射東 損失 (µA-h/w)	平均 毎周 生産 (mCi/w)	平 毎 照 間 (h/年)	每年 總照射 時間 (h/年) (最小~最大)	平均 毎年 線射束 損失 (µA-h/年)	每年 總射東 損失 (μA-h/年) (最小~最大)	平均 每年 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	
TT	4	
н	4	
Ι	6	
J	8	
V		
K	0	
L		
М	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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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。
- 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:

- 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HT加速粒子能量為15~30MeV與DT加速粒子能量為7.5~15MeV 外,其餘設施HT加速粒子能量落在9.6~18MeV之間,DT加速粒子能量落在 6~9MeV,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。

廠牌	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4.28. 國內生產設施廠牌及型號分類

表4.29. 各設施加速粒子能量統計

設施代 碼	A	ł	]	В	С	D	F	Ξ	I	Гт.	G	r	ł	H	Ι			J	K	C	]	Ĺ	М
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-	H-	D-	H-	H-	H-	D-	H-	D-	H-	D-	H-	D-	H-	D-	H-	D-	H-	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。
- 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 單能質子束分別轟擊 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 (cm<sup>2</sup>)
 R :活化產物產率 (#/proton)
 N<sub>a</sub>:靶材原子密度 (#/cm<sup>3</sup>)
 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。

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

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

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。

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

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

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)	$1.01 \pm 0.10$	$0.50 \pm 0.05$	$1.01 \pm 0.10$	$0.50\pm0.05$
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)	$0.50 \pm 0.05$	$1.01 \pm 0.10$	$1.01 \pm 0.10$
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 中子劑量偵檢器,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)	$307.9\pm2.9$	$330 \pm 50$
(2)	$454 \pm 3$	$430\pm70$
(3)	$460 \pm 3$	$420 \pm 60$
(4)	$316.9\pm2.7$	$330 \pm 50$
平均	$384.7\pm2.9$	$377.5 \pm 58.1$

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 中子劑量偵檢器負責偵檢 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, 偵檢 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,由於考慮到偵檢器的無感時間(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],我們針對文獻中氟-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,射束分布分為筆型射束及高斯分布兩種,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。

72

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

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

FLUKA 模擬結果比較

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,Y<sub>SE</sub> 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)  

$$A_{sat} : 活化子核產率 (\#/s)$$
  

$$n_x : 靶材母核數量 (\#)$$
  

$$\phi(E) : 質子通量 (\#/cm^2 \times s \times MeV)$$
  

$$\sigma_{xy}(E) : 靶材母核活化反應截面 (cm^2)$$

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<sub>CS</sub> 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。

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

[4.1.3]

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,参考 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 4.18 為加速器室圖,灰色部份為波特蘭水泥,厚度訂為 200 cm,材料組成詳 參表 4.38。加速器室設定為 400 cm x 400 cm x 300 cm,加速器置於室內中心位 置,在高能質子轟擊氧-18 水靶製備氟-18 的反應中,大量中子會自靶材中生成, 並依特定角度分布及能量分布傳播,並在加速器塊材與混凝土中發生中子吸收及 中子減速反應,中子吸收反應會使得材料活化並生成活化產物,而中子減速則使 得環境中熱中子數量上升,加劇活化產物的生成。由於中子特性與材料活化情形 之間的緊密連結,在 FLUKA 模擬中,可利用 USRTRACK 及 USRBIN 計讀中子 在各個塊材中與環境中的能量分布及通量分布,再利用 RESNUCLE CARD 計讀 加速器塊材與混凝土塊材中的活化核種及其活度,在確立中子分布情形的前提之 下,觀察各個材料的活化核種、活度及活度隨時間的變化,瞭解不同冷卻時間及 重要核種之間的關係,同時參考前述報告及表 4.39 所羅列之活化核種視為分析 活化問題之重要核種,並針對生成該活化核種之重要雜質獨立評估其在混凝土中 的活化情形。



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

FLUKA 波特蘭水泥 密度:2.3 g/cm <sup>3</sup>							
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						
鎐 (Al)	3.4						
矽 (Si)	33.7						
鉀 (K)	1.3						
鈣 (Ca)	4.4						
鐵 (Fe)	1.4						
Total	100						

表4.38. FLUKA 波特蘭水泥材料組成

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

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

之雜質,因此在活化分析中需要額外計算之

# 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。

參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。



圖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(綠色)、 鉛(灰色)、含硼之水(橘色)做為自屏蔽

# 4.5 参數靈敏度分析

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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面的影響

<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F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,<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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: <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F反應截面 (cm<sup>2</sup>)
 R: <sup>18</sup>F產率 (#/proton)
 N<sub>a</sub>: 靶材原子密度 (#/cm<sup>3</sup>)
 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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面的影響

前述<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F反應截面,對於15 MeV 以下使用10 µm 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2MeV入射質子,其平均出口能量為1.84MeV ± 0.02%,約有 0.16 MeV 的能量損失, 然而 2 MeV 以下的 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>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 μm 靶材驗證<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>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 μm 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 μm 靶材的反應截 面驗證結果與 10 μm 靶材相同,代表 10 MeV 以下質子用 50 μm 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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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/cm<sup>2</sup>,以水的密度 1 g/cm<sup>3</sup> 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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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,<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 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。

81



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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面與 <sup>18</sup>O(p,xn)反應截面的關係

利用 10 μm 的氧-18 水靶驗證 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面時,除了計數氟-18 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 <sup>18</sup>O(p,xn)反應截面,如圖 4.23。在質子能量介於 2-9 MeV 時,<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 與 <sup>18</sup>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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應所貢獻,但質子能量高於 9 MeV 時,<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面開始下降,而 <sup>18</sup>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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>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

為了瞭解高能量質子入射氧-18 的<sup>18</sup>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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應主要貢 獻中子生成,至 8 MeV 開始,<sup>18</sup>O(p,n+ $\alpha$ )<sup>14</sup>N 反應發生,並在約 11 MeV 時反應 截面超過<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>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<sup>18</sup>O(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:

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

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

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

$$\sigma_n$$
:中子生成反應截面 (cm<sup>2</sup>)  
 $W_i$ :中子產率/活化核種 (中子生成加權因子)  
 $\sigma_i$ :活化核種生成反應截面 (cm<sup>2</sup>)  
 $N_t$ :靶材原子密度(/cm<sup>3</sup>)  
 $t$ :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<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F、<sup>18</sup>O(p,n+p)<sup>17</sup>O、 <sup>18</sup>O(p,2n)<sup>17</sup>F、<sup>18</sup>O(p,n+D)<sup>16</sup>O、<sup>18</sup>O(p,2n+p)<sup>16</sup>O、<sup>18</sup>O(p,n+α)<sup>14</sup>N、<sup>18</sup>O(p,n+p+α)<sup>13</sup>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<sup>16</sup>O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 <sup>18</sup>O(p,n+D)<sup>16</sup>O、<sup>18</sup>O(p,2n+p)<sup>16</sup>O 兩組反應的生成 物皆為 <sup>16</sup>O,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 <sup>16</sup>O 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, <sup>18</sup>O(p,n+D)<sup>16</sup>O 反應閾值為 10.6 MeV,而 <sup>18</sup>O(p,2n+p)<sup>16</sup>O 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 的結果較 USRBDX CARD 的結果稍為高估,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, RESNUCLE CARD 的結果低於 USRBDX 計數結果,應是筆因於<sup>16</sup>O 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<sup>18</sup>O(p,n+D)<sup>16</sup>O、<sup>18</sup>O(p,2n+p)<sup>16</sup>O 反應的中子生成加權因子訂定,緣 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<sup>18</sup>O(p,xn)反應截面與 TENDL-2019 的比較

由於 ENDF 中的 <sup>18</sup>O(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 <sup>18</sup>O(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。

85



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 <sup>18</sup>O(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<sup>-3</sup> ± 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(相對於射束方向)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



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<sup>-13</sup>/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:到違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<sup>-13</sup>/平方公分/質子,以下,在150-200公分深的位置,在

89



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<sup>-13</sup>/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 10<sup>10</sup> 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:質子射束強度以及照射時間。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束強度均介於 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 2.7×10<sup>6</sup> ± 24.5% 貝克/立方公分,冷卻時間到達 115.7 天(10<sup>7</sup> 秒)時,組件比活度降為 1.8× 10<sup>4</sup> ± 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 7.4×10<sup>4</sup> ± 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(10<sup>7</sup> 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(3.16×10<sup>7</sup>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釔-90( $t_{\frac{1}{2}} = 2.7$ 天 ),較長的冷卻時間則因為釔-90的衰變,比活度轉由長半衰期的鈮-94( $t_{\frac{1}{2}} = 2 × 10^4$ 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 鈮-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。

94


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(10<sup>7</sup> 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 8.0×10<sup>5</sup> ± 0.1% 貝克/立方公分,冷卻時間大於 115.7 天(10<sup>7</sup> 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 2.2×10<sup>5</sup> ± 0.2% 貝克/立方公分,冷卻時間大於 115.7 天(10<sup>7</sup> 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  $(t_{\frac{1}{2}} = 5.12 \, f)$  貢獻 組件活度;在較長的冷卻時間下則為鈷-60  $(t_{\frac{1}{2}} = 5.27 \, f)$  及鎳-63  $(t_{\frac{1}{2}} = 100.1 \, f)$ 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  $6.4 \times 10^5 \pm 0.2\%$  貝克/立方公分;照射 2 小時則為  $6.6 \times 10^4 \pm 0.2\%$  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(10<sup>7</sup> 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( $t_{\frac{1}{2}} = 2.58$  小時)及鐵-59( $t_{\frac{1}{2}} = 44.6$  天),較長半衰期核種鐵-55( $t_{\frac{1}{2}} = 2.73$  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( $t_{\frac{1}{2}} = 12.32$  年)及錳-54( $t_{\frac{1}{2}} = 312$  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。

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。

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(~3×10<sup>7</sup> 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(~10<sup>9</sup> 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(10<sup>9</sup>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

	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
鈷-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

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)

## 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,意調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( $t_{\frac{1}{2}}$ =8.19×10<sup>-17</sup>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 3.0×10<sup>-4</sup> ± 4.0% 貝克/立方公分提升至 1.4 ± 4.0% 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。



ROI

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 × 10<sup>7</sup>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(~5×10<sup>5</sup> 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( $t_1 = 7.13$  秒)、 氟-18( $t_1 = 109.74$  分)及氚-3( $t_1 = 12.32$  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,氚-3 及氟-18 在兩種照射情節下的比活度均低於限值。



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( $t_1 = 2.25$ 分)、鈉-24( $t_1 = 14.96$ 小時)、氫-37( $t_1 = 35$ 天)、鐵-55( $t_1 = 2.73$ 年)、氫-39( $t_1 = 269$ 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(~10<sup>9</sup>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<sup>-4</sup>±8.1% 貝克/立方公 分,比活度差異增為約4000倍。

錳-54(t<sub>1</sub> = 312 天)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( $t_{\frac{1}{2}} = 2.25 \text{ } \%$ )、鈉-24( $t_{\frac{1}{2}} = 14.96 \text{ } \wedge \text{ } \text{ } \oplus$ )、鈣-45( $t_{\frac{1}{2}} = 162.6 \text{ } \oplus$ )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<sup>7</sup>秒)時,氢-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<sup>7</sup>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(~10<sup>9</sup>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, 54Fe(n, p) 55Mn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.<sup>54</sup><sub>26</sub>Fe(n,p)<sup>54</sup><sub>25</sub>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 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<sup>-3</sup> ± 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況 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<sup>9</sup>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。

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

### 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 質子束,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<sup>9</sup> 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<sup>9</sup>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 衰期最長的則為銷-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

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

至約1年,長至約13.5年。

 $R = \phi \times \Sigma$ 

 $\Sigma = \sigma \times N_a$ 

(4.5.5)

R:活化雜質比活度 (cm<sup>-3</sup>) φ:中子通量 (cm<sup>-2</sup>)  $\Sigma$ :活化巨觀反應截面 (cm<sup>-1</sup>)  $\sigma$ :活化微觀反應截面 (cm<sup>2</sup>) *Na*:母核濃度 (cm<sup>-3</sup>)

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 年結束時, 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<sup>3</sup>)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 <sup>18</sup>O(p,xn)反應,檢視每一顆質子入射 H<sub>2</sub><sup>18</sup>O 靶材時,中子生成率即質子入射靶材 的通量率乘上 <sup>18</sup>O(p,xn)微觀反應截面,如(4.5.7)式。

$$\boldsymbol{R} = \int_{E_1}^{E_2} \boldsymbol{\phi}_n(\boldsymbol{E}_n) \times \boldsymbol{\Sigma}_{act}(\boldsymbol{E}_n) \times (1 - e^{-\lambda_x t_{irr}}) \times e^{-\lambda_x t_{cool}} d\boldsymbol{E}_n$$
(4.5.6)

$$\#_n = \phi_n \times 4\pi R^2 = \int_0^{E_p} \phi_p(E_p) \times \sigma_{(p,xn)}(E_p) \ dE_p \tag{4.5.7}$$

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<sub>irr</sub>)的時間愈長, 活化愈嚴重;冷卻時間(t<sub>cool</sub>)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<sub>x</sub>),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(*Sact*(*En*))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<sup>18</sup>O(p,xn)反應,而中子的總產率即質子的通量率(**φ**<sub>p</sub>(**E**<sub>p</sub>))乘上<sup>18</sup>O(p,xn)的微 觀反應截面(**σ**<sub>(p,xn)</sub>(**E**<sub>p</sub>)),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:

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	<b>上</b> 生 妾 邯 垃 秭 幸 絲 不 顕
冷卻時間上升	產量不變	这1 衣 <u>别</u> 饭裡衣 叉 小 颍
	能量不變	<b></b> 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
	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	
有自屈薪設施	產率不變	
(太研究档刑)	產量不變	地面活化狀況顯著
(个~//九佚主)	能量不變	

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

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。

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、黃昱翔				
14:00 - 14:20	Coffee break and discussion				
14:20 - 15:00	期末成果審查				

表4.43. 教育訓練課程大綱





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。



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

時間	內容
08:30-08:50	報到
08:50-09:00	理事長致詞
09:00-09:50	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 座長:高潘福 理事長
09:50-10:40	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後經驗 座長:范盛慧 科長/許榮鈞 博士
10:40-11:30	房博文:酱用迴旋加速器設施的活化特性奧蒙地卡羅分析技術 座長:范盛慧 科長/許榮鈞 博士
11:30-12:00	會員大會
12:00-13:00	午餐
13:00-13:50	黄蜂運:美國現行正子藥物法規 座長:魏孝萍 博士
13:50-14:40	黃仲凌:數據管理及完整性 座長:魏孝萍博士
14:40-15:00	詹東榮:正子藥物調製作業綜合討論 座長:魏孝萍博士
15:00-15:30	Coffee break
15:30-16:20	般國維:FDA 監督正子藥品問與答指引 座長:張文議博士
16:20-17:10	魏孝萍:培養基充填確效 座長:張文議博士
¥單位:臺灣醫用迴旋	加速器學會 協辦單位:台北發民總醫院、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

講				師	左左 月日 月日				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					80.06.15
學			歷	國立陽明大學-醫學工程研究所碩	Ŧ	里	業日	期	82.06.15
1			-11-	國立清華大學-工程與系統科學石	开究所博士候選	+		291	
				人					
				友興儀器股份有限公司-技術主任					82.6-94.6
經			歷	費曼科技股份有限公司-經理		服	務時	間	94.6-101.7
				量子輻射科技有限公司-總經理					101.08-
課				程	約				要
題			目	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					
				1. 計畫背景說明					
			2. 研究團隊介紹						
		<ol> <li>國內相關設施主要機型及規格說明</li> <li>個外除役文獻收集說明</li> </ol>							
摘			要	• 4-1 資料庫與驗證(反應截面、中子/核種產率、劑量驗證)					
				• 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					

師簡歷與報告摘要

講	師	簡		歷	
姓 名	房博文	身分證字號	F128XXX413		
服務單位	.清華大學核子工程與科學研究所		職 稱	博士班	
<u></u> Щ — <del>П</del>	清華大學核子工程與科學研究所得	項士	围柴口罟	108.6	
字 歴	清華大學工程與系統科學系學士		平赤口劫	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	、約		要	
題目	醫用迴旋加速器設施的活化特性與	與蒙地卡羅分析。	技術		
摘要	目醫用迴旋加速器設施的活化特性與蒙地卡羅分析技術 國內目前共有13部迴旋加速器放射性物質生產設施,其中過半數設施 營運迄今已逾15年,最長逾25年。上述設施在運轉過程中因核種產 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 結構體等不同程度的活化,不同活化程度的處理處置攸關設施除污除 劃與預算。隨著國內生產設施逐漸接近除役年限,放射活化殘存量評 的建立不可或缺。本研究引入最先進的蒙地卡羅模擬分析方法,依設 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 速器組件、設施周遭介質與建物結構體等的活化影響。本報告主要以通 18的迴旋加速器為例介紹蒙地卡羅活化分析方法的優點,類似分析亦 伸於產製其他核種的設施。 本研究利用 FLUKA 蒙地卡羅程式模擬加速器照射室中用質子撞擊氧-1 製氟-18的情節,從核反應發生開始,逐層分析氟-18產率、二次中子 及其能量與角度分布,再接續模擬二次中子與周遭加速器組件與設施 作用。我們考量二種典型建物設計(有自屏蔽與無自屏蔽)的中子分布 差異。針對照射時間對於活化的影響,我們考量兩種不同的照射情節, 析典型一批次產製氟-18的情節(2小時照射),接者考慮長時間照射以 長半衰期核種的累積,我們簡單假設1 整年的連續照射結束到最長30 卻時間各種材料的活度變化,以及主要貢獻核種的種類等詳細資訊。 獻建議的混凝土雜質活化評估,我們也利用理論計算與模擬交互驗證的 確立混凝土雜質活化評估方法。綜觀整體分析品質,自氟-18生成至 化核種解析,本研究建立之分析方法與結果對於國內未來相關設施除				

## 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/中子劑量與氟-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,並成功建立氟-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 <sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F反應截面的影響、靶材厚度對氟-18 產率的影響、<sup>18</sup>O(p,n)<sup>18</sup>F 反應截面與 <sup>18</sup>O(p,xn)反應截面的關係、FLUKA 中 <sup>18</sup>O(p,xn)反應截面與 TENDL-2019 的 比較、<sup>18</sup>O(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

129

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。

130
## 參考文獻

[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  ${}^{18}O(p,n){}^{18}F$  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 excitationfunctions 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)