

102 年原子能科技學術合作研究計畫 成果發表會論文集

主辦單位：科技部、行政院原子能委員會

中華民國 103 年 5 月 14 日

目錄

議程場次.....	iii
核能安全科技	
※燃料組件 CFD 分析模式與評估審查導則之研究.....	1
※核能電廠值班運轉人員疲勞管理審查導則計畫.....	12
※動態應變時效對冷作加工鎳基合金於模擬 BWR 水質之劣化行為研究.....	17
※新型鎳基合金鉀道特性研究.....	25
※沸水式反應器啟動及停機過程中不銹鋼組件的應力腐蝕龜裂起始行為研究.....	31
※沸水式反應器起動或停機溫度對主冷卻水迴路之水化學及組件裂縫成長速率之影響研究.....	35
核能與放射性物料安全科技	
※多機器人對危險環境多維影像重建、人員偵測及輻射監控技術之研發....	38
※多移動機器人感測網路用於核廢料環境資訊融合之研究.....	50
※無線射頻辨識(RFID)技術用於放射性廢棄物長期貯存、管制、與監測之研究.....	56
※核種於地下水中之水文地化傳輸與輻射風險評估.....	59
※除役拆除混凝土塊除污之審查技術研究.....	62
※模擬裂隙損傷區對母岩受熱應力與外力作用之耦合效應研究.....	65
※應用資源化鐵氧化物吸附材除放射元素之共離子競爭效應與動力學探討	69
※放射性廢氣處理技術研究.....	73
※放射性廢液處理系統技術研究.....	81
※放射性固體廢棄物處理技術研究.....	89
輻射防護與放射醫學科技(I)	
※放射性碘治療患者住院與返家輻射劑量評估及影響因子探討.....	98
※放射治療計畫系統給予劑量之評估驗證與劑量測量技術開發研究.....	100
※核醫個人劑量系統之研發.....	101
※建置 Tc-99m TRODAT-1 自動化定量分析平台.....	104
※氟-18 標誌解膠酵素抑制肽 PET 造影劑之研製	106
※發展 ⁶⁴ Cu 標誌之錯合物作為第二型拓撲酶表現腫瘤之正子斷層造影劑..	108
※利用 ¹²³ I-ADAM 造影評估抗憂鬱劑對腦中血清素轉運器造影佔有率之影響.....	109
※應用 [¹²³ I]-ADAM micro-SPECT 在臨床前篩選平台進行抗 MDMA 神經毒性藥物之研究(II).....	112
※探討 cortisol 血中濃度及對於憂鬱症患腦中血清素轉運器之影響.....	117
輻射防護與放射醫學科技(II)	
※比較與結合 ¹⁸⁸ Re-Liposome 及體外放射治療對荷腫瘤動物之分子影像、輻射劑量、藥物動力學及療效研究.....	119
※醣質藥物核研 DTPA-hexa lactoside(HexLac)與 Tc-99m galactosyl human serum albumin(GSA)在土撥鼠肝炎感染模型攝取之比較.....	122
※應用多模組分子影像於銻-188-微脂體奈米核醫藥物之自發性體轉移肺癌小鼠模式療效評估.....	126
※藉輻射照射進行醫療用奈米複合生長因子之骨材臨床前動物試驗之應用療	

效評估：以粉狀水膠混合血小板膠重建顱骨缺損：動物實驗.....	129
※應用輻射科技進行醫療用奈米複合生長因子之骨材生物性試驗評估.....	132
※利用擬真數位乳房假體與蒙地卡羅技術評估核醫乳房攝影之乳腺吸收劑量.....	135
※應用影像導引自動化回饋技術於錐狀電腦斷層影像品質校準計畫.....	138
※加速器引發物質活化與殘存活性的研究.....	142
輻射防護與放射醫學科技(III)	
※我國輻防法規採納 ICRP 103 號報告之可行性研究.....	146
※我國放射性物質安全運送規則之分析與更新建議.....	150
※大中華及國際核子醫學領域之應用與分析.....	153
※應用分子影像對比劑資料庫分析全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用..	155
※乳房專用正子攝影儀之醫療數位影像傳輸協定(DICOM)建立.....	157
※給核醫成像應用之讀出晶片電路設計.....	160
※以高速 ADC 與 FPGA 設計並實現應用於 PET 之高解析數位時間鑑別技術	164
人才培訓與風險溝通	
※核能發電知識之多媒體電子書開發.....	169
※核能安全與意外事故輻射防護之影音及電子書出版品編輯與研究.....	172
※核電知識深耕推廣計畫.....	174
※東部地區民眾與中小學師生核能與輻射安全教育推廣.....	177
※工程科系學生之「安全核能學程」課程推廣.....	179
※核能安全議題之性別溝通策略研究計畫.....	182
※低放射性廢棄物處置關鍵群體之核廢料認知與風險溝通.....	186
※核能安全之風險溝通.....	190

本論文集電子檔可至行政院原子能委員會官方網站 (<http://www.aec.gov.tw>)
 首頁>施政與法規>施政績效>原子能科技學術合作研究計畫 項下下載

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會 議程場次

時間：103 年 5 月 14 日（星期三）

地點：科技部科技大樓 2F（台北市和平東路二段 106 號）

會議議程

時間	議程	地點
08:30~09:00	報到	會議室 13
09:00~10:20	開幕典禮	
09:00~09:20	科技部次長／原能會副主委致詞	
09:20~10:20	專題演講「確保核安，贏得信任」－潘欽教授	
10:20~10:30	中場休息	
10:30~12:00	上午分組成果發表	各場次
12:00~13:00	綜合討論(午餐)	
13:00~14:20	下午分組成果發表(I)	各場次
14:20~14:30	中場休息	
14:30~16:20	下午分組成果發表(II)	各場次

會議場次

場次	地點	時間
1.核能安全科技	會議室 9	10:30~14:50
2.核能與放射性物料安全科技	會議室 13	10:30~16:20
3.輻射防護與放射醫學科技(I)	會議室 10	10:30~16:00
4.輻射防護與放射醫學科技(II)	會議室 11	10:30~16:20
5.輻射防護與放射醫學科技(III)	會議室 12	10:30~16:00
6.人才培訓與風險溝通	研討室	10:30~16:00

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 1：核能安全科技					
會場地點：會議室 9					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	張欣（*）、高良書、廖俐毅、賴尚煜	馮玉明	國立清華大學工程與系統科學系	核能電廠燃料組件 CFD 分析模式與評估審查導則之研究
2	10:50~11:10		郭耀昌	國立成功大學醫學系職業及環境醫學科	核能電廠運轉值班人員疲勞管理計畫審查導則編撰計畫
	11:10~13:00		綜合討論（午餐供應便當）		
3	13:00~13:20		喻冀平	國立清華大學核子工程與科學研究所	動態應變時效對冷作加工鎳基合金於模擬 BWR 水質之劣化行為研究
4	13:20~13:40		李驊登	國立成功大學機械工程學系	新型鎳基合金鉀道特性研究
5	13:40~14:00		葉宗洸	國立清華大學工程與系統科學系	沸水式反應器啟動及停機過程中不鏽鋼組件的應力腐蝕龜裂起始行為研究
6	14:00~14:20		王美雅	國立清華大學原子科學技術發展中心	沸水式反應器起動或停機溫度對主冷卻水迴路之水化學及組件裂縫成長速率之影響研究
	14:20~14:50		綜合討論		

*為該場會議主持人

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 2：核能與放射性物料安全科技					
會場地點：會議室 13					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	邱賜聰(※)、蔡清池、張永華	林顯易	國立臺北科技大學 自動化科技研究所	多移動機器人感測網路用於核廢料環境資訊融合之研究
2	10:50~11:10		陳亮嘉	國立臺灣大學機械 工程學系暨研究所	多機器人對危險環境多維影像重建、人員偵測及輻射監控技術之研發(III)
3	11:10~11:30		王多柏	國立臺北科技大學 電子工程系	無線射頻辨識(RFID)技術用於放射性廢棄物長期貯存、管制、與監測之研究
	11:30~13:00		綜合討論 (午餐供應便當)		
4	13:00~13:20	邱賜聰(※)、黃慶村、丁鯤、陳渙東、喬凌寰	林文勝	國立臺灣大學水工 試驗所	核種於地下水中之水文地化傳輸與輻射風險評估
5	13:20~13:40		白寶實	國立清華大學核子 工程與科學研究所	除役拆除混凝土塊除污之審查技術研究
6	13:40~14:00		楊長義	淡江大學土木工程 學系	模擬裂隙損傷區對母岩受熱應力與外力作用之耦合效應研究(I)
	14:00~14:30		綜合討論		
7	14:30~14:50		黃耀輝	國立成功大學化學 工程學系	應用資源化鐵氧化物吸附材除放射元素之共離子競爭效應與動力學探討
8	14:50~15:10		王詩涵	義守大學化學工程 學系	子計畫一：放射性廢氣處理技術研究(III)
9	15:10~15:30		梁明在	義守大學化學工程 學系	子計畫二：放射性廢液處理系統技術研究(III)
10	15:30~15:50		吳裕文	義守大學化學工程 學系	總計畫暨子計畫三：放射性固體廢棄物處理技術研究(III)
	15:50~16:20		綜合討論		

*為該場會議主持人

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 3：輻射防護與放射醫學科技(I)					
會場地點：會議室 10					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	林武智(＊)、陳為立、王信二、黃文盛、羅彩月	郭昇峯	長庚醫療財團法人新陳代謝科	放射性碘治療患者住院與返家輻射劑量評估及影響因子探討(II)
2	10:50~11:10		許世明	陽明大學生物醫學影像暨放射科學系	放射治療計畫系統給予劑量之評估驗證與劑量測量技術開發研究
3	11:10~11:30		莊克士	國立清華大學生醫工程與環境科學系	核醫個人劑量系統之研發 (II)
4	11:30~11:50		楊邦宏	臺北榮民總醫院國家多目標醫用迴旋加速器中心	建置 Tc-99m TRODAT-1 自動化定量分析平台
	11:50~13:00		綜合討論 (午餐供應便當)		
5	13:00~13:20		魏孝萍	長庚大學醫學影像暨放射科學系	氟-18 標誌解膠酵素抑制肽 PET 造影劑之研製
6	13:20~13:40		陳傳霖	國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系	發展 64Cu 標誌之錯合物作為第二型拓撲酶表現腫瘤之正子斷層造影劑
	13:40~14:30		綜合討論		
7	14:30~14:50		馬國興	國防醫學院生物及解剖學研究所	應用 [123I]-ADAM micro-SPECT 在臨床前篩選平台進行抗 MDMA 神經毒性藥物之研究(II)
8	14:50~15:10		王世楨	臺北榮民總醫院核醫部	利用 123I-ADAM 造影評估抗憂鬱劑對腦中血清素轉運器造影佔有率之影響(第 3 年)
9	15:10~15:30		周元華	臺北榮民總醫院精神部	探討 cortisol 血中濃度及對於憂鬱症患腦中血清素轉運器之影響(III)
	15:30~16:00		綜合討論		

*為該場會議主持人

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 4：輻射防護與放射醫學科技(II)					
會場地點：會議室 11					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	王重德(＊)、姚維仁、程紹智、陳家杰、詹美齡	陳裕仁	財團法人馬偕紀念醫院放射腫瘤科	比較與結合 188Re-Liposome 及體外放射治療對荷腫瘤動物之分子影像、輻射劑量、藥物動力學及療效研究(III)
2	10:50~11:10		顏若芳	國立臺灣大學醫學院放射線科	醣質藥物核研 DTPA-hexa lactoside(HexLac) 與 Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA)在土撥鼠肝炎感染模型攝取之比較
3	11:10~11:30		李易展	國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系	應用多模組分子影像於銻-188-微脂體奈米核醫藥物之自發性體轉移肺癌小鼠模式療效評估
	11:30~13:00		綜合討論 (午餐供應便當)		
4	13:00~13:20		陳天牧	國防醫學院整形外科	藉輻射照射進行醫療用奈米複合生長因子之骨材臨床前動物試驗之應用療效評估：以粉狀水膠混合血小板膠重建顱骨缺損：動物實驗
5	13:20~13:40		方旭偉	國立臺北科技大學化學工程與生物科技系	應用輻射科技進行醫療用奈米複合生長因子之骨材生物性試驗評估
	13:40~14:30		綜合討論		
6	14:30~14:50		吳 杰	中國醫藥大學生物醫學影像暨放射科學系	利用擬真數位乳房假體與蒙地卡羅技術評估核醫乳房攝影之乳腺吸收劑量
7	14:50~15:10		洪光威	秀傳醫療財團法人彰濱秀傳紀念醫院	以血管內都普勒來驗證動態單光子斷層影像定量心肌血流的臨床實用性
8	15:10~15:30		陳志成	國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系	應用影像導引自動化回饋技術於錐狀電腦斷層影像品質校準計畫
9	15:30~15:50		許榮鈞	國立清華大學核子工程與科學研究所	加速器引發物質活化與殘存活性的研究
	15:50~16:20		綜合討論		

*為該場會議主持人

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 5：輻射防護與放射醫學科技(III)					
會場地點：會議室 12					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	李若燦（*）、陳富都、鄧希平（上午）、邱志宏、洪明崎	許芳裕	國立清華大學原子科學技術發展中心	我國輻防法規採納 ICRP 103 號報告之可行性研究
2	10:50~11:10		李境和	義守大學醫學影像暨放射科學系	我國放射性物質安全運送規則之分析與更新建議
	11:30~13:00		綜合討論（午餐供應便當）		
3	13:00~13:20		李碧芳	國立成功大學醫學系核子醫學科	大中華及國際核子醫學領域之應用與分析
4	13:20~13:40		高潘福	中山醫學大學醫學系	應用分子影像對比劑資料庫分析全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用
	13:40~14:30		綜合討論		
5	14:30~14:50		蘇振隆	中原大學生物醫學工程學系	乳房專用正子攝影儀之醫療數位影像傳輸協定(DICOM)建立 (II)
6	14:50~15:10		盧志文	國立清華大學工程與系統科學系	給核醫成像應用之讀出晶片電路設計
7	15:10~15:30		吳宗達	國立臺灣海洋大學電機工程學系暨研究所	以高速 ADC 與 FPGA 設計並實現應用於 PET 之高解析數位時間鑑別技術(II)
	15:30~16:00		綜合討論		

*為該場會議主持人

102 年原子能科技學術合作研究計畫成果發表會

場次 6：人才培訓與風險溝通					
會場地點：研討室					
場序	時間	評審委員	計畫主持人	執行機關	計畫名稱
1	10:30~10:50	饒大衛（*）、古建國、李忠正、鄭武昆	陳彥均	龍華科技大學多媒體與遊戲發展科學系	核能發電知識之多媒體電子書開發
2	10:50~11:10		楊遵榮	國立臺灣師範大學物理學系	核能安全與意外事故輻射防護之影音及電子書出版品編輯與研究
3	11:10~11:30		李 敏	國立清華大學工程與系統科學系	核電知識深耕推廣計畫(III)
	11:30~13:20		綜 合 討 論 (午餐供應便當)		
4	13:20~13:40		葉善宏	慈濟學校財團法人慈濟技術學院放射醫學科學研究所	東部地區民眾與中小學師生核能與輻射安全教育推廣
5	13:40~14:00		楊文都	國立高雄應用科技大學化學工程與材料工程系	工程科系學生之「安全核能學程」課程推廣
	14:00~14:30	饒大衛（*）、古建國、李忠正、鄭武昆、王毓正	綜 合 討 論		
6	14:30~14:50		梁世武	世新大學公共關係暨廣告學系	性別與核安議題溝通之研究
7	14:50~15:10		黃東益	國立政治大學公共行政學系	低放射性廢棄物處置關鍵群體之核廢料認知與風險溝通
8	15:10~15:30		杜文苓	國立政治大學公共行政學系	核能安全之風險溝通
	15:30~16:00		綜 合 討 論		

*為該場會議主持人

燃料組件 CFD 分析模式與評估審查導則之研究

Investigation of CFD Model and Analysis Review Guideline in Rod Bundles

計畫編號：NSC 102-NU-E-007-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：馮玉明

e-mail：ymferng@ess.nthu.edu.tw

共同主持人：林志宏、曾永信

計畫參與人員：葉承翰

執行單位：國立清華大學工程與系統科學系

摘要

安全分析一直是核電廠設計、運轉與安全不可或缺的重要工具。傳統式的核電廠安全分析，端賴系統分析程式，並運用保守度或安全餘裕補足模式之不足以確保核電廠之安全。近年來在電腦運算與儲存能力突飛猛進的助益下，核能安全分析界逐漸地應用計算流體力學(CFD)程式進行相關之分析。國內既有電廠運轉安全相關改善案或者廠家引進新型燃料之相關安全分析上，也出現使用 CFD 程式進行全部或部份分析的案例，並進行分析法制化或申照之工作。CFD 程式應用於核電廠安全分析，最重要的是理論模式與格點模式的選取以及誤差的評估。然而，核電廠複雜的幾何配置與熱水流現象已超過 CFD 程式內建一般理論模式的適用範圍。因此，管制單位對於利用泛用型 CFD 程式進行核電廠安全分析案例之審查，除了如審查相關分析結果與程式驗證報告外，獨立執行 CFD 分析以做為交叉驗證是必須的。故國內的管制單位對於 CFD 相關的評估模式與審查導則，應需及早地進行相關的研究。本研究計畫擬針對燃料管束流進行 CFD 理論模式研究、分析與驗證，並探討不同格點模式對分析結果之影響等，並引入國際規範之上不準度分析方法論，作為建立 CFD 分析燃料管束流案例(如用過燃料池熱水流分析)之模式與評估審查導則的基礎先期研究，提供管制單位參考。

關鍵字：燃料管束、計算流體力學、網格分布、不準度分析

Abstract

Safety analysis is one of essential tools for the design, operation and safety of nuclear power plants (NPPs). Traditional safety analysis for NPPs depends on system codes with more conservative assumptions or margins to ensure the plant safety, which would scarify the operation flexibility and efficiency. With advantages of dramatic progress in computer power, CFD is gradually adopted in the nuclear safety analysis. In addition, taipower has licensed some safety analysis cases using or partially using the CFD. The most important things for the CFD simulations are the establishment of mesh and models as well as the error estimation. The thermal-hydraulic phenomena related to the reactor safety are so complicated that the models adopted in the commercial CFD may not reasonably capture these characteristics. Independent

simulations and cross-check are necessary for the regulator staff to review the CFD issues. Therefore, it is crucial for the regulatory staff to investigate the CFD modeling and assessment. Focusing on modeling the characteristics of fuel bundle flow, this project is to investigate the CFD methodology, influence of different mesh models and its uncertainty. These simulation results can assist the regulator staff in providing the basis of review guidelines for this issue.

Keywords: Rod bundles, CFD, Mesh, Uncertainty analysis

I. 前言

I.1 研究背景

近幾十年來，安全分析一直是核電廠設計、運轉與安全不可或缺的重要工具。傳統式的核電廠安全分析(Nuclear Reactor Safety, NRS)，端賴使用大型系統安全分析程式(System Codes)，例如反應爐系統程式 RELAP5 [1]、TRACE [2] 與 CATHARE [3]，圍阻體系統程式 GOTHIC [4] 與 GASFLOW [5]以及嚴重事故分析程式 MAAP [6] 與 MELCOR [7] 等。針對核電廠複雜暫態(Transient)或事故(Accident)分析，這些系統安全分析程式乃採用零維模式(Zero Dimensional Approach)進行工程組件(Technological Objects)(像是泵等)模擬、一維分析模式進行管路模擬以及一維或粗略的三維(Coarse 3-Dimensional)分析模式進行爐心與壓力槽等系統之模擬。然而，核電廠穩態(Steady State)或暫態相關之重要熱水流(Thermal- Hydraulic)物理現象，有一些呈現三維的分佈特性，像是在爐心下部與上部空間(Lower and Upper Plena)、爐心內部與下沉區(Downcomer)、圍阻體以及管路系統等區域之自然循環(Natural Circulation)、流體混合與分層(Mixing and Stratification)等現象。傳統系統分析程式因採用簡化的模式，無法模擬這些局部三維之分佈特性，乃用過多的保守度(Conservative)或安全餘裕(Safety Margin)補足模式之不足以確保核電廠之安全。如此，便犧牲了電廠的運轉彈性與效率。由是之故，近年來核能安全分析專家，在電腦運算與儲存能力突飛猛進的助益下，逐漸地應用具有模擬局部與三維分佈特性(Localized and 3-D Characteristics)的 CFD 程式於核電廠相關之安全分析[8,9]。

對於核能安全分析而言，CFD 能改善傳統分析程式之不足或是與系統分析程式結合，以提昇安全分析準確性之應用範圍。因此，各國核能界 CFD 分析團隊(包含

管制單位、國家級實驗室以及核電相關製造廠家等)，正開始積極地進行相關實驗以及 CFD 模式發展與校驗工作，以期在不久的將來，CFD 程式能如同傳統系統分析程式，實際應用於既有電廠的運轉、維護與安全分析以及新電廠設計、製造與改進等，並能在核能電廠相關分析法制化或申照之工作，扮演一定的角色。

有鑑於國外已有利用 CFD 程式執行乾式貯存(Dry Storage)相關安全分析，並進行申照工作。國內亦有核能研究所在乾式貯存、液壓池(Suppression Pool)與用過燃料池(Spent Fuel Pool)之熱水流分析上，使用 CFD 程式進行分析工作。同時，亦利用離線方式將 CFD 結合 RETRAN 軟體之方式，完成核一廠高壓注水系統誤動作事故之分析，這些分析成果亦已進行申照工作。此外，國外管制單位對於利用 CFD 程式進行核電廠安全分析案例之審查，除了如一般系統程式分析案審查相關分析結果與程式驗證報告外，獨立執行 CFD 分析(Independent Simulations)以做為交叉驗證(Cross- Check)是必需的[10]。在核能安全分析界逐漸使用 CFD 分析的現在，不管是業界、研究單位尤其是管制單位，CFD 應用於核電廠安全分析相關的研究與 CFD 人才的培育，便顯得非常地急迫與重要。故國內的管制單位對於 CFD 相關的評估模式與審查導則，要及早地進行相關的研究。

1.2 文獻回顧

NEA/CSNI/R(2007)5 [11] 與 NUREG-2152(2013) [12] 中整理出一套對於各誤差的計算方法以及誤差階級。其第一級即是捨入誤差 (Round- off Errors)，捨入誤差受限於電腦與分析軟體的計算能力。第二級為迭代誤差 (Iteration Errors)，CFD 分析軟體大多使用迭代方式計算矩陣以及解決非線性與耦合方程式。第三級則為離散誤差 (Discretization Errors)，離散誤差為由離散逼近之解與數學模型中偏微分方程之解之間的差異。為了能求出較正確的離散誤差估計，有必要導入系統性的網格與正確的時間步長(Time Step)。最後為模式誤差 (Model Errors)，數值模式如紊流模型與實際值之誤差。由於前二級之誤差通常與程式有關，本研究分析重點將擬採用第三級之離散誤差，且暫不考慮與時間域有關之分析探討。

Richardson [13]，Richardson 外插法(Richardson Extrapolation)，即是以二階法結合兩種離散化之解(即一粗一細兩種網格)來消去誤差展開項中，主要次方的誤差以更精確預測實際值，而此兩種離散化之結合便是離散解出之值減去實際值的誤差。

$$f = f_{exact} + g_1 h + g_2 h^2 + g_3 h^3 + \dots \quad I-1$$

Second-order method: $g_1 = 0$

$$f = f_{exact} + (h_2^2 f_1 - h_1^2 f_2) / (h_2^2 - h_1^2) + \text{Higher-order Terms} \quad I-2$$

Roache [14] 提出結合準確度等級(Order of Accuracy)與網格收斂指標(Grid Convergence Index, GCI)來計算誤差，並使用安全因子(Factor of safety, F_s)來考慮最佳化預測與保守預測。

$$GCI_{fine}^{21} = \frac{F_s}{r_{21}^p - 1} \left| \frac{\varphi_2 - \varphi_1}{\varphi_1} \right| \quad I-3$$

Stern et al. [15] 則提出當忽略高階項時，除最密網格外中間及較疏網格皆需要落在漸進式區域內(Asymptotic Region)，判斷式為

$$R = \frac{(f_2 - f_1)}{(f_3 - f_2)} \quad I-4$$

其中下標 1 為最密網格，2 為中等網格，3 為最疏網格。而此判斷式亦可推論出三種表現方式

(i) $0 < R < 1$: 單調收斂 (Monotonic Convergence)

(ii) $R < 0$: 震盪收斂 (Oscillatory Convergence)

(iii) $|R| > 1$: 發散 (Divergence)

當發散時無法預測誤差；當震盪收斂時則需要加入更多網格判定是否有可能為(i)或(iii)。

ASME V&V 20-2009 [16] 報告中所建議誤差計算方式可依下列一系列過程計算出網格不準度：

1. 定義出代表網格大小 (Representative Grid size, h)

若所建構網格為結構式網格，其 h 值計算方法為

$$h = [(\Delta x_{max})(\Delta y_{max})(\Delta z_{max})]^{1/3} \quad I-5$$

若所建構網格為非結構式網格，其 h 值計算方法則為

$$h = \left[\left(\sum_{i=1}^N \Delta V_i \right) / N \right]^{1/3} \quad I-6$$

其中

N = 總使用網格數

ΔV_i = 第 i 個網格的體積

2. 計算網格加密因子 (Grid Refinement Factor, r)

$$r = \frac{h_{coarse}}{h_{fine}} > 1.3 \quad I-7$$

3. 計算準確度等級 (Order of Accuracy, p)

由前面得到之網格加密因子與各網格之變數可算出準確度等級

$$p = \left[\frac{1}{\ln(r_{21})} \right] \left[\ln \left| \frac{\varphi_3 - \varphi_2}{\varphi_2 - \varphi_1} \right| + q(p) \right] \quad I-8$$

$$q(p) = \ln \left(\frac{r_{21}^p - s}{r_{32}^p - s} \right) \quad I-9$$

$$s = 1 \cdot \text{sign} \left(\frac{\varphi_3 - \varphi_2}{\varphi_2 - \varphi_1} \right) \quad I-10$$

4. 計算網格收斂指標 (Grid Convergence Index, GCI)

$$GCI_{fine}^{21} = \frac{F_s}{r_{21}^p - 1} \left| \frac{\varphi_2 - \varphi_1}{\varphi_1} \right| \quad I-11$$

其中 ASME V&V 20-2009 提出若分析案例中共有三網格，則 $F_s = 1.25$ 。

5. 不準度 (Uncertainty, U_{num} , u_{num})

$$u_{num} = \frac{GCI}{k} = \frac{U_{num}}{k} \quad I - 12$$

其中 k 與誤差分部有關。

CFD 程式主要是利用守恆定律所推導的質量、動量與能量守恆方程式，並以適當之紊流模式來模擬三維空間局部的熱水流特性。由於紊流屬於時變(Time Varying)的流場特性，工業上的分析工作一般均採用 Reynolds-Averaged Navier-Stokes 紊流模式(RANS Turbulence Models)求解流場平均的特性(Mean Characteristics)，以減少龐大的計算，並使 CFD 能實際應用於工業分析上。根據求解域(Solution Domain)之幾何形狀與流場特性，常用的 RANS 紊流模式有 Spalart-Allmaras 模式[17]、 $k-\epsilon$ 模式[18]、RNG (ReNormalization Group) $k-\epsilon$ 模式[19]、Realizable $k-\epsilon$ 模式[20]、 $k-\omega$ 模式[21]、SST(Shear Stress Transport) $k-\omega$ 模式[22]以及 RSM (Reynolds Stress Model) 模式[23]等。不同之紊流模式各有其適用的範圍，且採用不同之紊流模式可能會出現不同的預測結果，本報告主要針對格點模式分析與修正，將先擇一適用之紊流模式進行分析。

I.3 研究目的

本研究計畫擬針對模擬燃料管束流(Fuel Bundle Flow)的幾何配置進行 CFD 理論模式進行研究、分析與驗證，並探討不同格點模式對 CFD 分析結果之影響、CFD 應用的可行性以及探討分析結果之不準度，作為日後建立 CFD 分析燃料管束流幾何配置案例(例如，用過燃料池熱水流分析)之模式與評估審查導則基礎之先期研究，提供管制單位參考。

本研究採用 ANSYS FLUENT 分析程式進行穩態(Steady state)熱流模擬，並引用 Holloway et al. [24]的單相流燃料管束流之次通道實驗的各設計參數以建立模型，包括幾何形狀、邊界條件、以及流體性質，以計算分析流場、溫度場等各熱傳參數與分布，其中實驗中有設計多種幾何形狀的格架與葉片裝設，本研究前半階段擬以無葉片且零厚度之簡化格架模型進行分析探討，後半階段將進而研究實際格架與葉片對流場的影響並估算各網格計算結果之間的不準度。

在安全評估中所需分析的重點有流場及溫度分布，以找出燃料表面的熱點作為安全分析的重要參考依據，模擬重點將會從全域的流場分布分析進而至重點區域進行深入之分析，並探討網格不準度之影響。

II. 主要內容

如前所述，在 CFD 分析法進入核電廠安全分析領域並進行執照化(或申照)前，許多模式驗證之研究(包含實驗執行與模式精進等)必須完整地進行，這些 CFD 模式包括格點模式、物理現象模擬模式、數值求解方法以及不準度評估模式等。適合 CFD 分析之核能相關範圍高達 22 類以上，課題種類相當繁多且模擬之物理現象也非常複雜，實不可能針對所有分析課題進行完整之研究與模擬。因此，本研究計畫擬先針對模擬燃料管束流(Fuel Bundle Flow)的 CFD 分法論(Methodology)進行完整的研究、分析與驗證，並探討不同格點模式對 CFD 分析結果

之影響與 CFD 應用的可行性等。

II.1 物理模型

現行的壓水式核反應器 PWR (Pressurized Water Reactor)爐心內燃料束多以平行四方陣列方式擺放，並用一系列格架放置於垂直流體流動方向以支撐整體燃料束並精準定位各燃料束的位置。格架的擺設會影響流場與溫度場，增加壓力降亦會加強局部的熱傳表現，因此格架必須基於壓降與熱傳強化來設計。相對於現行壓水式反應器爐心的 17 x 17 四方陣列燃料束通道，Holloway (Holloway et al., 2004)所設計的實驗選擇較小的 5 x 5 四方陣列燃料束通道來分析，其實驗段以及格架、葉片位置配置圖如圖 II.1 所示。因本研究欲探討加熱表面的局部熱傳現象而需要較多網格數加以分析，本研究則以一開始的八分之一次通道分析無壁面厚度與擾流葉片的模型，如圖 II.2 內紅色區域所示；而後以兩個次通道的模型分析有格架厚度與含有葉片的模型，如圖 II.3 所示。

II.2 統御方程式

本研究中所模擬的理現象，必須利用統御方程式加以分析。對於一般尺度的流體流動現象，可利用 Navier-Stokes 方程式來描述。基於各守恆定律所推導出來的方程式包含：質量守恆方程式、動量守恆方程式及能量守恆方程式。

1. 質量守恆方程式 (Conservation of Mass)

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho u_i) = 0 \quad II - 1$$

其中

t : time

ρ : density

u_i : velocity in i direction

2. 動量方程式 (Conservation of Momentum)

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} + \rho g_i \quad II - 2$$

其中

P : static pressure

τ_{ij} : stress tensor

$$\tau_{ij} = \left[\mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] - \frac{2}{3} \mu \frac{\partial u_i}{\partial x_i} \delta_{ij} \quad II - 3$$

3. 能量守恆方程式 (Conservation of Energy)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho E) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho E + P) \\ = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(k_{eff} \frac{\partial T}{\partial x_i} \right) + u_j (\tau_{ij})_{eff} \end{aligned} \quad II - 4$$

其中

k_{eff} : effective conductivity

$$E = h - \frac{P}{\rho} + \frac{u_i^2}{2} \quad II - 5$$

II.3 紊流模型

當流體在高雷諾數(Reynolds Number)的流動條件下，則會產生紊流的現象。為了求解紊流，必須引入紊流模式。本研究主要針對格點模式進行分析，燃料管束流流場中紊流模式係採用 Realizable $k-\varepsilon$ 紊流模式進行分析計算。

Realizable $k-\varepsilon$ 紊流模型

Realizable $k-\varepsilon$ 紊流模型可用下列兩公式描述：

1. 紊流動能方程式 (Turbulence Kinetic Energy Equation)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho k u_j) \\ = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \frac{\partial k}{\partial x_j} \right] + G_k \\ + G_b - \rho \varepsilon - Y_M \end{aligned} \quad \text{II - 6}$$

2. 紊流動能消散方程式 (Turbulence Kinetic Energy Dissipation Equation)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho \varepsilon u_j) \\ = \frac{\partial}{\partial x_j} \left[\left(\mu + \frac{\mu_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_j} \right] \\ + \rho C_1 S \varepsilon - \rho C_2 \frac{\varepsilon^2}{k + \sqrt{\nu \varepsilon}} \\ + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} C_{3\varepsilon} G_b \end{aligned} \quad \text{II - 7}$$

其中

G_k : 由平均速度梯度所產生的紊流動能

G_b : 由浮力所產生的紊流動能

Y_M : 可壓縮紊流擾動擴張對消散率的影響

σ_k : 對應紊流動能 k 的紊流 Prantl number

σ_ε : 對應紊流消散率 ε 的紊流 Prantl number

$$C_1 = \max \left[0.43, \frac{\eta}{\eta + 5} \right] \quad \text{II - 8}$$

$$\eta = S \frac{k}{\varepsilon} \quad \text{II - 9}$$

$$S = \sqrt{2 S_{ij} S_{ij}} \quad \text{II - 10}$$

$$C_{1\varepsilon} = 1.44, \quad C_2 = 1.9, \quad \sigma_k = 1.0, \quad \sigma_\varepsilon = 1.2$$

紊流黏滯度計算：

$$\mu_t = \rho C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \quad \text{II - 11}$$

$$C_\mu = \frac{1}{A_0 + A_s \frac{k U^*}{\varepsilon}} \quad \text{II - 12}$$

$$U^* \equiv \sqrt{S_{ij} S_{ij} + \tilde{\Omega}_{ij} \tilde{\Omega}_{ij}} \quad \text{II - 13}$$

$$\tilde{\Omega}_{ij} = \Omega_{ij} - 2 \varepsilon_{ijk} \omega_k, \quad \Omega_{ij} = \overline{\Omega_{ij}} - \varepsilon_{ijk} \omega_k$$

其中 Ω_{ij} 為在一轉動速率為 ω_k 的慣性座標中所得的旋轉率張量(即 Vorticity)，

$$A_0 = 4.04, \quad A_s = \sqrt{6} \cos \phi$$

$$\phi = \frac{1}{3} \cos^{-1}(\sqrt{6} W), \quad W = \frac{S_{ij} S_{jk} S_{ki}}{\tilde{S}^3},$$

$$\tilde{S} = \sqrt{S_{ij} S_{ij}}, \quad S_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right)$$

II.4 網格建立

在利用 CFD 程式分析物理現象時，需將所分析區域切割網格做離散化。而網格品質與計算結果密切相關。劃分網格的主要原則係以分割出正交網格以減少數值誤差，在近壁區之物理現象變化較大以及重點分析區域應使用較密的網格，而遠離重點分析區域或物理現象變化較緩的區域則可使用較疏的網格。在計算包含近壁面流動 (wall-bounded flow) 之紊流流場時，其紊流現象主要係傳遞能量至邊界層 (Boundary Layer) 區域流體與壁面所形成的渦流 (Vortex)。因此，在建立網格時最需注意的即是與壁面最接近之第一層網格，本研究所建立之各類模型皆有劃分粗細不同之邊界層。由於第一階段無葉片通道模型組成不複雜，全部網格皆為結構性網格 (Structured Grids)；第二階段包含葉片之通道模型則含有結構性網格與非結構性網格 (Unstructured Grids)。ASME 中建議至少使用三種不同粗細的網格以利判斷網格數量所產生之數值誤差。三種不同尺寸的網格其加密因子必須超過 1.3(即兩種網格之間各網格大小比例超過 1.3)，且各方向(x, y, z 軸向)分別的加密程度必須有所不同。圖 II.4 即是無葉片通道的網格，表 II.1 為無葉片通道模型三種網格的網格數以及其代表網格大小 (Representative Mesh Size)。圖 II.5 為含葉片通道之網格，表 II.2 為其模型之三種網格的網格數以及其代表網格大小。

表 II.1 無葉片通道模型網格數及代表網格

	粗 Coarse	標準 Standard	細 Fine
網格數	218,280	969,600	3,751,200
代表網格大小	0.5913	0.3000	0.1947

表 II.2 含葉片通道模型各網格數及代表網格

	粗 Coarse	標準 Standard	細 Fine
網格數	7,197,797	10,253,885	12,577,375
代表網格大小	0.1810	0.2527	0.3644

II.5 邊界條件與數值模擬設定

於壁面邊界條件的設定方面，所有壁面包括格架皆為無滑移邊界條件，出口條件設為錶壓力等於零。表 II.3 列出基本邊界條件設定，表 II.4 為離散方程式中所設定的數值方法與收斂判定。圖 II.6 為無葉片通道熱傳邊界條件設定示意圖。圖 II.7 為含葉片通道熱傳邊界條件設定示意圖，設定三對週期性邊界條件以符合實驗流場。

表 II.3 基本邊界條件設定

邊界	各邊界條件
入口 Inlet	流速 $v = 3.583 \text{ (m/s)}$ 溫度 $T = 300 \text{ (K)}$
出口 Outlet	錶壓力 Gauge Pressure = 0
加熱面 Heated Rod	加熱功率 $P = 70 \text{ (W)}$
實驗段前後之壁面	絕熱 $P = 0 \text{ (W)}$
格架 Spacer	絕熱 $P = 0 \text{ (W)}$
無葉片通道模型 與其他次通道相鄰面	對稱邊界條件 Symmetry
含葉片通道模型 與其他次通道相鄰面	週期邊界條件 Periodic

表 II.4 數值方法與收斂判定

壓力速度耦合法	SIMPLEC
離散方程式中 各項離散化方法	二階迎風法 (Second-Order Upwind)
紊流模型中近壁面處理	Enhanced Wall Function
收斂結果判定	殘差值皆小於 10^{-4}

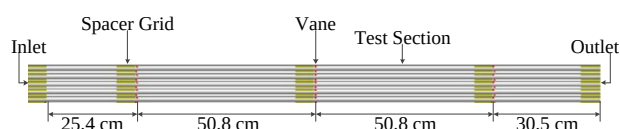


圖 II.1 流道全域圖

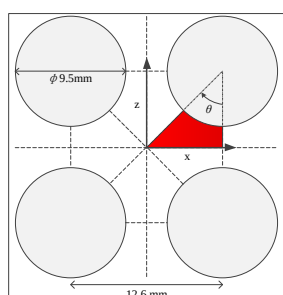


圖 II.2 無葉片通道之流道俯視圖

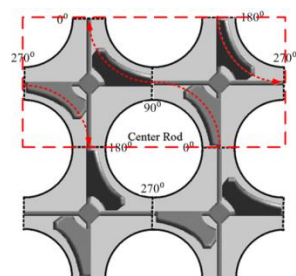


圖 II.3 含葉片通道之流道俯視圖

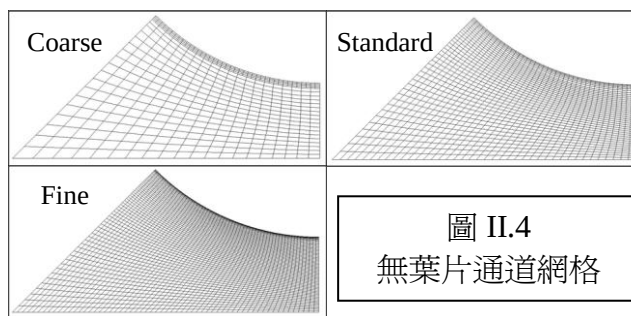


圖 II.4
無葉片通道網格

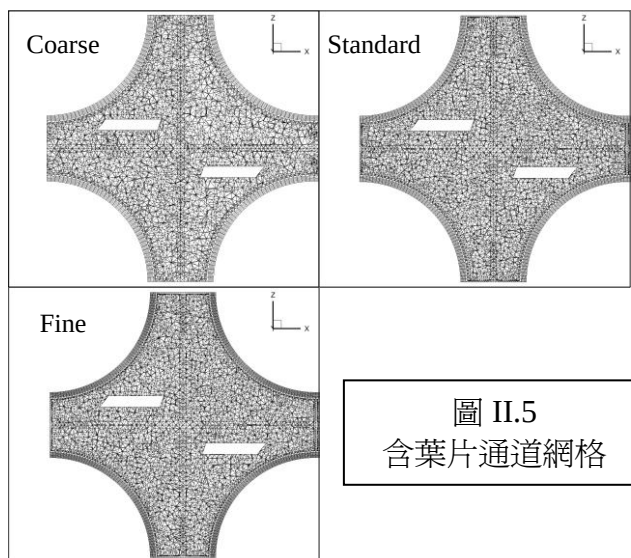


圖 II.5
含葉片通道網格

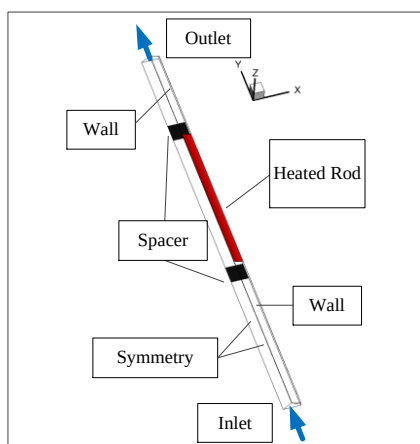


圖 II.6 無葉片通道熱傳邊界條件

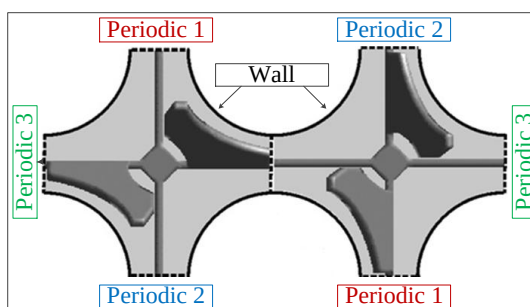


圖 II.7 含葉片通道熱傳邊界條件

III. 結果與討論

III.1 無葉片通道模型

模擬分析結果

圖 III.1 為無葉片通道模型中，三種網格的無因次壁面距離(non-dimensional wall distance, y^+)的分布，其結果可以發現彼此間之分布趨勢相近，唯量級上由於網格疏密度不同而有所差異。圖 III.2 則更細部檢視流道橫截面之速度分布圖，其截面位置為格架下游實驗段起始處。圖 III.3 則是取其中徑向速度向量判別差異性。雖然在此節研究中僅以一階紊流閉合模式 (First-order Turbulence Closure Model) 中的 Realizable $k-\epsilon$ 模型進行分析，因而無法模擬出封閉迴路之向量分布，但仍可看出三者之間流場分布相近。

量化分析

前一節中可以看到三種不同網格分布之各項參數分布圖趨勢相近，係為可接受的計算結果。進一步則取出三種網格中壁面各量值進行網格分布之差異性分析。

圖 III.4 (a)係為三種網格分布所計算之壁面剪應力之比較。由結果可以得知粗網格分布之壁面剪應力明顯高於其他兩種網格分布之結果，然而這三種網格分布所得之壁面減應力趨勢一致，皆係在上游遽降而在下游些微回升。圖 III.4 (b)則另將三種網格分布之 Nusselt 值之驗證比對，亦可看出粗網格所計算之結果明顯高於其他兩者。

數值網格不準度計算

由 ASME 報告中所建議誤差計算方式可依下列一系列過程計算出網格不準度：

1. 定義出各網格的代表網格大小 (Representative Grid size, h)

本研究中所建構網格為結構式網格，其 h 值分別列於表 III.1

表 III.1 網格數與代表網格

	細 (Fine)	標準 (Standard)	粗 (Coarse)
代表網格大小, h	$h_1 = 0.1947$	$h_2 = 0.3000$	$h_3 = 0.5913$

2. 計算網格加密因子 (Grid Refinement Factor, r)

由粗加密到標準、由標準加密到細之加密因子計算結果列於表 III.2

表 III.2 加密因子

	標準→細 (Standard - Fine)	粗→標準 (Coarse - Standard)
加密因子, r	$r_{21} = 1.541$	$r_{32} = 1.971$

3. 計算準確度等級 (Order of Accuracy, p)

此準確度等級的計算方法只能使用在當網格足夠小至讓三種網格之結果落於漸進式區域(Asymptotic Region)中，在這區域中只有最低次方的截斷誤差

(Truncation Error)最為明顯，高次方皆為常數。因此必須在計算不準度之前，檢視三種網格分布的預測結果是否是漸高或漸低。倘若標準網格分析結果為最高或最低，則三種網格分析的結論為震盪收斂(Oscillation Convergence)，之後的不準度則無法計算。

由於精確度等級與分析所取之量值相關，首先列出沿不同流道位置擷取之壁面剪應力與 Nusselt 值所對應之 p 以及修正項 $q(p)$ ，如表 III.3。

表 III.3 精確度等級與修正項

Position	Wall Shear Stress		Nusselt Number	
	p	$q(p)$	p	$q(p)$
$y=0.007$	2.827279	-0.88581	0.64515	-0.53464
$y=0.014$	3.610045	-1.03378	1.256367	-0.62295
$y=0.028$	3.865059	-1.08408	1.821701	-0.71184
$y=05D$	3.541431	-0.76241	2.657036	-0.85501
$y=10D$	2.603385	-0.51756	3.279408	-0.97005
$y=15D$	2.715938	-0.54617	3.28252	-0.97064
$y=20D$	2.872555	-0.58642	3.237403	-0.96208
$y=25D$	3.274776	-0.69161	3.095013	-0.93527
$y=30D$	4.146784	-0.92487	2.913735	-0.90165
$y=35D$	5.164811	-1.19893	2.817277	-0.88399
$y=38D$	5.481851	-1.28377	2.781664	-0.87751

4. 計算網格收斂指標 (Grid Convergence Index, GCI)

具備以上各項數值後則可求出網格收斂指標，將所得數據如壁面剪應力等代入則可計算出對應的 GCI，如圖 III.5 所示

5. 以網格收斂指標推算不準度

在 ASME V&V 20-2009 中提到當進行三種網格的分析研究時，不準度 U_{num} 即為 GCI，而信心水準為 95%，此為沒有任何誤差分布的假設。而現今國際標準為單一標準差(1σ)，而對應到新不準度為 u_{num} ，而轉換這兩不準度之間的公式如下：

$$u_{num} = \frac{U_{num}}{k} = \frac{GCI}{k} \quad \text{III - 1}$$

其中 k 值來自於較精密網格中的誤差分布，倘若分布為高斯(Gaussian)分布，則 k 值等於 2。然而在精密網格中，唯有在模擬結果不佳(震盪收斂)時才會接近高斯分布，而在結果良好或較精細的數值中之誤差分布則為位移高斯分布 (Shifted Gaussian Distribution)。在這情況下 k 值為 1.1 至 1.15 之間。

III.2 含葉片通道模型

模擬分析結果

圖 III.6 為含葉片通道模型中，三種網格的無因次壁面距離分布，可以發現分布趨勢亦相近，唯量級上也由於網格疏密度不同而有所差異。圖 III.7 則擷取流道橫截面之速度分布圖，其截面位置為格架下游實驗段起始處。圖 III.8 則是取其中徑向速度向量判別差異性。可以發現由於葉片造成流場方向的改變，徑向流場方向則沿著葉片傾倒方向分布，而流向方面之預測顯示，三種網格間所計算得之流場分布差異不大。

量化分析

由前一節得到三網格在流場分布上相近，進一步將各參數量化比較，取壁面上之壁面剪應力如圖 III.9 (a)，及壁面上 Nusselt 值如圖 III.9 (b)，粗網格與其他兩種網格分布之差異較無葉片通道模型的結果要小。而在 Nusselt 值之分布方面，最密網格的分布在入口處開始之前半段要高於其他兩種網格，直至處於 15D 後則開始小於標準網格，在此我們必須進一步計算網格不準度來判斷網格是否屬於漸進式範圍抑或是發散。

數值網格不準度計算

如同無葉片通道之計算方式，此部分亦依照 ASME 報告建議之計算方法計算網格不準度：

1. 定義出各網格的代表網格大小 (Representative Grid size, h)

此部分所建構網格為結構式網格，其 h 值分別為如表 III.4

表 III.4 網格數與代表網格

	細 (Fine)	標準 (Standard)	粗 (Coarse)
代表網格大小, h	$h_1 = 0.1810$	$h_2 = 0.2527$	$h_3 = 0.3644$

2. 計算網格加密因子 (Grid Refinement Factor, r)

由粗加密到標準、由標準加密到細之加密因子列於表 III.5

表 III.5 加密因子

	標準→細 (Standard - Fine)	粗→標準 (Coarse - Standard)
加密因子, r	$r_{21} = 1.396$	$r_{32} = 1.425$

3. 計算準確度等級 (Order of Accuracy, p)

在前一節所計算得之 Nusselt 值可以發現三種網格得到的結果趨勢不盡一致，表示此次分析之三網格可能沒落在漸進式區域內，必須先列表判斷是否有負值。表 III.6 列出沿不同流道位置擷取之壁面剪應力與 Nusselt 值所對應之 p 以及修正項 q(p)

表 III.6 精確度等級與修正項

Position	Wall Shear Stress		Nusselt Number	
	p	q(p)	p	q(p)
y=0.007	0.229172	-0.06465	-0.001012	-0.00303
y=0.028	0.083398	-0.06884	-0.001217	-0.0113
y=05D	0.033064	-0.07964	-0.000876	-0.03102
y=10D	0.015650	-0.08832	-0.001334	-0.04992
y=15D	0.010380	-0.09402	0.000037	-0.1091
y=20D	0.008200	-0.09763	0.000003	-0.17097
y=25D	0.006471	-0.10168	0.000040	-0.13604
y=30D	0.005348	-0.1051	0.000097	-0.10614
y=35D	0.004640	-0.10768	0.000151	-0.09819
y=38D	0.004310	-0.10928	0.000183	-0.09687

4. 計算網格收斂指標 (Grid Convergence Index, GCI)

將以上各項數值整理後可發現壁面剪應力部分落在漸進式區域，符合要求，可以求出網格收斂指標，將所得數據代入則可計算出對應的 GCI，而 Nusselt number 在 10D 以前的值因為 $R < 0$ 造成最後的 p 值為負，這部分熱傳的結果是不符合要求的。GCI 分布如圖 III.10 所示。

5. 以網格收斂指標推算不準度

在 ASME V&V 20-2009 中提到當進行三種網格的分析研究時，不準度 U_{num} 即為 GCI，而信心水準為 95%，此為沒有任何誤差分布的假設。而現今國際標準為單一標準差 (1σ)，而對應到新不準度為 u_{num} ，而轉換這兩不準度之間的公式如下：

$$u_{num} = \frac{U_{num}}{k} = \frac{GCI}{k} \quad 3-1$$

其中 k 值來自於較精密網格中的誤差分布，倘若分布為高斯(Gaussian)分布，則 k 值等於 2。然而在精密網格中，唯有在模擬結果不佳(震盪收斂)時才會接近高斯分布，而在結果良好或較精細的數值中之誤差分布則為位移高斯分布 (Shifted Gaussian Distribution)。在這情況下 k 值為 1.1 至 1.15 之間。

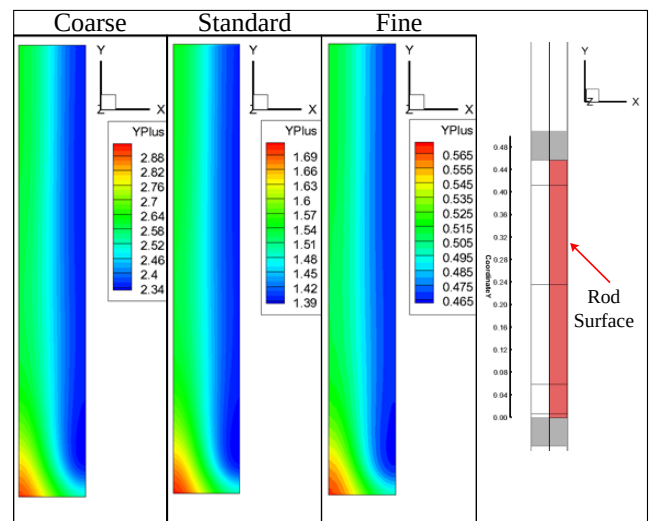


圖 III.1 無葉片通道無因次壁面距離(y^+)分布圖

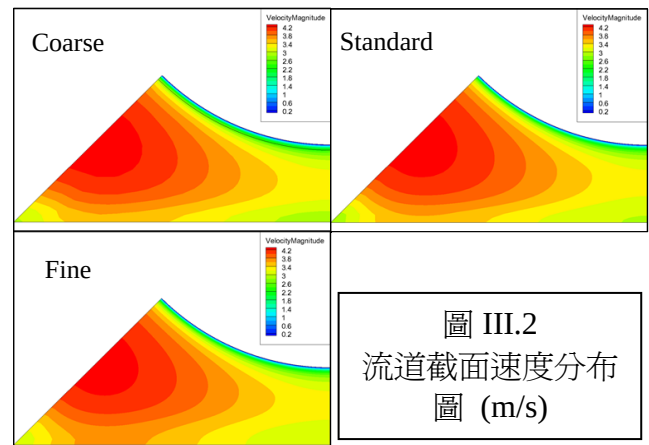


圖 III.2
流道截面速度分布
圖 (m/s)

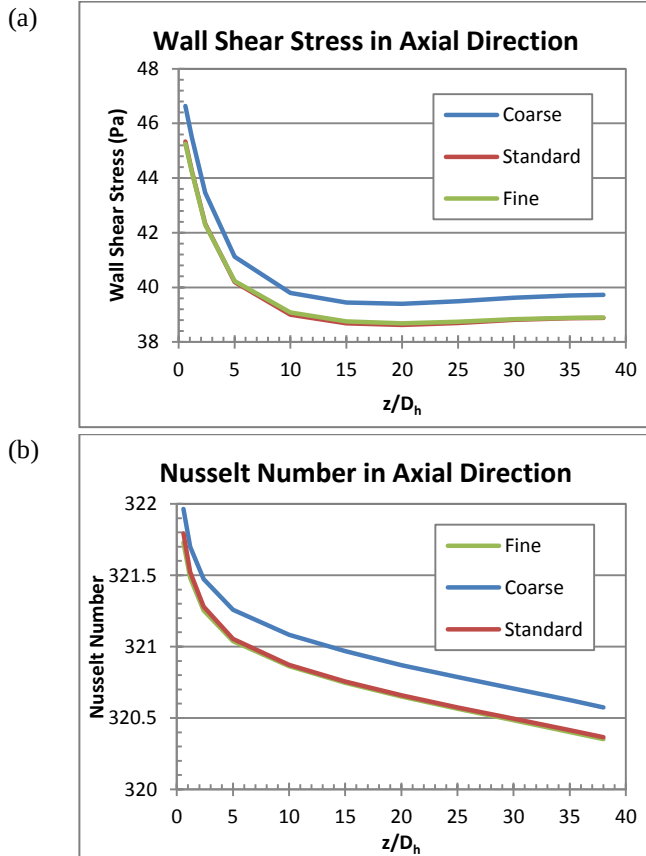
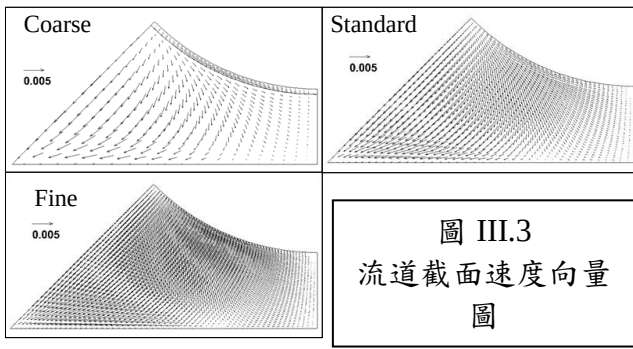


圖 III.4
(a) 壁面剪應力比較圖
(b) Nusselt 值比較圖

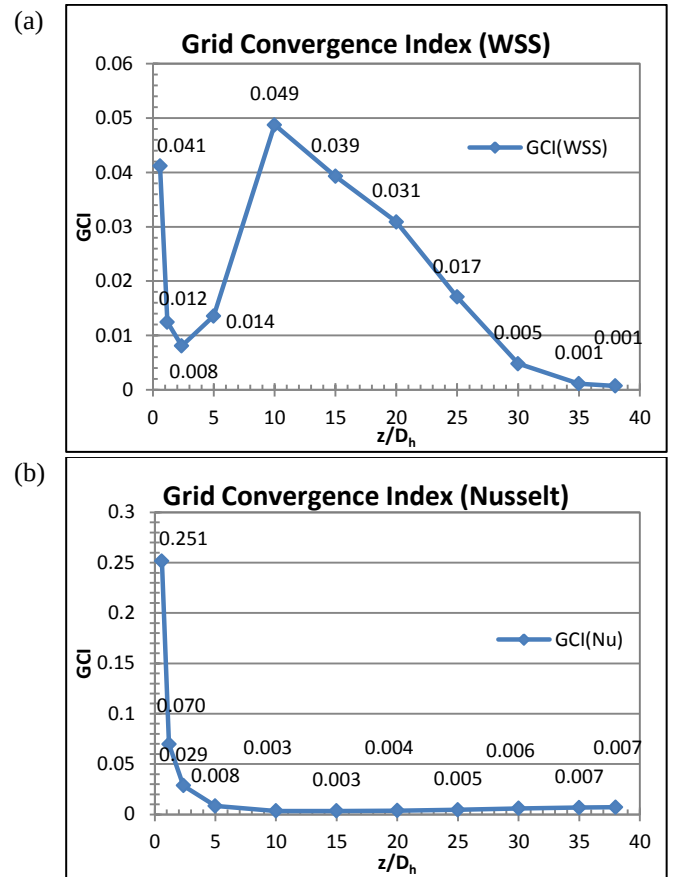
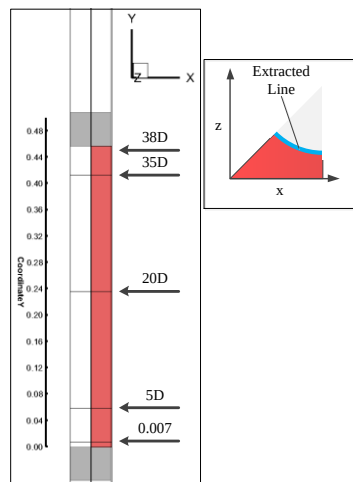


圖 III.5 (a) GCI (Wall Shear Stress)
(b) GCI (Nusselt)

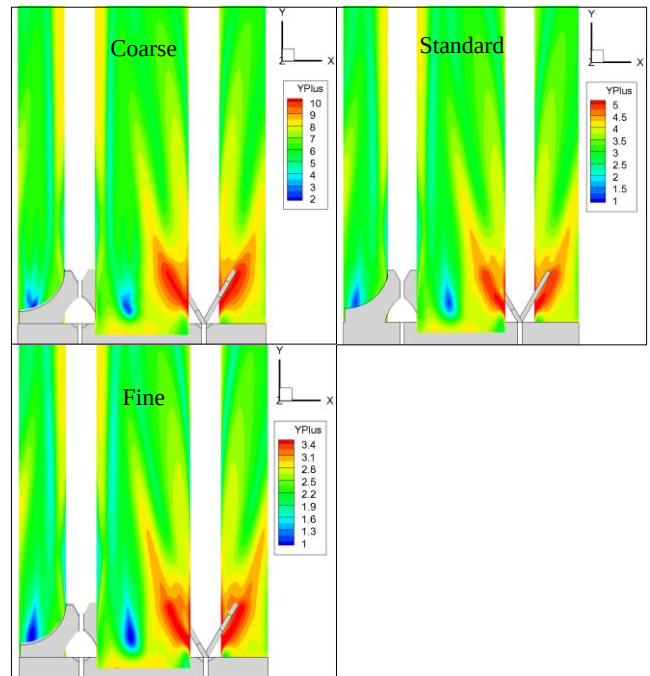


圖 III.6 含葉片通道無因次壁面距離(y^+)分布圖

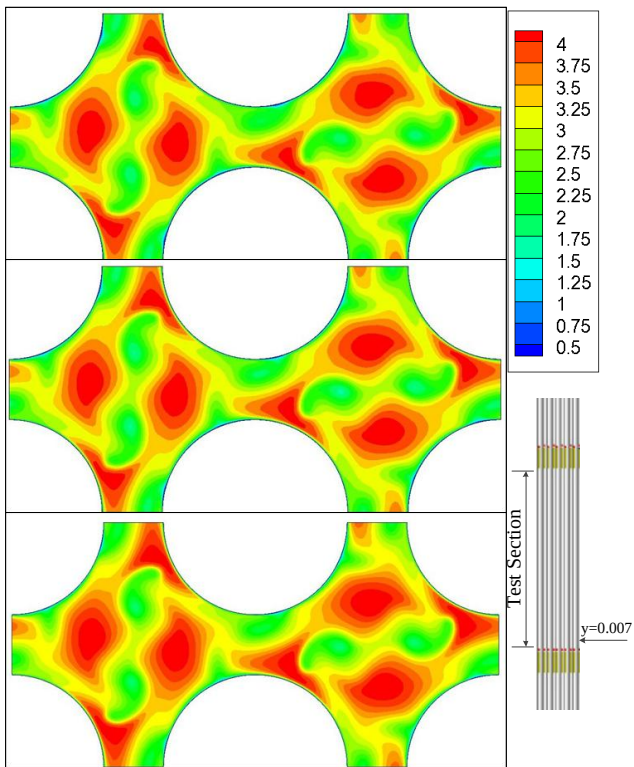


圖 III.7 含葉片通道流道截面速度分布圖 (m/s)

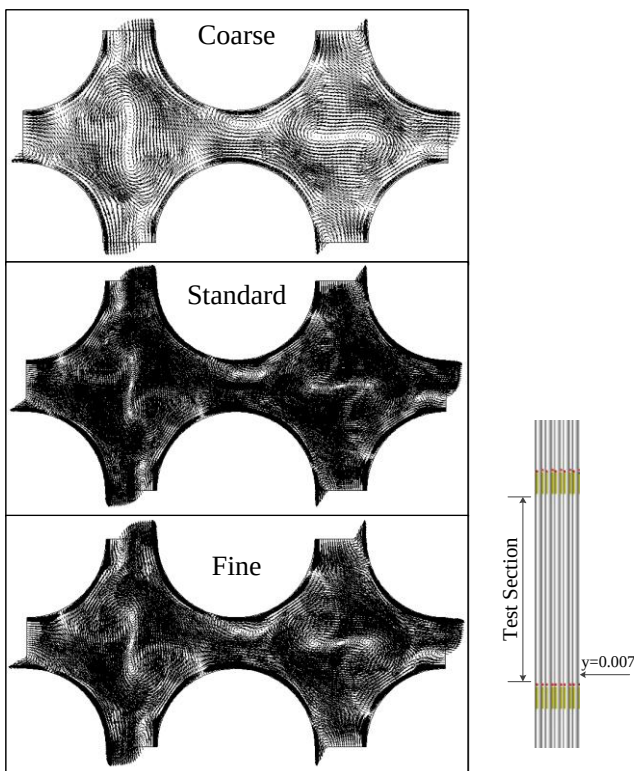


圖 III.8 含葉片通道流道截面速度向量圖

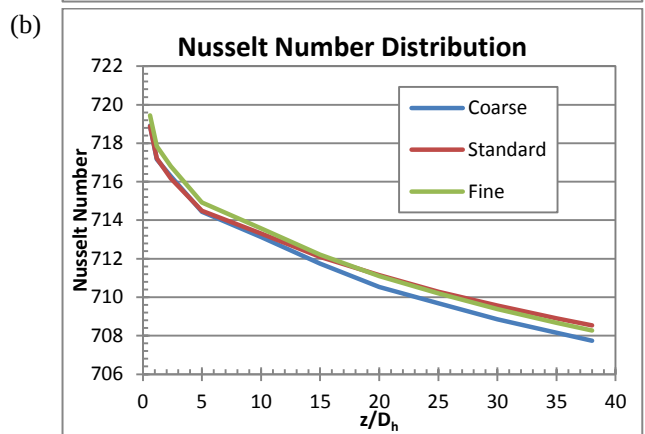
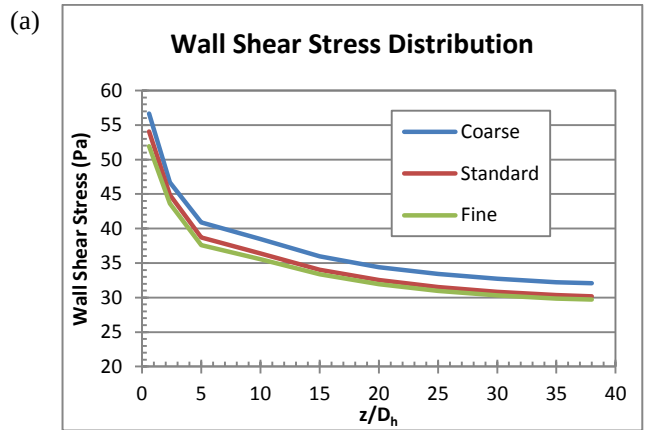
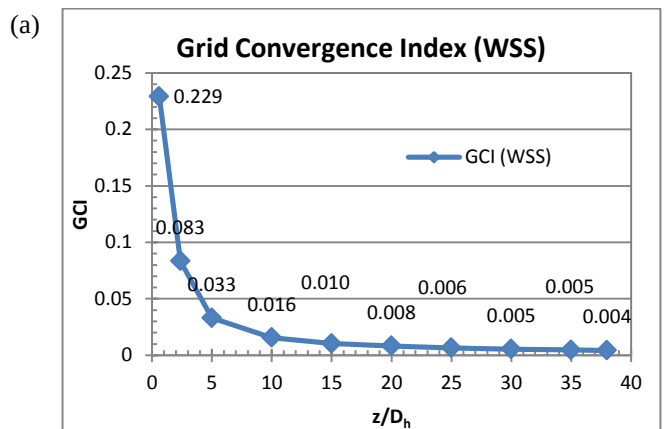


圖 III.9 (a) 壁面剪應力比較圖

(b) Nusselt 值比較圖



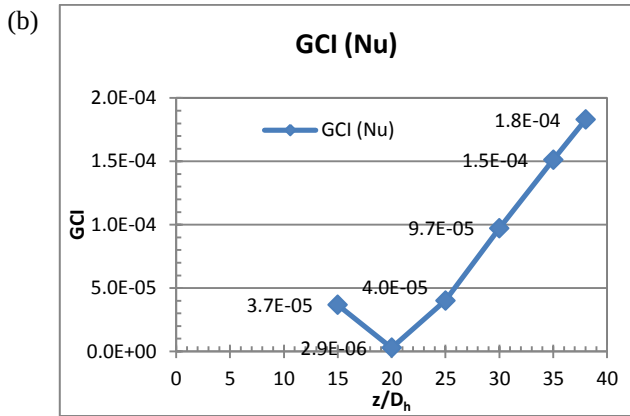


圖 III.10(a) GCI (Wall Shear Stress)
(b) GCI (Nusselt) 發散

IV. 結論

為增進計算流體力學應用於燃料組件之分析技術與未來相關審查導則之發展，本研究藉由 CFD 分析技術針對有無葉片之燃料束類型，進行了分析模式的建立與數值誤差的測試。並透過 ASME V&V 20-2009 中所規範的不準度評估方式，完成了上述兩種不同燃料束類型之網格靈敏度測試，進而順利地建立網格不準度之量化技術。研究結果顯示，利用 ASME V&V 20-2009 所建議的評估方式，除了可以成功地利用三種網格分佈獲得 95% 信心水準之網格誤差(GCI)外。預期透過本研究之持續精進，除有助於增進核能界對計算流體力學之應用性外，更可協助管制單位發展未來用以評估計算流體力學結果之審查導則。

參考文獻

[1] RELAP5/MOD 3 code manual- code structure, system models and solution methods, Vol. I., The Thermal Hydraulics Group, SCIENTECH Inc., Idaho, June 1999

[2] TRACE V5.0 theory manual- field equations, solution methods and physical models, Office of Nuclear Regulatory Research. US NRC, 2007

[3] D. Bestion, F. Barre, B. Faydide, “Methodology, status and plans for development and assessment of the CATHARE code”, Proc. OECD/CSNI Int. Conf., Annapolis, USA, 5-8 Nov. 1999.

[4] GOTHIC Containment Analysis Program, Version 7.2a(QA), EPRI, Palo Alto, CA, Jan. 2006.

[5] J. R. Travis, et al., “GASFLOW: A Computational Fluid Dynamics Code for Gases, Aerosols, and

Combustion, Volume 2, User's Manual”, LA-13357-MS, FZKA-5994, FZK Karlsruhe, 1998.

[6] “MAAP 5 Code Manual,” Version 0.0, Fauske and Associates Inc., 2008.

[7] R. O. Gaunt et al., “MELCOR Code Manuals – Version 1.8.6”, US NRC NUREG/CR 6119 Rev. 3, SAND2005-5713, Sandia National Laboratories, 2005.

[8] International Atomic Energy Agency, “Use of computational fluid dynamics codes for safety analysis of nuclear reactor systems,” IAEA-TECDOC- 1379, 2003.

[9] Nuclear Energy Agency, “Assessment of Computational Fluid Dynamics (CFD) for Nuclear Reactor Safety Problems,” NEA/CSNI/R(2007)13, January 2008.

[10] Nuclear Energy Agency, “Best Practice Guidelines for the use of CFD in nuclear Reactor Safety Applications,” NEA/CSNI/R(2007)5, May 2007.

[11] NEA/CSNI/R(2007)5, Best Practice Guidelines for the use of CFD in Nuclear Reactor Safety Applications (2007)

[12] NUREG-2152, Computational Fluid Dynamics Best Practice Guidelines for Dry Cask Applications- Final Report (2013)

[13] L.F. Richardson, The Approximate Arithmetical Solution by Finite Differences of Physical Problems Involving Differential Equations, with an Application to the Stresses in a Masonry Dam, Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Vol. 210 (1911) pp.307-357

[14] P.J. Roache, QUANTIFICATION OF UNCERTAINTY IN COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS, Annual Review of Fluid Mechanics Vol. 29 (1997) pp.123-160

[15] F. Stern, R.V. Wilson, H.W. Coleman, E.G. Paterson, “Comprehensive Approach to Verification and Validation of CFD Simulations—Part 1: Methodology

- and Procedures” , Journal of Fluids Engineering Vol. 123 (2001) pp.793-802.
- [16] ASME V&V 20-2009, Standard for Verification and Validation in Computational Fluid Dynamics and Heat Transfer (2009).
- [17] P. Spalart, S. Allmaras, “A one-equation turbulence model for aerodynamic flows,” Technical Report AIAA-92-0439 (1992).
- [18] B. E. Launder, D. B. Spalding, “The Numerical Computation of Turbulent Flows,” Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 3, 269-289 (1974).
- [19] V. Yakhot, S.A. Orszag, S. Thangam, T.B. Gatski, C.G. Speziale, "Development of turbulence models for shear flows by a double expansion technique", Physics of Fluids A, 4(7), 510-1520 (1992).
- [20] T.H. Shih, W.W. Liou, A. Shabbir, Z. Yang, J. Zhu., “A new $k - \varepsilon$ _ eddy viscosity model for high Reynolds number turbulent flows,” Comput Fluids, 24, 227–38(1995).
- [21] D.C. Wilcox, “Reassessment of the scale determining equation for advanced turbulence models,” AIAA J. 26 (11), 1299 (1988).
- [22] F.R. Menter, "Zonal Two Equation $k-\omega$ Turbulence Models for Aerodynamic Flows", AIAA Paper 93-2906 (1993).
- [23] Launder, B. E., Reece, G. J. and Rodi, W., "Progress in the Development of a Reynolds-Stress Turbulent Closure", Journal of Fluid Mechanics, 68(3), 537-566 (1975).
- [24] M.V. Holloway, H.L. McClusky, D.E. Beasley, “The Effect of Support Grid Features on Local, Single-Phase Heat Transfer Measurements in Rod Bundles” , Journal of Heat Transfer Vol. 126 (2004) pp43-53.

核能電廠值班運轉人員疲勞管理審查導則計畫

Guideline for management of fatigue in the on duty workers of the nuclear power plants

計畫編號：102-NU-E-006-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：郭耀昌

e-mail：kuo550221@gmail.com

計畫參與人員：郭浩然、吳政龍、林繼統、羅玉幸

執行單位：國立成功大學醫學院 醫學系職業醫學科

摘要

研究背景：

車諾比及三哩島核安意外事件與發生在 2011 年里諾機場航管疏失都發生在凌晨的休眠時段；由此推斷，人員的疲累可能造成意外發生，制定核能電廠人員的疲勞管理審查準則有其必要性。

研究方法：

本研究以美國核子管制委員會法規 10CFR26 適職方案為主要準則，另參酌運輸業對於疲勞駕駛的研究及行政院勞工委員會職業促發腦血管及心臟疾病之認定參考指引，自民國 102 年元月至民國 102 年 12 月 31 日止針對台灣三大核電廠進行研究，分為五步驟進行：第一階段收集國內外有關勞工疲勞管理的資料作參考，邀集專家草擬勞工疲勞管理準則。同時拜會核電廠管理階層說明本計劃之重要性；第二階段進行核電廠現場訪視與問題分析以了解現行對於員工疲勞管理的對策，並聽取管理者對於該議題的需求；第三階段邀集專家、電廠經營管理者及勞工代表參與審查會議，針對所收集的問題及意見進行討論並修改草案內容；第四階段將修正草案提供核能電廠試行三個月，期末再次邀集上述人員參與結案討論會並了解實施的困難、缺失及成效以進行最終修訂的依據；同時為了解試行管理計畫前後核能電廠運轉值班人員之疲勞狀況，我們參考哥本哈根疲勞問卷之基礎設計各項疲勞指數問卷提供個電廠在執行試行草案三個月前、後，分別發送參與人員進行疲勞指數調查以了解其工作相關之疲勞因素俾作為修訂疲勞管理審查導則之參考。第五階段匯集成果報告，並提供後續核能電廠制訂勞工疲勞管理計劃之審查導則。

成果：

透過本計畫之問卷分析發現運轉值班人員之主要疲勞來源為輪班工作與其衍生之睡眠障礙問題。本計畫之目的除了協助管理單位制定核能電廠人員的疲勞管理審查準則來作為未來督導核能電廠改善或預防運轉值班人員的疲勞問題之外，並應針對員工反映之輪班工作制度及睡眠剝奪問題提示透過員工參與輪班制度討論與流行病學佐證來設計審查導則作為核能電廠管理之參考以期降低該兩項因素對於疲勞管理之衝擊，從而達到預防或減少因疲勞引起的人為工安事故，提升職場安全。

關鍵詞：適職方案，疲勞管理，核能電廠

Abstract

Background:

Not only Chernobyl and Three-Miles Island nuclear disasters but also the ATC negligence happening at the Reno airport in 2011 occurred in the early morning. Since most people usually dozed off and felt tired in the early morning, fatigue was thought to be an important factor which should not be ignored anymore. More and more researchers believed that overwork was the major cause of unpredictable disaster at the workplace. Guideline to prevent from fatigue at the workplace seems to be important.

Material and Methods:

According to the fitness rule (10CFR26) of US Nuclear Regulatory Commission, this study tried to set up a guideline for management of fatigue in staffs on duty at the nuclear power plants. We also search the relative norms carried out in other countries or regions such as EU and Japan. Five steps were performed from January 1, 2013 to March 31, 2014. The first step was to collect relative research data as references and compile the draft of guideline after convening the research meeting. The members attending the research meeting included the program director, experts, management staffs of the nuclear power plants, and the representative of workers. The background and goal of this research was introduced on the conference. The second step was to perform a field visit for collecting the present policy supervising fatigue of workers at the nuclear power plants. The researchers tried to know what the management staffs need and what they were looking forward to. Another research conference was convened at the third stage to modify the draft after field visit. All members participating in the previous conference were invited. At this stage, all the relative issues were discussed thoroughly in the research conference. The forth step was to carry out the modified draft at the nuclear power plants for 3 months. The strait during this period, the inconvenience or difficult of execution, and the defect noted after administrating the draft of guideline were circulated and discussed, and the final version of guideline was made accordingly. During this period, we offered questionnaires to collect factors of personal fatigue in enrolled workers. Participants were encouraged to fill out the questionnaires anonymously before and after the draft

of guideline was administrated. According to the results of self-reported factors of fatigue in questionnaires, we could take into consider for composing the content of guideline. At the end stage of this research, the guideline and research results were offered to the management staffs of nuclear power plants. The guideline will be able to be quoted for formulating the new policy of fatigue management at each nuclear power plant in the future.

Expected Results:

This plan found shift work and difficulty of falling asleep were major issues the workers. Both shift work and sleep problem were also taken into account when we intended the final guideline of fatigue control. The implementation of management policy was expected to prevent from the occurrence of disasters induced by human negligence related to fatigue at the nuclear power plants.

Keywords: fitness rule, management of fatigue, nuclear power

I. 前言

自核能電廠商業運轉以來，核能安全一直是被大眾關注的重要議題，因為核能運用的歷史比起傳統火力發電來得短，在管理經驗上仍有待與時俱進來加以改善。歷史上曾經發生的重大核能電廠意外災害有蘇聯車諾比電廠核災、美國三哩島核能電廠意外以及日本福島核能電廠輻射外洩事件。另外針對一項對於航空管制人員的工作調查也發現，負責全美飛行安全及空中交通的聯邦航空管理局(FAA)的內部資料顯示，全美 15,475 名航管員中，有 3,404 人每 2 星期就須輪值一次夜班勤務，經常須負責夜半疲勞勤務的人，超過 20%。航管人員的「疲勞」，已經危及須維持 24 小時的航空系統運作。美國國家運輸安全委員會指出「人員過勞早已是飛安的長期問題，航管局不該拿航管員在工作中睡覺當藉口，掩蓋這些沒有調整到最安全狀態的工作表的行政疏失。」。過去的研究發現工作疲勞會導致工作思考力及工作成效下降，同時也會使工作時發生失誤的機率增加，間接使得發生工作危害的風險上升。[1-7]從前述兩件重大的核安意外事件與關係著公眾生命安全的航空運輸業航管人員所發生的工作疏失來看，它們具有一個共同的特點---事故發生時間都是在凌晨，也就是一般人的休眠時段內發生。從這個角度來看，操作人員的疲累或許是造成意外發生的原因之一，而其中還涉及管理階層對於疲勞管理的輕忽。美國核子管制委員會(Nuclear Regulatory Commission)在核能法規 10CFR26 適職方案中第 I 節增訂疲勞管理要求，並訂定法規指引 5.73。

本研究是以美國核子管制委員會(Nuclear Regulatory Commission)核能法規 10CFR26 適職方案中對於核能設備操作人員的疲勞管理精神為主要的準則，參酌航空及運輸業對於疲勞駕駛的相關研究及行政院勞工委員會制訂的職業促發腦血管及心臟疾病（外傷導致者除外）之認定參考指引來研擬『疲勞管理計畫審查導則』以供經營者對於勞工制訂妥善的勞工疲勞管理計畫所依循。主要的施行對象為隸屬台灣電力公司的三大核能電廠，

本計劃之實施預計自民國 102 年元月至民國 103 年 3 月 31 日止進行為期一年三個月的職場疲勞管理計畫審查準則研究，分為五步驟進行提供第二次修訂疲勞管理審查導則版本作為後續核能電廠制訂勞工疲勞管理計畫之依循參考。

II. 主要內容

研究目的

本研究目的為透過國內外資料收集、專家與核能電廠經營者、勞工及學界的討論溝通，參照國內現行的職場過勞風險評估以及在核能電廠試行疲勞管理計畫的結果來建立疲勞管理計畫審查導則以供核能電廠經營管理者建立妥善的疲勞管理計畫之依循。

研究方法

本案研究目的是以美國核子管制委員會(Nuclear Regulatory Commission)核能法規 10CFR26 適職方案為主要參考依據，並參酌航空及運輸業對於疲勞駕駛的相關研究及行政院勞工委員會制訂的職業性腦心血管疾病認定參考指引來研擬可提供核能電廠在未來制定勞工疲勞管理計畫所需之「疲勞管理計畫審查導則」。

一、研究期間：

民國 102 年元月 1 日至民國 103 年 3 月 31 日。

二、研究對象：

台灣三大核能電廠值班經理、值班主任、反應器運轉專員、反應器附屬設備、運轉專員、反應器廠房 EO、汽機廠房 EO、機電助理、開關廠值班人員、廢料值班人員、及其他(含：海淡運轉員、泵室值班人員、電氣值班人員、電氣主任)。

三、實施方法：

本研究之推展分五階段實施---

(1) 籌備期：

1. 收集國內外核能電廠及交通運輸產業對於勞工疲勞管理的研究或法令資料為參考依據：

資料收集主要涵蓋美國、歐盟、日本及台灣的相關研究資料，同時納入行政院勞動部所制訂的職業促發腦血管及心臟疾病（外傷導致者除外）之認定參考指引綜合考量過勞指標項目與規範。[8]

2. 拜會台灣電力公司勞工安全管理部門：

行文台灣電力公司勞工安全管理部門取得拜會相關部門之機會以說明本計劃之研究目的並安排研究人員到三大核能電廠訪視之後續行程;透過本階段訪視對話確認實施疲勞管理計畫的研究對象(員工)。

3. 召集專家委員會制訂「疲勞管理計畫審查導則」草案：

邀請中華民國環境職業醫學會職業性過勞研究之醫師專家或勞工安全衛生研究所專家共同針對收集之國內外研究文獻及法規案例草擬「疲勞管理計畫審查導則」草案，草案內容應針對重點評核項目訂定各個單項之客觀標準以供初次訪視電廠時提供管理部門參酌與進一步之建議；本草案參酌美國核子管制委員會(Nuclear Regulatory Commission)核能法規 10CFR26 適職方案及收集日本與歐盟之相關規範內容，主要的目的是確保核能電廠員工被確信能正常地完成工作任務、透過適當的預警管理模式找出潛在無法適任原來工作的

員工並且打造一個沒有藥物影響(如：成癮藥物或足以影響工作效率之藥物作用)的工作環境。

疲勞管理需涵蓋之重點[8-13]---

A. 考量 24 小時輪班對於生理節律性的影響與工作專注力和工作效率的影響程度。

B. 工作人員的例行藥物及酒精檢測、通報與追蹤機制。

C. 歷經一連串睡眠-甦醒週期中，未獲得完整的休息狀態導致疲勞累積程度--疲勞之認定應以「足以影響工作上的判斷認知能力及工作活動能力」為界定標準。

D. 輪班制度與工時的規範

E. 適當的休息安排

F. 工作時數(工時)評估與檢討機制

G. 禁酒規範：在上班以前 5 個小時內不得飲酒。

H. 規範與評估任何可能影響工作人員疲勞、神智或疾病狀態的因子。

I. 在突發狀況下必須召回非表訂人員支援工作任務時應先評估被召回人員之狀態是否勝任被賦予的臨時任務

4. 問卷設計：

參照哥本哈根疲勞問卷量表(Copenhagen Burnout Inventory (CBI))編撰簡易評估本研究之員工「疲勞指數問卷」以為分析本研究對象建立疲勞程度指標的對照值。

(2) 現場訪視期：進行現場訪視與問題分析

1. 依序安排參訪三大核電廠行前準備作業：

提供管理階層專家會議草擬之「疲勞管理計畫審查導則」草案以供經營者參考。

2. 以座談會簡報方式向核能電廠管理階層及研究對象(反應爐操作員、維修員及安全監控人員)說明本研究的方法與目的。

3. 利用現場訪視機會進行全部研究對象的疲勞指數問卷調查，並針對主要的疲勞問題進行問題分析統計；此統計結果將可作為研究前之對照指標參考。

(3) 草案修訂期：疲勞管理審查導則草案修訂

召開第二次專家會議，針對現場訪視收集的意見反映與問題分析結果提出「疲勞管理審查導則」修訂案以備提供核能電廠試行疲勞管理計劃參考之用。

(4) 草案試行期：試行疲勞管理審查導則修訂案

將「疲勞管理審查導則」修訂案提供給三大核能電廠管理者試行導則內容對於疲勞管理項目的規範至少三個月，試行期間所遭遇的困難或發生的不可預期不良事件應予詳細記錄以便在研究末期檢討會中提供檢討與討論。

(5) 結案期：召開第三次專家討論會、結案會議與成效分析

試行期滿應召開第三次專家討論會及結案會議，需邀集專家、核能電廠管理者及勞工代表與會，必須特別針對管理者執行時遭遇的困難與被管理者對於疲勞檢測的意見進行廣泛交流，並針對期間通報發生的不良事件加以分析，綜合討論結果對於審查導則進行最終修訂

案。完成第 2 次修訂的「疲勞管理審查導則」應提供核能電廠作為未來實施內部員工疲勞管理的參考指標。結案後需再次對三大核能電廠被研究對象作第二次哥本哈根疲勞問卷量表，對比試行前後對於整體員工疲勞指數的管控成效；本研究以上述問卷分析作為實施本導則的成效指標。

III. 結果與討論

本研究之疲勞問卷調查以三大核能電廠為對象採自由參加原則，凡是符合本研究之表列人員皆可自由參加，為維持試行疲勞管理前後對比結果之可信度，只有完成前後測問卷填寫之人員可以被納入有效樣本，總計有 153 人被納入後續之問卷資料分析來源。有效樣本來源呈現明顯的差異性，三大電廠之參與率分別為 29.41%，15.03%，及 55.55%，顯然在不同的廠區對於疲勞管理的認知與參與意願有差異性存在，分析參與率較低的廠區其主要影響因素在於排拒外界對於電廠內部問題之調查可能衍生內部問題被批露之風險。受訪者中 92% 屬於必須參與輪班之工作者，絕大多數屬於固定排班輪值模式(86%)；這些受訪者中多是屬於持照人員，所以都必須定期受派接受專業認證訓練與考試來維持其工作權(91%)，而其工作內容又以重複性工作居多(94%)。從自覺疲勞症狀的因素調查發現，多數受訪者都是以「輪班」及「睡眠品質不好」為兩大主因(80%，63%)，這項結果並沒有明顯的廠區差異性。

本研究以參考美國 10CFR26 適職方案之精神進行國內核能電廠運轉值班人員之疲勞管理指導方針之擬定，有鑑於國內外輿情不同，在推動疲勞管理之大原則下，其試行的重點項目與標準有必要依據國內核能電廠的人力配置與任務分組特性參酌本土社會概況進行調整。根據現場人員提出的工作內容及問題，我們適時修訂對於疲勞管理檢核表的規範內容，以便電廠在未來作內部稽核時有實際上「務實」且「可行」的運轉人員疲勞管理機制。

一、沿襲美國核能管制委員會(nuclear regulatory commission, NRC)的疲勞管理精神，透過有效疲勞管理機制完成以下目標：

(1) 避免不合理或違法的工作分配機制造成人員無法安全或正確的執行工作任務。

(2) 為確保職場安全，執行必要的非法藥物檢測/通報以及酒測。

(3) 人員疲勞管理計畫之執行，必須以維護職場所有人員之公眾健康與安全為最高指導目標。

二、針對實行疲勞管理審查導則必須注意事項：

(1) 管理者(電廠)應該對於人員之工作任務與應該擔負之職責有明確的認知及規範。

(2) 管理者對於人員的健康狀況(含：精神狀態)、藥物使用(特別是違禁藥品或足以影響精神狀態之藥物)必須有效監督與稽核能力。

(3) 電廠執行內部健康狀況管控機制如何運作：

1. 對於所有審查導則規範之健康狀況監控項目(如：精神/注意力狀態、血壓、心跳)等資料，授權電廠制定內部稽核的警戒值。

2. 內部對於疲勞指數如何管理評估：

可以善用疲勞管理指標(如:哥本哈根疲勞指數量表)作為內部定期調查與追蹤管理成效的客觀指標依據。

(4) 所有管理與被管理者應該知道對於遵守適職方案與藥物/飲酒通報是一種「法定的義務」。

(5) 收集個人健康通報資料應符合「個資法」的規範。

(6) 有關工作時數的計算原則必須將「緊急演練/演習」等時數以但書的形式加以記錄但不合併計算在常態的工作時數範圍內加以計算。

三、睡眠剝奪問題在核能電廠運轉輪班工作者中應被重視：

根據一項探討運輸業從業人員疲勞管理的國際會議(Managing Fatigue in Transportation. Proceedings of the 3rd Fatigue in Transportation Conference)的研究報告指出透過正子發射斷層掃描(Positron Emission Tomography, PET)研究發現睡眠剝奪會降低人員的腦部組織活動性，造成人員工作的警醒能力降低。[14] 有研究發現輪班工作者容易產生疲勞相關的工作風險及慢性健康問題，該研究指出改善輪班者的睡眠品質是減少疲勞的重要議題。[15] 越來越多的科學研究證實良好的睡眠品質有助於提升工作安全，[16] 科學家也發現在處於打瞌睡或嗜睡狀態的工作人員，仍可以維持“張開雙眼”的表面清醒，實質上其腦部活動已經不足以維持工作所需的警醒或專注能力。[17] 剝奪睡眠對於工作能力的影響除了降低工作專注能力之外，對於處理異常事件的反應將變得緩慢而遲鈍，同時也會影響其學習事物的效能。[18]類似的研究也發現它會使得工作人員在面對需要重大決策的情況下無法迅速作出正確的決定，[19]但是處於睡眠剝奪狀態下的工作人員往往不自覺自己處於作出錯誤決策或工作行為的風險，反而常常自以為已經做出正確而良好的反應。[20] 有明確的證據證實，相較於常日班的工作者而言輪班小夜班或大夜班的工作意外風險會分別高出 15%及 28%。[21][22] 系統性回顧研究也發現輪班工作會導致工作人員新陳代謝的健康問題，例如：肥胖，[23] 這些人也容易出現醣類代謝及脂肪代謝的問題(高血糖、高血脂)。[24] 為了減少因為輪班工作衍生疲勞相關之工作意外，增加值班時間內的中途休息頻次是一個可行的方法。[25]

在本研究進行的問卷調查結果發現，超過一半比例的值班人員都有睡眠困擾問題，接近 8 成的受訪者表示自覺疲勞的狀況與輪班制度有關。根據我們現場訪視了解運轉值班人員在監控中心的夜班值班模式發現對於夜班人員的工作規範強調執勤期間不得有短暫睡眠休息行為。從以上各項研究發現輪值夜班不可避免會因為生理時鐘的影響產生不等程度的睡眠剝奪問題，這類問題不會因為「制度」規定不得打瞌睡而消失，反而會長期壓抑累積造成慢性疲勞問題；值得管理者注意的是即使員工已經發生睡眠剝奪產生的注意力集中障礙，管理者仍很難透過觀察是否有閉上眼睛休息等行為來早期偵測並儘早處置，事實證明即便已經發生睡眠剝奪相關的精神不濟，值班者仍可能在早期憑意志力維持雙眼打開。[17]本研究建議管理者應正視夜間值班對於輪值者產生不可避免的睡眠剝奪風險，適度允許在夜班輪值時段給予值班人員合理的休息頻次或短暫休息可以適度減少

輪值人員疲勞，避免因為疲勞導致之工作風險。

四、試行審查導則的效應分析：

本導則在各電廠試行三個月期間透過配對 T 分析各項疲勞指標發現各電廠並未因為試行疲勞管理計畫而產生額外負擔或疲勞壓力，各電廠之間的疲勞因子分析也沒有因為廠區不同而出現差異性。值得注意的是各電廠一致性以「輪班」及「睡眠品質不良」認定為最主要的疲勞來源，顯見在審查導則當中落實員工參與輪班制度制訂、定期召開檢討會議之必要性；此外管理者應該參酌流行病學調查研究，考慮給予夜班值班人員執勤中適度的休息時間。

IV. 結論

綜合以上研究結果可以看出在現行核能電廠員工自發反應之疲勞來源中以「參與輪班」及「睡眠剝奪」兩大問題為主，其他在現場訪視過程中也發現部分電廠員工因為面臨電廠設備除役壓力而產生對於未來工作權的不確定感，間接影響其工作疲勞程度。針對各項分析結果我們提供以下建議作為管理者參考---

(1) 認知睡眠剝奪問題是生理現象中不可避免的一環，對於夜班值班人員因輪班模式產生的睡眠剝奪現象應該予以正視。是否考量在夜班執勤期間給予合理之中途休息(休眠)次數。[25]

(2) 各執行單位(電廠)對於生理健康指標之管理與監督，是否由原能會統一制訂警戒值標準或授權由個別執行單位自行制訂？如果授權由個別電廠制訂警戒值，建議請各電廠之駐廠醫師協助擬訂對應之應變計畫(標準流程)以達到完整的疲勞健康管理成效。

(3) 建議原能會針對個資法規範之相關內容擬訂相關之疲勞管理法規以供依循，免除因執行個人健康資料管控抵觸個資法規範之困擾。

(4) 為評估疲勞管理成效，建議定期(每年)進行年度疲勞指標分析對比不同年度之疲勞指數變化；其評估工具可運用一般之疲勞調查量表(例如：哥本哈根疲勞指數量表)[11]。

(5) 應鼓勵各電廠邀請內部駐廠醫師參與疲勞管理計畫的規劃與執行。

參考文獻

- [1] M, B., et al., Slow release caffeine and prolonged (64-h) continuous wakefulness: effects on vigilance and cognitive performance. J Sleep Res. 2001, 10: 265-276.
- [2] HR, L., et al., Effects of caffeine, sleep loss, and stress on cognitive performance and mood during U.S. Navy SEAL training. Sea - air - land. Psychopharmacology. 2002, 164: 250-261.
- [3] Y, H. and H. JA, The impact of sleep deprivation on decision making: a review. J Exp Psychol Appl. 2000, 6: 236-249.

- [4] DF, D., et al., Cumulative sleepiness, mood disturbance, and psychomotor vigilance performance decrements during a week of sleep restricted to 4 – 5 hours per night. *Sleep*. 1997, 20: 267-277.
- [5] PH, G., et al., Hours of work and fatigue-related error: a survey of New Zealand anaesthetists. *Anaesth Intensive Care*. 2000, 28: 178-183.
- [6] DE, N., S. SA, and D. CA, Simulated sustained flight operations and performance. Part 1. Effects of fatigue. *Mil Psychol*. 1992, 4: 137-155.
- [7] T., A.k.. Consensus statement: fatigue and accidents in transport operations. *J Sleep Res*. 2000, 395.
- [8] 職業促進腦血管及心臟疾病（外傷導致者除外）之認定參考指引，行政院勞工委員會。
- [9] FITNESS FOR DUTY PROGRAMS 10CFR part 26, U.S. Nuclear Regulatory Commission.
- [10] 梁筠翎 民航駕駛疲勞之研究. 2006.
- [11] 哥本哈根疲勞量表 Copenhagen Burnout Inventory CBI). Available from: <http://www.up.ac.za/hrresearch/index.php?sid=59675&lang=en>.
- [12] A. J. Belyavin and M. B. Spencer. Modeling Performance and Alertness: The QinetiQ Approach. *Aviation, Space, and Environmental Medicine*. 2004, 75: A93 – 103.
- [13] Dawson, D. and K. McCulloch, Managing fatigue: It's about sleep. *Sleep medicine reviews*. 2005, 9: 365-80.
- [14] Belenky, G, Balkin, T J, Redmond, D P, Sing, H C, Thomas, M L, Thorne, D R, Wesensten, N J. (1998) Managing Fatigue in Transportation. Proceedings of the 3rd Fatigue in Transportation Conference.
- [15] Caruso CC. Negative impacts of shiftwork and long work hours. *Rehabil Nurs*. 2014, 39(1):16-25.
- [16] Everson, C.A. (2009). Comparative research approaches to discovering the biomedical implications of sleep loss and sleep recovery. In C.J. Amlaner, D. Phil and P.M. Fuller (Eds.), *Basics of Sleep Guide*, 2nd ed. (pp. 237 – 248). Westchester, IL: Sleep Research Society.
- [17] Boyle, L.N., Tippin, J., Paul, A., & Rizzo, M. (2008). Driver performance in the moments surrounding a microsleep. *Transportation Research Part F: Traffic Psychology and Behaviour*, 11, 126 – 136.
- [18] Goel, N., Rao, H., Durmer, J.S., & Dinges, D.F. (2009). Neurocognitive consequences of sleep deprivation. *Seminars in Neurology*, 29, 320 – 33.
- [19] Killgore, W.D., Grugle, N.L., & Balkin, T.J. Gambling when sleep deprived: don't bet on stimulants. *Chronobiology International*. 2012, 29: 43 – 54.
- [20] Van Dongen, H.P., Maislin, G., Mullington, J.M., & Dinges, D.F. The cumulative cost of additional wakefulness: dose-response effects on neurobehavioral functions and sleep physiology from chronic sleep restriction and total sleep deprivation. *Sleep*. 2003, 26: 117 – 126.
- [21] Folkard, S., & Lombardi, D.A. Modeling the impact of the components of long work hours on injuries and “accidents.” *American Journal of Industrial Medicine*. 2006, 49: 953 – 963.
- [22] Dembe, A.E., Erickson, J.B., Delbos, R.G., & Banks, S.M. The impact of overtime and long work hours on occupational injuries and illnesses: new evidence from the United States. *Occupational and Environmental Medicine*. 2005, 62: 588 – 597.
- [23] Antunes, L.C., Levandovski, R., Dantas, G., Caumo, W., & Hidalgo, M.P. Obesity and shift work: chronobiological aspects. *Nutrition Research Reviews*. 2010, 23: 155 – 168.
- [24] Spiegel, K., Tasali, E., Leproult, R., & Van Cauter, E. Effects of poor and short sleep on glucose metabolism and obesity risk. *Nature Reviews Endocrinology*. 2009, 5: 253 – 261.
- [25] Claire C. Caruso. Negative Impacts of Shiftwork and Long Work Hours. *Rehabilitation Nursing*. 2014, 39(1): 16 – 25.

動態應變時效對冷作加工鎳基合金於模擬 BWR 水質之劣化行為研究

Effect of cold work on the DSA behavior of Inconel 600 alloy in simulated BWR coolant environments

計畫編號：NSC102-NU-E-007-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：喻冀平

e-mail: gpyu@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：黃郁婷 杜建甫 黃俊源 黃嘉宏

執行單位：核子工程與科學研究所

摘要

本研究探討不同冷加工量之 Inconel 600 鎳基合金於高溫溶氧水環路中的動態應變時效(Dynamic Strain Aging, 簡稱 DSA)現象, 與 DSA 對材料機械性質之影響, 並利用於應力-應變曲線中呈現的鋸齒流(Serrated Flow)兩種特徵, 分別是應力增加量(Stress increment, $\Delta\sigma$)和時效時間(Aging time, Δt)討論溫度及冷加工量對 DSA 現象的影響。藉由慢速率拉伸試驗獲得於固定應變速率 $10^{-6}/s$ 下, 不同試驗溫度 (200、250、275 及 300°C) 之溶氧水環路的應力-應變曲線。拉伸試棒則以在常溫下軋軋(Rolling)方式將合金板材冷加工至 10%、20%、30% CW 後再以機械加工而成, 且一律採用垂直軋軋之方向(Transverse direction)進行試驗。本實驗選擇的試驗環境主要是為了模擬沸水式反應器(BWR)之高溫高壓溶氧水環路, 以取得冷加工 Inconel 600 鎳基合金組件於該水環境下發生劣化的可能性與發生機制之相關訊息。機械性質方面, 隨冷加工量愈低, 差排增生能力上升, 但強度仍受加工硬化制約。於 200°C 出現伸長率最小值, 但截面縮減率最大值, 且應變硬化指數最小值, 有提早頸縮現象, 此即為 DSA 典型特徵—藍脆現象。此外, $\Delta\sigma$ 和 Δt 的研究結果指出, 30% CW 於 200°C 時, $\Delta\sigma$ 和 Δt 隨應變量增加有顯著地上升, 即顯示出鎳基合金 600 於小幅變形量下溶質原子與差排間的交互作用最為劇烈。因此, 30% CW 鎳基合金 600 於 200°C 之溶氧水環路下塑性變形時所出現的 DSA 現象將最不利於鎳基合金 600 的機械性質。

關鍵詞: 動態應變時效、慢速率拉伸試驗、Inconel 600、冷加工、藍脆。

Abstract

The slow strain rate tensile (SSRT) tests were conducted on the cold-rolled Inconel 600 alloy with different amounts of cold work (CW), 10%, 20% and 30% respectively at a nominal strain rate $1 \times 10^{-6}/s$ in simulated BWR coolant environment. The dynamic strain aging (DSA) behavior at 200, 250, 275 and 300 °C was studied by two characteristics of serrations, stress increment ($\Delta\sigma$) and aging time (Δt), except for the observation of mechanical properties. Serrated flow was observed in all stress-strain curves which was one of the DSA manifestations. For the

SSRT tests at 200°C, except the curve for the 10% CW Alloy 600 showed a combination of A-, B- and C- type serrations, type A+B serrations were observed for the as-received, 20% CW and 30% CW Alloy 600. Type B serrations were observed for those tested at the temperatures range of 250°C-300°C.

At 200°C, the cold-rolled Alloy 600 showed a minimum elongation, but a maximum the reduction of area, and a minimum strain hardening exponent. These results showed the “blue brittleness” feature and could be accounted for by the localized deformation induced by DSA effect. Moreover, the stress increment ($\Delta\sigma$) and aging time (Δt) significantly increased with increasing strain for the 30% CW Alloy 600 tested at 200°C, it could be concluded that the interactions between solute atoms and dislocations in oxygenated water environment exacerbated the mechanical properties most.

Keywords: Dynamic strain aging (DSA); Inconel 600; hydrogen water chemistry; cold work; slow strain rate tensile test (SSRT).

I. Introduction

A nickel-based alloy, Inconel 600, is a substitutional solid solution alloy which has been widely used for the components of boiling water reactors (BWR) and pressurized water reactor (PWR) in high temperature and pressure water environment owing to its good mechanical properties and the elevated-temperature corrosion resistance. However, with the growth of nuclear power plant operation, in several cases it has so far been observed cracks in steam generator tubes and reactor pressure vessel head penetrations which were made by Alloy 600. The reason causing the degradation appears to be due to the fact that the components immersed in oxidizing water with high temperature and pressure for a long time may threaten the system reliability. It is noteworthy that the BWR coolant system, which is more oxidized compared to PWRs, was originally designed as a pure-water single-loop cycle without chemical addition. Therefore, BWRs have been more troubled by corrosion problems. Consequently, the study of the degradation of nuclear materials in the simulated BWRs or PWRs coolant environment so far has been an issue in the academic and industrial field.

Currently it has been observed in many engineering alloys used in the nuclear power industry the serrated

yielding phenomenon in the stress-strain curve, which is attributed to DSA that may affect their deformation mechanism [1-4]. In recent years, studies concerning DSA have mostly been focused on the austenitic stainless steels, particularly AIS 316L stainless steel [5-7]; and some studies have been conducted on nickel-based alloys [8-12]. In the first DSA model [13], Cottrell's solute dragging model, it has been proposed that the solute atoms segregate to form atmospheres around the mobile dislocations, and then the solute atmospheres immediately drag the dislocations down when the velocity of dislocation approximately equals to the drift velocity of solute atoms in the stress field of dislocations. At this time, it requires more force for the dislocations to break away from these atmospheres to advance in the slip path. However, this model could not completely account for the whole the mechanism of DSA, although the Cottrell's model is the most frequently adopted model in the studies of strain aging phenomenon. Therefore, there are still some models with different concepts, such as the "arrest model [14, 15]" and "pair reorientation model [16]".

According to previous works, it has been reported that, besides the serrated yielding, there are various manifestations of DSA, such as work hardening, negative strain rate sensitivity and the minimum of ductility, which occur in the region of DSA [17]. The manifestations depend on chemical composition, test temperature, strain rate, grain size and prior deformation. Although these studies have provided much valuable information on the relationship between various factors and manifestations of DSA, there are still some factors that have not yet been explored. The present thesis describes an empirical study that has investigated the effect of the process of Alloy 600 being cold-rolled on the DSA phenomenon in oxygenated water environments at the elevated temperatures. We have tested three different amounts of cold work for determining whether higher dislocation density can be used to enhance the serrated flow, and how the DSA affects deformation process. Our results may help understand the degradation mechanism of the reactor components which have been used in simulated BWR conditions.

II. Experiments

In this study, all experimental specimens obtained from Boddycote plc.® were mill-annealed (1.03 hours at 843 °C) for stress relief with the nominal chemical compositions of the nickel based Inconel 600 alloy, shown in Table 1. Three amounts of cold work were obtained by cold rolling with multi-passes at different deformation ratios (10% 、 20% and 30%). The percentage of cold work is calculated by the following equation:

$$CW\% = (t_0 - t_1) / t_1 \times 100\% \quad (1)$$

where t_0 is the specimen thickness before rolling, and t_1 is the specimen thickness after rolling. The plate specimens with the dimensions (length×width×thickness) 152.4×76.2×16.5 mm 、 152.4×76.2×18 mm 、 152.4×76.2×19.5 mm for starting materials were machined and cold rolled along the longitudinal direction to control the

specimens with the same thickness (15 mm), which was associated with 10 、 20 and 30% CW respectively.

The tensile tests were performed slow strain rate tensile (SSRT) test at 200, 250, 275 and 300 °C in oxygenated water environment (dissolved oxygen ≈ 7 ppm) with constant slow strain rate (10^{-6} s^{-1}). The specimens were machined with their axes in the transverse (T) direction, which is perpendicular to the rolling direction.

Scanning electron microscopy (SEM) and electron probe X-ray micro-analyzer (EPMA), in addition to Optical metallography (OM), are used to investigate microstructures of the cross sections of the samples, especially for quantitative chemical analysis of the precipitates. Hardness (Vickers) measurements were made to monitor the different amount of cold rolling response to hardness distribution with through-thickness. °

III. Results and discussion

3.1 Microstructural characterization

The coarse column-like grains surrounded by small grains and many annealing twins in the small grains were observed in the metallograph of the as-received specimen, as shown in Fig.1 (a). The possible reason for coarse grains is the forging was not deep enough to left the columnar grains after casting. The precipitates distributed either in the grains or at the grain boundaries, but mostly they discontinuously appeared at the grain boundaries. The component of grain boundaries precipitates was chromium carbide (Cr_{23}C_6) which measured by EPMA-WDX quantitative analysis

The grain size became homogeneous after cold rolling, in other words, the more amount of cold work specimen was done, the smaller difference between the mean values of maximum and minimum grain size it had, as shown in Fig.2. The carbide-banded region is the other different feature from the microstructure of as-received Alloy 600 (Fig.1). The carbide-banded region was spread along the rolling direction and the carbide was also in form of Cr_{23}C_6 , so it can be conjectured that the carbide-banded region resulted from the precipitates which distributed in as-received specimens will be distorted in the principal working direction. Owing to Cr_{23}C_6 precipitates are harder and brittle than the matrix, they would be broken into fragment which should be oriented parallel to the rolling direction during cold working.

Due to the carbides particle size became smaller and more carbide fragment dispersed after rolling, the effective distance between two adjacent precipitates decrease. In principle, the stress necessary for dislocation to loop around precipitates should increase with decreasing particle size. However, the strain hardening exponent of 30% CW Alloy 600 was not the highest, instead of the lowest one. Consequently, the change of carbide dispersion during cold rolling does not affect the strain hardening, and it should be unconcerned with DSA behavior in Alloy 600.

3.2 Hardness distribution of cold-rolled Alloy 600

For the hardness distribution in thickness direction (Fig.3), the main factor affecting the hardness is work

hardening which is strengthening of a metal by plastic deformation. The trend of decreasing hardness was observed in the center of thickness of 10% and 20% CW specimens, resulting from the reduction of thickness per pass during multi-pass cold rolling was too large to affect through the whole thickness. It also means that the distribution of dislocations is non-uniform in 10% and 20% CW specimens. But, for the 30% CW specimen, the number of rolling passes was enough to influence the entire thickness of cold-rolled specimen, so the hardness distributed uniformly in the thickness direction.

In the previous works [9, 18], type A+B serrations can be commonly observed in Alloy 600 which tested in air at 200°C (with 10^{-4} s^{-1} and 10^{-5} s^{-1} strain rate), while type C serrations occur only under the condition of higher temperatures and/or lower strain rates (compared to the temperature and strain rate under which type A and B typically occur). Our results show that, under the condition of 10% CW Alloy 600 at 200°C with 10^{-6} s^{-1} strain rate, all the three types (type A, B and C) have been observed throughout the tensile test (Fig.4 (b)). Beside, the periodicity of the observed type C serrations is similar to that of type A serrations, and its frequency is very low compared to the type B serrations. However, type C serrations disappear in the stress-strain curves of as-received, 20% and 30% CW Alloy 600, as shown in Fig.4 (a),(c) and (d). It can be inferred that type C serrations was attributed to the dislocation densities of 10% CW Alloy 600 are highly non-uniformed, which results in the dislocations being multiplied in the low-density part early compared with those in places with higher densities. Moreover, generated dislocations (in low-density part) which moving faster than the original dislocations (in high-density part) that existed before tensile test.

Therefore, type C serrations occur when a mass of the generated dislocations are being produced, and then these dislocations will gradually be dragged by solute atoms which originally aged the rest of slow moving dislocations.

Another results show that the localized hardening which was attributed to the carbides dispersion in cold-rolled Alloy 600. However, Fig.3 shows that, although the values of hardness in the carbide-band regions were higher than those in the normal region, there are similar tendencies of hardness along the thickness in three amounts of cold working specimens. Therefore, the results would be suggested that the primary hardening mechanism is work hardening.

3.3 Effect of DSA on mechanical properties of Alloy 600

The results of yield strength and ultimate tensile strength for different amount of cold work Alloy 600 (Fig.5 (a) and (b)) clearly show that, both of them were confined by work hardening resulted from the incipient states of dislocation density before SSRT test. Although the strain hardening exponent of 10% CW Alloy 600 is the highest compared with that of the others (Fig.5 (c)), after the specimens was tested in the range of temperature from 200 °C to 300°C, the value of ultimate tensile strength is still the smallest, namely, the dislocation density of 10% CW

still cannot exceed that of 20% and 30% CW specimens before necking.

It is worth mentioning that the temperature dependence of elongation (EL%) and reduction of area (RA%) for the cold-rolled Alloy 600 in Fig.6. There is the contrary tendency to each other with temperature. At 200°C, the value of EL% is a minimum, but the value of RA% is a maximum. Especially, the EL% and RA% of 30% CW Alloy 600 at 200°C differs the most greatly from each other compared with 10% and 20% CW Alloy 600. It reveals clearly that the all CW% specimens were appeared blue brittleness phenomenon in the range of temperature from 200°C to 300°C, but the blue brittleness occurred when 30%CW specimen plastic deformed at 200°C in particular was the most serious

3.4 Effect of the amount of cold work on DSA behavior

Investigations of serrated flow in substitutional alloys usually emphasize the critical plastic strain (ε_c) for the onset of serrations which is required for the initiation of serrations [19]. However, for the cold-rolled Alloy 600, ε_c cannot be clearly observed in the stress-strain curves. Therefore, it could be suggested that two other characteristics of serrations can be used to investigate the effect of the amount of cold work and temperature, namely, stress increment ($\Delta\sigma$) and aging time (Δt), during the period between the time when the mobile dislocations start to be dragged by solute atmospheres and the time when they start to escape. We will try to give a more precise account of the amount of cold work and temperature dependences of $\Delta\sigma$ and Δt for which their definition are shown in Fig.7.

The values of Δt and $\Delta\sigma$ for type A serrations (open symbols) are clearly higher than for type B serrations (closed symbols), as shown in Fig.8. It can be attributed that, type A serrations are associated with the moving of the generated dislocations; type B serrations are connected with the motion of the original dislocations. Because of the moving velocities of the generated dislocations are higher, and the dissociation width for partials of generated dislocations is also wider, which are compared with the original dislocations, the solute atom need more time to diffuse and segregate toward the stacking faults. Furthermore, the number of solute atoms segregated at a stacking fault of the generated one is also more than that of the original one. It was also found the results that whether the serrations was type A or B, the slopes in $\Delta\sigma - \varepsilon$ and $\Delta t - \varepsilon$ curves of any constant amount of cold work Alloy 600 were similar. It is quite likely that both types A and B serrations are activated by the same process.

The slopes of 30% CW Alloy 600 in both $\Delta\sigma - \varepsilon$ and $\Delta t - \varepsilon$ curves were significantly more positive than those of 10% and 20% CW Alloy 600. On the other hand, at 200°C the DSA behavior of 30% CW Alloy 600 was closely dependent on strain, but that of 10% and 20% CW Alloy 600 was almost independent on strain. It can be explained by the mass dislocations multiplication with very little deformation, resulted from numerous other

dislocations that intersect it at various angles, that is, dense dislocation forest, and then it will provide a lot of pinned points of dislocations sources for dislocations multiplication in a slip plane under shear stress. What is more, under this condition with a lower test temperature, it brought about a slower diffusion rate of solute atom.

Despite the solute atoms diffuse slower than the rest of studied temperature in our research, the distance of mobile dislocations between each other become quickly shorter and shorter during plastic deformation, and the displacement which solute atoms need to diffuse into the stress fields of (edge) dislocations and/or the stacking faults of extended dislocations (namely, "Suzuki segregation" [20]) also become shorter. Therefore, $\Delta\sigma$ and Δt increase with strain due to increasing number of aged dislocations and these dislocations are difficult to break away from solute atmospheres.

3.5 Effect of temperature on DSA behavior

We shall discuss the temperature and strain dependences of $\Delta\sigma$ (Fig.9) and Δt (Fig.10) only for type B serrations of 10%, 20% and 30% CW Alloy 600, as a result of type B serrations observed in the stress-strain curves at all studied test temperatures (200, 250, 275 and 300 °C), and type A serrations only occur at 200 °C. Although the temperature range from 200 °C to 300 °C is in the DSA range, there was still a difference point can be found in each test temperature with small intervals in this range.

The values of $\Delta\sigma$ and Δt for the cold-rolled specimens tested at 200 °C are the smallest. It can be suggested that, the mixed type serrations (A+B or A+B+C) was observed at 200 °C which was distinct from at the other three temperatures. When type A serrations occur at 200 °C, mostly solute atoms tend to diffuse into the stress field of generated dislocation and/or the stacking fault of extended dislocation. Therefore, the number of solute atoms which resulted in the occurrence of type B becomes fewer, and the drag force decreases. However, the cold-rolled Alloy 600 deformed at 250, 275 and 300 °C, only type B serrations were observed in their stress-strain curves, and the values of $\Delta\sigma$ and Δt tend to increase with increasing temperature. It should be considered that, the diffusion rate are enough for solute atoms to fully diffuse into the stress field of (edge) dislocations and/or segregate toward the stacking faults of extended dislocations. Then, the segregation of solute atoms to the stacking faults becomes more and more substantial with increasing temperature. Hence the drag force resulted from the segregation of solute atoms increases, this result can be reflected on a rise in the stress increment ($\Delta\sigma$), and then the dislocations need more time to break out of solute atmospheres, that is, the delay of aging time (Δt).

IV. Conclusion

(1) DSA occurs in the cold-rolled (10%, 20%, and 30% CW) Ni-base Alloy 600 which was conducted in

oxygenated water at constant strain rate (10⁻⁶ s⁻¹) in the temperature range of 200 °C -300 °C.

(2) The types of serrations were determined by the test temperature, the amount of cold work and the distribution of dislocation densities in the cold-rolled Alloy 600 at a constant strain rate. At 200 °C, it has been found that the mixed type A-, B- and C- serrations occur in 10% CW Alloy 600. However, type C serrations disappear in as-received, 20% and 30% CW Alloy 600; namely, type A- and B- serrations maintain in the stress-strain curves. Therefore, the occurrence of type C serrations in 10% CW Alloy 600 tensile tested at 200 °C was associated with non-uniformed distribution of dislocation densities. At the temperature from 250 °C to 300 °C, only type B serrations occur in these three amounts of cold-working.

(3) The results of mechanical properties suggested that, the strength was confined by work hardening resulted from the original dislocation density which was obtained before SSRT test. However, from the amount of cold work and temperature dependence of the strain hardening exponent, we can conclude that the strain hardening exponent of the cold-rolled Alloy 600 is notably affected by DSA.

(4) In the range of temperature from 200 °C to 300 °C, EL % had a minimum; and RA % had a maximum at 200 °C. Especially, the values of EL% and RA% of 30% CW Alloy 600 tested at 200 °C differs the most greatly from each other compared with 10% and 20% CW Alloy 600. It is concluded that, the phenomenon of blue brittleness occurred in the cold-rolled Alloy 600, and the most serious blue brittleness appeared in 30% CW Alloy 600 deformed at 200 °C.

(5) Both type A serrations and type B serrations are activated by the same process. Only for 30% CW Alloy 600, the stress increment and aging time at 200 °C are closely dependent on strain. Therefore, it is reasonable to conclude that the interactions between solute atoms and dislocations at 200 °C in 30% CW alloy had the most harmful impact on the mechanical properties.

References

- [1]R. Mohan and C. Marschall, "Cracking instabilities in a low-carbon steel susceptible to dynamic strain aging," *Acta Materialia*, vol. 46, pp. 1933-1948, 1998.
- [2]A. A. Marengo and J. E. Perez Ipiña, "Pressure vessel steel fracture toughness in the regime from room temperature to 400 °C," *Nuclear engineering and design*, vol. 167, pp. 215-222, 1996.
- [3]K. Bhanu Sankara Rao, S. Kalluri, G. R. Halford, and M. A. McGaw, "Serrated flow and deformation substructure at room temperature in Inconel 718 superalloy during strain controlled fatigue," *Scripta metallurgica et materialia*, vol. 32, pp. 493-498, 1995.
- [4]I. Kim and S. Kang, "Dynamic strain aging in SA508-class 3 pressure vessel steel," *International journal of pressure vessels and piping*, vol. 62, pp. 123-129, 1995.
- [5]V. Srinivasan, R. Sandhya, M. Valsan, K. Bhanu Sankara Rao, and S. Mannan, "Comparative evaluation of strain controlled low cycle fatigue behaviour of solution

annealed and prior cold worked 316L (N) stainless steel," *International journal of fatigue*, vol. 26, pp. 1295-1302, 2004.

[6]W. Karlsen, M. Ivanchenko, U. Ehrnstén, Y. Yagodzinskyy, and H. Hänninen, "Microstructural manifestation of dynamic strain aging in AISI 316 stainless steel," *Journal of nuclear materials*, vol. 395, pp. 156-161, 2009.

[7]S. G. Hong and S. B. Lee, "Mechanism of dynamic strain aging and characterization of its effect on the low-cycle fatigue behavior in type 316L stainless steel," *Journal of nuclear materials*, vol. 340, pp. 307-314, 2005.

[8]K. Gopinath, A. Gogia, S. Kamat, and U. Ramamurty, "Dynamic strain ageing in Ni-base superalloy 720Li," *Acta Materialia*, vol. 57, pp. 1243-1253, 2009.

[9]H. Hänninen, M. Ivanchenko, Y. Yagodzinskyy, V. Nevdacha, U. Ehrnstén, and P. Aaltonen, "Dynamic Strain Aging of Ni-base Alloys Inconel 600 and 690," 2005.

[10] C. Hale, W. Rollings, and M. Weaver, "Activation energy calculations for discontinuous yielding in Inconel 718SPF," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 300, pp. 153-164, 2001.

[11] I. S. Kim and M. Chaturvedi, "Serrated flow in Inconel 625," *Trans. Jpn. Inst. Met.*, vol. 28, pp. 205-212, 1987.

[12] R. Mulford and U. Kocks, "New observations on the mechanisms of dynamic strain aging and of jerky flow," *Acta Metallurgica*, vol. 27, pp. 1125-1134, 1979.

[13] A. Cottrell, "LXXXVI. A note on the Portevin-Le Chatelier effect," *Philosophical Magazine*, vol. 44, pp. 829-832, 1953.

[14] A. Van den Beukel, "Theory of the effect of dynamic strain aging on mechanical properties," *Physica status solidi (a)*, vol. 30, pp. 197-206, 1975.

[15] P. G. McCormick, "A model for the Portevin-Le Chatelier effect in substitutional alloys," *Acta Metallurgica*, vol. 20, pp. 351-354, 1972.

[16] K. Rose and S. Gloverj, "A study of strain-ageing in austenite," *Acta Metallurgica*, vol. 14, pp. 1505-1516, 1966.

[17] P. Rodriguez, "Serrated plastic flow," *Bulletin of Materials Science*, vol. 6, pp. 653-663, 1984.

[18] S. H. Hong, H. Y. Kim, J. S. Jang, and I. H. Kuk, "Dynamic strain aging behavior of Inconel 600 alloy," *Superalloys 1996*, pp. 401-407, 1996.

[19] A. Van Den Beukel, "On the mechanism of serrated yielding and dynamic strain ageing," *Acta Metallurgica*, vol. 28, pp. 965-969, 1980.

[20] H. Suzuki, "Chemical interaction of solute atoms with dislocations," 1952.

Captions of figures

Fig. 1 The optical micrographs (x200 magnification) of (a) as-received and (b) 10%; (c) 20%; (d) 30% cold-rolled Alloy 600 at the transverse, longitudinal and short transverse (T-L-S) directions. (Red arrows indicate carbide-banded region.)

Fig.2 Effect of percentage cold working (CW) on the mean values of maximum and minimum grain size in the different directions (T, L and S directions).

Fig.3 (a) Vickers hardness measurement points ($\emptyset$ gauge: the diameter of gauge); (b) the distribution of Vickers hardness in the thickness direction of the cold-rolled Alloy 600 plates.

Fig.4 The serrated flow in the stress-strain curves for (a) as-received, (b) 10%, (c) 20% and (d) 30% CW Alloy 600 tested at 200°C and at a constant strain rate (10^{-6} s^{-1}).

Fig.5 The temperature dependence of (a) yield strength, (b) ultimate tensile strength and (c) strain hardening exponent of cold-rolled (10、20、30% CW) Alloy 600 obtained at the strain rate of 10^{-6} s^{-1} .

Fig.6 The temperature dependence of (a) elongation (EL %) and (b) reduction of area (RA %) of cold-rolled Alloy 600 obtained at the strain rate of 10^{-6} s^{-1}

Fig.7 Definition of stress increment ($\Delta\sigma$) and aging time (Δt)

Fig.8 The strain dependence of the (a) stress increment ($\Delta\sigma$) and (b) aging time (Δt) for the cold-rolled Alloy 600 with various CW% at $T = 200^\circ \text{C}$ for type A (open symbols) and type B (closed symbols) serrations.

Fig.9 The strain dependence of stress increment ($\Delta\sigma$) for various temperatures at the constant strain rate (10^{-6} s^{-1}) for type B serrations: (a) 10%, (b) 20%, and (c) 30% CW Alloy 600.

Fig.10 The strain dependence of aging time (Δt) for various temperatures at the constant strain rate (10^{-6} s^{-1}) for type B serrations: (a) 10% CW, (b) 20% CW, and (c) 30% CW Alloy 600.

Table 1 Chemical compositions of Nickel-base alloy 600 (wt%)

Content	Ni	Cr	Fe	C
Alloy 600	70.87	14.86	5.974	0.036

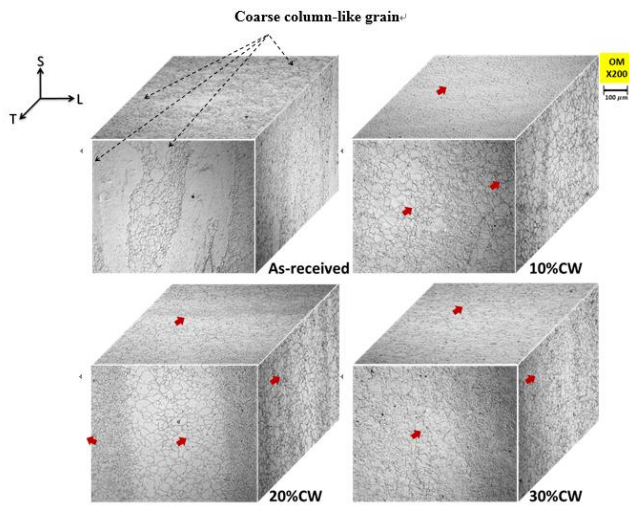


Fig.1

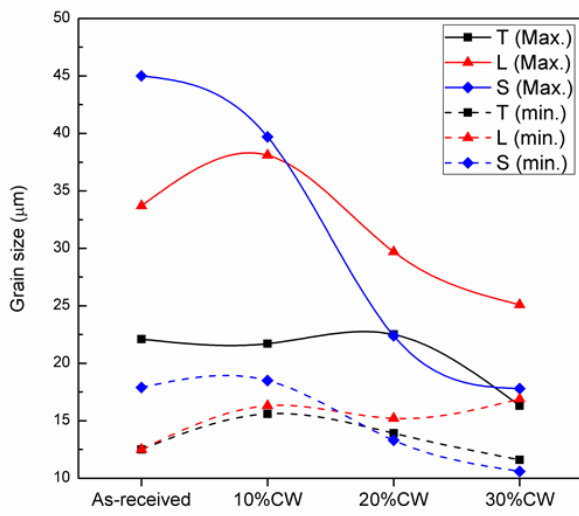


Fig.2

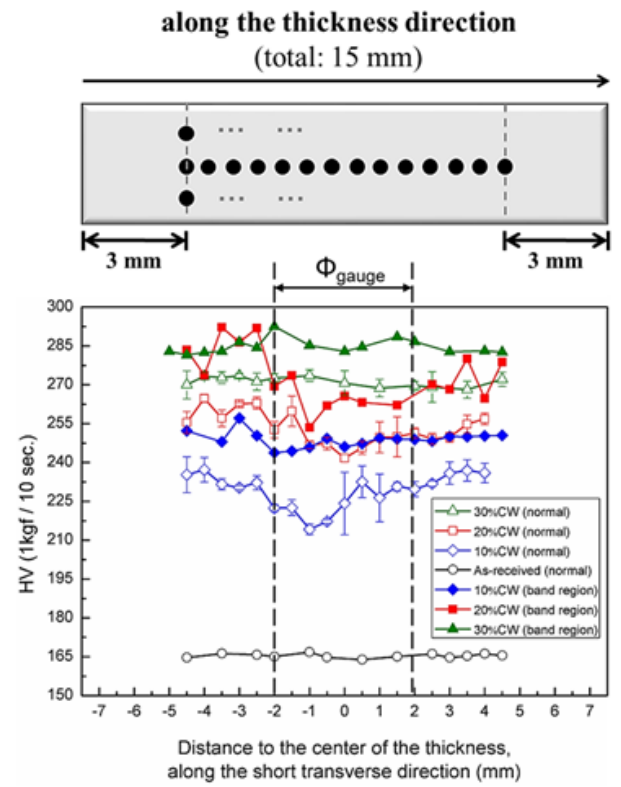


Fig.3

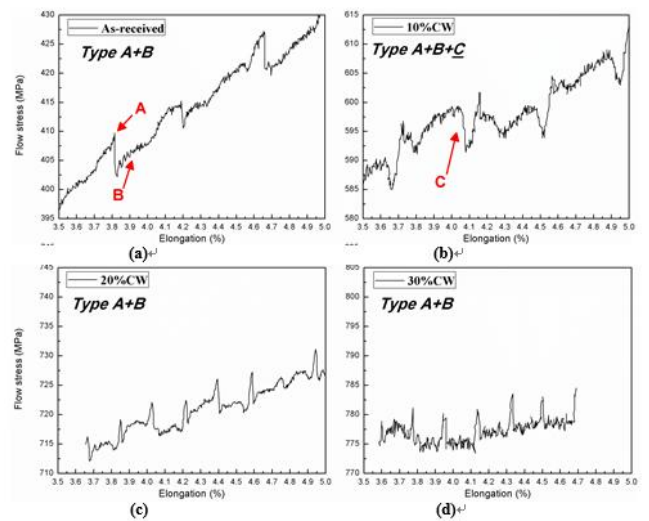


Fig.4

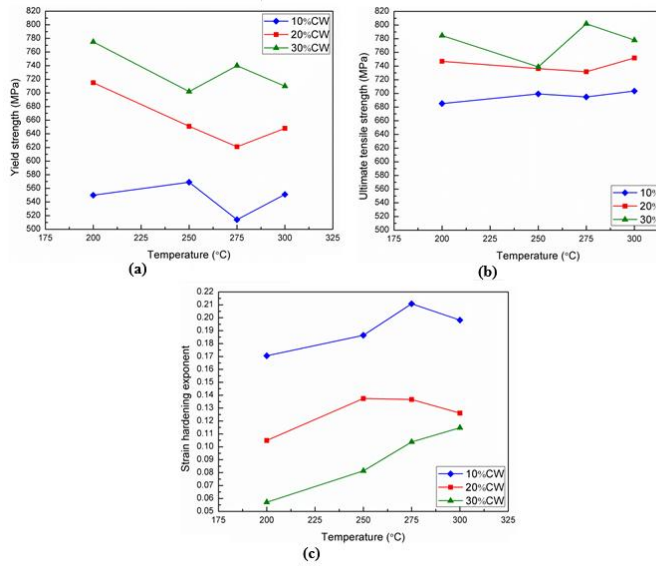


Fig.5

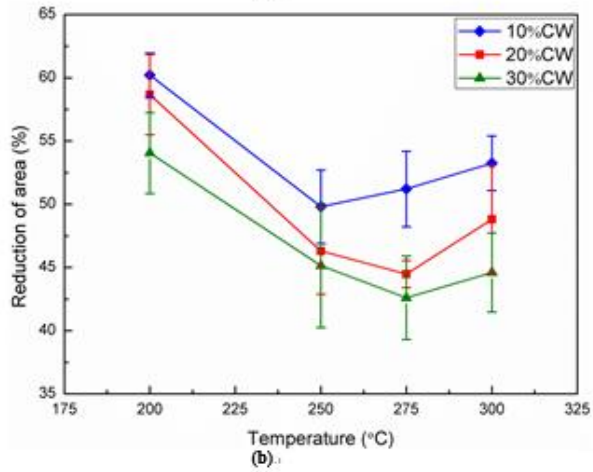
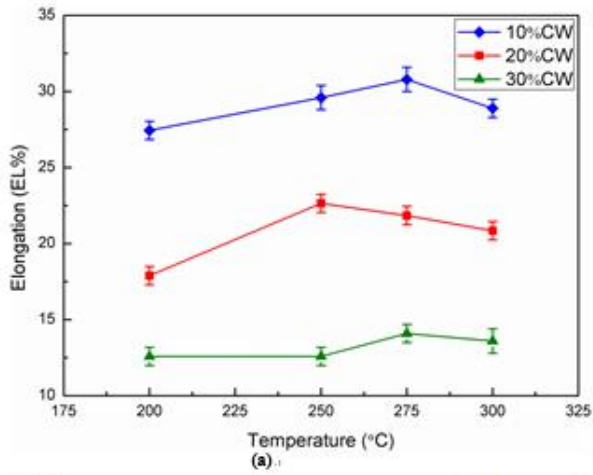


Fig.6

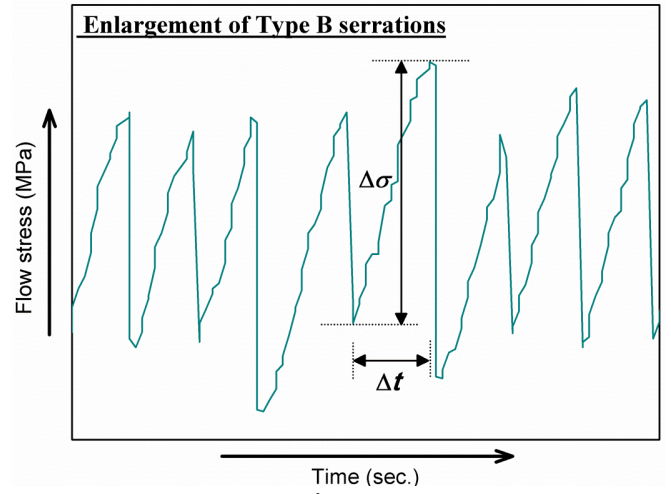


Fig.7

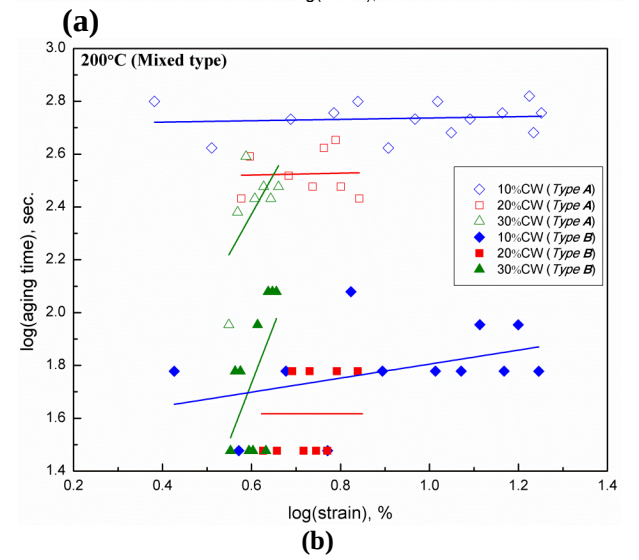
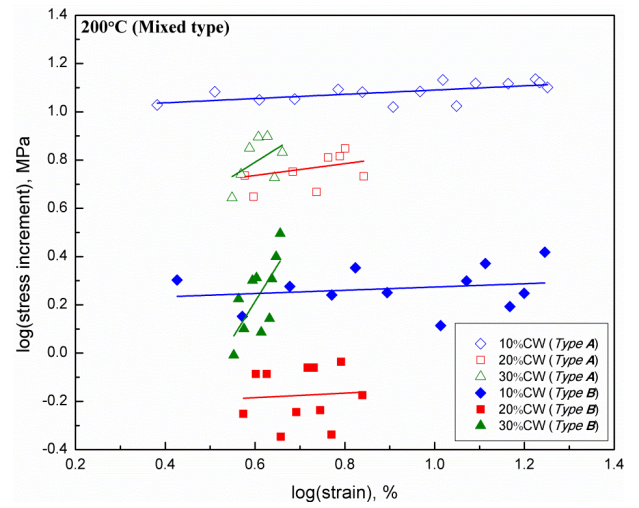


Fig.8

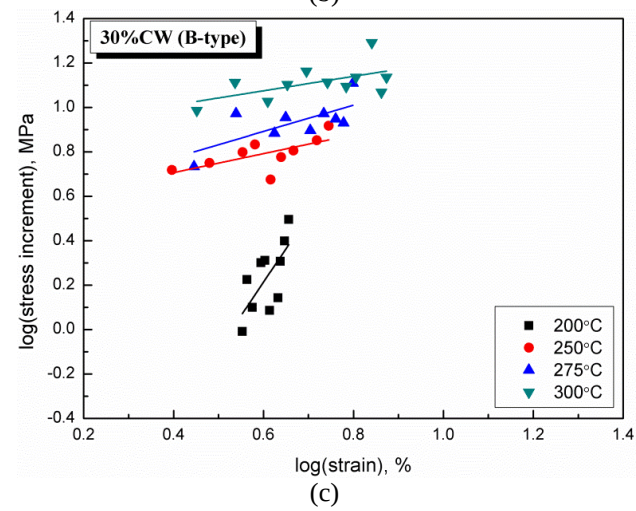
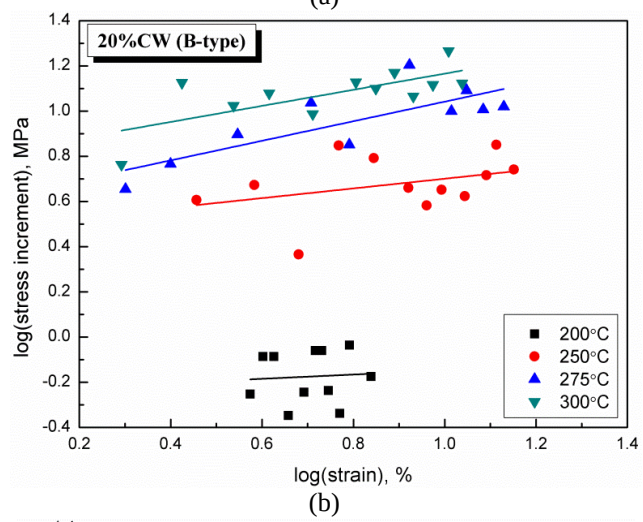
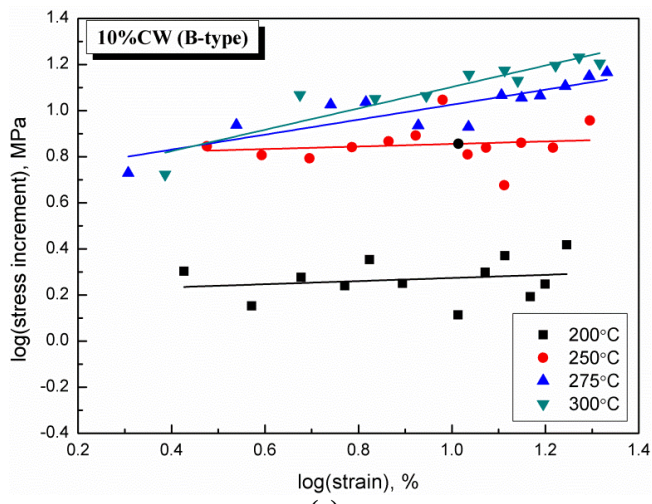
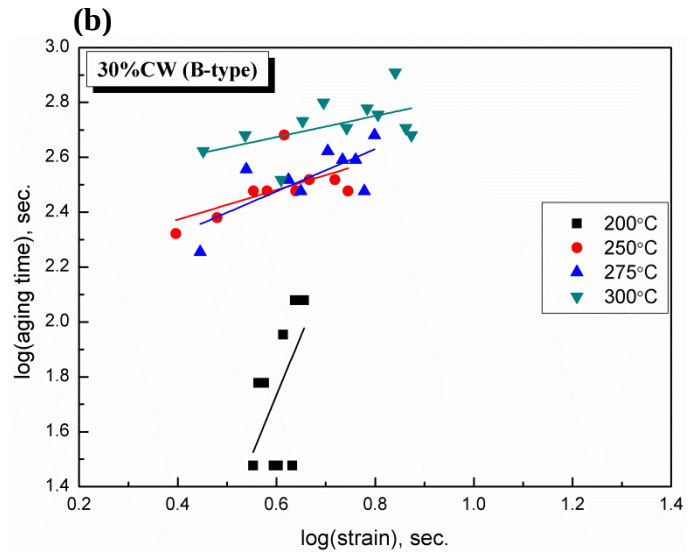
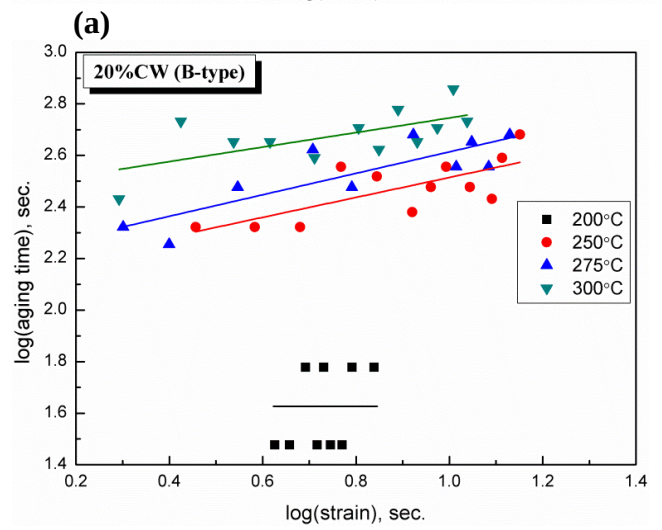
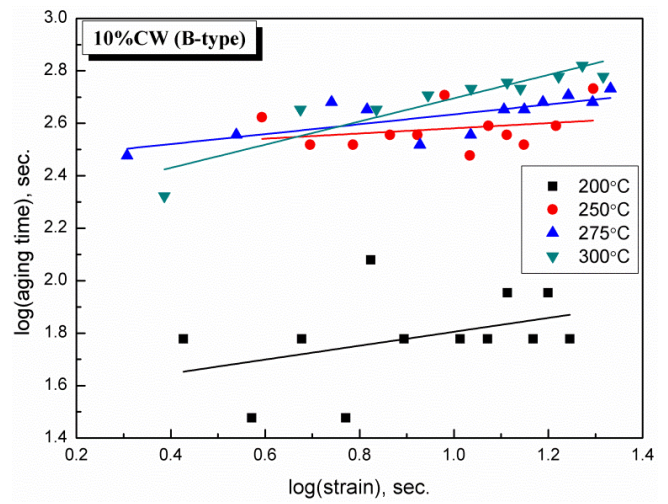


Fig.9



(c)

Fig.10

新型鎳基合金鐸道特性研究

Characteristics of The New Nickel-Based Alloys Weld Alloys

計畫編號：NSC-102-NU-E-006-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：李驊登

e-mail：hlee@mail.ncku.edu.tw

計畫參與人員：黃國禎、陳泓昇、李孟修、汪晨暉、郭宇傑

執行單位：國立成功大學機械工程學系

摘要

為防止核電廠圍阻體覆鐸處於鐸接製程中產生裂紋，本文旨在針對添加不同 Nb 含量之鎳基 Alloy 52 鐸材，進行鐸接性與 DDC 敏感性的討論。實驗使用 GTAW 鐸接程序，檢視不同比例 Nb 添加對於稀釋率的影響，以顯微組織觀察與成分分析，觀察鐸件冶金行為變化。本研究使用 Nb 含量分別為 0.02% (52)、0.82% (52M)、1.8% 與 2.53% (52MSS)。

鐸接性測試結果顯示，添加 0.02% Nb 鐸件之 DDC 敏感性最高，由於鐸材晶界缺乏小尺寸 NbC 析出物釘扎 (Pinning)，而於覆鐸時晶界產生遷移、滑移與類似潛變的現象。

比較不同 Nb 添加量鐸道的微觀組織結果顯示，無 Nb 之 52 合金，主要由胞狀枝晶構成，於覆鐸時因無法釘扎且限制晶界遷移，而容易產生 DDC；而添加 Nb 之鐸件主要則是由柱狀枝晶與等軸晶構成，伴隨著 NbC 析出，晶界於鐸接過程中被釘扎，DDC 敏感性隨之降低。

橫向拘束可調適應變結果顯示，添加 2.53% 之 Nb 鐸件之凝固裂紋敏感性最高，這是由於鐸件添加 2.53% Nb 使得 Laves+ γ 共晶相析出降低凝固溫度，增加固液相共存區間，而使熱裂敏感性提高。

關鍵詞：Alloy 52/52M/52MSS、失延裂紋、晶界遷移

Abstract

This study investigates the weldability and ductility-dip cracking (DDC) susceptibility of filler-metal Alloy 52 with different Niobium (Nb) content. By GTAW process, different dilution rates with different Nb content weldments were studied. EDX and microstructure analysis was used to realize the change of metallurgical behavior. The contents of Nb are 0.02% (52), 0.82% (52M), 1.8% and 2.53% (52MSS) respectively.

After the weldability test, it was indicated that the sensitivity of ductility-dip cracking in 0.02% Nb weld metal is the highest. Due to the lack of extensive GB pinning by the small eutectic precipitation of NbC-like, hence GBs migration, sliding and creep-like phenomenon occurred easily by overlay welding.

Inspection on the fusion zone of weldments containing different Nb showed that the alloy 52 without Nb formed mainly cellular dendrite mainly. GBs migration during the overlay welding is hard to prevent due to the less hinder on GBs, thus the DDC behavior occurred often by alloy 52 with limited Nb (0.02%). The alloys with more Nb content

tend to form columnar structure and equiaxed dendrite. Accompanied was the abundant NbC-like precipitation which caused the pinning effect of GB during welding process. The susceptibility of DDC was reduced.

After the Trans. Vastrestraint Test, it was indicated that the susceptibility of solidification cracking in 2.53% Nb weldment is the highest. Because of the eutectic Laves phase precipitating, it lowers the melting temperature and increase the size of the crack susceptible solid + liquid mushy zone.

Keywords: Alloy 52/52M/52MSS, Ductility dip Cracking (DDC), Grain boundary migration.

I. 前言

核能電廠壓水式反應爐之穿越管鎳基合金構件為 Alloy 600/82/182 為主，此鎳基合金材料在高溫、高壓、高腐蝕環境中長時間運轉而迅速衰化，進而使 Alloy 600 穿越管產生一次側冷卻水應力腐蝕 (Primary Water Stress Corrosion Cracking, PWSCC) [1]。

現階段針對核能電廠的元件或是管路鐸接處損壞的維修方式，通常會使用抗腐蝕能力更高之材料，如：Alloy 690/52/152 等鉻含量更高之鎳基材料直接重作元件置換，抑或是採用覆鐸 (Overlay Welding) 方式作防護；覆鐸方法主要是在已偵測到鐸接衰化腐蝕的管路外側，已 Alloy 52/152 等高鉻鐸條以人工鐸接方式直接將其包覆，阻止內部裂紋持續往外成長，或是在管路內部進行覆鐸 [2]。

然而在採用 Alloy 52/152 進行多道次多層覆鐸修補作業時，會因上覆鐸層進行 GTAW 時之熱傳導而使下覆鐸層產生晶界遷移現象，進而產生失延裂紋 (Ductility-Dip Cracking, DDC) [3-6]，進而產生鐸接缺陷，喪失覆鐸修補意義。為此，A.J. Ramirez 等人指出若在 Alloy 52/152 添加合金元素鈮 (Niobium, Nb)，會析出碳化鈮 (Niobium Carbides, NbC)，其可增加晶界扭曲度，以阻止晶界遷移現象，進而減少 DDC 敏感性 [3-6]，因此便衍生了 Alloy 52M/52MSS 等新型鎳基鐸材 [7]，藉由調整不同的合金元素 Nb 含量產生不同數量之碳化鈮，來降低 DDC 敏感性。

本研究以 Alloy 52/52M/52MSS 成分為基礎，改變鐸材中之 Nb 元素含量。以 GTAW 為鐸接製程，使用改變 Nb 合金添加之鐸材，對 SUS 316L 不銹鋼進行三層五道次之覆鐸與三層八道次之對接鐸，藉由比較不同鐸接參數稀釋率與 Power ratio 之關係、測試鐸道性質的改變與晶界崎嶇度的影響，探討 Nb 合金元素的影響，評估

此合金添加在降低 DDC 敏感性的效益，以期提昇鐳道性能並作為工業界鐳材改善之參考。

II. 主要內容

2.1 GTAW 試件製備

本實驗依計畫選用鐳接材料為基礎，選用之鎳基 Alloy 52 鐳線，線徑為 0.9 mm，化學成份如表 1 所示，在本研究中將材料依 Nb 含量作為材料編號，依序編號為 Nb00/Nb08/Nb18/Nb25，其中 Nb00 之 Nb 含量為 0.02%。本研究之母材選用 SUS 316L，實驗材料採用改變 Nb 添加量之鎳基 Alloy 52 鐳線盤圓，Nb 添加量分別為 0.02%、0.82%、1.8%、2.53%，鐳線直徑 0.9 mm，於本校鐳接室進行 GTAW 覆鐳製程，施鐳時訂定電壓值、電流值、鐳接走速與送線速度。實驗觀察位置如圖 1 所示。

表 1、Alloy 52 鐳線元素成分表(wt-%)

編號	市售	Cr	Fe	Mn	Nb	Mo	Ti	C	Si	Cu	Al	Ti+Al	Nb+Ta	Ni
52	52	30	8.40	0.7	0.02	0.01	0.6	0.03	0.17	0.01	0.64	1.2	0.02	60
Nb00	52	30.24	8.7	0.79	0.02	0.08	0.18	0.02	0.24	0.01	0.25	0.43	0.02	59.02
Nb08	52M	29.57	9.25	0.75	0.82	0.2	0.21	0.02	0.11	0.03	0.12	1.5	0.82	56.6
Nb18		30.08	8.58	0.72	1.8	0.08	0.41	0.02	0.28	0.01	0.26	0.67	1.8	55.31
Nb25	52MSS	29.02	9.05	0.72	2.53	3.9	0.03	0.02	0.22	0.01	0.14	0.17	2.53	53.95

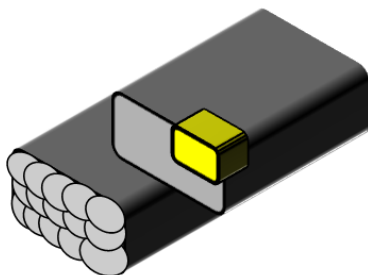


圖 1 覆鐳示意圖(黃色區塊為實驗取用區塊)

2.2 顯微組織與 EBSD (Electronic Back Scattering Diffraction)觀察

金相試片經機械加工研磨，再經過 $3\mu\text{m}$ 鑽石膏與 $1\mu\text{m}$ 鑽石膏拋光至 $1\mu\text{m}$ 後，再以 0.3 與 $0.04\mu\text{m}$ 氧化鋁粉水溶液拋光至表面組織形貌顯現，即可藉由微奈米中心高解析熱電子型場發射掃描式電子顯微鏡進行拍攝，如圖 2，共掃描約五萬個掃描點，進行晶界與晶粒角度觀察，並計算平均晶粒大小，與晶粒角度分布情形，可觀察 Nb 含量不同所造成晶界崎嶇程度、析出物分布位置、晶粒角度情形與晶粒大小之影響。



圖 2 EBSD 機台

III. 結果與討論

3.1 金相微觀組織觀察

因為晶界遷移為固態下行為，並不會產生再結晶或熔融現象，故枝晶的形貌並不會因此改變，而晶界遷移也產生類似穿越枝晶的現象，圖 3 為 Alloy 52 晶界穿越次晶粒之光學顯微鏡圖，拍攝位置於靠近基材的第一層鐳道，圖中可見遷移後晶界較原先晶界平滑，然而卻有穿越次晶粒的現象。

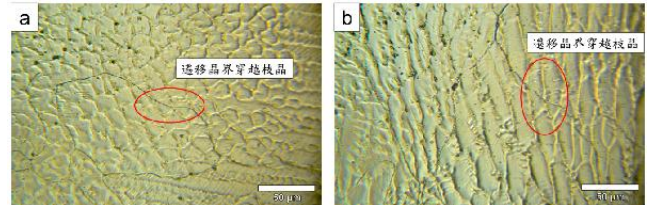


圖 3 Alloy 52 晶界遷移穿越次晶粒 OM (a)等軸晶 (b)柱狀枝晶

由於晶界遷移之原理為原子重新排列，如圖 4 所示，原子從 A 晶粒移動至 B 晶粒，晶界則由原先位置往 A 晶粒方向遷移，獲得驅動力之原子在擴散至 B 晶粒後之後便會按照 B 晶粒之晶格重新排列，成為 B 晶粒之一部分，若能量來源充足則會使 B 晶粒成長，A 晶粒縮小，並不會產生穿晶的現象。

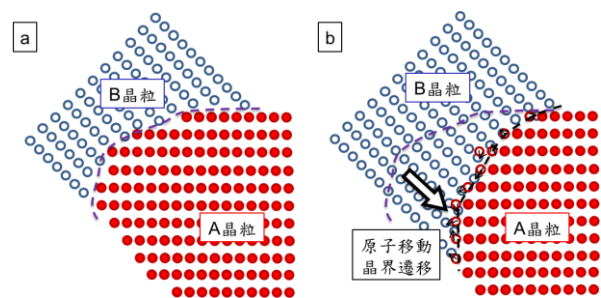


圖 4 原子遷移示意圖(a)遷移前(b)遷移後

然而由圖 5 可觀察出，晶界遷移後雖有穿越次晶粒現象，但經過腐蝕過後所呈現之晶粒成長方向與所屬晶粒相同，意謂著此穿越次晶粒現象並非穿晶破裂，而是 Alloy 52 特有的晶界遷移形貌，即為晶界不受限於次晶粒組織的阻擋，而可任意遷移以平衡電位，使晶界趨向平滑、長直，其原因為 Alloy 52 之析出物大多析出在枝晶一次臂交會之空隙，能釘扎住晶界的析出物較少，晶界較乾淨而無法限制晶界遷移。如此能任意遷移晶界之特性，使得 Alloy 52 容易產生失延裂紋的現象，要發生此現象有幾個要素：

- 1.發生位置多位於遷移後之晶界上，並且發生於已拉直之晶界居多。
- 2.裂紋型態為沿晶裂紋。
- 3.裂紋由晶界滑移產生，裂紋與其成長方向呈 45° ，或垂直，形貌類似潛變破壞。

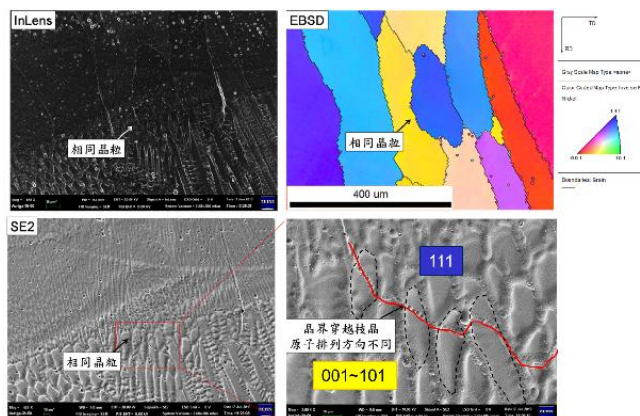


圖 5 Alloy 52 遷移後晶界-相同枝晶不同晶格排列方向，圖中可看到遷移晶界雖穿越同一枝晶，但腐蝕後發現晶粒成長方向不同，為不同晶粒

由上述幾點要素辨識 DDC 形貌，而於 Alloy 52、Nb00 皆觀察到相近現象，如圖 6 所示，Alloy52、Nb00 DDC 拋光至 $0.04\mu\text{m}$ 可看到晶粒結構程度後直接拍攝，拍攝位置為第一層銲道附近，可觀察到完整晶粒結構與在晶界上產生的細長裂縫，此裂縫長度約小於或等於一顆晶粒大小，通常發生在遷移過之長直晶界上，此現象發生溫度於略低於再結晶溫度，約為 1050°C 至 750°C ，此時材料高溫延展性失去應有水準，而被稱為失延裂紋，或是延性失穩裂紋。

考慮析出物種類與合金化學成分，推測大部分析出物應為 TiN，此類析出物主要作用為吸附基地中的 N 避免氣孔產生，並且具有細化組織與固溶強化的功用，TiN 具有高溶點且化學活性十分穩定的特性，故在銲接過程凝固以前便以析出完畢，主要採取均勻散佈的方式，然而卻無法得知是否具有釘扎晶界的效用。

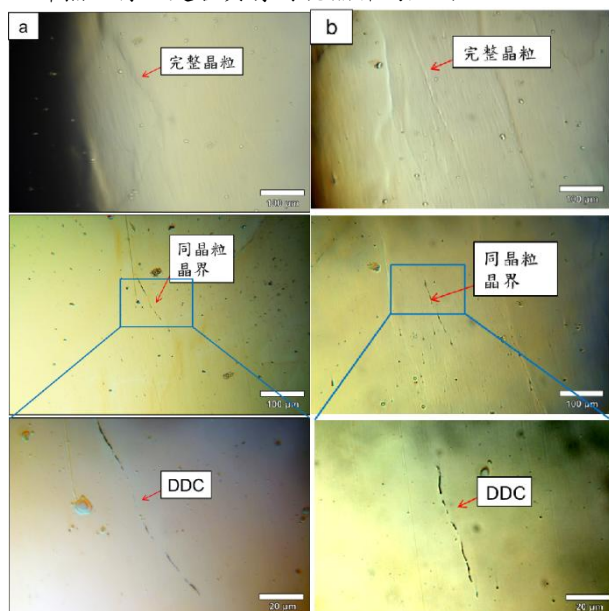


圖 6 DDC 外觀形貌觀察 (a)52 (b)Nb00

為了更確定析出物與晶界遷移的關係，本研究以 EBSD 進行驗證，由先前金相圖可得知 52 與 Nb00 皆有遷移晶界穿越枝晶的現象，而由 52 之 EBSD 圖可看出晶界多半呈現乾淨且平滑的形貌，且析出於晶界之析出物數量只有零星少許，晶粒內部析出物數量稀少，如圖

7 所示，表示 TiN 析出物數量不足也不能釘扎晶界，如此能解釋 52、Nb00 高 DDC 敏感性之原因。

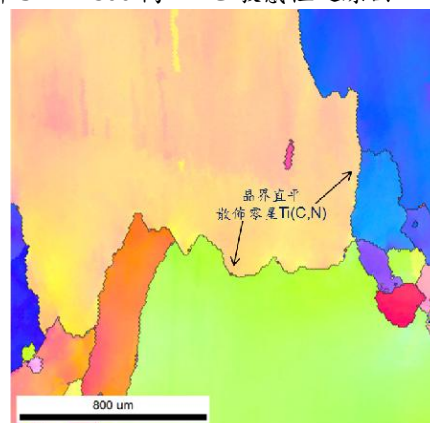


圖 7 Alloy 52 EBSD-析出物數量稀少，晶界呈現平直，釘扎情形不佳，DDC 敏感性高

Alloy Nb08 為 Inconel 公司為降低 DDC 敏感性而製作出之 Alloy 52 改善材料，稱為 Inconel Alloy FM-52M，Nb 含量為 0.82%，由於 Nb 與 Ti 效用皆為細化組織，而 NbC 卻具有釘扎晶界的效果，在 Nb08 中可發現兩種析出物的存在，析出物尺寸維持在 $1\mu\text{m}$ 左右，且析出物數量有變多的情形。放大 SEM 倍率觀察，可得知 TiN 之六角形的 Wulff Structure[8]與 NbC 之 CF8, Cubic 結構不同處，TiN 形狀較為圓滑，無抓住基地之結構，使 TiN 周圍有微小間隙；而與 TiN 不同，NbC 形貌類似兩片薄板垂直相交，能夠卡住晶界之間，使原子因 NbC 阻礙而無法移動，進而限制晶界遷移，如圖 8 所示，圖 8(a)為許君[8]於研究中指出之 TiN 形貌，而圖 8(b)為本實驗拍攝之 NbC 形貌。而添加 0.82% Nb 之 Nb08 因 NbC 數量增加，釘扎住晶界，使崎嶇凝固晶界維持在凝固完畢的程度，晶界在無法遷移與滑移的狀態下，能有效降低 DDC 發生機率，崎嶇凝固晶界形貌如圖 9 Nb08 之 EBSD 觀察所示。

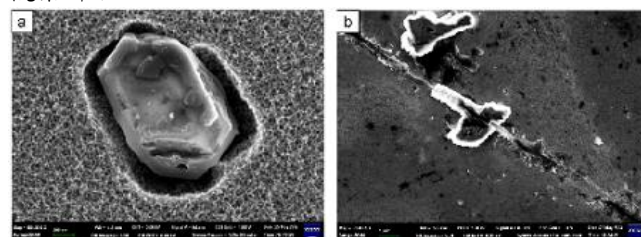


圖 8 析出物形貌(a)TiN 形貌(b)NbC 形貌

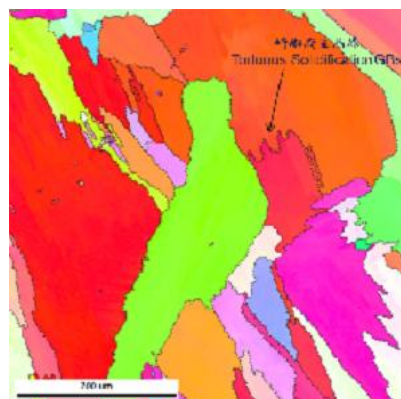


圖 9 Alloy Nb08 EBSD-崎嶇凝固晶界維持程度適中

Alloy Nb18 之 Nb 含量為 1.8%，由於 Nb 含量增加，NbC 析出物尺寸也成長至 $3-4\mu\text{m}$ ，尺寸成長原因應為析出物散佈密度太高，數個 NbC 聚集而使 NbC 粗大化，析出位置亦為均勻散佈，並且因 NbC 粗大使釘扎情形能以 OM 觀察，如圖 10 所示，NbC 如釘子一般釘住晶界，數量繁多使得晶界無法遷移，維持在崎嶇凝固晶界狀態，崎嶇程度以 EBSD 可觀察，如圖 11 所示。

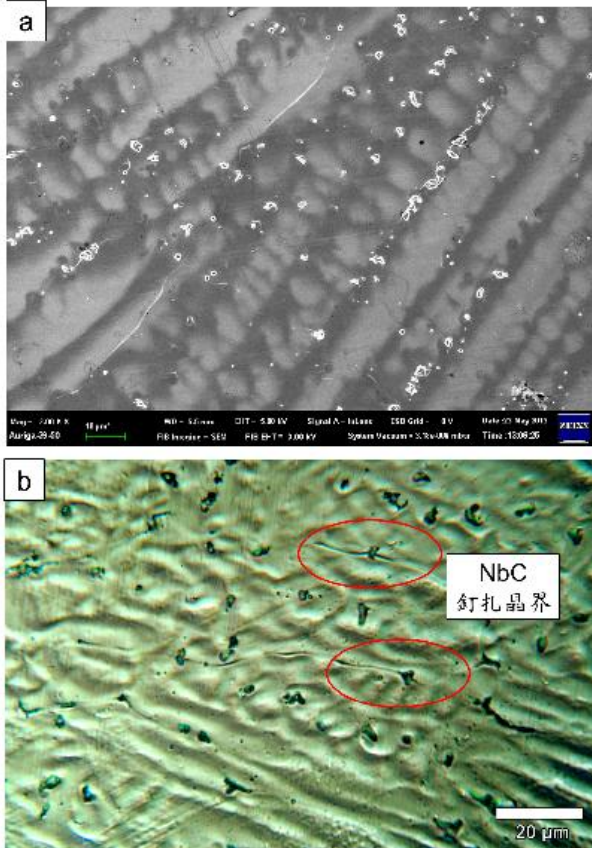


圖 10 Alloy 52-Nb18 (a) 基地析出物情形-SEM (b) NbC 釘扎晶界情形-OM

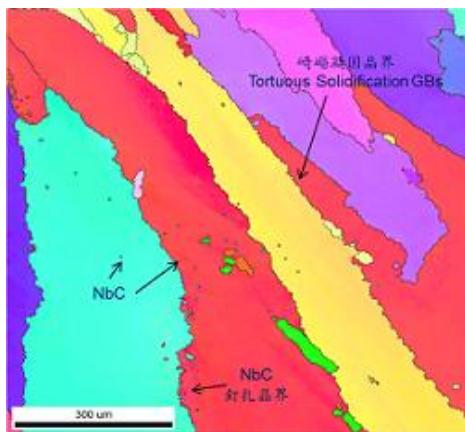


圖 11 Alloy 52-Nb18 EBSD-崎嶇凝固晶界維持效果良好，析出物釘扎晶界情形良好

Alloy Nb25 之 Nb 含量為 2.53%，然而 Nb 含量的增加，會促進 Laves 相生成並偏析，降低合金整體凝固溫度，延長固液相共存區間長度，在凝固過程中容易引起熱裂產生，為降低熱裂發生情形，於 Nb25 添加原子半徑較大之固溶元素 Mo，其能有效抑制鋁道多邊化生成

與發展，降低 Laves 相析出情形，於 Nb25 中 Mo 添加量為 4%，此為 Inconel Alloy FM-52MSS 之 Mo 含量規範，藉以提高抗 DDC 的能力[11]。由於 Nb 含量增加，析出物數量更為繁雜緻密，並且觀察到析出物粗大且聚集使尺寸最大超過 $10\mu\text{m}$ ，呈現連續長條狀析出，佈滿枝晶間與晶界，如圖 12 所示，可發現析出物大小可達 $20\mu\text{m}$ ，並且晶界釘扎情形更甚於 Nb18，此類粗大化 NbC 經過 EDX 成分分析，可得知其 Nb 成分比例較單一 NbC 來得高，且以 Ni/Nb 比例觀察，可推測此類析出物亦可能會演變成為 $\text{Ni}_3\text{Nb} + \gamma$ 共晶相，此相為低溶點偏析相，會延長 Mushy Zone，使鋁接熱裂敏感性增加，並因電位不同使材料產生伽凡尼效應，降低抗腐蝕能力。此粗大化之 NbC 亦具有足夠維持崎嶇凝固晶界的能力，如圖 13 所示，Nb25 之晶界崎嶇程度與 Nb08、Nb18 類似，能有效降低 DDC 敏感性。

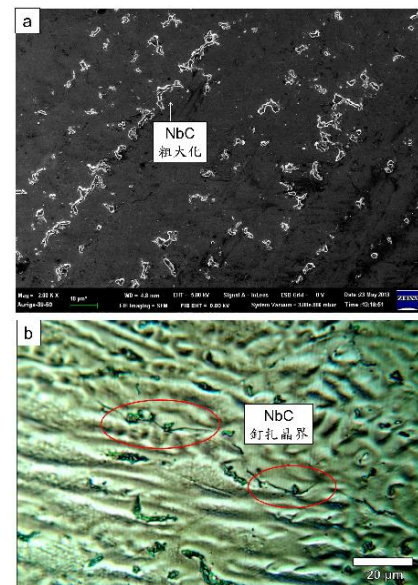


圖 12 Alloy 52-Nb25 (a) 基地析出物情形-SEM (b) NbC 釘扎晶界情形-OM

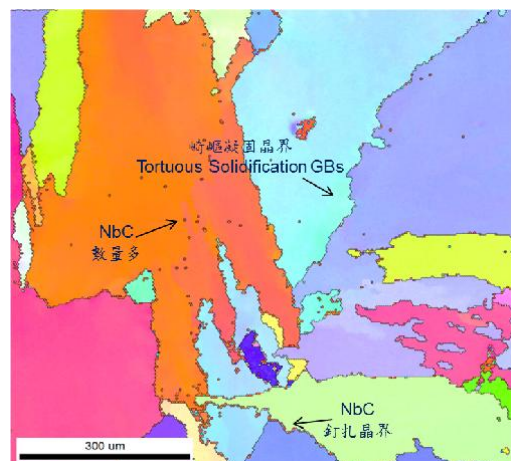


圖 13 Alloy 52-Nb25 EBSD-崎嶇凝固晶界維持效果良好，析出物數量多

3.2 橫向拘束可調適應變結果

為觀察不同 Nb 含量是否造成材料凝固溫度下降並對 Mushy Zone 區間的影響，本實驗第二階段將針對

Nb00、Nb08、Nb18 與 Nb25 等四種材料，採用四種不同應變量進行可調式應變試驗，應變量分別為 2%、3%、5%與 7%等四種，計算試片在四種不同應變彎曲下所產生之最大裂紋長度與裂紋數量，並將不同應變下產生之裂紋長度與數量平均，作為該材料之 Mushy Zone 區間長度依據，再比較不同材料之平均裂紋長度與數量，最後判斷該材料之熱裂敏感性高低。

DuPont[10]在研究中提過材料中 Nb/C 比例過大，會使 Nb 與 Ni 結合，並於晶界形成低溶點 Laves 相，並會使 Mushy Zone 增加，由第二階段實驗結果得知，Nb25 之平均裂紋長度較其餘試件要高出 1.5 mm，可以視為 Mushy Zone 因 Nb/C 比例過高而延長 1.5mm，表示 Nb25 在銲接過程中較其餘材料更有機會產生熱裂，雖然於前節實驗結果為 Nb18 之熱裂情形較為嚴重，但那是在無應變施加的狀況下進行實驗，Nb25 之 Mo 含量固然增加固溶強化與降低晶界碳化物析出，卻無法抑制 Laves+ γ 共晶相降低整體凝固溫度與 Mushy Zone 的增加，在具有應變的環境中，熱裂敏感性則大於 Nb18，而成為熱裂敏感性最高之材料。如圖 14 所示，Nb25 之裂紋長度皆較其餘試件長。

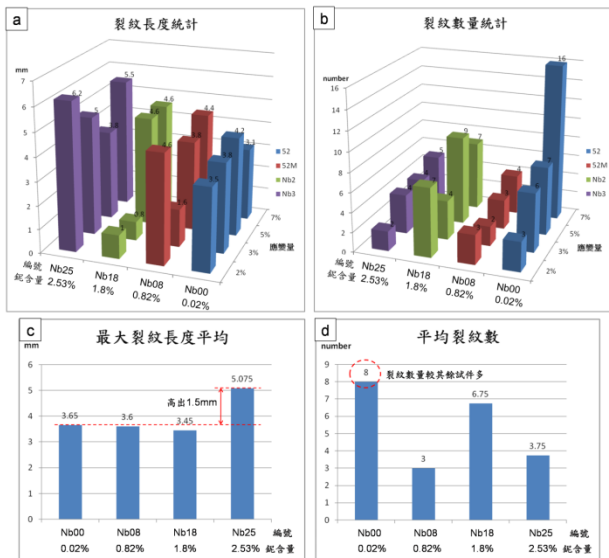


圖 14 可調式應變試驗鉬含量不同之(a)最大裂紋長度統計(b)裂紋數量統計(c)平均最大裂紋長度比較(d)平均裂紋數量比較

圖 15、圖 16 分別為 Nb00 與 Nb25 橫向拘束可調適應變裂紋立體金相圖，應變皆為 7%，可觀察到 Nb00 之凝固裂紋長度遠低於 Nb25 之橫向拘束測試結果，表示 Nb25 之固液共存區間較 Nb00 要長，完全凝固溫度較低，熱裂敏感性便較高。

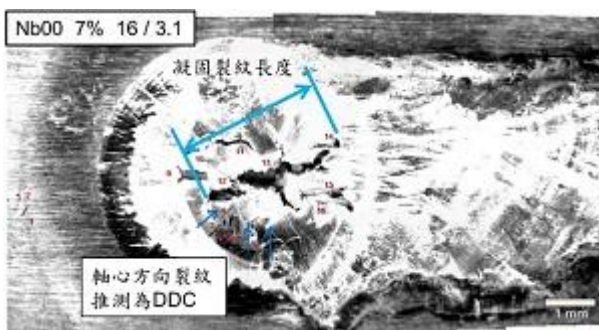


圖 15 可調式應變熱裂斷口立體金相-Nb00 -Nb 含量低，軸心方向裂紋數量多，平行銲道(凝固裂紋)長度短

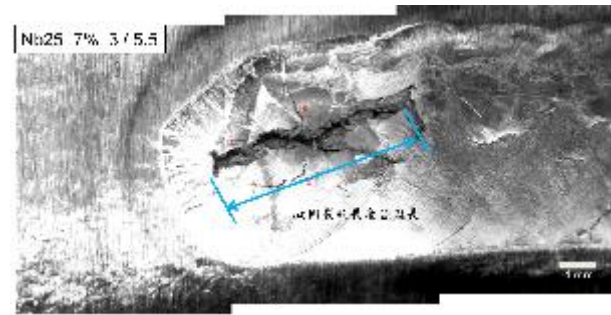


圖 16 可調式應變熱裂斷口立體金相-Nb25 - Nb 含量增加，軸心方向裂紋(DDC)減少，凝固裂紋長度增加

IV. 結論

- Filler metal Alloy 52 因晶粒內部乾淨偏析情形少，使得銲材於再加熱過程中產生穿越枝晶之晶界遷移，在凝固過程中，因收縮而使遷移後之晶界產生滑移，易產生沿晶形貌細窄之 DDC。
- Nb 添加量 0.82%(52M)起晶界釘扎情形已存在，析出物尺寸因 Ti 與 Nb 競爭 C,N 而非常微小，約在 $1\mu\text{m}$ 以下，且已有限制晶界遷移情形產生。
- 隨著 Nb 含量增加，NbC 散佈密度增加，且聚集並粗大化。Nb 含量 0.82%(52M)之 NbC 尺寸約 $1\mu\text{m}$ ，Nb 含量 1.8%之 NbC 尺寸約 $3-4\mu\text{m}$ ，而 Nb 含量 2.53%(52MSS)之 NbC 尺寸逾 $10-20\mu\text{m}$ 。
- 於 Alloy 52 銲材中添加 Nb 能維持崎嶇凝固晶界，降低 DDC 敏感性，添加量 0.82%(52M)能限制晶界遷移，晶界限制遷移效果於 2.53%(52MSS)添加量最佳。
- 由橫向拘束可調式應變試驗凝固裂紋長度統計得知，在有應變的狀態下，Nb 含量 2.53%之固液共存區間(Mushy Zone)明顯延長，且由金相凝固組織得知凝固溫度下降，使 Nb 含量 2.53%之熱裂敏感性較高。

參考文獻

- 財團法人國家政策研究基金會，"核能發電之必要性"，國政研究報告，2000。
- P. C. Riccardella, D. R. Pitcairn, A. J. Giannuzzi, and T. L. Gerber, "Weld Overlay Repairs From Conception To Long-Term Qualification," International Journal Of Pressure Vessels And Piping, vol. 34, pp. 59-82, 1988.
- M. G. Collins and J. C. Lippold, "An Investigation of Ductility Dip Cracking in Nickel-Based Filler Materials — Part I," Welding Research, pp. 288-295, 2003.
- A. J. Ramirez and J. C. Lippold, "New Insight Into The Mechanism of Ductility Dip Cracking In Ni-Base Weld Metals," Phenomena And Mechanisms, pp. 19-41
- A. J. Ramirez and J. C. Lippold, "High Temperature Behavior Of Ni-Base Weld Metal Part I. Ductility and Microstructural Characterization," Materials Science And Engineering, vol. A 380, pp. 259-271, 2004.

- [6] A. J. Ramirez and J. C. Lippold, "High Temperature Behavior Of Ni-Base Weld Metal Part II – Insight into the Mechanism For Ductility Dip Cracking," *Materials Science And Engineering*, vol. A 380, pp. 245-258, 2004.
- [7] R. Zhang, S. D. Kiser, and B. A. Baker, "A New Nicrfe Welding Product-Inconel FM 52MSS Provides Optimum Resistance To PWSCC And DDC."
- [8] 許家旗, "雷射表面重熔法修補 Alloy 82 衰化之效果研究," 國立成功大學碩士論文, 2012.機械所.
- [9] A. J. Craven, K. He, L. A. J. Garvie, and T. N. Baker, "Complex Heterogeneous Precipitation in Titanium-Niobium Micro- alloyed Al-killed HSLA Steels - I. (Ti,Nb) (C,N) Particles," *Acta Materialia*, vol. 48, pp. 3857-3868, 2000.
- [10] J. N. Dupont, "Microstructural Develop- ment and Solidification Cracking Suscep- tibility Of A Stabilized Stainless Steel," *Welding Research Supplement*, pp. 252- 263, July 1999.
- [11] F. F. Noecker and J. N. DuPont, "Metallurgical Investigation Into Ductility Dip Cracking In Ni-Based Alloys, Part I," *Welding Journal*, vol. 88(1), pp. 7-20, 2009.

沸水式反應器啟動及停機過程中不銹鋼組件的應力腐蝕龜裂起始行為研究

Evaluation of IGSCC Initiation Stainless Steels in BWR Environments during Reactor Startup and Shutdown Processes

計畫編號：NSC 102-NU-E-007-004-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：葉宗洸

e-mail：kkk@ntust.edu.tw

計畫參與人員：葉宗洸、王美雅、蔡佳蓉、林佳慶、吳俊霖

執行單位：國立清華大學工程與系統科學系

摘要

本研究探討應力腐蝕龜裂在不同溫度之純水環境下對敏化 304 不銹鋼之影響，利用慢速拉伸系統(SSRT)研究材料對於應力腐蝕龜裂之敏感性(拉伸速率為 3.0×10^{-7} /s)，實驗溫度為 200, 250 及 288 °C，純水中之溶氧量為 300ppb；隨後利用 SEM 分析各溫度條件下之斷裂面以得知其斷裂型態及型貌。

就目前已完成試驗之結果而言，在同一溫度下，經固溶處理之 304 不銹鋼均較敏化 304 不銹鋼有較高之應力腐蝕龜裂抗性，敏化 304 不銹鋼在 200 °C、250 °C 和 288 °C 經慢速拉伸試驗後之應變量分別是 34.7%、22.9% 和 31.4%。在敏化 304 不銹鋼中，250 °C 之結果具有較高之總應力腐蝕龜裂佔比(即沿晶應力腐蝕龜裂與穿晶應力腐蝕龜裂之總和)，200 °C 具有較 288 °C 高之沿晶應力腐蝕龜裂佔比，但穿晶應力腐蝕龜裂佔比卻是 288 °C 下之試驗結果較高。

關鍵詞：應力腐蝕龜裂、慢速拉伸試驗、反應器啟動過程

Abstract

In this research, we studied the impact of operating temperatures during plant start-up processes on the SCC response of austenitic 304 stainless steel (SS) in a pure water environment. The SCC behavior was investigated by using slow strain rate tensile (SSRT) tests at a strain rate of 3.0×10^{-7} /s in 200, 250 and 288°C pure water with a dissolved-oxygen concentration of 300 ppb. After the SSRT tests, the samples were observed by using a detailed characterization of the microstructure and chemical composition of the sensitized 304 SS surface region.

Preliminary results revealed that the thermal annealed samples exhibited the higher SCC resistance than the sensitized samples at same operating temperature. The elongation of the sensitized samples operating at 200 °C, 250 °C and 288 °C were 34.7%, 22.9% and 31.4%, respectively. The sensitized samples at 250 °C significantly larger amounts of IGSCC and total SCC (IG+TG) among all operating temperatures. The larger IGSCC has been observed in the sensitized samples at 200 °C than that at 288°C, but this sample also exhibited the less TGSCC. Among the operating conditions investigated in this study, an operating temperature would pose a detrimental effect on the samples in the aspects of mechanical property and degree of SCC.

Keywords: SCC, SSRT, and Start-up process

I. 前言

過去數十年中，應力腐蝕龜裂(SCC)一向是反應器組件完整性之主要威脅，根據文獻記載，應力腐蝕龜裂之肇因有三且缺一不可：對應力腐蝕龜裂敏感之材料、張應力以及腐蝕性環境。因此，若要防治應力腐蝕龜裂，直接去除三者其一將是最直接的解決之道，目前全世界之沸水式反應器(BWR)大多採用加氫水化學(HWC)作為防治應力腐蝕龜裂之策略，過去之研究顯示當電化學腐蝕電位(ECP)降至-230 mV_{SHE} 以下時，加氫水化學可以有效抑制應力腐蝕龜裂之發生[1,2]。除了加氫水化學外，貴重金屬被覆輔以注氫[3,4]與抑制性被覆(例如：TiO₂ 與 ZrO₂)[5,6]對於應力腐蝕龜裂亦有顯著之抑制效果。

在核電廠運轉期間，加氫水化學可以抑制應力腐蝕龜裂之產生，但在電廠之起動或停機過程中無法進行注氫，此乃加氫水化學之注氫系統設計所致，大部分沸水式反應器之注氫系統設計在反應器功率大於 30%或溫度大於 230 °C 時開始運作；除此之外，亦有報告指出應力腐蝕龜裂在反應器啟動或停機過程下較易發生，主要原因包括較高之導電度、較高之電化學腐蝕電位以及溫度或壓力改變所致之應變。

本研究主要針對 304 不銹鋼在模擬沸水式反應器環境下應力腐蝕龜裂之溫度效應，對此，以往文獻存在兩種截然不同之結論：其一，在沸水式反應器之純水環境中，304 不銹鋼之組件材料在 200 °C 左右之溫度下，有著相對於運轉期間(288 °C)下較高之裂縫成長速率(Cracking Growth Rate, CGR)[7]；而另一結論卻指出裂縫成長速率將隨著溫度上升而增加[8]。目前，溫度影響應力腐蝕裂縫成長速率之機制仍未明，其中所牽涉之因素可能有質傳速率、電化學腐蝕電位(ECP)等。為抑制結構組件在啟動階段之應力腐蝕龜裂，已有沸水式反應器電廠開始進行反應器啟動期間實施加氫水化學(HDS)之研究[9]。

II. 主要內容

本研究擬透過模擬 BWR 水環境下之慢速拉伸試驗(Slow Strain Rate Tensile testing, SSRT)，探討在反應器啟動或停機過程之各溫度下，應力腐蝕龜裂(SCC)與溫度間之關係以及應力腐蝕龜裂(SCC)對於 304 不銹鋼機械性質之影響，實驗流程如圖 1 所示。

不鏽鋼母材選用韓國 posco 鋼鐵公司生產之 304 不鏽鋼棒(d=13mm)，其合金成分如表 1 所示，棒狀母材經 CNC 加工成柱狀試棒，gauge 長度為 20mm、直徑為 3.85mm，詳細尺寸如圖 2 所示。

為消除試片之應變硬化(可能是母材自有或 CNC 加工所致)，所有試片皆進行固溶退火熱處理(加熱至 1050 °C，持溫 30 min 後淬火至常溫)；接著，對半數之試片再進行敏化處理(加熱至 650 °C，持溫 24 hr 後爐冷至常溫)，再以雙環電化學再活化法(Double-Loop Electrochemical Potentiokinetic Reactivation, DL-EPR)對固溶退火(SA)與固溶退火加上敏化處理(本報告將簡稱為敏化處理，以 SEN 代表)兩種試片進行敏化程度(Degree of Sensitization, DOS)分析，其結果如表 2 所示。

為模擬核電廠組件之真實情形，所有試片皆在溫度 288°C、溶氧量 300ppb 之高溫含氧水環境下預長氧化膜約 14 天；預長氧化膜完成後，各試片將於高溫高壓水循環系統中(壓力 8.28MPa、溶氧量 300ppb)進行慢速拉伸試驗(高溫高壓水循環系統如圖 3 所示)，試驗之溫度包括 200 °C、250 °C 及 288 °C，在拉伸試驗完成後，以 SEM 進行破斷面分析，詳細之拉伸試驗條件整理如表 3。

III. 結果與討論

圖 4 為固溶與敏化 304 不鏽鋼試棒在 200 °C、250 °C 與 288 °C 各溫度下進行慢速拉伸試驗之結果，在相同溫度下經固溶退火之 304 不鏽鋼均有較優異的機械性質，此乃固溶 304 不鏽鋼敏化程度較低之故。固溶處理 304 不鏽鋼之溫度效應為：溫度愈高延性愈差，此結果即是典型 fcc 金屬之溫度效應，主因為此類 304 不鏽鋼在慢速拉伸試驗後之破裂行為屬機械破裂(即延性破裂)，其破斷面分析結果如圖 5 所示(黃線區域為穿晶應力腐蝕龜裂，其餘為延性破裂)，結果顯示固溶 304 不鏽鋼之應力腐蝕龜裂佔比極低且只存在穿晶應力腐蝕龜裂，故其破斷面主要屬於延性破裂。而在另一方面，敏化 304 不鏽鋼之延性由高至低依序是 200 °C、288 °C 及 250 °C，圖 6 之破斷面分析結果顯示(黃線區域為穿晶應力腐蝕龜裂，紅線區域為沿晶應力腐蝕龜裂，綠線區域為沿晶與穿晶混合區，其餘為延性破裂)，敏化 304 不鏽鋼主要破裂來自應力腐蝕龜裂，應力腐蝕龜裂佔比由低至高依序是 200 °C、288 °C 及 250 °C。綜合以上，應力腐蝕龜裂確實造成敏化 304 不鏽鋼之劣化，且其機械性質與應力腐蝕龜裂佔比成反比。

除此之外，在 200 °C 與 250 °C 溫度下測試之敏化 304 不鏽鋼，其破斷為多重裂縫成長所致，而在 288 °C 下測試之結果顯示，其破斷主要來自單一裂縫之成長，此結果可能與應力腐蝕龜裂之萌生機制有關；根據應力腐蝕龜裂之氧化膜破裂機制(rupture film model)，應力腐蝕裂縫來自三步驟之循環：氧化膜破裂、陽極溶解與再鈍化。在慢速拉伸試驗中，氧化膜破裂速率為一常數，因此應力腐蝕龜裂應為陽極溶解與再鈍化兩反應之相互競爭結果。經推測可能有一溫度門檻存在於 250 至 288 °C 之間，當溫度大於此點(例如 288 °C)，再鈍化行為將主導應力腐蝕龜裂之萌生，所有氧化膜破裂點將快速地

生成氧化膜而再次進入鈍化態，因此只有某些破裂點可以萌生乃至成長最終導致材料破裂；另一方面，若是溫度低於此點(例如 200 °C 與 250 °C)，應力腐蝕龜裂之萌生將因再鈍化速率較低之故而容許較多之起始點，最終形成了多重裂縫之破裂面。

IV. 結論

經敏化或固溶處理之 304 不鏽鋼在不同溫度下(200 °C、250 °C 及 288 °C)之慢速拉伸試驗已經完成，由機械性質及破斷面分析得到以下結論：

1. 在各溫度下，固溶 304 不鏽鋼均擁有較優異的機械性質與抗應力腐蝕龜裂性。
2. 敏化 304 不鏽鋼在不同溫度下測試後之應力腐蝕龜裂敏感性由高至低依序是：250 °C、288 °C 及 200 °C。
3. 敏化 304 不鏽鋼之破斷面分析結果顯示，在 288 °C 下，材料之破斷主要來自單一裂縫之成長；而在 200 °C 與 250 °C 溫度下測試之敏化 304 不鏽鋼，其破斷為多重裂縫成長所致。

根據本研究之實驗結果並考慮應力腐蝕龜裂之氧化膜破裂機制，我們推測敏化 304 不鏽鋼之應力腐蝕龜裂與溫度之關係如下：

- 高溫時(超過某一特定溫度)，快速之再鈍化行為阻礙了應力腐蝕龜裂，只允許某幾個特定位置起始並成長，而其最終主導材料之破裂。
- 中間溫度時(略低於某一特定溫度)，由於再鈍化速率較慢，允許較多之裂縫起始點，這些起始點均有一定之成長，而形成了多重裂縫。
- 低溫時(明顯低於某一特定溫度)，由於溫度過低，應力腐蝕龜裂之驅動力明顯不足，破斷面主要為延性破裂。

參考文獻

- [1] R. L. Cowan, Nuclear Engineering International, January 1986, p. 26.
- [2] M. E. Indig, "Recent Advances in Measuring ECPs in BWR Systems," Proc. 4th Intl. Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, NACE, Jekyll Island, GA., Aug. 6-10, 1989, p.4-411.
- [3] T. K. Yeh and D. D. Macdonald, "The Efficiency of Noble Metal Treatment on Reducing the Corrosion Potential in the Primary Coolant Circuit of a Boiling Water Reactor Operated under Hydrogen Water Chemistry," Journal of Nuclear Science and Technology, in press (2006).
- [4] Tsung-Kuang Yeh and Chuen-Horng Tsai, "Intergranular Stress Corrosion Cracking of Platinum Treated Type 304 Stainless Steels in High Temperature Water," Journal of Nuclear Science and Technology, v. 41, p. 116-125 (2004). SCI
- [5] T. K. Yeh, C. T. Liu, and C. H. Tsai, "The Influence of ZrO₂ Treatment on the Electrochemical Behavior of

Oxygen and Hydrogen on Type 304 Stainless Steels in High Temperature Water,” Journal of Nuclear Science and Technology, v. 42, p. 809-815 (2005). SCI

- [6] Tsung-Kuang Yeh et al., “Crack Growth of ZrO₂ Treated Type 304 Stainless Steels in High Temperature Pure Water,” Proceedings of International Conference on Water Chemistry of Nuclear Systems, Electric Power Research Institute, San Francisco, USA, October 11-14, 2004, Paper No. 3.5
- [7] P. L. Andresen, “Effects of Temperature on Crack Growth Rate in Sensitized Type 304 Stainless Steel and Alloy 600,” Corrosion, v.49, 1993, 714.
- [8] A. Jenssen, Effect of Temperature on the Crack Growth Rate of Stainless Steel in Sulfate Bearing BWR Environment, STUDVIK/N-06/115, June 12, 2006.
- [9] Abe, Ayumi et. al., “Mitigation of SCC Initiation on Core Internals by Means of Hydrogen Water Chemistry During Start-up,” Nuclear Science and Engineering. 149, 312-324 (2005).

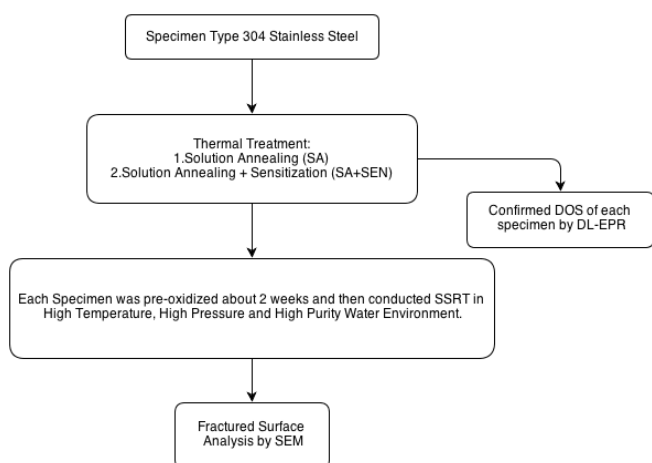


圖 1 實驗流程圖

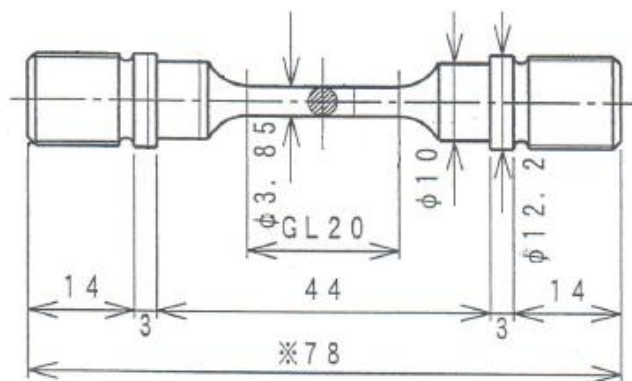


圖 2 拉伸試驗試棒示意圖

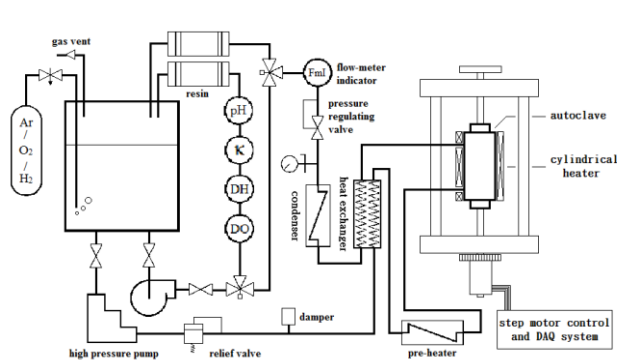


圖 3 水循環系統示意圖

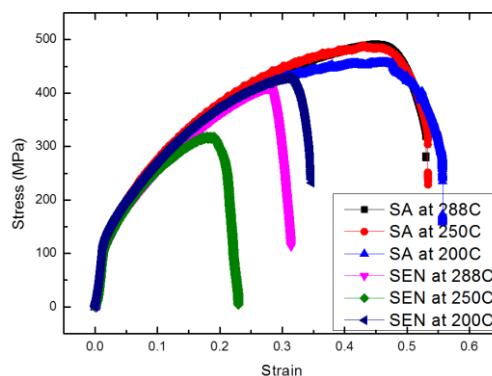


圖 4 應力-應變圖

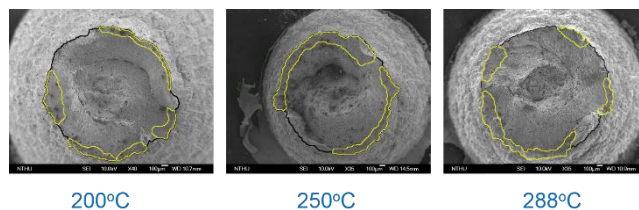


圖 5 固溶 304 不鏽鋼經慢速拉伸試驗後之破斷面分析 (黃線區域為穿晶應力腐蝕龜裂，其餘為延性破裂)

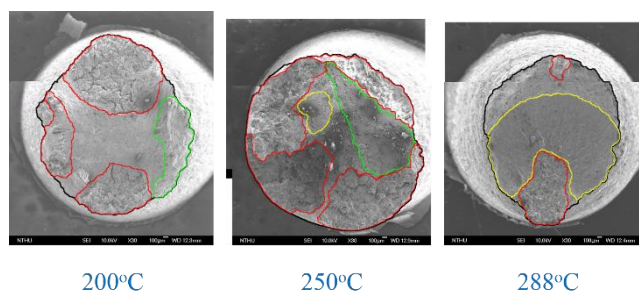


圖 6 敏化 304 不鏽鋼經慢速拉伸試驗後之破斷面分析 (黃線區域為穿晶應力腐蝕龜裂，紅線區域為沿晶應力腐蝕龜裂，綠線區域為沿晶與穿晶應力腐蝕龜裂混合區，其餘為延性破裂)

表 1 304 不鏽鋼合金成分分析(wt%)

Fe	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu
Bal.	0.042	0.411	1.593	0.0332	0.0124	8.102	18.338	0.291	0.414

表 2 敏化程度分析結果

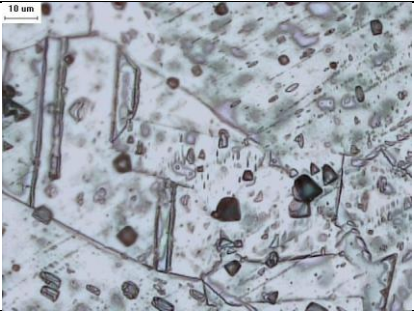
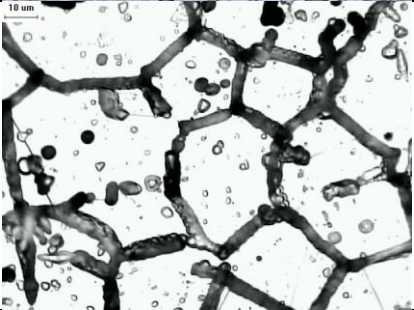
試片前處理	DOS by DL-EPR	Metallographic test (10% $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$, 500X)
固溶退火	0.022%	
固溶退火及敏化處理	35.8%	

表 3 慢速拉伸試驗條件整理

試片前處理	壓力	溶氧值	拉伸速率	實驗溫度
固溶退火	8.28 MPa (1200 psi)	300 ppb	3.0×10^{-7} /s	200°C
				250°C
				288°C
固溶退火 及敏化處理				200°C
				250°C
				288°C

沸水式反應器起動或停機溫度對主冷卻水迴路之水化學及組件裂縫成長速率之影響研究

Effect of Operating Temperature on the Water Chemistry and Crack Growth Rate of BWR Core Internals During Start-Up or Shutdown

計畫編號：NSC 102—NU—E—007—002—NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：王美雅

e-mail：meywang@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：葉宗洸、洪靚軒、李依文、陳心櫻

執行單位：國立清華大學原子科學技術發展中心

摘要

基於沸水式反應器有限的現場水化學監測資料，起動時期不同功率變化對於前述 BWR 主循環水迴路還原氧化劑濃度與組件裂縫成長速率的影響目前僅能依賴數值模擬分析的方式進行評估。而本實驗室擁有具備此分析功能的工具-DEMACE。本計畫經一年的時間來進行相關研究，針對沸水式反應器起動或停機過程中，在高於 93 °C (200 °F) 的溫度運轉下，即反應器在起動或停機過程中，分析主冷卻水迴路中關鍵氧化還原劑(氫、氧、過氧化氫)濃度、電化學腐蝕電位與裂縫成長速率的變化情形，特別是在不同溫度運轉的較低功率環境下，探討氧化性環境對於爐心組件及管線系統之裂縫成長速率評估。

關鍵詞：起動、停機、加氫水化學、應力腐蝕龜裂、裂縫成長速率。

Abstract

In view of the limited, measurable water chemistry data, the impact of operating power level during plant start-up on the water chemistry and component corrosion in a BWR can only be theoretically evaluated through computer modeling. In this project, the well developed computer code DEMACE were modified and used to investigate the impact of various low power level on the redox species concentrations and crack growth rates of components in the primary coolant circuits of Taiwan BWRs during the startup when the operating temperature exceeds 93 °C and shutdown operation.
Keywords: Start-up, Shutdown, Hydrogen Water Chemistry, Stress Corrosion Cracking, Crack Growth rate.

I. 前言

HWC 和貴重金屬被覆技術都必須配合注氫才能抑制 IGSCC，通常需要有效的飼水流量進入爐心才能開始注氫的過程。因此都會在爐水加熱後至正常操作的溫度才會開始加氫，HWC 現今只用於額定功率運轉操作或是爐心溫度達於 450 °F 以上(依 HWC 系統的設計而定)。台灣核一廠機組則等到功率提升至 90%後才開始實施注氫。而在上一個燃料周期結束後要再開始起動新一個燃料周期時，反應器爐水內含有大量殘存的過氧化氫及溶氧。已有實驗數據顯示在電廠起動(Start-up)時或是

停機(Shutdown)過程的中間溫度比額定溫度的氧化性環境易造成較高的沿晶應力腐蝕龜裂速率^[1]。結構組件在反應器啟動的過程中承受了應變，主要是因為溫度與壓力持續在變化，同時水環境存在著高溶氧及大量的過氧化氫，使得組件產生 SCC Initiation。目前大多的 HWC 系統都設計在功率大於 20%以上或是爐心溫度達於 450 oF 以上才可開始注氫，已有少數系統開始更改設計使其可在功率大於 5%時便開始飼水注氫來減低裂縫成長。因起動時間的爐水呈高溶氧與高 ECP 值的環境，可能會導致 SCC Initiation。一般起動過程，爐水溫度由 200 °F 開始增加至超過 500 °F 以上的正常操作溫度，所需時間因廠而異，但基本上約為 60-75 小時左右。美國一 BWR，曾進行 crack extension 分析，起動時(大於 200 oF)的前 60 小時所產生的 crack extension 約為整個燃料週期的 6%，如在起動時採用 HWC (Early Hydrogen Water Chemistry, EHWC)，在起動時間所產生的裂縫成長降至 0.5%。同樣地，考慮停機時段，大於 200 °F 的前 18 小時所產生的 crack extension 加上起動時的 60 小時的值，約為整個燃料週期的 9%，如在起動與停機時採用 HWC (Early Hydrogen Water Chemistry, EHWC)，在起動時間所產生的裂縫成長降至 0.7%。顯示在起動與停機的過程中，對於裂縫成長是有明顯的影響。

II. 主要內容

基於沸水式反應器(BWR)有限的現場水化學監測資料，在電廠起動時對於前述 BWR 在 NWC 與 HWC 狀態的水化學與組件腐蝕影響目前僅能依賴數值模擬分析的方式進行評估，而本實驗室擁有具備此分析功能的工具-DEMACE^[2-4]。本計畫以一年的時間應用 DEMACE 程式，針對國內沸水式反應器，在電廠實施起動或是停機過程時，在高於 93 °C (200 °F) 的溫度運轉下運轉時，分析其主冷卻水迴路中關鍵氧化還原劑(氫、氧、過氧化氫)濃度與組件腐蝕電位的變化情形。

III. 結果與討論

此計畫所研究的 BWR 是美商奇異公司設計的 BWR/4 型反應器，首次運轉的時間是民國 66 年 11 月，首次商業運轉的時間則是民國 67 年 12 月，滿載時的熱輸出功率為 1775 MWt，電功率則為 636 MWe。BWR 的再循環系統管路以及壓力槽內部組件的許多材料，都

是採用 304 不鏽鋼或其他易敏化的金屬，再加上這些組件多半含有許多未經固溶退火處理的焊道，所以很容易遭致 IGSCC 的侵襲。為了避免以及減緩上述的應力腐蝕龜裂問題，國內 BWR 都已採用 HWC 做為解決 PCC 組件 IGSCC 甚至 IASCC (Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking) 問題的方法，此 BWR 採用的飼水注氫量為 1.1~1.2 ppm，開始實施加氫的時機為運轉功率達到 90% 額定功率下，在起動或停機過程中並無實施飼水加氫。

針對主冷卻水迴路 (PCC) 中重要位置在 HWC 狀態下，討論其氫、氧、過氧化氫的個別濃度以及組件之 ECP 與 CGR 變化情形。ECP 是用來判斷組件材料是否遭致 IGSCC 或 IASCC 侵襲的重要指標，美國核能管制委員會 (Nuclear Regulatory Commission, NRC) 已認可 0.23 VSHE 為敏化 304 不鏽鋼於 BWR 環境中的臨界腐蝕電位 (E_{crit})，因此 ECP 的預測遠比化學成份濃度的預估重要而直接。不過在此必須提醒讀者，0.23 VSHE 只是一個參考電位，視環境與材料本身的差異，確實的臨界腐蝕電位應是一電位範圍而非單一數值。

在應用 DEMACE 進行國內 BWR 核電廠 HWC 效果預測之前，已利用國內 BWR 於民國 95 年 10 月開始實施 HWC 的量測數據，做為校正程式模擬參數 (主要為氫與氧的氣體交換係數) 的依據。程式模擬時採用當時的運轉參數為全功率運轉下，主冷卻水流量為 49.35 Mlb/hr。圖 1 分別顯示使用校正參數後，實施 HWC 後氫氣的預測值與量測值比較，模式校正即以這幾項數值做為標準，圖中關於再循環出口部分表現出頗佳的吻合性，而主蒸氣管路的氧氣也表現出不錯的吻合性。模擬的結果將針對四個重要位置氧化還原劑濃度的分佈、ECP 及 CGR 與注氫濃度的關係來討論。

1. 各重要位置的氧化還原劑濃度分佈

選擇 BWR PCC 中 4 處重要位置，分析這些位置在起動過程中因實施 HWC 後，不同的功率變化 (0.451%、0.452%、1.71%、2.5%、3.8%、5.2%、6.7%、8.4%、10.8%、11.3%) 下，其氧化還原劑濃度分佈隨注氫濃度變化的情形。

氫濃度：飼水未注氫前，爐水本身已有少量的氫存在，這些溶氫的生成主要是源自於爐心中的輻射分解效應。根據圖 2 的結果顯示，爐心上方空間、上升流區、再循環系統及底爐心下方空間出口的溶氫在特定注氫量之後，溶氫隨著注氫量增加至 2.0 ppm 而增加。特別在爐心上方空間之處，除了尚未產生蒸氣的功率外，其他三個功率的溶氫值相當低，主因在於經過爐心燃料匣區沸騰區的氣體交換過程之後，注氫量個別在 0.8 及 1.6 ppm，溶氫量降至 4 ppb。在同一區域下，在 2.0 ppm 注氫量下，溶氫增加至 8~10 ppb。

過氧化氫濃度：BWR 爐水中另一個重要的氧化劑為過氧化氫，直接由輻射分解效應而生成的產物。過氧化氫濃度結果如圖 3 所示。過氧化氫隨著注氫量的增加而降低。 H_2O_2 是一高氧化性的物質，只有少數 ppb 也會使得 ECP 高於 E_{crit} ，須將 H_2O_2 完全消耗才能達到較低的 ECP 值。在爐水溫度較低時，其 H_2O_2 分解速率低而濃度較高，

隨著功率的增加，有效注氫量降低。當溫度升至 280 °C 左右，濃度降至 200 ppb 以下。3.8% 及 5.2% 功率下的濃度最低，有效注氫量約在 0.3 ppm。開始有蒸汽產生的功率，其注氫需求量也增加。

氧濃度：在一般水化學環境狀態下，核一廠在額定功率時的 PCC 中的溶氧量大致維持在 150 至 200 ppb 左右。在爐心燃料匣區的非沸騰區域溶氧量高達 350 ppb 以上，這主要是來自高輻射劑量下爐水的輻射分解效應。在起動過程中的氧濃度結果如圖 4 所示。當 HWC 實施後，PCC 中的溶氧量隨著飼水注氫量的增加而遞減，與功率變化無關。在一般水化學環境狀態下且溫度約在 280 °C，四個區域出口處的溶氧量約在 200 ppb 以上，而低溫時的濃度，對於 0.451% 及 0.452% 功率下，約在 100 ppb 以下。在尚未產生蒸汽時，有效注氫量隨功率增加而減少，當蒸汽產生後，而 11.3% 約為 0.9 ppm，而 8.4% 功率則須 1.6 ppm。

總結上述兩項主要的氧化劑，氧與過氧化氫的濃度，可發現對於此核電廠，在一般水化學環境狀態下，起動期間使得爐水處於高氧化性的環境。除了功率很低時及 6.7% 外，HWC 在 1.6 ppm 注氫量時可達到效益，後續的 ECP 分析也顯示了這一點。

2. 各重要位置的 ECP

在國內 BWR 的 PCC 中 4 處重要位置，其 ECP 值隨注氫濃度變化的情形，結果如圖 5 所示。在爐心上方空間的出口處，非常接近頂部導板位置，德國 1 座沸水式反應器曾在此處發生 IGSCC 的問題。模擬結果顯示，此處在起動運轉下及 280 °C 左右的五個不同功率，NWC 時的 ECP 值約在 0.15~0.25 V_{SHE} 附近。在上升流區的出口的趨勢類似於爐心上方空間出口，而此處靠近爐心側板腰部，同樣是一處容易發生 IGSCC 的位置。再循環系統是 BWR 最早出現 IGSCC 的位置，由於這個區域幾乎不受到明顯的輻射劑量影響，因此全區的 ECP 差異性不大，故可以出口處的 ECP 反應代表此系統大部份區域的變化。根據模擬結果顯示，四個區域的趨勢類似，對於 3.8% 及 5.2% 功率下，注氫量約為 0.3 ppm 可使此處的 ECP 遠低於 E_{crit} ，11.3% 約為 0.9 ppm，而 8.4% 功率則須 1.6 ppm。

3. 各重要位置的 CGR

在國內 BWR 的 PCC 中 4 處重要位置，其 CGR 值隨注氫濃度變化的情形，結果如圖 6 所示。模擬結果顯示，此處在起動運轉下及 280 °C 左右的五個不同功率，NWC 時的 CGR 值約在 2×10^{-8} cm/sec 附近。四個區域的趨勢類似，對於 3.8% 及 5.2% 功率下，注氫量約為 0.3 ppm 可使此處的 CGR 降至 1×10^{-10} cm/sec，11.3% 約為 0.9 ppm，而 8.4% 功率則須 1.6 ppm。

IV. 結論

總結上述結果，在不同的注氫量與功率變化下，四個位置的 ECP 與 H_2O_2 濃度的趨勢類似。四個位置有效注氫量依功率不同而有差異。

参考文献

- [1] S. E. Garcia, et al., "Effect of Hydrazine, Carbohydrazide and Hydrogen Injection on Noble Metal Treated Stainless Steel ECP and IGSCC Mitigation During BWR Startups," 2010 International Conference on Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems, Quebec City, Canada, October 3-7, 3.09P (2010).
- [2] Tsung-Kuang Yeh and D. D. Macdonald, "Modeling Water Chemistry, ECP, and Crack Growth Rate in the BWR Heat Transport Circuits Part III - Effect of Reactor Power
- [3] M. Y. Wang and T. K. Yeh, "Predicted Impact of Power Uprate on the Water Chemistry of Kuosheng Boiling Water Reactor," Nuclear Engineering and Design, 238, 2746. (2008).
- [4] M. Y. Wang and T. K. Yeh, "The Impact of Power Uprate on the Water Chemistry in the Primary Coolant Circuit of a Boiling Water Reactor Operating under a Fixed Core Flow Rate," Journal of Nuclear Science and Technology, 45, 802. (2008).

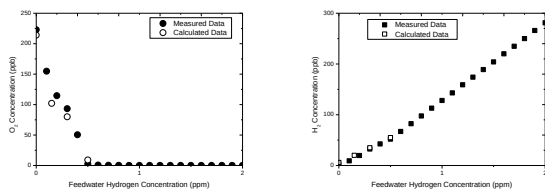


圖 1 再循環系統溶氧與溶氫測量值與計算值之比較

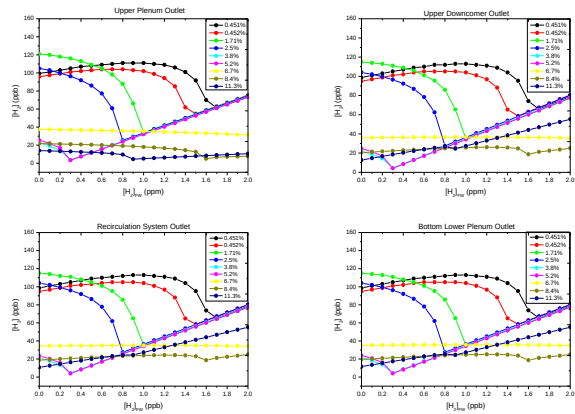


圖 2 在起動期間及 HWC 實施後，各重要位置之溶氫量與注氫量的關係

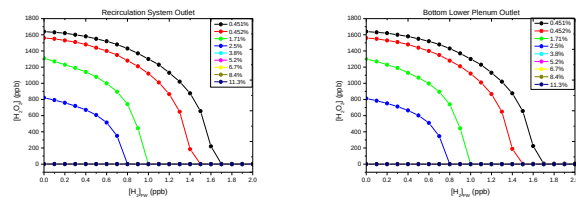
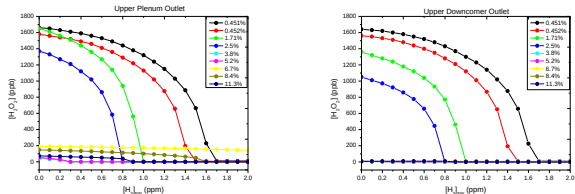


圖 3 在起動期間及 HWC 實施後，各重要位置之過氧化
氮與注氮量的關係

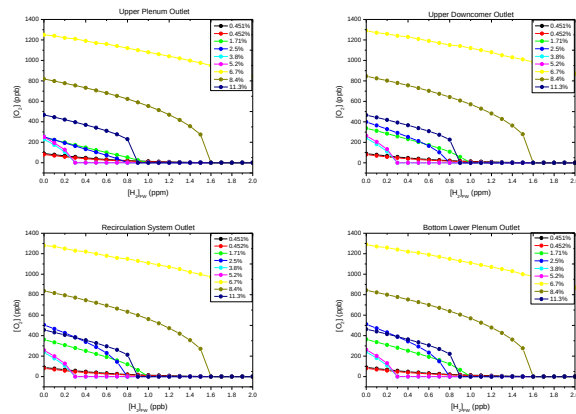


圖 4 在起動期間及 HWC 實施後，各重要位置之溶氧量與注氫量的關係

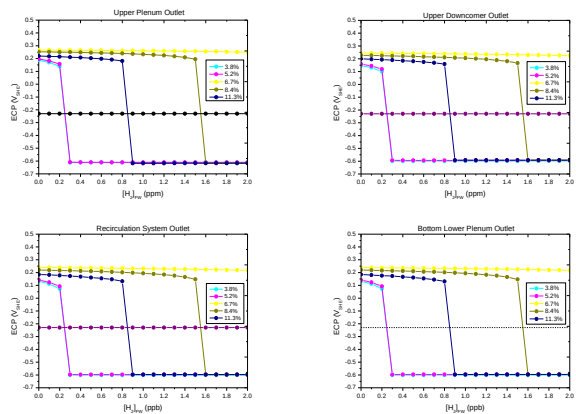


圖 5 在起動期間及 HWC 實施後，各重要位置之 ECP 與注氫量的關係

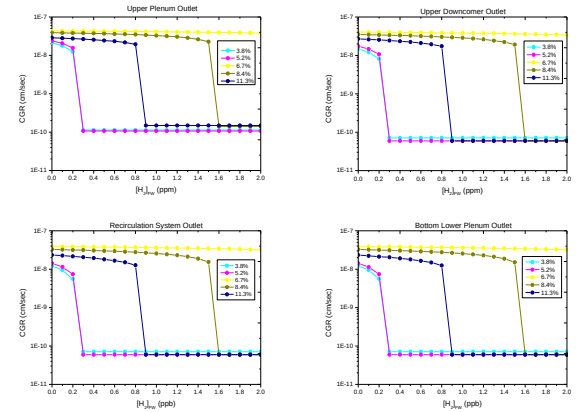


圖 6 在起動期間及 HWC 實施後，各重要位置之 CGR 與注氫量的關係

多機器人對危險環境多維影像重建、人員偵測及輻射監控技術之研發(III)

Development of automatic feature extraction, object detection and recognition from multi-dimensional images for event monitoring (III)

計畫編號：NSC102-2623-E-002-016-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：陳亮嘉

e-mail：lchen@ntu.edu.tw

計畫參與人員：Nguyen Van Thai、翁明軒

執行單位：國立台灣大學機械系工程系

摘要

近年來關於危險環境機器人研究，主要目的是希望取代人力，使人類避免身陷危險的環境之中，以機器人執行迅速之反應和救援。即時多維全域感測(multi-dimensional full-field sensing)為智慧型機器人對核能電廠危險急難救援行動之一項核心關鍵技術發展重點，即時多維視覺資訊提供災變中救災行動能力極為重要之首要救災環境中空間與物件訊息，可藉即時多維全域感測資料(2D 影像+3D 形貌+輻射強度)之整合成為關鍵之救災資訊，對多機器人協同在危險環境中對特定物件之偵測與辨識與危急程度評估，提供不可或缺之核心資訊。因此，本計劃提出以三年計劃之多年期發展，研發重點將包括危險環境中多維感測影像之偵測與重建能力、多機器人協同對特定物件(如受傷人員)之偵測與辨識與危急程度評估，以進一步發展出在危險環境中救災之精確動作導引與事件發展之監控能力。

關鍵字：非破壞檢測 (NDT)、影像重建、線上監控技術、機器視覺

Abstract

Applications of high-speed machine vision to be equipped with intelligent robots for real-time multi-dimensional imaging (2D & 3D & radiation map) and object recognition are extremely critical for winning success in today's globally competitive world. New generation machine vision systems having complicated optical image algorithms, electro-optic hardware and intelligent software systems are now capable of delivering on the simultaneous promises of high-speed and high-reliability 3-D object detection, especially for an intelligent robot operation in fields. The optical machine vision technology has thus become an essential method and expertise for developing intelligent robots. It also plays as a key to ensure success of effective operation within a dangerous working environment, such as nuclear power plants.

The main objective of this project is to develop multi-dimensional imaging, object recognition and event monitoring technology by employing multi robots working within hazardous environment. The research proposes to employ multirobot integral optical detection for acquiring real-time multi-dimensional imaging in cooperation with

environmental radiation distribution. Meanwhile, to develop object recognition capability using reconstructed 3-D information is also targeted as one of the main objectives for in-situ automatic object detection and recognition. A miniaturized optical vision system will be developed and integrated for intelligent robot operation. The system to be developed integrates an innovative spontaneous optical interferometric principle and a novel optical detection method to become capable of measuring dynamic 3-D surface characteristics with a measurement bandwidth up to few hundreds Hz level bandwidth. In addition, to satisfy spontaneous operation demands of an in-field robot operation, the project also includes the development of multirobot cooperative sensing methodology, to speed up fast object searching and accurate identification.

Keywords: NDT、Image reconstruction、in-situ monitoring technology、machine vision.

I. Introduction (前言)

Building of a 3-D land map of an unknown indoor is considered as an important task in 3-D mapping. There are many applications being developed by employing various mapping, such as navigation, aerial topography, or exploring hazardous environments that are dangerous for human [1-8]. Basically, map establishment is affected significantly by the way of data acquisition and processing. Development of devices for acquiring 3-D data, as LADAR scanners, time-of-flight (ToF) cameras, laser range finders, has led researchers focus more on 3-D mapping and its applications (Hähnel et al. 2003 [9], Ohno et al. 2005 [10], Jo et al. [11] 2006, Joung et al. [12] 2009).

Nowadays, ToF cameras have been used increasingly in 3-D field due to their fast and smart technology for 3-D data acquisition. However, ToF cameras are normally lack of sufficient measurement precision and robustness. In 2009, May et al. [13] proposed a comprehensive method in building 3-D maps for indoors using ToF cameras. Since 2010, RGB-D (red, green, blue and depth) cameras first have been introduced for gaming. These cameras synchronously provide color images and per-pixel depth estimates. The richness in collected data and low-cost in the recent development of sensors are decisive factors making RGB-D cameras employed widely and increasingly

(Huang et al. 2011 [14], Henry et al. 2012 [15], Stückler et al. 2012 [16], etc.).

Fundamentally, 3-D mapping consists of at least four major sub-processes: data acquisition, pre-processing for point clouds, data registration for consecutive datasets and incremental 3-D mapping. In there, data registration plays a decisive role leading to success or failure of mapping. In the recent research, the iterative closest point (ICP) algorithm [17] has been widely applied for measurement registration, as well as the scale invariant feature transform (SIFT) algorithm [18] for visual feature detection and the random sample consensus (RANSAC) algorithm [19] for feature matching. Especially, the ICP algorithm has been applied effectively for numerous applications, not only in 3-D mapping (Sáez et al. 2004 [4], Nüchter et al. 2005 [20], Rusu et al. 2007 [21], Chen et al. 2012 [22]) but also in object recognition (Amor et al. 2006 [23], Mian et al. 2007 [24], Chen et al. 2007 [25]) and object segmentation (Masuda et al. 1995 [26], Newcombe et al. 2012 [27]).

The radiological environmental zones are generally hazardous for human to access. To avoid this, autonomous mobile robots provide an ideal access for exploring these dangerous zones since they are free of human access and can be made of radiation proof materials. For radiation detection and localization, the localization for a single radiation source is generally solved by exploiting either complicated algorithm or processes such as least squares approximation (Howse et al. [28], 2001) or maximum likelihood estimation (MLE) (Gunatilaka et al. [29], 2007) methods. Howse developed the least squares estimation algorithms for real-time tracking the physical location of radioactive sources. Meanwhile, Gunatilaka effectively localized gamma sources by measuring dose rates at specific locations for estimating the source's parameters. In 2008, Cheng et al. [30] proposed a method for recovering radiation source's parameters according to the observations. One year later, Ding et al. [31] proposed a statistic algorithm for dynamically tracking the targets' motion. A novel unified solution was also developed based on the Gaussian mixture model [32] with an explicit model selection to model the target signal distribution. Meanwhile, for radioactive target tracking, an adaptive Gaussian mixture representation was developed to handle the target mobility issue and the mean-shift [33-34] continuous optimization method was also proposed for target localization. To pursue more accurate detection robustness, Chin et al. [35] introduced a robust localization algorithm for multiple radiation sources using a network of sensors under random underlying physical processes and measurement errors. However, from all of the above survey, one important fact is obvious that the current existing methods attempt to pinpoint radioactive sources without adapting simultaneous in-situ 3-D land mapping, in which the radiation detection has to rely on complicated model estimation and optimization. This may generally make the above problem extremely difficult in the task of automated radiation detection in unknown 3-D space.

Therefore, in the article, a new strategy for clouds-powered radioactive source detection and localization is developed by fusing the task with in-situ 3-D land mapping simultaneously. The sensor fusion between the 3-D sensing and radioactive measurement provides exclusive advantages in overcoming the traditional difficulties remained in accurate radiation detection and localization, as well as enhancing detection efficiency. Meanwhile, to reduce the computational time and improve the convergence and robustness of alignment iterations in automatic 3-D data registration, keypoints that best represent the scene are first extracted and filtered to establish the matched 3-D keypoint cloud pairs between consecutive clouds for image registration. In there, keypoint extracting is implemented rapidly by a SURF-based algorithm [36], while incorrect pair filtering is implemented by a geometric-based filtering algorithm. By employing 3-D land mapping, the proposed approach, CDR (color-depth-radiation) mapping, can estimate robot poses rapidly to localize the source's parameters. As a result, the radiation-localized 3-D maps of contamination indoors with either single source or multiple sources can be achieved accurately for efficient contamination control and safety management.

II. Methodology (研究方法)

In the proposed approach, color images, 3-D point clouds and radioactive intensities are acquired and fused simultaneously via a RGB-D camera and a portable radiation detector being carried by a mobile robot. Every color pixel is incorporated with its corresponding calibrated 3-D detected point to generate colorized clouds. Meanwhile, every colorized cloud point is also fused with its corresponding measured radioactive intensity.

• Filtering algorithm for mismatching point pairs:

In the approach, the detected color images by the camera are used to extract crucial visual features and establish the corresponding pairs of matched image features between consecutive scanned images by employing the robust feature algorithm. Meanwhile, due to potential sensing noises embedded in detected images, the collections may contain undesired matching pairs having inconsistent corresponding errors. Thus, rejecting false match is necessary for accurate data fusion. Since any matching pair with correct correspondence shall have a consistent geometric relationship with the other existing matching pairs, the Euclidean distance between two matched points or the angle with respect to the matched point shall be consistent.

In the research, a geometric-based filtering algorithm consisting of two steps, distance-based and area-based filtering steps, shown in Fig. 1, was developed to ensure all incorrect keypoint pair to be effectively removed.

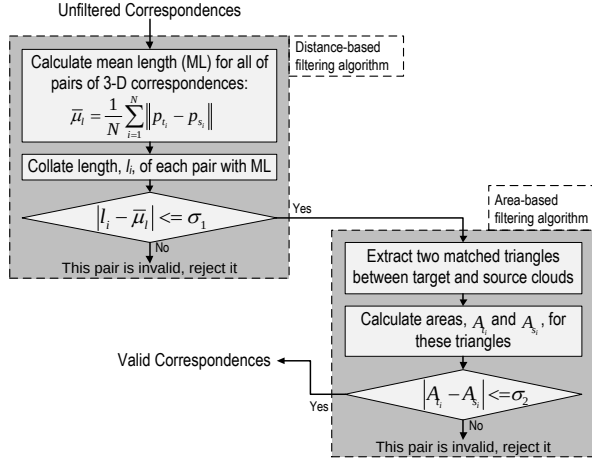


Fig. 1 Flow chart of the geometric-based filtering algorithm for filtering incorrect 3-D keypoint cloud pairs between consecutive clouds.

Distance-based filtering is based on an important property for true 3-D data points, is that the distance between two correspondences is invariant. Physically, each edge of correspondences should be equal in length if the object is remained rigid without deformation as the example shown in Fig. 2 (a). Following this, incorrect correspondences can be rejected by computing the mean length for all correspondences by

$$\bar{\mu}_l = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \|p_{t_i} - p_{s_i}\| \quad (1)$$

where N denotes number of correspondences, while $\|p_{t_i} - p_{s_i}\|$ represents the Euclidean distance between the point p_{t_i} in the target and its corresponding point p_{s_i} in the source.

With a standard deviation and a mean $\bar{\mu}_l$, any pair having length exceeding a preset threshold is then eliminated.

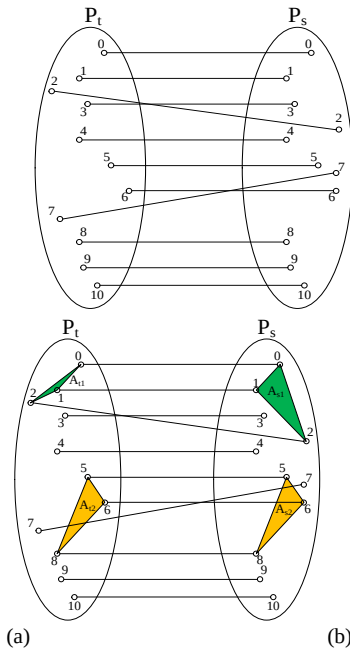


Fig. 2 A sub-set of matched 3-D keypoint cloud pairs between two consecutive datasets: (a) the distance-based filtering and (b) the area-based filtering.

Meanwhile, the mean angle of all matched pairs can be also expressed as a quality-measure index as follows:

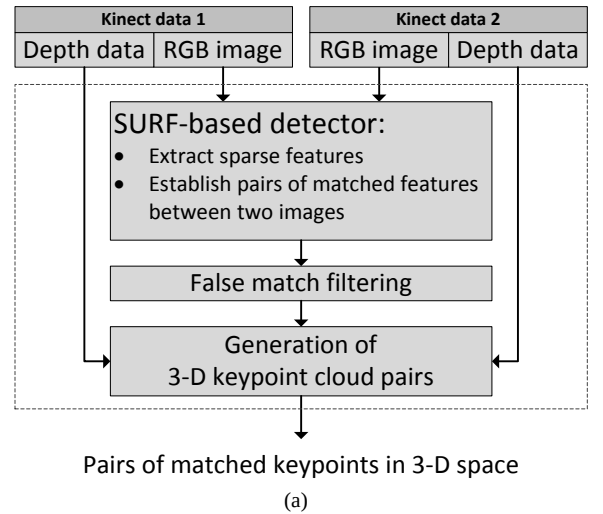
$$\bar{\mu}_\alpha = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |\alpha_i| \quad (2)$$

where N denotes number of matched pairs between two consecutive images; $|\alpha_i|$ denotes the i^{th} absolute angle between x -axis and the vector formed by two i^{th} target and source features, p_{t_i} and p_{s_i} , respectively.

With the standard deviation and mean $\bar{\mu}_\alpha$ being evaluated, any matched pair having its defined angle exceeding a certain present threshold is removed from the matched pair list.

Similarly, the area-based filtering is based on the invariance of the triangle areas formed by each three matched points in the target and the ones in the source. This means the areas of two matching triangles shall be equal. Each triangle area A_{t_i} in the target is compared with its corresponding triangle area A_{s_i} in the source to discriminate the wrong matched pairs, illustrated in Fig. 2(b).

By using the above algorithms, the matched features are incorporated with their corresponding calibrated depth to generate 3-D keypoint cloud pairs between consecutive clouds, as demonstrated in Fig. 3(a). However, not all of pairs have sufficient accuracy because of possible distortions in calibration between color and depth images, as illustrated in Fig. 3(b). Therefore, the proposed geometric-based filtering algorithm is employed to reject incorrect matched pairs to retain accurate 3-D keypoint cloud pairs for ensuring the accuracy in 3-D image registration. An example with employment of the matched pairs filtering is shown in Fig. 3(c), in which the mismatched pairs have been all removed.



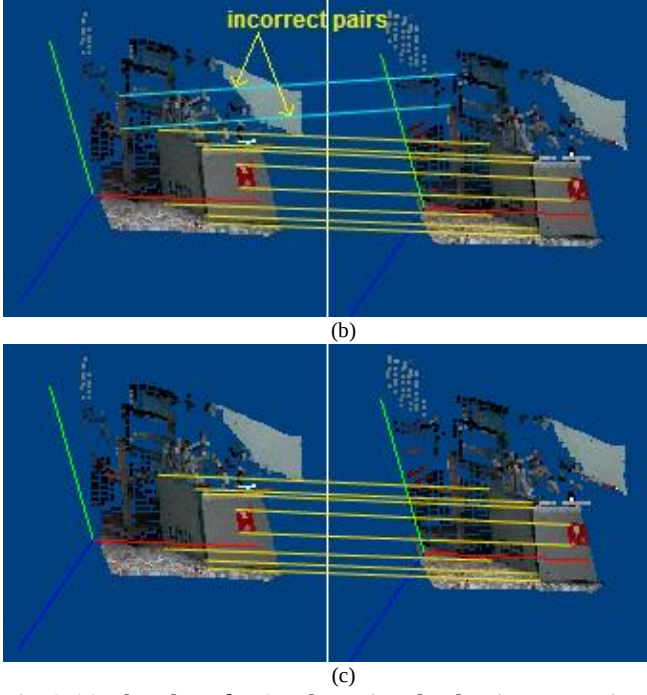


Fig. 3 (a) Flowchart for 3-D keypoint cloud pairs generation between two consecutive datasets and the false match filtering; (b) an example of 3-D keypoint cloud pairs established between two consecutive clouds before the matched pairs filtering; and, (c) an example of 3-D keypoint cloud pairs established between two consecutive clouds after the matched pairs filtering.

ICP-based algorithm for transformation estimate using the 3-D keypoint cloud pairs

Estimating the transformation between consecutive clouds is computational expensive, especially for large 3-D clouds. Therefore, to reduce computation time and increase accuracy in registration, only correct 3-D keypoint cloud pairs are used for transformation estimate. Assuming that, a set of correct pairs between two consecutive clouds contains P_s points in the source and P_t points in the target is given as follows:

$$P_s = \{\bar{p}_s\} \quad (3)$$

$$P_t = \{\bar{p}_t\} \quad (4)$$

The number of keypoints in P_s : N_s and P_t : N_t is equal. $\{\bar{p}_{s_i}\}$ and $\{\bar{p}_{t_i}\}$, where $i = 1 \sim N_s$, are the corresponding pairs. The rigid transformation, TR^k , and mean square error, MSE_k , are then calculated at the k^{th} iteration. MSE_k is compared with a threshold so that the best transformation can be evaluated, shown in Fig. 4.

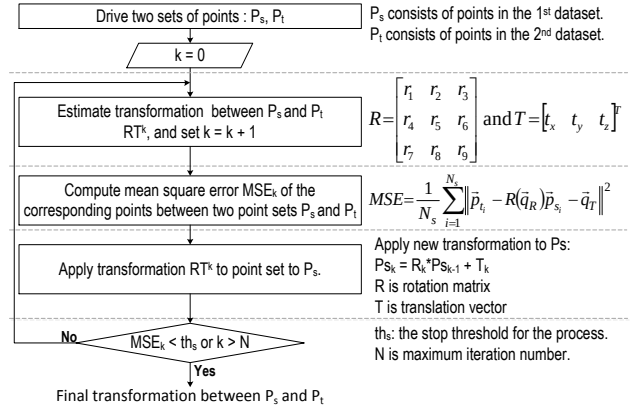


Fig. 4 Flowchart of the algorithm in transformation estimate between two sets of matched 3-D keypoints.

The center of mass of these point sets are given by:

$$\bar{\mu}_s = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} \bar{p}_s \quad (5)$$

$$\bar{\mu}_t = \frac{1}{N_t} \sum_{i=1}^{N_t} \bar{p}_t \quad (6)$$

The cross-covariance matrix between P_s and P_t can be determined as:

$$\Sigma_{st} = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} [(\bar{p}_{s_i} - \bar{\mu}_s)(\bar{p}_{t_i} - \bar{\mu}_t)^T] \quad (7)$$

A symmetric 4×4 matrix is formed as follows:

$$Q(\Sigma_{st}) = \begin{bmatrix} tr(\Sigma_{st}) & \Delta^T \\ \Delta & \Sigma_{st} + \Sigma_{st}^T - tr(\Sigma_{st})I_3 \end{bmatrix} \quad (8)$$

$$\text{where } \Delta = [A_{23} \ A_{31} \ A_{12}]^T;$$

$$A_{if} = \left(\Sigma_{st} - \Sigma_{st}^T \right)_{ij}; \text{ and,}$$

$$I_3 = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} : 3 \times 3 \text{ identity matrix}$$

The unit eigenvector corresponding to the maximum eigenvalue of the matrix $Q(\Sigma_{st})$ is given by:

$$\bar{q}_R = [q_0 \ q_1 \ q_2 \ q_3]^T \quad (9)$$

The optimal rotation matrix between source and target point set can be estimated by:

$$R = \begin{bmatrix} q_0^2 + q_1^2 - q_2^2 - q_3^2 & 2(q_1q_2 - q_0q_3) & 2(q_1q_3 + q_0q_2) \\ 2(q_1q_2 + q_0q_3) & q_0^2 + q_2^2 - q_1^2 - q_3^2 & 2(q_2q_3 - q_0q_1) \\ 2(q_1q_3 - q_0q_2) & 2(q_2q_3 + q_0q_1) & q_0^2 + q_3^2 - q_1^2 - q_2^2 \end{bmatrix} \quad (10)$$

The optimal translation vector between the source and target point set is given by:

$$\bar{q}_T = \bar{\mu}_t - R(\bar{q}_R)\bar{\mu}_s \quad (11)$$

where

$$\bar{q}_T = [q_4 \ q_5 \ q_6]^T.$$

The iteration is initialize d by setting $\bar{q}_{T_0} = [0 \ 0 \ 0]^T$.

To evaluate the transformation, the mean squared objective function to be minimized is further expressed as:

$$MSE_k = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} \left\| \tilde{p}_{t_i} - R(\tilde{q}_R) \tilde{p}_{s_i} - \tilde{q}_T \right\|^2 \quad (12)$$

Strategy for locating radioactive sources

The most important theme in the research is that determining the radioactive sources' parameters including strength and 3-D position. In conventional methods for accurate radioactive source detection and localization, robot position estimate is really a challenge. However, by using 3-D land mapping, robot positions in 3-D space can be easily estimated by an ICP-based algorithm using correct 3-D keypoint cloud pairs. According to collected radioactive intensities by the portable radiation detector and estimated robot positions to estimate source parameters by employing the Newton's inverse-square law (NISL) [37] and using least square approximation method. The distance from the detector to the source is computed by the Newton's inverse-square law:

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{d_2^2}{d_1^2} \quad (13)$$

where I_1 and I_2 denote the measured dose rates at the distance d_1 and d_2 , respectively; whereas d_1 and d_2 represent the distances from the radioactive source to the detector at two different detector positions.

The radioactive source is parameterized by a *four-value* vector $\theta(x, y, z, \zeta)$, where (x, y, z) is the position of the source, and ζ is the source's strength. According to the moving strategy of the robot, at least $4 \times M$ robot positions have to be estimated first, in which M represents the number of radiation sources in the space. Since the intensity at each robot location X_k is influenced by the propagation of the dose rates from all of sources, it is calculated by:

$$I_k = \theta_1(X_k) + \theta_2(X_k) + \dots + \theta_M(X_k) \\ = \frac{\zeta_1}{d_{1k}^2} + \frac{\zeta_2}{d_{2k}^2} + \dots + \frac{\zeta_M}{d_{Mk}^2} \quad (14)$$

A set of Newton's inverse-square equations is further established based on the robot position and the corresponding measured dose rate as follows:

$$\begin{cases} I_1 = \sum_{r=1}^M \frac{\zeta_r}{d_{r1}^2} \\ I_2 = \sum_{r=1}^M \frac{\zeta_r}{d_{r2}^2} \\ \vdots \\ I_k = \sum_{r=1}^M \frac{\zeta_r}{d_{rk}^2} \end{cases} \quad (15)$$

where

$$d_{rk} = \sqrt{(x_r - x_k)^2 + (y_r - y_k)^2 + (z_r - z_k)^2}, \quad \text{and} \quad I_k$$

denotes the measured intensity at the robot's k -th position $X_k(x_k, y_k, z_k)$; $\zeta_1, \zeta_2, \dots, \zeta_M$ are the unknown strengths of the sources 1, 2, ..., M , respectively; and, (x_r, y_r, z_r) represents the unknown location of the r -th radioactive source.

The least squares error for N positions of the robot is evaluated as the fitting quality as follows:

$$E = \sum_{k=1}^N \left(I_k - \sum_{r=1}^M \frac{\zeta_r}{d_{rk}^2} \right)^2 \quad (16)$$

The following set of equations of the first order derivatives of E can be used to determine the *four-value* vectors, $\theta_1(x_1, y_1, z_1, \zeta_1) \sim \theta_M(x_M, y_M, z_M, \zeta_M)$:

$$\begin{cases} \frac{\partial E}{\partial x_r} = 0; \frac{\partial E}{\partial y_r} = 0; \frac{\partial E}{\partial z_r} = 0; \\ \frac{\partial E}{\partial \zeta_r} = 0; \end{cases}, r = 1 \sim M \quad (17)$$

Fig. 5 illustrates an example for radioactive source localization of two radiation sources, θ_1 and θ_2 . In the case, at least eight positions of the robot have to be scanned, in order to determine θ_1 and θ_2 .

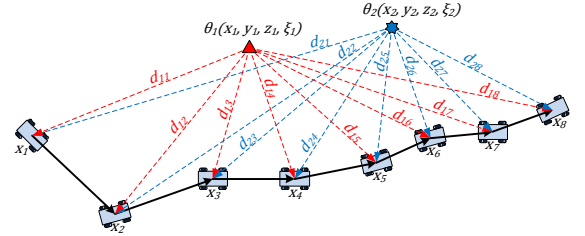


Fig. 5 The moving strategy of the mobile robot to locate positions of two radioactive sources.

When the source is covered by a radioactive obstacle such as heavy metal shields, this situation can lead to the measurement error. To avoid this potential problem and ensure the accuracy in radiation source localization, any measured radiation parameter having a least squares error E (calculated by Eq. 16) exceeding a pre-set threshold will be rejected from the evaluation. For instance, as illustrated in Fig. 6 (a), the measures I_1 and I_2 are reduced significantly because of a radioactive obstacle. This indicates that the searching radioactive source is occluded by an obstacle which considerably reduces the detected radioactive intensity. In an extreme case, when the source is completely enclosed by the closed radiation obstacles, shown in Fig. 6 (b), the problem may become unresolvable for the other existing methods since no satisfactory summed residual errors can be obtained. However, according to the reconstructed 3-D map, the developed methodology can predict this radiation-enclosed situation when E is excessive in every detected position. The position of the detected radioactive source can be easily determined by the intersected position of any two scanned positions in the reconstructed 3-D map. This is the unique advantage of the developed method over the other existing methods.

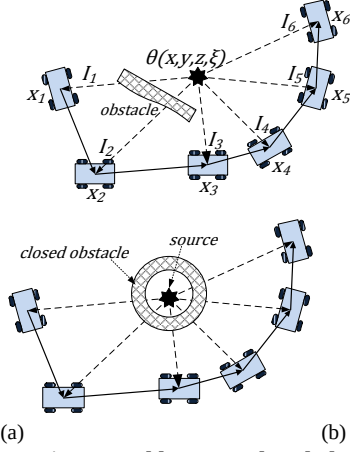


Fig. 6 (a) the source is covered by an unclosed obstacle and (b) the source is covered by an enclosed radiation obstacle.

When the number of radioactive sources in radiological environments is unknown, this presents a challenge in accurate radioactive source detection and localization. Our methodology adapts the generalized maximum likelihood (ML) algorithm [38] to solve the problem for estimation of radioactive source number. In the algorithm, M represents a set of candidate radioactive source numbers and the maximum source numbers for testing is denoted by $r_{\max}$. Given a set of measures I , the estimation of the source number in M best matches is determined by

$$\beta_r = \log p(I|\hat{\theta}_{ML,r}) - \frac{1}{2} \log |J(\hat{\theta}_{ML,r})| \quad (18)$$

where J denotes the Fisher matrix [38].

$\hat{\theta}_{ML,r}$ is then calculated by maximizing the likelihood function $l(I|\theta)$ as follows:

$$\hat{\theta}_{ML} = \arg \max_{\theta} l(I|\theta) \quad (19)$$

Following this, the number of radioactive sources in the radiological environments is estimated by

$$\hat{r} = \arg \max_{r \in M} \beta_r \quad (20)$$

By incorporating all the algorithms proposed above, the general strategy of the CDR Mapping algorithm is established to reconstruct the radiation-localized 3-D map for the indoor radioactive environments as demonstrated in Fig. 7.

III. Experimental results and analyses (結果與分析)

To evaluate performance of the proposed CDR Mapping method for *in-situ* clouds-powered radioactive source detection and localization using 3-D land mapping, various experiments were performed for large-scale indoors and radiological indoors to test the feasibility and accuracy of the proposed detection methodology. Experiments were performed by conducting into four groups: (1) Elimination of false matched features between two consecutive color images; (2) Filtering of invalid correspondences between two consecutive point cloud datasets; (3) Building of the

3-D maps for large-scale indoor environments. (4) Building of the radiation-localized 3-D maps for the radiological indoor environments.

Case study of elimination for false matched features between two consecutive color images

Acquired datasets for experiments are: (1) a pair of far-field scenes of the mechanical workshop (distance, d_s , between the robot and the scene was around 3 meters), Scene 1; (2) a pair of near-field scenes of the mechanical workshop ($d_s \approx 1$ meter), Scene 2; (3) a pair of middle-field scenes of the mechanical workshop ($d_s \approx 2$ meters), Scene 3; (4) a pair of very close-field scenes of Thai's desk, Scene 4; (5) a pair of the AOI lab scenes, Scene 5. The number of the matched feature pairs was 444, 578, 257, 1036 and 524 for Scene 1 ~ Scene 5, respectively. For Scene 1, the angle deviation was set from 0 to 15 degrees; in which at 0 degree 100% pairs were eliminated and at 15 degrees all of pairs were retained. Similarly, all of pairs were retained at 31, 40, 60 and 45 degrees for Scene 2~5, respectively. Experimentally, by adjusting value of the angle deviation from 3 to 7.5 degrees, the most of false matches were rejected.

Fig. 9 shows the relationship between the angle deviation and the percent of elimination for false matches. Meanwhile, Fig. 10 demonstrates the results in eliminating false matches for taken experimental datasets.

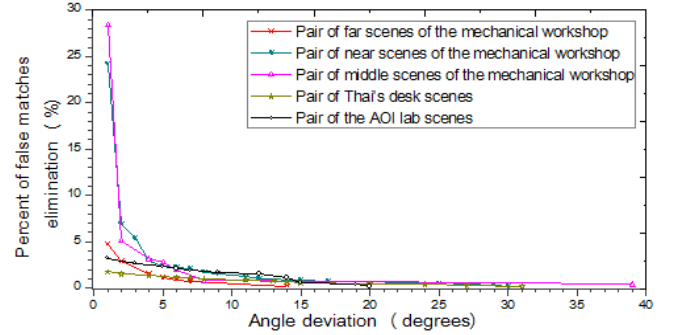
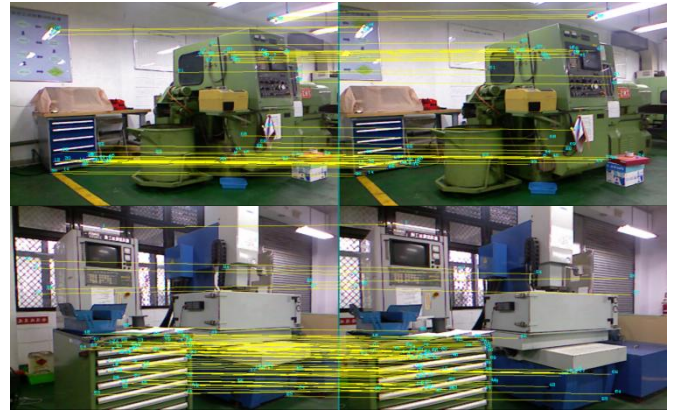


Fig. 7 Relationship between the angle deviation and the percent of elimination for false pairs of matched features between consecutive color images.



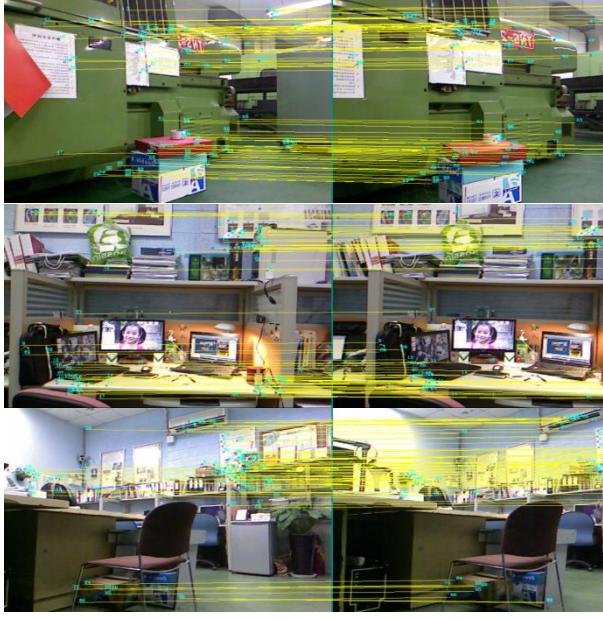


Fig. 8 Five pairs of scenes used for testing of false matches elimination: a far-field scene, a near-field scene, a middle-field scenes, a very close-field scene and a lab scene.

Case study of filtering for invalid correspondences between two consecutive point cloud datasets

Three typical pairs for this experiment are: (1) a pair of far-field scenes of the radiation testing room, called Scene 1; (2) a pair of near-field scenes of a desk, called Scene 2; and (3) a pair of middle-field scenes of a mechanical shop, called Scene 3. The threshold set for the angle-based filtering was 5 degrees as 10 centimeters for distance-based filtering. To investigate the performance on filtering invalid correspondences, the threshold set for the area-based filtering was adjusted by a serial of values. The number of 3-D correspondences being established by incorporating the filtered SURF-based matched pairs was 278, 891 and 435 pairs for Scene 1 ~ 3, respectively. Experimentally, set at 1.25 as the threshold of the area filtering, 98% of invalid correspondences were effectively filtered, as shown in Fig. 11.

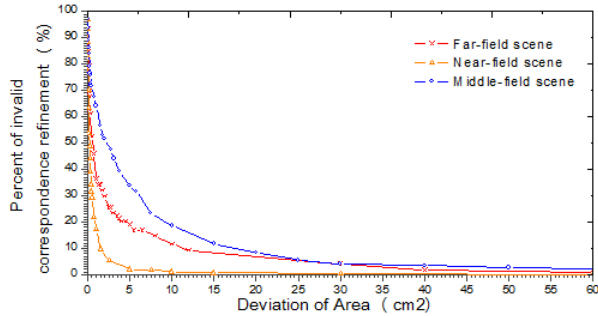


Fig. 9 Filtering of invalid correspondences by adjusting the threshold set for the area-based filtering.

Fig. 12 shows the result of feature detection and correspondence refinement for a far-field scene captured at a radiation testing room. The number of points was 242,510 and 251,067 points for the first and the second

point cloud dataset, respectively. The threshold set by 5 degrees as the angle-based filtering threshold, 10 centimeters set as the distance-based filtering and 0.25 square centimeters set as the area-based filtering. For the matched pairs of the SURF-based features between two color images, the original number of matched pairs without data filtering was first 324 pairs and then reduced to 317 pairs when using the angle-based filtering. The number of 3-D correspondences established by incorporating the filtered SURF matched pairs using the corresponding depth values was reduced to 278 pairs in 3-D space. After applying the correspondence refinement algorithm based on three filters, the number of retained valid correspondences was finally reduced to 108 pairs. The experimental results for the near-field and middle-field scenes are shown in Fig. 13 and Fig. 14, respectively.

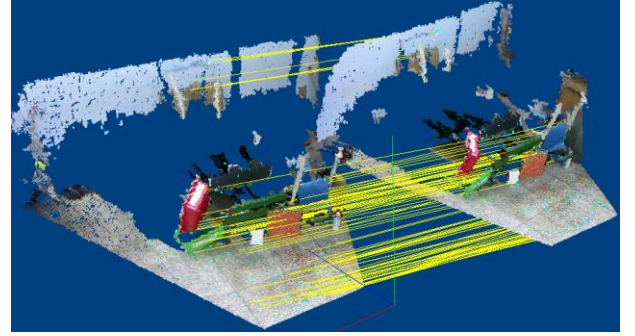


Fig. 10 The result of feature detection and correspondence refinement for a far-field scene at a radiation testing room.

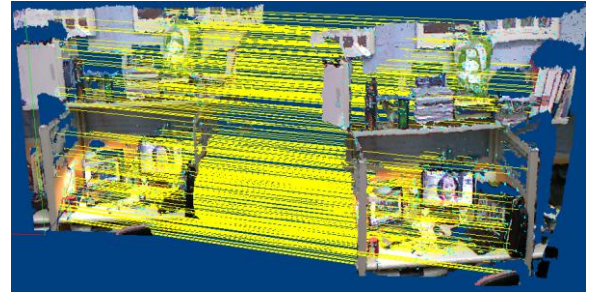


Fig. 11 The corresponding pair matching result of a near-field scene.

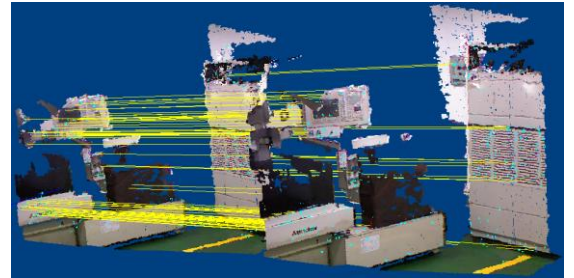


Fig. 12 The corresponding pair matching result of a middle-field scene detected at the mechanical workshop.

In addition, Table 1 resumes the experimental results for refinement of invalid correspondences between two consecutive point cloud datasets for the far-field scene, called Scene A; the near-field scene, called Scene B; and the middle-field scene, called Scene C.

Table 1 Refinement of invalid correspondences.

S	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)	(10)
cene									
A	24	25			0	3	3	2	1
	2,510	1,067	0	.25	24	17	78	08	
B	24	24			0	1	1	8	4
	8,715	9,247	0	.25	036	024	91	56	
C	22	22			0	5	5	2	9
	0,705	6,916	0	.25	22	17	35	0	

In the table, (2) and (3) are the number of points in the first and second point cloud (*points*), respectively. (4), (5) and (6) are the thresholds set for the angle-base filtering (*degrees*), the distance-based filtering (*centimeters*) and the area-based filtering (*square of centimeters*), respectively. (7) and (8) are the number of matched SURF-based pairs before and after data filtering, respectively; (9) and (10) are the number of 3-D correspondences before and after correspondence filtering, respectively.

From the experimental results, it was found that the established and filtered correspondences may fail in case the camera cannot captures sufficient visual features because of detecting textureless areas, such as the wall, the floor and the large planar surface shown in Fig. 15. In these extreme cases, the matching between scanned scenes is difficult. Fortunately, the mobile robot can provide flexibility in scanning alternative images to resolve this possible deadlock.



Fig. 13 Scenes cause the matching to fail: (a) the wall, (b) the floor, (c) the large planar surfaces.

Case study of building 3-D maps for large-scale indoor environments

Two large-scale indoor environments were used for testing the feasibility of the proposed 3-D mapping algorithm. The filtering thresholds set the same as the above case. The cloud size was reduced the resolution by a scale of 1:5. 錯誤! 找不到參照來源。 and Fig. 16 show the parameters set for building 3-D maps and results of mapping, respectively.

In Table 2, (i) is the large-scale indoor environment used for this experiment; (ii) is the number of point clouds used to build the 3-D map of the corresponding environment; (iii) is the scale factor for reducing the cloud's resolution; (iv) is the average of the number of points of each point cloud used to build the 3-D map; (v), (vi) and (vii) are the thresholds set for the angle-base

refining (*degrees*), the distance-based refining (*centimeters*) and the area-based refining (*square of centimeters*), respectively.

Table 2 Parameters set for building 3-D maps of the large-scale indoor environments.

(i)	(ii)	(iii)	(iv)	(v)	(vi)	(vii)
(a)	7	1:	760	5	1	0
(b)	7	5	6	5	0	.75
(c)	1	1:	798	5	1	0
(d)	23	5	6	5	0	.75

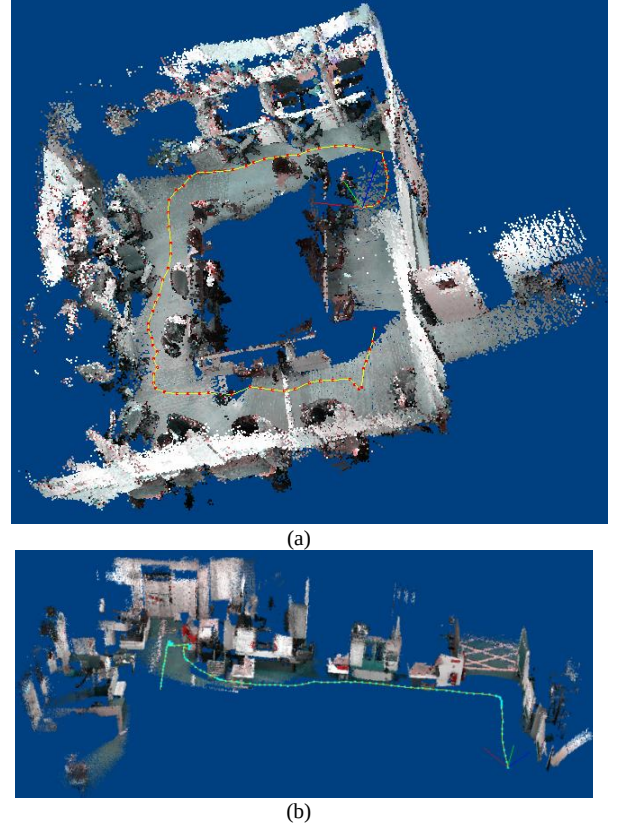


Fig. 14 3-D environment maps reconstructed by the proposed 3-D mapping algorithm for large-scale indoor environments: (a) The 3-D map of a lab and (b) the 3-D map of a mechanical workshop.

The comparison between our approach and a new approach proposed by Henry *et al.* (2012) [15] is represented in Table 3. Five pairs of different scenes have been collected for establishing of correspondences in this experiment. The threshold set the same as above. The number of the established correspondences has been increased around 25%, meanwhile the computation time was decreased around 30% by our approach when compared with Henry's approach. The experimental results are shown in Table 3, where *M* represents the method used for establishing correspondences, (*A*) denotes our method, and (*B*) denotes Henry's method; meanwhile *NoC* represents the number of correspondences and *t* represents the computation time by second.

	1	2	3	4	5
M					
$\frac{1}{M}$					
$\frac{1}{M^2}$					

Case study of building the radiation-localized 3-D maps for the radiological contamination indoor environments

For the case of single radiation source localization, the mobile robot system was driven to navigate inside the tested environment to acquire 3-D point cloud datasets with the corresponding dose. To build the 3-D map of the radiation testing room, the thresholds set the same as above, meanwhile the cloud size was reduced the resolution by a scale of 1:9. The set of Newton's inverse-square equations was established based on multiple estimated positions of the mobile robot. By using the mapping method, the four-value vector of the source was estimated by $S(3.85\text{m}, 0.25\text{m}, 1.4\text{m}, 8.32\text{mSv/h})$, shown in Table 4.

Measures					Source's parameters				
o.	l	x	y	z	do	x	y	z	do
	(m)	(m)	(m)	(m)	(mSv/h)	(m)	(m)	(m)	(mSv/h)
3	475	132	0.016	-	8	.85	.25	0	1
4	5246	159	1246	0.	8				8.
5	5576	1731	185	0.	7				
6	5963	1892	2499	0.	6				
9	6435	2205	365	0.	6				
1	6147	2225	3636	0.	6				
3	5847	2272	3635	0.	6				
5	564	2287	3713	0.	5				
7	5371	23	3742	0.	6				
9	5276	2307	376	0.	6				
1	5068	2347	3869	0.	6				

positioning can be performed automatically with 95% accuracy both in positioning and radioactive intensity detection.

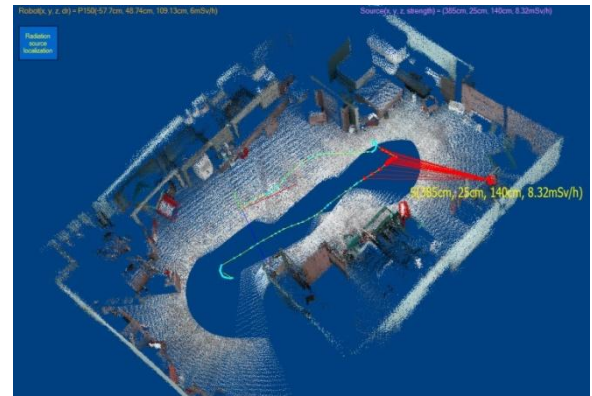


Fig. 18 shows the result of the radiation-localized 3-D map of a radiation testing room with two radiation sources, in which one source is covered by a radiation obstacle. Parameters for building the 3-D map were set as for the case of the single source. Especially, to acquire 3-D point cloud datasets and the corresponding dose, two mobile robot systems were used for co-operation. The set of Newton's inverse-square equations was established based on 21 estimated positions of the mobile robot. The four-value vector was estimated by $S_1(2.2\text{m}, -0.15\text{m}, 0.3\text{m}, 8.32\text{mSv/h})$ and $S_2(-0.15\text{m}, 0.25\text{m}, 2\text{m}, 52.23\text{mSv/h})$ for the first and the second source, respectively.

46

In addition, experiments also show the accuracy in radiation source localization. From the 63-th radiation measure for the single source case and the 4-th radiation measure for the multi sources case were used to establish Newton's inverse-square equations for estimating source's parameters. The angles calculated based on robot positions forward to the sources used to estimate the accuracy for radiation source localization, the algorithm reaches the convergence at approximately 95% of accuracy at the accumulated angle of 65 degrees for the single source case, and at the accumulated angle of 87 degrees for the multi sources case, respectively, shown in Fig. 19.

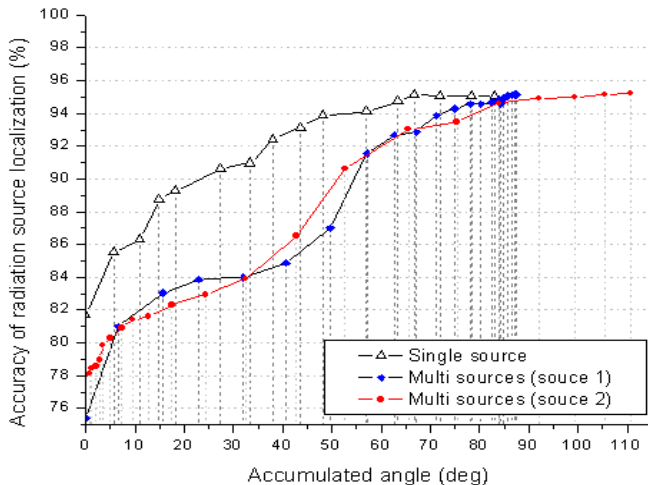


Fig. 17 Accuracy of radiation source localization for the single source case and the multi source case.

The experimental results indicate that accuracy of the radiation source localization can be influenced significantly by the accumulated errors from 3-D land mapping. This can be resolved by the feature extraction and registration performed in the CDR mapping. In addition, the measured errors contributed by the 3-D camera and radioactive radiation detector are also identified as the important factors to be controlled in order to achieve high accuracy in radiation source localization.

IV. Conclusions (結論)

A novel algorithm, called the CDR mapping, is developed for *in-situ* clouds-powered radioactive source detection and localization using 3-D land mapping and incorporating sensor fusion between a RGB-D camera and a portable radiation detector as a framework to build radiation-localized 3-D maps of large-scale radiological contamination indoor environment. RGB-D cameras and radiation detectors are integrated for realizing the CDR mapping, including color, depth and dose rate information. A geometric-based filtering algorithm according to the distribution of points in the point cloud datasets to reject noises effectively. In addition, most importantly, we developed an algorithm for radiation source detection and localization with 95% detection accuracy. Experimental results preliminarily indicate that the development is feasible in *in-situ* clouds-powered multi radioactive source

detection and localization with simultaneous *in-situ* 3-D land mapping. When the radioactive source is partially or completely occluded by a radiation obstacle, the developed methodology can predict the radiation-enclosed situation and accurately pinpoint the radioactive source. This unique advantage has helped resolve a rather difficult problem in *in-situ* radioactive detection.

參考文獻 (因篇數過多, 因此僅節錄重要文獻)

- [1] S. Thrun, "A probabilistic online mapping algorithm for teams of mobile robots," The International Journal of Robotics Research, vol. 20, no.5, pp. 335-365, 2001.
- [2] S. Se, D. Lowe, and J. Little, "Mobile robot localization and mapping with uncertainty using scale-invariant visual landmarks," The International Journal of Robotics Research, vol. 21, no. 8, pp. 735-758, 2002.
- [3] S. Thrun, C. Martin, Y. Liu, D. Hahnel, R. Emery-Montemerlo, D. Chakrabarti, and W. Burgard, "A real-time expectation-maximization algorithm for acquiring multiplanar maps of indoor environments with mobile robots," IEEE Transactions on Robotics and Automation, vol. 20, no. 3, pp. 433-443, 2004.
- [4] J. M. Sáez and F. Escolano, "A global 3D map-building approach using stereo vision," The 2004 IEEE International Conference on Robotics and Automation, New Orleans, LA, USA. Proceedings, April 26-May 1 2004.
- [5] R. Triebel and W. Burgard, "Improving simultaneous mapping and localization in 3-D using global constraints," The 20th National Conference on Artificial Intelligence, Pittsburgh, Pennsylvania. Proceedings, July 9-13 2005.
- [6] D. M. Cole and P. M. Newman, "Using laser range data for 3-D SLAM in outdoor environments," The 2006 IEEE International Conference on Robotics and Automation, Orlando, Florida. Proceedings, May 15-19 2006.
- [7] S. May, D. Droschel, D. Holz, S. Fuchs, E. Malis, A. Nüchter, and J. Hertzberg, "Three-dimensional mapping with Time-of-Flight cameras," Journal of Field Robotics, Special Issue on Three-dimensional Mapping, Part 2, vol. 26, no. 11-12, pp. 934-965, 2009.
- [8] P. Newman, G. Sibley, M. Smith, M. Cummins, A. Harrison, C. Mei, I. Posner, R. Shade, D. Schroeter, L. Murphy, W. Churchill, and D. Cole, "Navigating, recognizing and describing urban spaces with vision and lasers," The International Journal of Robotics Research, vol. 28, no. 11-12, pp. 1406-1433, 2009.
- [9] D. Hähnel, W. Burgard, and S. Thrun, "Learning compact 3-D models of indoor and outdoor environments with a mobile robot," Robotics and Autonomous Systems, vol. 44, pp. 15-27, 2003.
- [10] K. Ohno and S. Tadoloro, "Dense 3D map building based on LRF data and color image fusion" IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Edmonton, Alberta, Canada. August 2-6 2005.

- [11] S. Jo, Y. M. Kwon, H. Ko, "Indoor environment modeling for interactive VR-based robot security service," The 16th International Conference on Artificial Reality and Telexistence, Hangzhou, China. November 29-December 1 2006.
- [12] J. H. Joung, K. H. An, J. W. Kang, M. J. Chung, and W. Yu, "3D environment reconstruction using modified color ICP algorithm by fusion of a camera and a 3D Laser Range Finder," IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, St. Louis, USA. Proceedings, October 11-15, 2009.
- [13] S. May, S. Fuchs, D. Droschel, D. Holz, and A. Nüchter, "Robust 3D-mapping with Time-of-Flight cameras," IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, St. Louis, USA. Proceedings, October 11-15 2009.
- [14] A. S. Huang, A. Bachrach, P. Henry, M. Krainin, D. Maturana, D. Fox, and N. Roy, "Visual odometry and mapping for autonomous flight using an RGB-D camera," The 15th International Symposium on Robotics Research (ISRR' 11), Flagstaff, Arizona, USA. Proceedings, August 28-September 1, 2011.
- [15] P. Henry, M. Krainin, E. Herbst, X. Ren, and D. Fox, "RGB-D mapping: Using Kinect-style depth cameras for dense 3D modeling of indoor environments," The International Journal of Robotics Research, vol. 0, no. 0, pp. 1-17, 2012.
- [16] J. Stückler and S. Behnke, "Integrating depth color cues for dense multi-resolution scene mapping using RGB-D cameras," The IEEE International Conference on Multisensor Fusion and Information Integration, Hamburg, Germany. Proceedings, September 13-15 2012.
- [17] P. J. Besl and N. D. McKay, "A method for registration of 3-D shapes," IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, vol. 14, no. 2, pp. 239-256, 1992.
- [18] D. G. Lowe, "Distinctive image features from scale-invariant keypoints," International Journal of Computer Vision, vol. 60, no. 2, pp. 91-110, 2004.
- [19] M. A. Fischler and R. C. Bolles, "Random sample consensus: a paradigm for model fitting with applications to image analysis and automated cartography," Magazine: Communication of the ACM, vol. 24, no. 6, pp. 381-395, 1981.
- [20] A. Nüchter, O. Wulf, K. Lingemann, J. Hertzberg, B. Wagner, and H. Surmann, "3D mapping with semantic knowledge," In RoboCup International Symposium, Intex Osaka, Japan. July 13-19 2005.
- [21] R. B. Rusu, N. Blodow, Z. Marton, A. Soos, and M. Beetz, "Toward 3D object maps for autonomous household robots," The IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, San Diego, CA, USA. Proceedings, October 29-November 2 2007.
- [22] L. C. Chen and N. V. Thai, "Real-time 3-D mapping for indoor environments using RGB-D cameras," Advanced Materials Research, vol. 579, no. 2012, pp. 435-444, 2012.
- [23] B. B. Amor, M. Ardabilian, and L. Chen, "New experiments on ICP-based 3D face recognition and authentication," The 18th International Conference on Pattern Recognition (ICPR '06), Hong Kong, China. Proceedings, August 20-24 2006.
- [24] A. S. Mian, M. Bennamoun, and R. Owens, "An efficient multimodal 2D-3D hybrid approach to automatic face recognition," IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, vol. 29, no. 11, pp. 927-1943, 2007.
- [25] H. Chen and B. Bhanu, "Human ear recognition in 3D," IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, vol. 29, no. 4, pp. 718-737, 2007.
- [26] T. Masuda, "A robust method for registration and segmentation of multiple range images," Computer Vision and Image Understanding, vol. 61, no. 3, pp. 295-307, 1995.
- [27] R. Newcombe, S. Izadi, O. Hilliges, D. Kim, D. Molyneaux, J. D. J. Shotton, P. Kohli, A. Fitzgibbon, S. E. Hodges, and D. A. Butler, "Moving object segmentation using depth images," Patent Application Publication, United States. 2012.
- [28] J. W. Howse, L. O. Ticknor, and K. R. Muske, "Least squares estimation techniques for position tracking of radioactive sources," Automatica, vol. 37, pp. 1727-1737, 2001.
- [29] A. Gunatilaka, B. Ristic, and R. Gailis, "On localisation of a radiological point source," Information, Decision and Control, Adelaide, Qld. February 12-14 2007.
- [30] Y. Cheng and T. Singh, "Source tern estimation using convex optimization," The 11th International Conference on Information Fusion, Cologne, Germany. Proceedings, June 30-July 3 2008.
- [31] M. Ding and X. Cheng, "Fault tolerant target tracking in sensor networks," The tenth ACM International Symposium on Mobile Ad Hoc Networking and Computing, Orleans, USA. Proceedings, May 18-21 2009.
- [32] A. P. Dempster, N. M. Laird, and D. B. Rubin, "Maximum likelihood from incomplete data via the EM algorithm," Journal of the Royal Statistical Society, vol. 39, no. 1, pp. 1-38, 1997.
- [33] D. Comaniciu and P. Meer, "Mean shift: A robust approach toward feature space analysis," IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, vol. 24, no. 5, pp. 603-619, 2002.
- [34] D. Comaniciu, V. Ramesh, and P. Meer, "Kernel-based object tracking," IEEE Transactions on Pattern Analysis and Machine Intelligence, vol. 25, no. 5, pp. 564-577, 2003.
- [35] J. C. Chin, D. K. Y. Yau, and N. S. V. Rao, "Efficient and robust localization of multiple radiation sources in complex environments," The 31st International Conference on Distributed Computing Systems, Minneapolis, Minnesota, USA. Proceedings, June 20-24 2011.
- [36] H. Bay, A. Ess, T. Tuytelaars, and L. V. Gool, "Speeded-up robust features (SURF)," Computer Vision and Image Understanding, vol. 110, no. 3, pp. 346-359, 2008.
- [37] M. E. Ander, M. A. Zumberge, T. Lautzenhiser, R. L. Parker, C. L. V. Aiken, *et al.* "Test of Newton's

inverse-square law in the greenland ice cap,” Physical review letters, vol. 62, no. 9, pp. 985-988, 1989.

[38] H. L. V Trees, “Detection, Estimation and Modulation Theory (Part I),” John Wiley & Sons, 1968.

多移動機器人感測網路用於核廢料環境資訊融合之研究

A Study of Multi-Robot Sensing Network for Information Fusion in a Nuclear Waste Environment

計畫編號：NSC 102-NU-E027-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：林顯易

e-mail：sofin@mail.ntut.edu.tw

計畫參與人員：曾華志、鄭佳杰

執行單位：國立台北科技大學自動化所

摘要

本計畫研發具有核災探測功能的移動式機器人，主要是利用輻射感測器接收到的資訊以及機器人本身定位來判斷輻射源的位置，在過程中移動式機器人攜帶輻射感測器到每個特定節點蒐集輻射強度資訊，再將每點的資訊融合估測輻射源的位置。本計畫主要分成移動機器人同時建構地圖及自我定位和移動機器人之輻射源搜尋兩方案進行，前者目的是希望移動機器人在未知的環境下可進行自我定位且建構地圖，後者可在已建構出的地圖中搜尋輻射源，輻射源的估測使用粒子濾波器。一旦輻射源被檢測到，機器人會以 A* 路徑規劃演算法走到輻射源。

關鍵詞：輻射源搜尋、SLAM、粒子濾波器、A* 路徑規劃演算法。

Abstract

The goal of this work aims at developing a mobile robot that is able to localize environmental radiation sources. The method mainly uses the estimated robot location to predict the location of radiation sources. The mobile robot carries a radiation detector to collect sensor data at various locations and fuses them to estimate the location of the radiation source. Two sub-goals are achieved in this work: simultaneous localization and mapping (SLAM) and search of radiation sources. The former is to autonomously establish a map by the robot and the latter one is localize the radiation source by a particle filter according to the found map. Once the source is found, the robot moves close to it by A* path planning algorithm.

Keywords: simultaneous localization and mapping (SLAM), search of radiation sources, particle filter, A* path planning algorithm.

I. 前言

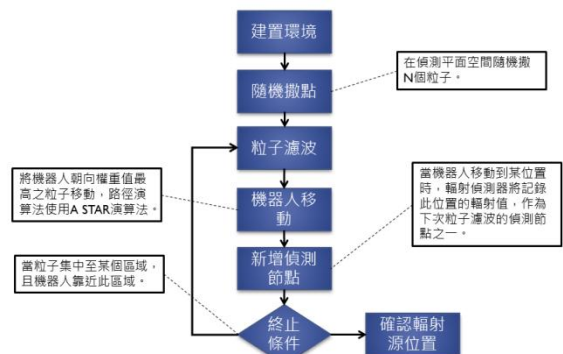
自從日本福島核災後，核能電廠的安全議題成為了核能界急需解決的問題，尤其台灣處於環太平洋地震帶，且台灣的核電廠位於人口密集的北部，地震或是天災將會造成無法想像的後果。目前台灣第一核能電廠準備除役外與核四廠尚未啟用外，核二、三廠正在運作，不論是將來電廠除役時的工作環境與正在運作的環境，輻射環境資訊監控為確保核能安全的第一道防線。輻射環境資訊監控包含輻射劑量的即時偵測，主要是透過在核電廠內外定點部署輻射感測器來輻射劑量，除此之外，環境資訊更包括溫度、濕度、煙霧等，這些資訊可以有效幫助監控核電廠是否異常狀況發生。舉例來說電廠內局

部區域火災，可能造成無法收拾的連鎖反應，這火源未擴散前即產生區域異常溫度改變，如何迅速偵測到環境資訊的變化將是有效預防核能災變的一項待開發的重要技術。目前台灣核電廠輻射環境資訊偵測只能做到區域範圍的偵測，針對局部性的區域變化尚未提出有效解決方案。此外更重要的是，未來電廠除役的過程包括核廢料處理，電廠設備的拆解等，機動性的環境資訊監控更是重要。

在日本福島事件後，因派遣人力（核電廠工作人員）前往進行輻射災害區域探測資訊，工作人員嚴重暴露在高輻射環境下，造成人體嚴重傷害導致身亡，這議題引起各國重視，因此全世界各國開始研究移動式核災機器人取代人力進行核電廠環境探測。移動機器人可攜帶多種不同感測器，並且具有即時行動力來彌補感測器只能單一定點偵測的缺點。移動機器人具有自我定位能力，可以定位出輻射源的位置，且移動機器人配備攝影機與距離感測器，可在核電廠內建置地圖以及傳送即時影像，幫助分析環境。

II. 主要內容

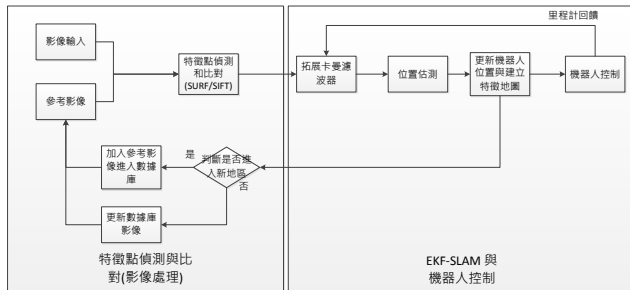
本計畫移動機器人搜尋輻射源主要包括多項核心技術，主要有輻射感測器之應用、移動機器人同時建構地圖以及自我定位能力、移動機器人路徑規劃及輻射源搜尋策略。本計畫之系統步驟先讓機器人在偵測環境中建構地圖，機器人已知偵測環境的障礙物以及自己本身位置，在進行輻射源搜尋策略，故將本計畫分為移動機器人同時建構地圖以及自我定位和移動機器人之輻射源搜尋兩項。



圖一 輻射源搜尋系統流程圖

1. 移動機器人同時建構地圖以及自我定位：

在定位方面原來是透過 ZigBee 模組來做為機器人定位的依據，但實際上在做運算的時後因為無法由 ZigBee 去推算機器人的轉向角度，只能由攝影機去推算出角度，因此在討論過後決定單純以攝影機的影響處理配合上擴展卡曼濾波器(EKF, Extended Kalman Filter)來做更精準的移動機器人定位，下圖共分為影像定位和機器人定位兩個部分說明定位的方法。



圖二 同時定位與地圖建立(Vision-SLAM)的整體架構圖

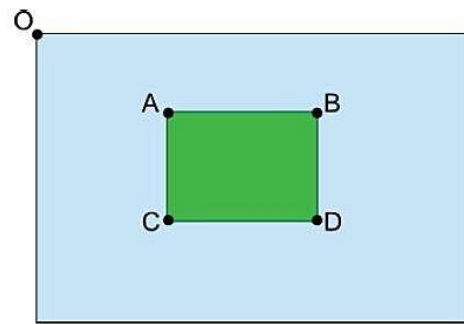
圖二為整個影像式同時定位與地圖建立(Vision-SLAM)的整體架構圖，首先由攝影機將一張影像圖給抓取出來，並且提取出特徵，作為下一張影像的比對依據，接著以這兩張圖像擷取的特徵點來做為距離與位置的估測，再加上使用移動機器人的速度模型做為系統預測下一時刻之系統狀態，將兩者以拓展卡曼濾波器做系統之最佳狀態估測後更新機器人的位置與特徵地圖，最後則是依據特徵點數量的多寡來判斷是否為進入新的地區，進入新地區則加入新的參考點到數據庫之中，以此類推，回到舊有的地區時則從數據庫之中提取出舊有參考點資料，讓機器人能夠順利地行走於複雜環境之中，在這裡我們使用了 SURF 作為特徵提取的方法。

Herbert Bay[1]以 SIFT 為基礎在 2006 年提出了 SURF 演算法，同樣的具有抵抗旋轉的能力以及對於視角改變有著一定的容忍性，且更加的快速與準確。SURF 演算法能夠快速運算的主要原因是因為使用了積分影像來計算相關的迴旋積分，假設 $I(x, y)$ 為影像中的某一點 $x = (x, y)$ 的函數值，則積分影像定義如下：

$$\Pi(x) = \sum_{i=0}^{i \leq x} \sum_{j=0}^{j \leq y} I(i, j) \quad (1)$$

一旦積分影像計算完成，則往後要計算下圖中綠色區域的積分值時，只要幾個簡單的加減法就可以了，如(2)式，這可大大的減少計算上面的時間。

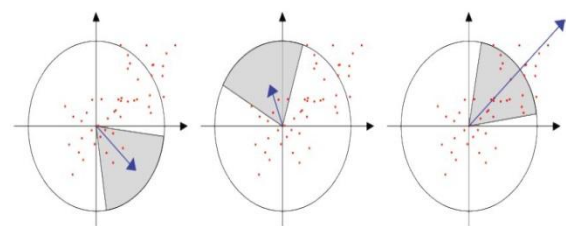
$$A + D - (B + C) \quad (2)$$



圖三 積分影像示意圖

圖像的尺度空間大小一般都是以高斯標準差來表示，SURF 作者提出了一種箱型濾波器(Box Filter)來近似高斯二階導數，使得不同尺度空間下只要改變箱型濾波器的大小，並維持箱型濾波器的比例即可得到不同的 Hessian 行列式和尺度空間，藉由這不同的 Hessian 行列式我們將可以同時處理空間多層次圖像，並且提取出特徵點出來，不需要像 SIFT 要對圖像做二次解析。通常高斯二階導數選用 $\sigma = 1.2$ ，其效果與使用 9×9 的箱型濾波器相同，接下來的尺度參數 $\sigma = 2, 2.8, 3.6$ 相對於 $15 \times 15, 21 \times 21, 27 \times 27$ 箱型濾波器大小。

SURF 的主方向決定是由特徵點為中心曲半徑大小 6σ (σ 為該點的尺度空間大小) 的圓形區域內，對每一個點進行邊長為 4σ 的一階 Haar 小波遮罩運算，並給予高斯權重值，其一階導數可表示為運算區域於 x 與 y 方向的梯度。以每 60 度為一個範圍形成一個向量，將所有範圍內最長向量的方向最為該特徵點的主方向。SURF 的特徵向量建立是由以特徵點為中心形成一個 20σ 的正方形區域，並將其分為 4×4 的子區域，然後規律地將子區域取 5×5 採樣點將其計算 Haar 小波反應值 (dx 與 dy)，Haar 小波濾波器的邊長取為該尺度空間的兩倍，最後將其每個子區域的 dx 與 dy 累加成 $\sum dx, \sum dy, \sum |dx|, \sum |dy|$ 此 16 個區域便可形成該特徵點的 $4 \times 16 = 64$ 維度描述子。



圖四 主方向示意圖

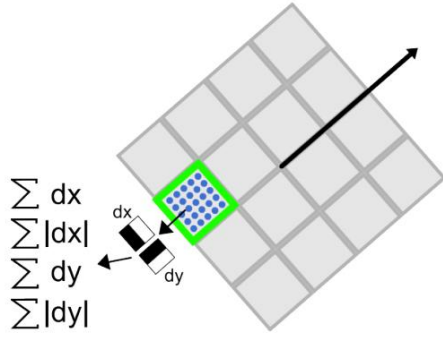


圖 五 特徵點之描述子示意圖

最後則是使用 and SIFT 一樣的方式做出比對，找出最相似的兩個特徵點，將這兩個特徵點的關係轉成矩陣代入擴展卡曼濾波器之中求出該機器人所在之位置。完成了特徵點比對後，會得到關於機器人位置的矩陣出來，再利用 EKF (Extended Kalman Filter) 演算法，經過遞迴式計算，來修正機器人的位置，重複地讀取影像來計算作為更新矩陣的依據，使得運算出來的誤差縮小，以達到更精準的機器人定位。

2. 移動機器人之輻射源搜尋：

2.1 粒子濾波器

本實驗方法是利用核衰變和蓋革計數器收到輻射值遵循柏松統計(Poisson statistics)特性而設計方法[2]，第(3)式為柏松機率密度函數(Poisson PDF)：

$$\mathcal{P}(z; \lambda) = \frac{\lambda^z}{z!} e^{-\lambda} \quad (3)$$

第(3)式的 z 為蓋革計數器偵測到的計數量，單位為 cnt/s； λ 為柏松機率密度函數之參數，之後詳細討論。為了演算法方便，本實驗將輻射源資訊參數化，位置參數 (x, y) 為笛卡爾座標系統； I 為輻射強度。故可將輻射源表示成參數向量為第(4)式：

$$\mathbf{x} = [x \ y \ I]^T \quad (4)$$

本實驗使用粒子濾波器估測向量 $\mathbf{x}_n$ 之參數，每粒子的權重值為：

$$w_n = p(z|\mathbf{x}_n) = \mathcal{P}(z; \lambda(\mathbf{x}_n)) \quad (5)$$

第(5)式的 w_n 為粒子 n 的權重值， $\mathbf{x}_n$ 為第 n 個粒子，此機率相等於柏松機率密度函數 $\mathcal{P}(z; \lambda(\mathbf{x}_n))$ ，其中 $\lambda(\mathbf{x}_n)$ 為：

$$\lambda(\mathbf{x}_n) = \left[\mu_0 + \frac{I_n}{\sqrt{(\xi_i - x_n)^2 + (\zeta_i - y_n)^2}} \right] \quad (6)$$

第(6)式為輻射強度與距離平方成反比之特性， μ_0 為背景輻射， x_n 、 y_n 及 I_n 為第 n 個粒子 $\mathbf{x}_n$ 的參數， ξ_i 和 ζ_i 分別為第 i 個蓋革計數器之笛卡爾座標系統位置。輻射能量會因為穿過物體而衰減能量，衰減因素跟物體的厚度 Δ 與衰減係數 ϕ 有關，衰減程度如下式：

$$I_{att} = I * \exp(\phi \Delta) \quad (7)$$

之後，將第(6)式考慮輻射穿過物體之因素，將第(16)式改寫成如下：

$$\lambda(\mathbf{x}_n) = \left[\mu_0 + \frac{I_n \exp(\phi_m \Delta_{mi})}{\sqrt{(\xi_i - x_n)^2 + (\zeta_i - y_n)^2}} \right] \quad (8)$$

粒子濾波過程：

Step1： 初始化：在偵測區域 $\mathcal{A}$ 隨機撒 N 點粒子。

Step2： 使用第(5)式分別計算各粒子的權重值，每個感測節點所得到的權重值皆不同，所以將每個感測節點權重值平均（如第(9)式， s 為感測節點之數量），平均後的權重值為此粒子之權重值。當全部粒子權重值都計算完成，再作權重值規一化（如第(10)式， $\text{sum}(w_n)$ 為所有粒子之權重值總和）。

$$w_n = \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s w_n^i \quad (9)$$

$$w_n = \frac{w_n}{\text{sum}(w)} \quad (10)$$

Step3： 重採樣：依照 Step2 計算的權重值分配新的粒子分佈，隨機取 0~1 之間亂數 rand，比對 rand 落在權重值區間，決定新粒子該落在哪點附近，權重值區間是每點粒子權重值累加上去，權重值越大，粒子所佔的區間就越大，被選到的機率相對的高。

$$[w_1 \ w_2 \ w_3 \ w_4 \ \dots \ w_n]$$

圖 六

重採樣後將獲得新的樣本粒子，計算新樣本子粒分佈空間範圍 (x_s, y_s) ，如圖七：

$$(x_s, y_s) = (\max(x) - \min(x), \max(y) - \min(y)) \quad (11)$$

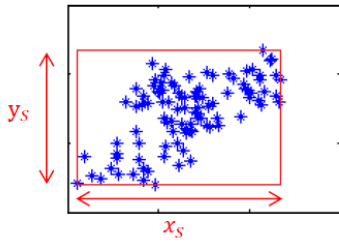
之後，比較 x_s 和 y_s 大小，選擇最小值的十分之一作為隨機撒點範圍：

$$\text{range} = \frac{\min[x_s, y_s]}{10} \quad (12)$$

將已經重採樣之粒子樣本重新依照range值分配，得到最新的粒子，如第(23)式敘述，將粒子的 x 及 y 增加或減少 $\text{range} \times \text{rand}$ ，rand為 0~1 之隨機數。

$$\begin{aligned} & (x_n, y_n)_{\text{New}} \\ &= (x_n \pm \text{range} \times \text{rand}, y_n \pm \text{range} \times \text{rand}) \end{aligned} \quad (13)$$

Step4： 得到最新的粒子樣本後，再代回 Step2，迴圈處理。



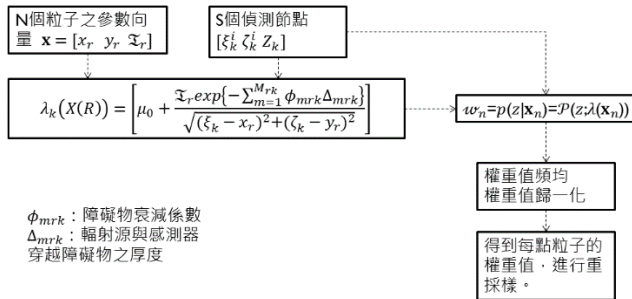
圖七 粒子分佈空間範圍

權重值更新：

權重值在一開始分配將有很好的效果，但是越後面的分配將出現每個粒子權重值相似問題，因為後面的粒子分佈越來越相近，權重值相似難以選出最好的粒子，粒子分佈空間難以縮小，固本實驗將權重值加設機制，此機制放置第(9)式與第(10)式之間，式子如下：

$$w_n = w_n^k \times \frac{N}{std(\bar{w})} \quad (14)$$

第(14)式為隨著粒子濾波次數而加強權重值顯著性之機制， k 為粒子濾波次數， $\bar{w}$ 為權重值集合之向量， $std(\bar{w})$ 為 $\bar{w}$ 權重值集合之標準差， N 為粒子數量。演算過程一開始粒子分佈在搜尋空間中，此時權重值差異性大，則 $std(\bar{w})$ 值大， w_n 變化量小；但隨時間增加，粒子分佈集中在某區域，權重值差異性變小，此時 $std(\bar{w})$ 隨之變小，則 w_n 變化量提高，增加高權重值顯著性； w_n^k 的 k 是為了輔助顯著性，粒子濾波次數增加則增加權重值的顯著性。



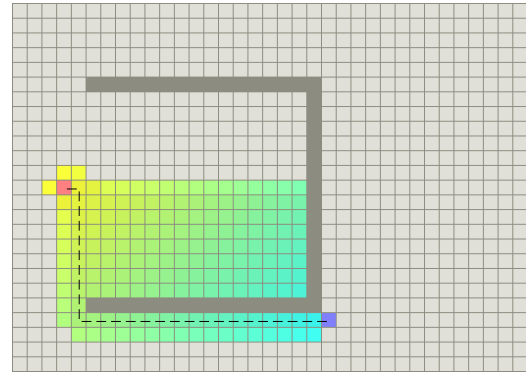
圖八 粒子濾波器估計輻射源方法流程

2.2 A STAR 路徑演算法

本計畫移動機器人之路徑演算法是使用 A STAR Algorithm 計算最短路徑以及避障，A STAR Algorithm 是在遊戲中最常用來解決最短路徑問題的一種演算法，相對於另一個有名的 Dijkstra Algorithm 來說，Dijkstra Algorithm 雖然可以保證找到一條最短路徑，但卻不如 A STAR Algorithm 簡捷快速。A STAR Algorithm 有個成本函數 $f(n)$ ，成本函數的計算是起點到目前點之距離 $g(n)$ 與終點到目前點之距離 $h(n)$ 的和， n 為目前點，式子如下：

$$f(n) = g(n) + h(n) \quad (15)$$

A STAR Algorithm 的前處理作業必須先將平面空間用格子表示(圖九)，每個格子為之後路徑所要記住的位置。



圖九 A STAR 演算法平面格子表示的前處理

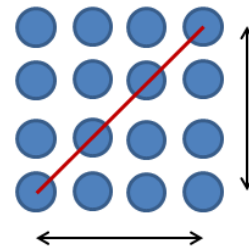
A STAR Algorithm 過程：

Step1: 從起點出發，將起點加入代計算的 open list 中，這個 open list 是個選項清單，裡面包含了備選路徑可能經過的區域或者不經過的區域，基本上就是一個格子的待查列表。

Step2: 忽略障礙物所佔據的區域，調查與出發點鄰接的所有可能到達或者可通過的區域，把這些區域加入 open list 清單中，這每個節點都把起點作為它的「父節點」(parent square)，父節點是在做回溯路徑時很重要的概念。

Step3: 從 open list 中去除掉起點，將起點加入 closed list 清單中，closed list 清單是指從現在開始就不再考慮的區域。

Step4: 路徑評分：決定移動到下一個節點的機制，是判斷起點周圍區域各自的成本函數(cost function)，如第(12)式所敘。計算距離的方式在許多研究上有不同的方法，本實驗一開始是採取歐幾里德距離計算成本函數，但事實上這種算法將會有嚴重的累積誤差，最後會使得路徑評分產生錯誤。如圖十所示，每個圓圈到周圍的圓圈的距離為1基本單位，紅色現為路徑的距離，若此時要計算的兩個節點屬於方陣，使用歐幾里德距離式無誤的。



圖十 評估路徑距離使用歐幾里德距離計算示意圖

但是要計算的兩個節點並不屬於方陣，使用歐幾里德距離將會有錯誤，如圖九所示為4*3的陣列，雖然歐幾里德距離可以計算兩節點實際的距離(圖十一左)，但其實路徑無法照這種方式移動，如圖十一右所示才是實際上的路徑，可選擇實現與虛線兩種路徑，計算這兩者距離才可以提供正確距離給成本函數計算。

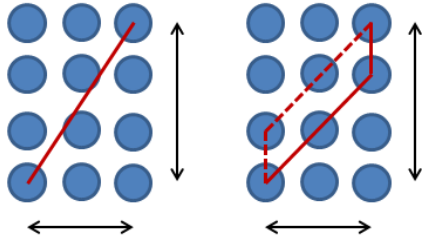


圖 十一 評估路徑距離更正歐幾里德距離方法示意圖

所以本實驗就在這裡另外設計一個計算方法，我們先假設兩節點的座標分別為 (x_1, y_1) 和 (x_2, y_2) ，當兩節點不屬於方陣列，判斷式如下：

$$(x_1 - x_2) \neq (y_1 - y_2) \quad (16)$$

此時我們不使用歐幾里德距離計算，將使用「降階法」計算路徑的距離。如圖十二所示，我們先將陣列降階成方陣型態。現在我們得知此陣列為 $m \times n$ 的陣列，且知道 m 比 n 數目大，就可以計算距離。首先計算 $n \times n$ 方陣的距離，可用歐幾里德距離算出，最後將距離加上 $m-n$ 的直線距離，這兩個步驟可在圖上表示，則式子如下：

$$d = \sqrt{(n-1)^2 + (n-1)^2} + (m-n) \quad (17)$$

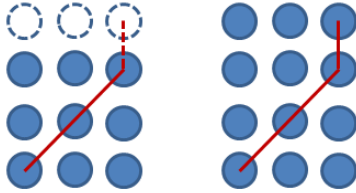


圖 十二 評估路徑距離先計算方陣距離(左圖)再計算直線距離(右圖)之示意圖

計算好成本函數之後，我們選擇最小的成本函數區域作為下次路徑。如果選擇的區域還不是終點，就必須繼續搜尋。

Step5： 繼續搜尋：要繼續搜尋，如 Step4 的結果已選出最小的成本函數區域，然後將此區域從 open list 中刪除該項並且把它加入倒 closed list 中。

Step6： 檢查該項的鄰近區域，忽略已加入 closed list 那些選項和障礙物區域，然後檢查該鄰近區域是否存在 open list 中，如果不在就加入其中，該項作為新區域的「父節點」。如果鄰近的區域已經在 open list 中，檢查到此區域是否有更加路徑，也就是檢查它的 g 值比當前區域到它的 g 值要低，若不是這種情況就不需更改。

Step7： 若以上步驟已找到終點，再依照父節點回溯路徑，找到最佳路徑。

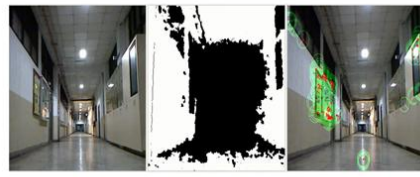
III. 結果與討論

1. 結果：

預測機器人位置與軌跡中，我們試著讓機器人直線移動一段距離，並且實際去估算出机器人的所在位置，圖十三為機器人在未移動之前的實際影像和移動之後所在位置的實際影像，左圖為 RGB 影像中間為紅外線深度右圖為演算法取得之特徵點，實驗場所為實驗室外的一段走廊。



移動前



移動後

圖 十三 實際 Kinect 拍攝之影像

圖十四右圖為機器人在初始位置，圖十四左圖為機器人直線移動後所估算出來的機器人位置與路徑，由圖十四左圖可看出所估算出來的軌跡，基本上可維持一條直線。

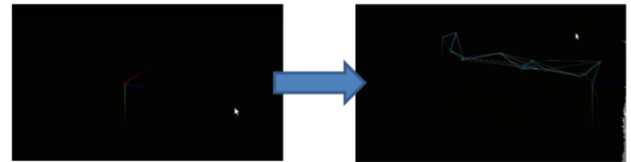


圖 十四 預測機器人位置與軌跡

有了上述研究的定位方法，移動機器人將可以知道自己本身的位置以及環境地圖，可以開始執行輻射源搜尋。輻射源搜尋整合 2.1 和 2.2 兩個方法，使用 Matlab 軟體的 GUI 介面模擬結果，我們假設了環境中有兩個障礙物，兩個障礙物的衰減係數為 0.05，空間環境為 800×800 平方公分，輻射源為 $20 \times 10^3 \text{ cnt/s}$ 。如圖十五所示，介面左邊為模擬結果圖，右邊為設定輻射源位置、移動機器人位置以及顯示結果，實驗一開始設定輻射源 Source(如圖十五綠色空心圓點)位於(228.596,576.991)，攜帶輻射偵測器的移動機器人 Sensor(如圖十五紅色十字)位於(732.456,466.077)。輻射源與移動機器人中間相隔著障礙物，移動機器人透過 A^* Algorithm 算出最佳路徑，路徑如圖所示為青色線段表示，此路徑的終點是選擇當下權重值最高的粒子，粒子一開始隨機散佈在偵測平面，在粒子濾波過程中，粒子的參數與權重值會跟著改變，所以移動的路徑也會跟著改變。

最後結果如圖十六所示，粒子最後會集中在輻射源附近區域，成功找到輻射源位置為(286.446,576.687)，誤

差值約為(2.15,0.304)，偵測節點花費了 18 個節點，若花費的偵測節點數越少且又可準確找到輻射源位置將是越有效率，因為若偵測節點花費越多，移動機器人搜尋輻射源的速度會越來越慢，因為多一個偵測節點，粒子濾波在感測器資訊融合過程中必須再多一份處理步驟。以經驗來論，18 個偵測節點還在接受範圍，若超過 25 個偵測節點，搜尋速度會開始明顯變慢。

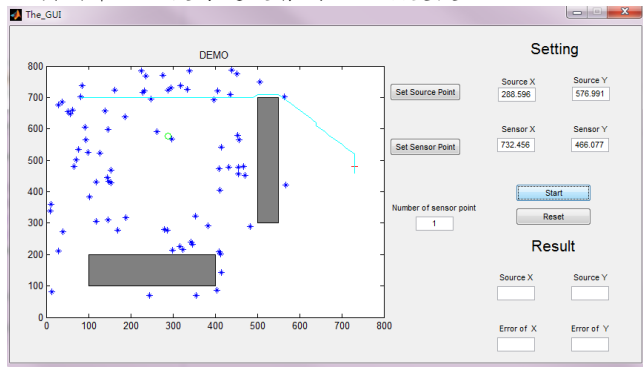


圖 十五 Matlab 軟體的 GUI 介面模擬

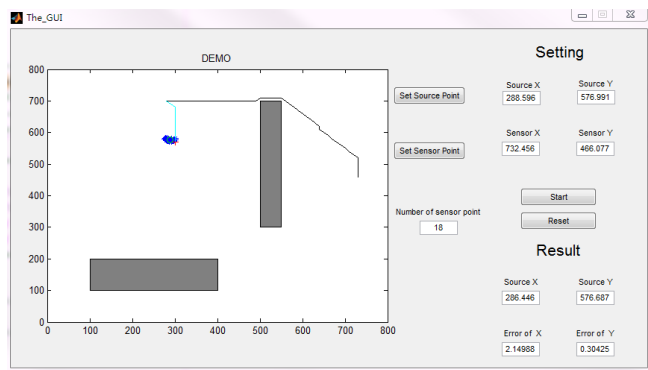


圖 十六 Matlab 軟體的 GUI 介面模擬結果

若要解決搜尋速度，在粒子濾波中的感測節點可以不用全部都參考，可以選出較特別的 10 個感測節點做為參考，例如路徑單一直線中沒必要選出兩個感測節點，可選擇轉角做為參考感測節點，減少參考感測節點可加快搜尋速度。

2. 計畫成果自評部分：

原計畫是多移動機器人監控核電廠環境，測量出核電廠的輻射源水平大小、溫度以及濕度，而研究成果使用單一移動機器人在核電廠內搜尋輻射源，與原計畫相關部分為使用移動機器人監控輻射環境，而不同部分是移動機器人的數量及偵測目的，原計畫是使用多移動機器人採用資訊融合建設輻射環境分佈圖，而研究成果使用一個移動機器人搜尋輻射源的位置，雖然研究成果目前只做單移動機器人，但也可以使用多機器人搜尋輻射源，且研究成果的方法可以找出輻射源，有輻射源的位置將可建置輻射環境分佈圖。

在學術上的應用價值，透過研究目的的敘述可讓學生了解核能界目前面臨的困難以及核輻射的危險性；學習機器人在未知環境中如何自我定位的能力；運用核輻射的特性使用移動機器人規劃路徑以及搜尋策略等等。在社會服務上的影響，做好核能安全將給國人帶來安全

與保障。

參考文獻

- [1] H. Bay, T. Tuytelaars, and L. V. Gool, "SURF: Speeded up robust feature," *Proc. of European Conference on Computer Vision*, 2006, pp.404-417.
- [2] B. Ristic, M. Morelande, and A. Gunatilaka, "A controlled search for radioactive point sources," in *Information Fusion, 2008 11th International Conference on*. IEEE, 2008, pp. 1-5.
- [3] N. S. Rao, M. Shankar, J.-C. Chin, D. K. Yau, S. Srivathsan, S. S. Iyengar, Y. Yang, and J. C. Hou, "Identification of Low-level point radiation source using a sensor network," in *Information Processing in Sensor Network, 2008. IPSN'08. International Conference on*. IEEE, 2008, pp. 493-504.
- [4] D. Lowe, "Object recognition from local scale-invariant features," *Proc. of the Seventh IEEE International Conference on Computer Vision*, 1999, pp.1150-1157 vol.2.
- [5] S. Thrun, W. Burgard, and D. Fox, *Probabilistic robotics*. The MIT Press, 2005.

無線射頻辨識(RFID)技術用於放射性廢棄物長期貯存、管制、與監測之研究 Research on Storage, Control, and Monitor of Radioactive Wastes by Using RFID

計畫編號：NSC 102-2623-E-027-004-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：王多柏

e-mail：tpwang@ntut.edu.tw

計畫參與人員：黃敬翔、許為青

執行單位：國立臺北科技大學電子工程系

摘要

放射性核廢料長期貯存、管制、與監測一直都是非常重要的研究課題，在傳統的貯存方式之外，再加入無線射頻辨識(Radio-Frequency Identification, RFID)技術，可以在核廢料運輸和貯存過程中，持續保持核廢料資料完整、追蹤、以及定位的功能。RFID 提供一種無線長距離的追蹤與定位功能，最初是用在軍事上，用來辨識敵方或是我方飛機。繼而使用在商業用途，例如：悠遊卡、金融卡、高速公路 eTag 收費系統、以及倉儲管理系統．．．等。我們擬將這些技術應用在放射性核廢料長期貯存、管制、與監測，透過 RFID 技術，可以查驗物件是否遭非法破壞、開啟、偽造或是被竄改資訊。使用貼附電子標籤之桶裝核能廢料能夠被即時地準確監控、定位、與確認。這些資料皆可以透過後端的電腦達到長期監控的目的地。

Abstract

Long-term storage of radioactive nuclear waste, control, and monitoring has always been a very important research topic, in addition to the traditional methods of storage, then add RFID (Radio-Frequency Identification, RFID) technology to process nuclear waste transport and storage, and continued to maintain nuclear waste data integrity, tracking, and positioning functions. RFID provides a long-range wireless tracking and positioning, originally used in the military, used to identify the enemy or our aircraft. Then used for commercial purposes, such as travel card, debit card, e-Tag highway toll system, as well as warehouse management systems. And so on. We intend to use these technologies in long-term storage of radioactive nuclear waste, control, and monitoring, through RFID technology, you can examine whether the object was unlawful destruction, open, forged or tampered information. The use of electronic tags attached barrels of nuclear waste can be accurately monitored in real time, location, and confirmation. These data are long-term monitoring can be

achieved through the head to the back-end computers.

I. 前言

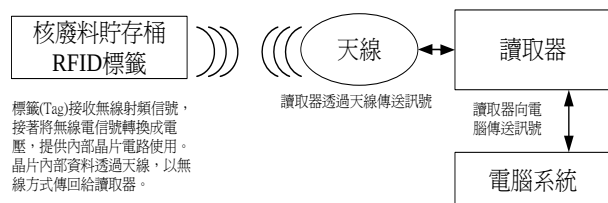
臺電核廢料桶，存放置蘭嶼至今已約 30 年，23 座貯存壕溝裡總共存放了 97,960 桶低放射性廢棄物固化桶。這些低放射性核廢料桶，其中大部分為國內三座核電廠所產生，少部分則來自於研究機構、學校與醫院[1]。由於廢棄物桶長期貯存於貯存溝內，受到蘭嶼地區天候、高溫、潮濕及臨海鹽害之影響，因此部分核廢棄物桶子外有鏽蝕、破損、破裂或粉化之現象。為了消弭民眾對廢棄物桶貯存安全之疑慮，及未來能儘早送往「低放射性廢棄物最終處置場」進行處置，蘭嶼貯存場於民國 96 年 12 月 13 日起，開始展開所有廢棄物桶之檢整及重裝作業工作。核廢料桶檢整重裝作業於 96 年 12 月 13 日起展開，截至今年 99 年 7 月 31 日，總共取出了 57,644 桶，屬於第一類（完整桶，直接回貯）有 380 桶，第二類（除鏽補漆）有 14,564 桶，第三類（輕微破損）有 41,169 桶，第四類（嚴重破損）有 1,531 桶，已完成檢測與修整作業之桶數總計有 54,986 桶。也就是說，所有的核廢料桶數 91,875 桶，目前預定完成進度已達到 59.85 %。國內核電廠在管理核廢料的歷史是不良的。其中例子如下[2]：1980 年，原委會、台電在蘭嶼以興建魚罐頭工廠為名，興建核廢料儲存場。1982 年 3 月，核一廠拋棄放射性廢棄物於台北縣石門鄉垃圾場，導致整個垃圾場受到放射性污染。1984 年 6 月，運送核廢料的船隻與漁船在金山外海相撞，廢料桶墜入海中。其他運輸過程之意外事故另有十起，所幸未發生外洩。1988 年 3 月，核一廠員工詹如意揭發台電非法出售放射性污染之冷凝銅管。1994 年，台電蘭嶼核廢料儲存場，發生儲存桶鏽蝕，有輻射外洩之虞；鏽蝕桶數達數百到數千桶。因此，放射性廢棄物長期貯存、管制、與監控是為一重要研究的實務課題[4]-[7]。

II. 主要內容

系統架構如圖一所示，此無線射頻辨識系統是由 RFID 標籤、讀取器、應用軟體與資料庫組成，是將 RFID 標籤放置在核廢料貯存桶上，再將天線放置在可讀取 RFID 標籤最適當的距離上，讀取器接收到經由天線感測讀取到 RFID 標籤上的編號後，在回傳給中央控管的電腦系統後，可長期追蹤貯存之核廢料桶的狀態。

RFID 標籤主要可以分成 3 種型式：1.主動式標籤：需要電池隨時傳送資料給讀取器，適合長距離傳輸(30 公尺以上)，可以儲存較大的記憶體，但是體積較大、價

格較貴，主動式使用在較大的物品或是價格較昂貴的物品上。2.被動式標籤：不需使用電池，價格低廉，體積精巧。因為不需要另外提供電源的優點，被市場廣泛運用。在此計畫中，擬以被動式 RFID 標籤做為放射性核廢料長期貯存、管制、與監測之使用。3.半主動式標籤：有使用電池，但是只對內部數位電路供電，標籤本身不會使用自身的能量來傳輸資料，只有在接收讀取器發射的 RF 信號時，才會傳送資料。



圖一、無線射頻辨識系統(RFID)示意圖

性能	RFID 標籤
電源	無源
大小	在核廢料桶的金屬表面能牢固安裝的大小
存儲容量	≥1KB
反覆讀寫次數	≥100000
天線	抗金屬天線
工作溫度	-20℃~+70℃
使用壽命	≥5 年

表一、標籤性能需求表

性能	固定式讀取器	手提式讀取器
識別距離	≥4m	≥1m
寫距離	≥2m	≥0.5m
抗干擾性	具有抗電磁干擾能力	具有抗電磁干擾能力
工作溫度	-20℃~+50℃	-20℃~+50℃

表二、讀取器性能需求表

正常測試結果:						
	一號 普通標籤		二號 抗金屬標籤		三號 抗金屬標籤	
標籤 編號	貼紙 箱距 離	貼金 屬罐 距離	貼紙 箱距 離	貼金 屬罐 距離	貼紙 箱距 離	貼金 屬距 離
1 號	1260 cm	n.a.	96 cm	335 cm	1770 cm	2150 cm
2 號	1260 cm	n.a.	115 cm	330 cm	1770 cm	2150 cm
3 號	1260 cm	n.a.	96 cm	335 cm	1770 cm	2150 cm
4 號	1260 cm	n.a.	96 cm	270 cm	1770 cm	2150 cm

表三、正常測試結果表

讀取器在不同的使用場合，會有不同的設計方式。例如：使用在長期貯存核廢棄物之場所，可以在設計定點放置之讀取器，視實際貯存空間做性能評估與調整。另外，在運送核廢棄物的過程中，可以使用手提式讀取器，提供工作人員在運送過程中隨時監控和讀取資訊，

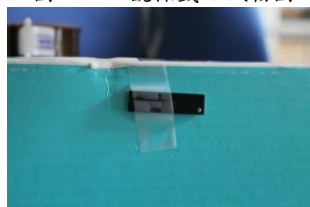
資料可以直接顯示讀取器上。

為了瞭解無線射頻辨識對金屬製放射性核廢料容器之問題釐清。無線射頻辨識標籤對於操作環境的影響因素，我們選取了幾樣 RFID 標籤，做了水中、耐冷耐熱、酸鹼、正常環境的測試。

因每台讀取器的輸出功率皆不相同，感應到標籤距離也會與標籤規格上有所差異，所以我們要先實際量測標籤正常時的距離。如表三，由於一號標籤由於無抗金屬的能力，所以只要聽上金屬類的物品，標籤皆會無法讀取。



圖二、一號標籤貼紙箱圖



圖三、二號標籤貼紙箱圖



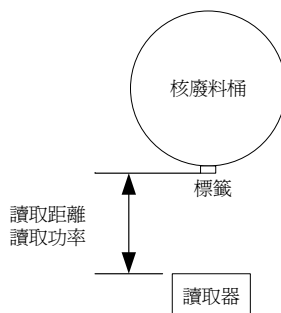
圖四、二號標籤貼金屬罐圖



圖五、三號標籤貼紙箱圖



圖六、三號標籤貼金屬



圖七、標籤測試環境



圖八、廢料金屬桶

為了測試無線射頻標籤使用在金屬製放射性核廢料容器的功率和距離，本計畫所擬採用的功率和距離測試方式如圖七所示，圖八所示為廢料金屬桶。在金屬桶週圍貼上無線射頻標籤(RFID Tag)，接著再利用讀取器方式做測試，從距離金屬桶約 1 公尺的位址開始測試，驗證讀取器的正確率與量測距離。接著，再將讀取器與金屬桶的距離逐漸拉開，持續驗證讀取器的正確率與量測距離。最後、整理成一份詳細的資料，包含距離對讀取器正確率之間的關係圖。此研究將二號標籤裝置在金屬罐側邊，金屬罐三個為一排且標籤全都正向天線，且最遠標籤距離 100cm。

III. 結果與討論

除了在水中測試上，距離會縮短，在其他測試(耐冷、耐熱、耐酸鹼)後皆與正常時的測試無太大的差別。

在使用一台天線測試的時候因標籤裝置在桶子的側面且天線背向標籤，金屬對標籤干擾較多層，使得只有前排的標籤感應得到，除非是將標籤裝置在桶子的側面且天線正向標籤，因金屬的干擾較少，在讀取上可全部讀到。在測試兩台天線(在標籤的正面、右方)時測試也是只能讀到前排的標籤。在測試三台天線(在標籤的正面、右方、左方)時，只要三台天線同時讀取標籤，六個標籤是都可以讀到的。

參考文獻

- [1] 謝福美，“蘭嶼核廢桶何去何從” 蘭嶼雙週刊，2010。
- [2] 呂建蒼，“臺灣的核廢料問題” 綠色公民行動聯盟。
- [3] “台灣核電廠簡介”，交大土木系。
- [4] 鄭武昆，“認識放射性廢棄物研習會”，2010。
- [5] 鄭武昆、張訓志，“用過核燃料中期貯存管理”，核研季刊，1999。
- [6] 鄭武昆，“朝向設置國際區域高放廢棄物處置場”，臺電核能月刊，2011。
- [7] 鄭武昆，“芬蘭高放射性廢料處置場近場效應研究”，核研季刊，2001。

核種於地下水中之水文地化傳輸與輻射風險評估

Hydrogeochemical Transport and Radiological Risk Assessment of Radionuclide in Groundwater System

計畫編號：NSC 102-NU -E-002 -001 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：林文勝

e-mail：wslinlin@ntu.edu.tw

計畫參與人員：劉振宇、曹瑞軒

執行單位：國立臺灣大學水工試驗所

摘要

本研究聯結可模擬三維地下水流、核種水文地化傳輸之 HYDROGEOCHEM5.0 模式與可評估遠場接受者輻射劑量之 RESRAD-OFFSITE 模式，以研究低放射性處置場址的安全評估。選取 Sr-90、Cs-137、和 I-129 於 1000 年後，所有傳輸途徑至生物圈之總劑量約 3.6×10^{-21} mSv/year，此劑量遠小於劑量法規限值 0.25 mSv/year。研究方法及成果可提供核種洩漏出低放射性處置場址對於人體健康及環境衝擊之完整安全評估。

關鍵詞：水文地化傳輸、劑量評估、輻射風險評估、放射性廢棄物處置、地下水。

Abstract

To investigate the safety assessment of LLW disposal site, the three-dimensional groundwater flow and hydrogeochemical transport model, HYDROGEOCHEM, has been linked with RESRAD-OFFSITE code for assessing radiological doses to off-site human receptors. The total dose of Sr-90, Cs-137, and I-129 from all pathways with a small amount of 3.6×10^{-21} mSv/year after 1000 years. This value is much less than the dose limit of 0.25 mSv/year to the individual expected to receive the greatest exposure to residual radioactivity. Methodology and result can provide detailed tools of confidence in the protectiveness of the human health and environmental impact for safety assessment of radionuclides release from LLW site.

Keywords: Hydrogeochemical transport, Dose assessment, Radiological risk assessment, Radioactive waste disposal, Groundwater.

I. 前言

經濟部已於 101 年 7 月 3 日核定公告「台東縣達仁鄉」南田村及「金門縣烏坵鄉」小坵村為低放射性廢棄物最終處置之建議候選場址。由於效能安全評估是低放射性廢棄物處置安全分析之重要一環，然而對於放射性廢棄物效能評估方法不只包括模擬核種從固化桶外釋到遠場之模擬分析，還必須考慮核種輻射潛在曝露路徑與從生物圈移動到人體的輻射劑量及風險。所以本研究結合水文地化傳輸模式 HYDROGEOCHEM5.0 模式及 RESRAD-OFFSITE 模式，研究放射性核種傳輸至生物圈至人體的輻射劑量評估。本研究計畫為整合 HYDROGEOCHEM 與 RESRAD 模式各自在遷移行為與劑量評估之特點，HYDROGEOCHEM 為 5.0 版(2004) [1]，

RESRAD-OFFSITE 為 3.1 版(2013)[2-3]，這在近、遠場安全評估工作而言，皆是較先進且完整之作法，國際上雖已有不少團隊具豐富之評估經驗，但若要做到結合 HYDROGEOCHEM5.0 及 RESRAD 二個軟體之整合模擬工作，實應尚未有如此嘗試，此亦為近年來國際原子能總署(IAEA)在努力之方向，發展放射性廢棄物處置場址之水文地質化學傳輸及劑量評估與風險分析。

本研究利用 HYDROGEOCHEM5.0 模式，配合國內放射性廢棄物處置建議候選場址特性，模擬放射性核種長期地化作用及地化傳輸遷移、核種分布及濃度，預測核種於處置場長期的地化傳輸作用之活性濃度變化，結合美國 ARGONNE 國家實驗室 RESRAD-OFFSITE 分析核種傳輸至生物圈後，所有曝露傳輸途徑之輻射劑量與風險。評估核種從工程障壁至生物圈之可能輻射劑量是否能符合法令限值 0.25 mSv/year。

II. 主要內容

1. HYDROGEOCHEM 水文地化傳輸

選取達仁建議候選場址進行案例情境測試模擬，依據達仁建議候選場址之工程障壁設計配置，並選取 Sr-90、I-129、Cs-137 核種利用 HYDROGEOCHEM 模式模擬得到核種釋出率，再納入 RESRAD-OFFSITE 進行輻射曝露情節與劑量評估。工程障壁假設為 RESRAD-OFFSITE 模式之主要污染區域，由 HYDROGEOCHEM 模式模擬達仁鄉建議候選場址混凝土工程障壁水泥化礦物退化及核種釋出後流經工程障壁之反應化學傳輸。利用台灣電力公司、台灣水泥公司、瑞典 SKB、PHREEQC 化學熱力學資料庫選取主要反應以及國內外相關等文獻資料建置模式[4-8]，輸入資料包括工程障壁設計與其內之各介質物理參數、各介質之化學組成、水流初始與邊界條件、地化反應、初始與邊界條件以及主要核種之源項濃度。該核種源項，依固化桶設計年限為一百年，假設核種一百年後開始洩漏出固化桶，核種 (Sr-90、I-129、Cs-137) 設定之濃度係根據台電公司關鍵核種篩選報告(A 版)[7]，核種活度經單位轉換為莫爾濃度。另依據台電公司規劃之工程障壁，依設計可將工程障壁內個介質分成：混凝土、固化桶、膨潤土(Bentonite)與回填材料。達仁低放射性廢棄物之候選處置場，預計要採用的處置方法為坑道式的處置方式。其根據台灣電力公司規劃之坑道式處置之工程障壁設計概念，簡化成本研究模擬

區域(如圖 1)。劃分網格數為 2,612 個，總結點數為 4,146 個。

本研究經由 HYDROGEOCHEM 模式模擬得到核種洩漏量，如圖 2 所示。並將該洩漏量納入 RESRAD 模式模擬分析核種傳輸生物圈環境，該生物圈環境假設由農作耕種、牲畜畜牧與人類使用水井當成飲用水源，以 RESRAD-OFFSITE 模式建立輻射曝露情節與劑量評估。

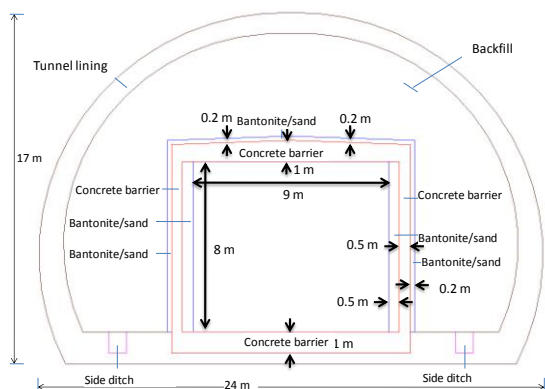


圖 1 工程障壁示意圖

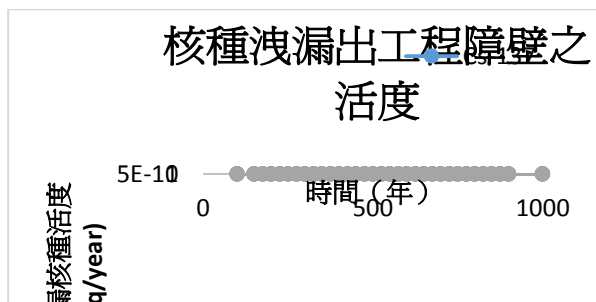


圖 2 洩漏出工程障壁之年洩漏核種活度

2. 聯結 HYDROGEOCHEM 與 RESRAD-OFFSITE 模式

RESRAD-OFFSITE 模式當初設計時，已預先規劃完成與其他程式相連結之設定方法，RESRAD-OFFSITE 之輸出檔 AQFLUXIN.DAT 為核種及子核種傳輸至地下水之通量，將可利用通量交換與 HYDROGEOCHEM 進行整合聯結。由於 HYDROGEOCHEM 模式之生物地化反應傳輸控制方程式以質量守恆、生物地化反應與 Fick's flux law 理論為基礎，其控制方程式可描述任何物種於地下水飽和/非飽和含水層三維空間分布與時變之物種濃度，如式(1)所示。為移流、延散/擴散傳輸，生物地化反應(包含放射性的衰變效應)、源項與匯項。

$$\frac{\partial \theta C_i}{\partial t} + \theta \alpha' \frac{\partial h}{\partial t} C_i = L(C_i) + \theta r_i + M_i, \quad i \in \{M\} \quad (1)$$

$$L(C_i) = -\nabla \cdot (\mathbf{VC}_i) + \nabla \cdot [\theta \mathbf{D} \cdot \nabla C_i] \quad (2)$$

C_i : 第 i 個物種之濃度 (M/L^3)

r_i : i 物種之生物地化反應生成速率 ($M/L^3/T$)

$L(C_i)$: 傳輸運算子

$\{M\} = \{1, 2, \dots, M\}$

$\{M\}$: 物種數量

D : 延散係數 (L^2/T)

M_i : 第 i 個物種之源項與匯項 ($M/L^3/T$)

$$A = \frac{\lambda M N^0}{W} \quad (3)$$

其中: A 活度 (Activity (Bq)); λ 衰變常數 (decay constant); M 核種質量 (Mass of radionuclide); N^0 Avogadro's 數 (6.02×10^{23}); W 為核種原子量

式(3)可進行容積莫爾濃度與活度單位轉換，配合孔隙率及含水量適當修正後，將 mol/l/year 單位轉換成 Bq/year 或 pCi/year 單位。所以 HYDROGEOCHEM 輸出濃度轉換通量成 pCi/year 後，再將 HYDROGEOCHEM 模式輸出結果設定為 AQFLUXIN.DAT 檔之格式，可整合 HYDROGEOCHEM5.0 及 RESRAD 模式模擬分析，工程障壁年洩漏核種活度，可藉由 AQFLUXIN.DAT 檔，當成核種傳輸至 RESRAD-OFFSITE 含水層之通量，進行完成兩模式整合，利用 RESRAD-OFFSITE 輻射曝露情節與劑量評估分析。

III. 結果與討論

本研究有關 RESRAD-OFFSITE 模式需輸入之參數係依使用手冊內定之參數，但配合 RESRAD-OFFSITE 模式測試案例，調整部分參數。如：年平均降雨量為 1.25 m/year、主要污染區域無灌溉行為、覆蓋管理參數為 0.04、逕流係數為 0.5、葉蔬菜類植物耕種參數為 0.9、覆蓋管理參數為 0.08、水果及非葉蔬菜類植物耕種參數為耕種管理參數 0.04 等。應用 RESRAD-OFFSITE 模式進行假設場址模擬測試 (圖 3)，RESRAD-OFFSITE 分析核種傳輸至生物圈後，分析體外直接暴露輻射、經由呼吸進入人體的體內暴露輻射及藉由食物、水進入人體的體內暴露輻射等暴露傳輸途徑之輻射劑量與風險。最後將評估核種從工程障壁至生物圈之可能輻射劑量及風險，並瞭解該輻射劑量及風險是否能符合法令限值 0.25 mSv/year。本案例於 1000 年之後生物圈所有傳輸途徑之總劑量約 3.6×10^{-21} mSv/year。此劑量於遠小於劑量法規限值 0.25 mSv/year，如圖 4。並由圖 5 至圖 7 發現，Cs-137、I-129、Sr-90 核種經由吸入傳輸路徑之劑量、經由食用魚類傳輸路徑之劑量、經由飲用水傳輸路徑之劑量之比較，以飲用水傳輸路徑之劑量為最高。

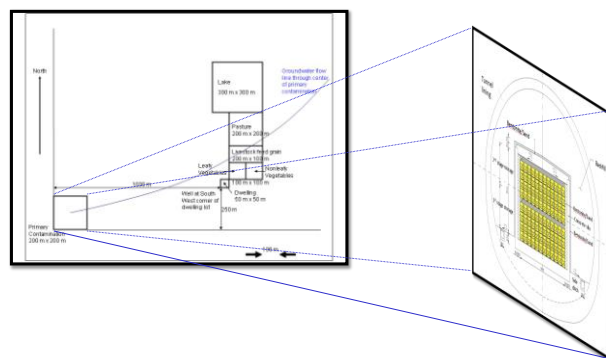


圖 3 假設場址工程障壁固化桶與生物圈位置示意圖

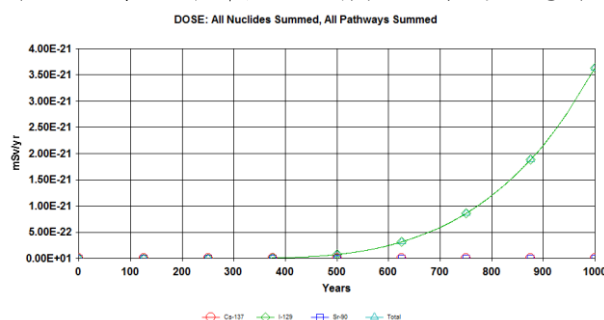


圖 4 Cs-137、I-129、Sr-90 核種所有傳輸路徑總劑量

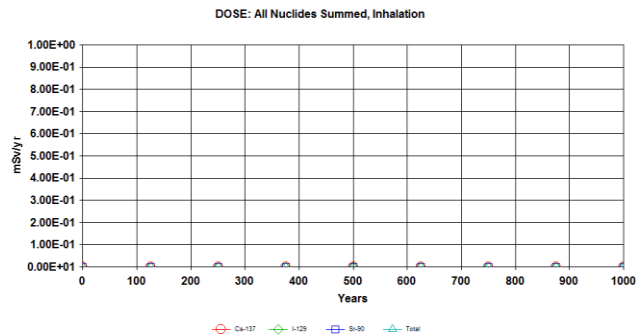


圖 5 經由吸入傳輸路徑之劑量

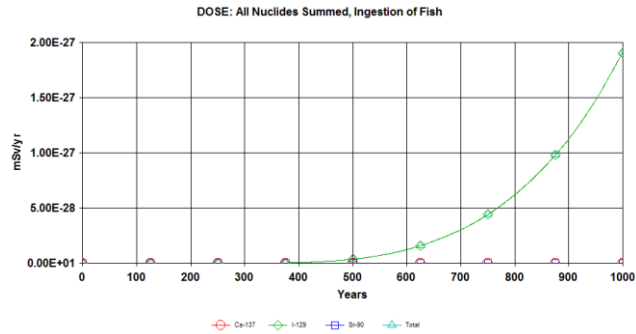


圖 6 經由食用魚類傳輸路徑之劑量

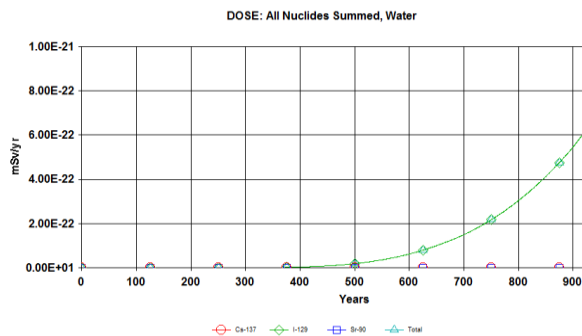


圖 7 經由飲用水傳輸路徑之劑量

IV. 結論

本計畫支援我國對於低放射性廢棄物處置安全分析研究與安全評估技術，支持國家核能應用發展，精進低放射性廢棄物處置用安全評估技術，應用於我國低放射性廢棄物處置作業。研究成果已於原能會進行後續應用，並已建立下列成果及後續建議。

1. 完成建立關鍵核種於地下水中反應化學傳輸分析技術
結合 HYDROGEOCHEM5.0 模式模擬放射性廢棄物處置場址近場混凝土工程障壁受地化環境演變影響，假設核種洩漏後於近場及遠場天然障壁水-岩相互作用下地下水化學物種形成及核種洩漏之反應化學傳輸研究。
2. 結合核種於地下水中水文地化傳輸與輻射風險評估模式分析技術

建立關鍵核種於地下水環境中之輻射風險評估技術，分析關鍵核種於假設情境狀況，洩漏出工程障壁後，於地下水環境之放射性濃度、輻射劑量。整合應用美國 ARGONNE 國家實驗室 RESRAD-OFFSITE 輻射風險評估模式技術與 HYDROGEOCHEM5.0 水文地化傳輸模式分析技術，進行假設場址模擬測試。評估核種從主要

污染區域至生物圈之可能輻射劑量，並瞭解該輻射劑量及風險是否能符合法令限值 0.25 mSv/year。惟未來仍須配合以地質母岩「硬頁岩」「台東縣達仁鄉」南田村或以「花崗岩」地質母岩之「金門縣烏坵鄉」建議候選場址之現場調查資料納入模式模擬應用，可利用 HYDROGEOCHEM5.0 模式與 RESRAD 模式，預測核種於處置場與生物圈長期的地化傳輸作用之活性濃度變化、水進入人體的體內暴露輻射等暴露傳輸之暴露劑量與風險。

3. 建議 RESRAD-OFFSITE 模式作為國內放射性廢棄物處置輻射劑量與風險評估工具

我國未來可依據 RESRAD 參數使用參考手冊現場調查場址區域範圍、關鍵核種核種種類、水文物理條件等自然環境，與利用該參考手冊選用參數，可利於國內放射性廢棄物處置輻射劑量與風險評估安全審查進行與技術提昇。並利用 RESRAD 模式已建立完整之輸出結果判斷。作為國內放射性廢棄物處置輻射劑量與風險評估有效決策判斷依據之工具，要求低放處置設施對一般人造成之個人年有效劑量，不得超過 0.25 毫西弗，並應合理抑低。

參考文獻

- [1] Yen, G.T., et al., 2004, HYDROGEOCHEM 5.0: A three-Dimensional model of coupled fluid flow, thermal transport, and hydrogeochemical transport through variably saturated conditions - version 5.0, ORNL/TM-2004/107, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, 243 pp.
- [2] Yu, C., et al., 2007, User's Manual for RESRAD-OFFSITE Version 2, ANL/EVS/TM/07-1, DOE/HS-0005, NUREG/CR-6937, Argonne National Laboratory, Argonne, Ill., June 2007.
- [3] RESRAD Home Page, 2013, RESRAD family of codes, https://web.evs.anl.gov/resrad/RESRAD_Family/.
- [4] Lagerblad B, Trägårdh J, 1994. Conceptual model for concrete long time degradation in a deep nuclear waste repository, Swedish Cement and Concrete Research Institute. SKB TR 95-21.
- [5] Galindez, J. M., Molinero, J., 2010. On The Relevance of Electrochemical Diffusion for the Modeling of Degradation of Cementitious Materials, Cement & Concrete Composites 32 351 - 359.
- [6] USGS, 2013, Phreeqci: A Graphical User Interface for the Geochemical Computer Program PHREEQC, http://www.brr.cr.usgs.gov/projects/GWC_coupled/phreeqci/.
- [7] 台電公司，2010，低放射性廢棄物處置關鍵核種篩選報告 (A 版)，台灣電力公司。
- [8] 台灣電力公司，2010，低放處置設施功能模擬評估報告 (B 版)，台灣電力公司。

除役拆除混凝土塊除污之審查技術研究

計畫編號：NSC 102-NU-E-007-005-NU

計畫類別：□個別型計畫 ■整合型計畫

計畫主持人：白寶實

e-mail：bspei@hotmail.com

計畫參與人員：白寶實、喻華德

執行單位：國立清華大學

摘要

在核能電廠永久停機，進入除役階段後，因除役拆除產生的混凝土塊為各式廢棄物中數量最龐大者。但並非所有的混凝土塊均須作為核廢料處理，多數混凝土在經過適當清潔除污程序後，可作為一般廢棄物外釋。本計畫旨在蒐集混凝土塊除污技術資訊，俾供作為日後除役審查之參考。

關鍵詞：核能電廠除役、混凝土除污、除污技術

Abstract

When nuclear power plant is ready to shutdown permanently, with the facility going to decommissioning phase, concrete blocks produced by decommissioning activity are the biggest amount of all kinds of wastes. Not all of which need to be treated as radiative waste, most of them can be released after proper cleaning process. The objective of this project is to gather decontamination information of dismantled concrete blocks for further use of review of decommission.

Keywords: Nuclear Power Plant Decommission, Concrete Decontamination, Decontamination Technology.

I. 前言

民國 100 年 3 月 11 日，日本福島第一電廠發生嚴重核子事故後，政府確定國家新能源政策為「確保核安，穩健減核」。鑑於核一廠一號機將於民國 107 年底運轉屆滿 40 年除役，現役的核一廠、核二廠、核三廠六部機組將陸續在民國 107 年 12 月、108 年 7 月、110 年 12 月、112 年 3 月、113 年 7 月、114 年 5 月永久停機，個別機組應在預定永久停止運轉前三年，提交除役計畫書及環境影響評估報告送交主管機關審查，面對每隔一至兩年就有一部機組永久停機進入除役階段，混凝土為在核能電廠除役拆廠的過程中，所產生的廢棄物數最為龐大者，瞭解混凝土除污及研究混凝土除污審查技術遂成為重要議題。

II. 主要內容

輻射除污技術可分為化學除污與物理除污。

化學除污技術有：

- 一、螯合與有機酸。
- 二、強無機酸。
- 三、化學泡沫及凝膠。
- 四、氧化及還原劑。
- 五、TechXtract。

其中適用混凝土除污的技術為：螯合與有機酸、化

學泡沫及凝膠、以及 TechXtract 三種。

物理除污技術可分為表面清理與表面清除兩種類型，共有以下十四種技術：

- 一、可剝式塗料
- 二、離心噴砂機
- 三、混凝土研磨機
- 四、混凝土刨除機
- 五、混凝土破碎器
- 六、乾冰噴射
- 七、乾式真空吸塵
- 八、電動液壓打磨
- 九、EN-VAC 機器牆壁打磨
- 十、砂礫噴射
- 十一、高壓水柱
- 十二、軟性媒介噴射清理(海綿噴射)
- 十三、蒸氣真空清理
- 十四、活塞打磨

其中適用於混凝土除污的技術有：

可剝式塗料、離心噴砂機、混凝土研磨機、混凝土刨除機、混凝土破碎器、乾式真空吸塵、電動液壓打磨、EN-VAC 機器牆壁打磨、砂礫噴射、高壓水柱、軟性媒介噴射清理(海綿噴射)、蒸氣真空清理及活塞打磨等十三種。

化學除污的技術特性為：

- 一、快速、簡單、符合成本效益。
- 二、與其他工業使用化學製品的清理相似，有大量經驗。
- 三、幾乎能清除任何放射性核種。
- 四、具有高除污因子。
- 五、可到達物理除污技術難以進入的位置。
- 六、僅有少量或沒有空氣中輻射問題。
- 七、適當執行對表面材料的影響最小。

化學除污的限制：

- 一、無法適用於有孔隙的表面。
- 二、可能損傷表面材料。
- 三、殘存的化學製品必須加以處理，需注意是否產生二次污染。
- 四、可能產生放熱效應。

五、需要特別的專業技術。

物理除污的技術特性為：

- 一、幾乎適用於所有表面(包含有孔隙表面)。
- 二、相較於化學除污技術能達成更高的除污因子。
- 三、表面不用預作準備。
- 四、廢棄物較易於管理及清理。
- 五、幾乎適用於所有核種。
- 六、不適用於金屬表面。
- 七、對表面為破壞性。
- 八、會產生空氣危害物。
- 九、難以進入複雜表面。
- 十、會產生比化學除污數量更多的廢棄物。

III. 結果與討論

在前述適用於混凝土除污的三種化學除污技術及十三種物理除污技術中，其中有兩種物理除污技術適用清除中子活化所造成的污染。可剝式塗料可用於清除 α 、 β 、 γ 射線。活塞打磨技術則適用於清除 β 及 γ 射線。

而對於除污能力足以達到外釋標準的技術，氧化及還原劑的MEDOC程序的除污效果能達成歐洲外釋水準。在使用MEDOC程序後，被處理的金屬中77%的殘餘污染低於 0.1 Bq.g^{-1} （歐洲標準作為無污染金屬外釋），其餘23%的殘餘污染低於 1 Bq.g^{-1} （歐洲標準可在熔解後外釋）。使用此程序除污的金屬整體殘餘污染低於 0.4 Bq.cm^{-2} 。混凝土研磨機及EN-VAC機器牆壁打磨技術的除污能力亦可滿足外釋標準。

目前國內放射性廢料解除管制外釋係依據「一定活度或比活度以下放射性廢棄物管理辦法」第6條規定，放射性廢棄物依輻射劑量評估，1年內所造成個人之有效劑量不超過0.01毫西弗，且集體劑量不超過1人西弗者，經提出輻射劑量評估報告及外釋計畫，報請主管機關核准後，始得外釋。

而國際上目前並未針對混凝土解除管制之限值訂有一致之標準，建議未來制訂標準時除了參考國內法規之外，並參酌國際原子能總署之建議限值，以與國際接軌。

有關混凝土除污的審查法規，需要蒐集美國核能管制委員會及美國環保署有關之法規及審查綱要，並邀請國內相關專家學者共同協助制訂有關之技術規則。

IV. 結論

透過選用適當的除污方式，不但可以減少對參與除役作業的工人和公眾的輻射暴露劑量，可允許設備或設施的再利用，減少放射性廢料的總量，並可以降低除役成本節省經費，及控管除役時程。而除污方式眾多，視欲除污的核種，有多少污染與表面特性，通常需要以多

種方法搭配使用，在過去十年來亦發展出不少新式除污技術，但並非新技術的發明就代表傳統技術已經遭到淘汰。因為新技術大多要達到一定面積才會比傳統技術更為經濟，因此亦有創新技術要與傳統技術搭配使用的情況。

在除役工作的實務經驗上國內先前已經有原子能委員會核能研究所對其水鍋式反應器(Water Boiler Reactor, WBR)除役(民國72年臨界，80年停止運轉，86年底完成第一階段除役，96年進行第二階段生物屏蔽體拆除與廠房最後清理，廠房在完成清理並經偵測確認達清潔條件後，釋出供燃料乾式貯存計畫繼續使用)、煙囪切割解體、延遲槽儲存容艙蓋開口、臺灣研究用反應器(Taiwan Research Reactor, TRR)移爐暫存(民國91年)、TRR濕貯槽(Wet Storage Block, WSB)拆除(民國93年)及TRR緊急冷卻水塔拆除(民國100年)等多項工程之特性調查、切割規劃、解體作業與因拆除而產生之混凝土塊解除管制作業的實務經驗，且在民國100年臺灣研究用反應器緊急冷卻水塔拆除工程的減廢成效甚至達到99.15%。故除役策略的選擇，對除役成本、時程及放射性廢料產生數量影響甚鉅，宜應謹慎比較與選擇。若能落實除役前的污染調查與除污檢整作業，在妥善規劃與嚴格督導下執行除役除污計畫，減廢及混凝土廢棄物外釋成效可達90%。

參考文獻

- [1] 黃秉修，核能電廠除役工程概念之探討，台電核能月刊第365期，民國102年5月，第32-54頁。
- [2] 羅文璉，核設施大型混凝土結構拆除與外釋作業實務探討，台電核能月刊第366期，民國102年6月，第28-42頁。
- [3] 美國環保署，Technology Reference Guide for Radiologically Contaminated Surfaces，2006。
- [4] 美國電力研究所，A Review of Plant Decontamination Methods，1988。
- [5] 美國核管會，Revised Analyses of Decommissioning for the Reference Pressurized Water Reactor Power Station，1995。
- [6] 美國核管會，Revised Analyses of Decommissioning

for the Reference Pressurized Water Reactor Power Station , 1996 。

- [7] 美國核管會 , Revised Analyses of Decommissioning for the Reference Boiling Water Reactor Power Station 。
- [8] 美國 Argonne 國家實驗室 , Decontamination Technologies 。
- [9] 美國 Argonne 國家實驗室 , Argonne SuperGel for Radiological Decontamination , 2011 。
- [10] 國際原子能總署 , Progress and experiences from the decommissioning of the Eurochemic Reprocessing Plant at Dessel, Belgium , 2008 。
- [11] 國際原子能總署 , New methods and techniques for the decontamination in maintenance or decommissioning operations , 1998 。
- [12] CO-ORDINATION NETWORK ON DECOMMISSIONING , Dismantling Techniques, Decontamination Techniques, Dissemination of Best Practice, Experience and Know-how , 2009 。
- [13] 歐洲經濟合作發展組織(OECD)/核能署(NEA) , Decontamination Techniques Used in Decommissioning Activities 。
- [14] 歐洲經濟合作發展組織(OECD)/核能署(NEA) , Decontamination and dismantling of radioactive concrete structures , 2010 。
- [15] 歐洲 European website on Decommissioning of Nuclear Installations (EUNDETRAF) , Decontamination for decommissioning Decontamination of buildings and concrete 。
- [16] 法國原子能委員會 CEA , Research and development for decommissioning , 2009 。

模擬裂隙損傷區對母岩受熱應力與外力作用之耦合效應研究 (I)

Modeling the Behavior of Fractured Rocks in EDZ by Thermal-Mechanical Coupled Effect

計畫編號：NSC 102-2623-E-032-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：楊長義、翁孟嘉

e-mail：yang@mail.tku.edu.tw

計畫參與人員：楊智凱、葉馥瑄、陳大均

執行單位：淡江大學土木工程系

摘要

高岩覆下地質處置坑的開挖常造成開挖損傷區，該損傷區長期受核廢料衰變熱之額外熱應力作用，使母岩損傷更嚴重。本研究主要：(1)整理瑞典 Åspö 岩柱穩定性實驗 (APSE) 母岩受熱與力耦合作用之經驗，知剝落是熱應力長期作用最重要的問題，其預測重點在於岩石初始破裂應力之正確判斷。經收集本地金門花崗岩之單軸抗壓音射試驗之本土資料，初步判定該初始破裂應力。(2)考慮岩石受剪引致岩石膨脹變形使變形模數軟化之數學模式，已回歸得知金門花崗岩之七個適用參數值；並以 ABAQUS 模擬處置坑受開挖力學作用之 EDZ 損傷區及受熱應力耦合作用後損傷區之擴大現象，均獲致合理的預測成果。

關鍵詞：地質處置、花崗岩、損傷、熱-力耦合、ABAQUS。

Abstract

The rock damaged (EDZ) is developing in a disposition hole for HLW geological repository. The damage in EDZ rock further increases by the decaying nuclear fuel produces heat which increases the thermal stress. According to the T-M coupling experience on Aspo Hard Rock Laboratory, the crack initiation stress of Taiwan granite is determined to be 0.2UCS by AE measurement under uniaxial compression test. A mathematical model considering shear-dilation damage of rock mass is adopted to predict the couple effect of thermal stress on the mechanical stress using ABAQUS.

Keywords: Geological repository, granite, EDZ, thermal-mechanical couple, ABAQUS.

I. 前言

瑞典與芬蘭對深層地質處置之花崗岩場址問題研究長達二三十年，台灣對本土花崗岩之工程性質，如花崗岩處置坑力學問題急需予以瞭解。開挖之破裂損傷區(圖 1.1)誠如所知，不論是利用鑽炸法(D&B)或坑道鑽掘機(TBM)進行母岩處置坑之施工開挖，常造成坑洞開挖壁附近母岩之破裂損傷 EDZ(Excavation Damage Zone)。EDZ 的損傷微裂隙的範圍通常可能深達數十幾公分到數公尺之深遠，其滲透係數可能比母岩原來的滲透係數高出 100~1000 倍以上，故長期以後易形成地下水之流動主要通路，成為載運核種外釋之良好管道。

另一方面，因廢棄桶內部核熱溫度長期擴散到 EDZ 破損岩石上，將造成破裂岩石再受到額外的熱應力作用(thermal stress)。據文獻顯示，在某一單壓強度 55MPa

之花崗岩溫度上升 450°C 後可造成 23.5MPa 的熱應力，使之非常接近開始產生裂縫的應力 (crack initiation)，可能造成新生微裂隙或使既有微裂隙再進一步擴張。因此，此等 EDZ 區之存在問題與其受熱應力影響必須予以重視。

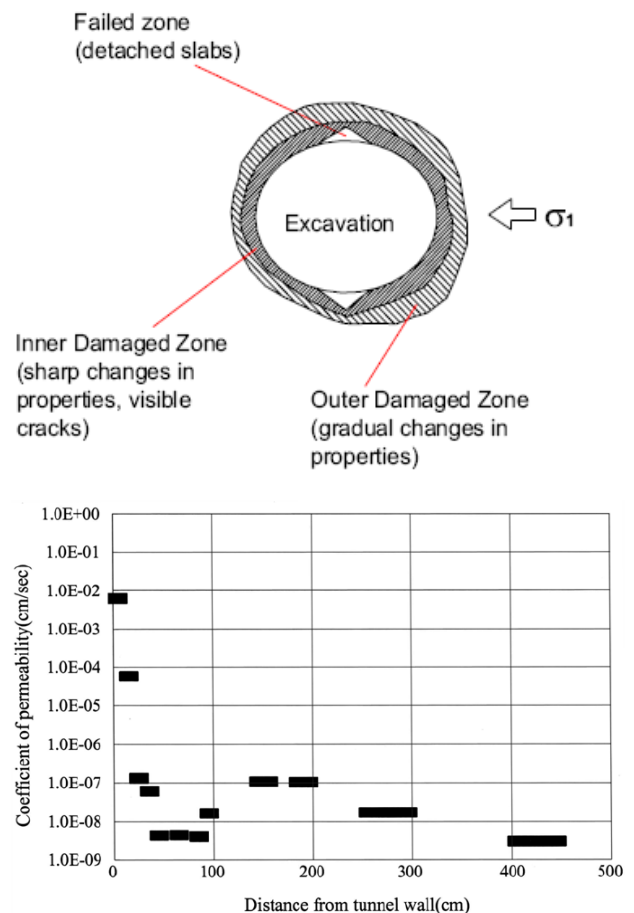


圖 1.1 開挖處置坑造成圍岩損傷區(EDZ)情況及滲透係數之增高

II. 主要內容

本研究整理瑞典對地質處置中現地試驗所得知花崗岩受熱應力作用，導致岩石力學特性之實場改變資料之經驗，掌握關鍵影響因素。進一步以我國本地金門花崗岩破裂損傷弱化特性的試驗資料為參數來源，利用數值軟體 ABAQUS 探討其在熱與力學耦合(T-M couple)作用下，處置坑洞與圍岩受到額外的熱應力，所造成的變形與破壞特性與力學性質之改變。

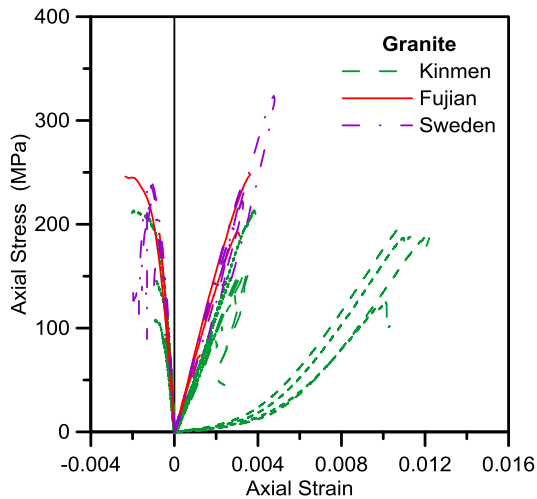


圖 2.4 金門花崗岩與瑞典花崗岩應力應變曲線比較

2.1 金門花崗岩之破裂特性

並獲知金門花崗岩由音射 AE 頻率監測(見圖 2.5)可知約在應力約達 20% σ_c 時 AE 事件迅速增加,根據 Aspo 研究經驗知現地岩盤初始破裂約發生在 0.43% σ_c ,所以本研究以 0.2 σ_c 視為判斷岩盤已損傷之門檻。可知金門花崗岩屬於第 II 類(class II)岩石(與 Avro 花崗岩一致),表示金門花崗岩在接近破壞強度下,極易因額外應力(如受熱應力 thermal stress)而失穩。因此,在我國分析處置坑安全性問題中,額外熱應力作用的花崗岩破裂問題,可能是須予關注。

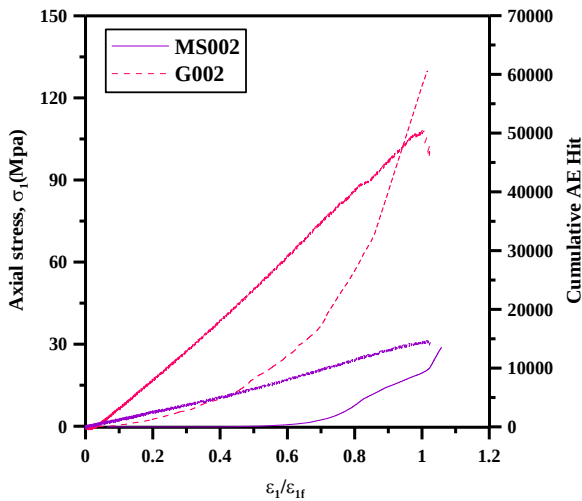


圖 2.5 金門花崗岩(G002)單壓應力應變曲線
與破裂 AE 事件

III. 結果與討論

本研究採用本案共同主持人 Weng *et al.* (2008)所提異向軟化組成模式考慮岩石在受到剪應力作用後,會引致變形行為產生軟化之現象。寫入 ABAQUS 副程式中,進行坑洞開挖擾動之力學分析及擾動區域內力學參數性質之弱化改變,再以 ABAQUS 熱傳分析功能求得衰

變熱造成的溫度場及其熱應力,再度疊加於前述力學損傷後應力場,以獲知熱-應力耦合作用後之雙重效應。

3.1 數值分析之模型

本研究假定之處置坑分析模型,係根據 DECOVALEX -THMC 計畫之標準模型所建立(Rutqist *et al.*, 2009),採用平面應變方式分析,開挖案例之數值分析模型尺寸如圖 3.1 所示,處置坑坑洞斷面半徑為 $a=1.14\text{m}$ (直徑 2.28m),岩覆深度包含 $Z=300\text{m}$ 及 $Z=500\text{m}$ 兩種深度。

並以金門現的實測的側向土壓力係數 K_0 為 1.267,處置坑開挖方向包括水平方向放置及垂直方向放置($K_0=0.54$),並材料輸入參數多以本土金門試驗資料回歸個參數。令岩石密度 $\rho=2700\text{kg/m}^3$ 、 $E=70\text{GPa}$ 、 $\nu=0.3$,岩盤基礎溫度為 30°C ,衰變溫度 80°C ;比熱 $C=769\text{ J/g}^\circ\text{C}$ 、熱傳導係數 $k=2.6\text{ W/m}^\circ\text{C}$ 、熱膨脹係數 $\alpha=1\times 10^{-7}/^\circ\text{C}$ 。

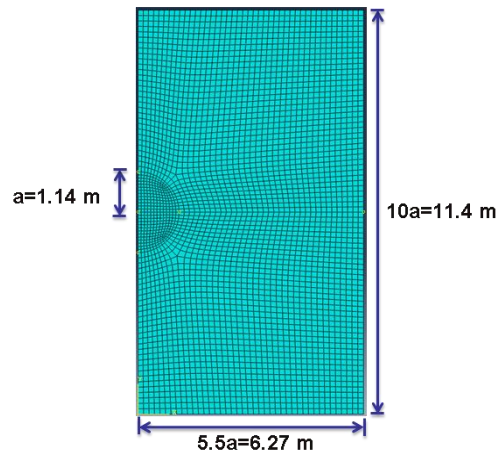


圖 3.1 處置坑坑洞開挖之數值分析模型

3.2 數值分析結果與分析

本節將針對水平處置坑洞及垂直處置坑洞, (i)開挖引致(加熱前)及(ii)加上熱應力後處置坑周圍應力場、總位移量、損傷區、變形參數等變化的數值模擬結果,來進行分析與討論。其中水平處置坑洞包括在岩覆深度 $Z=300\text{ m}$ 及 $Z=500\text{ m}$ 兩種狀況之分析結果, $K_0=1.267$,垂直覆土應力為最大主應力, $Z=300\text{m}$ 處 $\sigma_v=(0.027)(300)=8.1\text{MPa}$ 、 $Z=500\text{m}$ 處 $\sigma_v=(0.027)(500)=13.5\text{MPa}$,垂直處置坑洞部份則僅以在岩覆深度 $Z=300\text{ m}$ 下進行比較分析討論。本報告只展示金門花崗岩圍岩受開挖力學作用之損傷區 EDZ 範圍、與受熱力(T-M)耦合作用損傷區(damage zone)之擴大狀況(詳見於期末報告):

(1) 水平處置坑 - $Z=300\text{ m}$

如圖 3.2 所標示出不同程度的損傷區之觀察,得知在處置坑開挖力學作用(加熱前)的自重平衡,應力重新調整分佈後,較嚴重 EDZ 損傷區多集中在處置坑之頂拱及仰拱,EDZ 損傷區略成環狀分佈。而在增加熱應力後,較嚴重損傷區一樣集中在頂拱及仰拱處,且損傷區的範圍受熱應力作用前後,從 0.25m 擴大 0.54m,明顯比加熱前約擴大 2 倍,顯示岩體會受熱應力場的再度影響,

會使損傷區擴大。

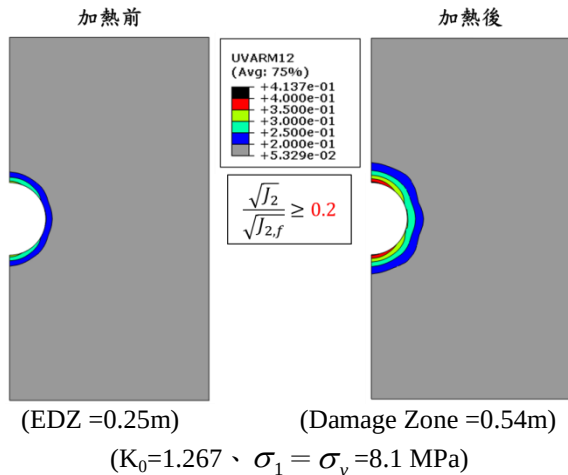


圖 3.2 岩覆深度 300m 處受熱前後損傷區之改變

(2) 損傷區範圍之比較

圖 3.3 為岩覆深度 $Z=500\text{m}$ 處，開挖力學作用(受熱前)、以及受熱後熱應力耦合作用後的損傷區變化。由圖中比較，得知不論開挖力學作用(受熱前)或熱應力耦合作用後，處置坑位處 $Z=500\text{m}$ 的損傷區範圍皆比 $Z=300\text{m}$ 處為大(見前述圖 3.2)。受熱應力作用前後， $Z=300\text{m}$ 處損傷區範圍從 EDZ 的 0.25m 擴大至 0.54m，而 $Z=500\text{m}$ 處損傷區範圍從 0.52m 擴大 0.72m。

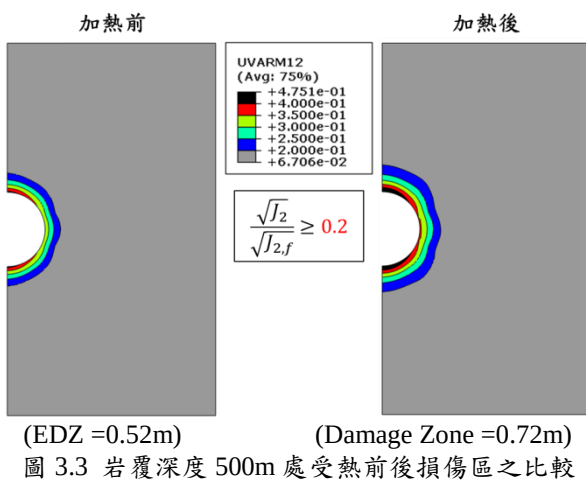


圖 3.3 岩覆深度 500m 處受熱前後損傷區之比較

(3) 垂直與水平處置坑損傷區之比較

本節以放置在 $Z=300\text{m}$ 為例，針對垂直處置坑與水平處置坑分析結果之比較，兩者不同處在於處置坑開挖二維平面分析時，所承受到最大及最小應力不同。根據我國處置場在岩覆深度 300m 量測得水平向之最大、最小應力分別為 10.68 及 5.78 MPa，相當於側向土壓力係數 $K_0=0.54$ ($Z=300\text{m}$ 處水平處置時 $K_0=1.267$ 、 $\sigma_v = \sigma_3 = 8.1$ MPa)。

由圖 3.4 與圖 3.2 之比較，可知對金門潛在場址，在同一地質處置深度 300m 處，垂直處置坑方式開挖後受熱應力前幾忽尚未發生力學 EDZ 損傷區，受熱應力後之損傷範圍也較小且均勻分佈在處置坑周圍(雖然 $K_0=0.54$)，初步成果顯示金門潛在場址處置坑以垂直存

放方式優於水平處置坑方式。

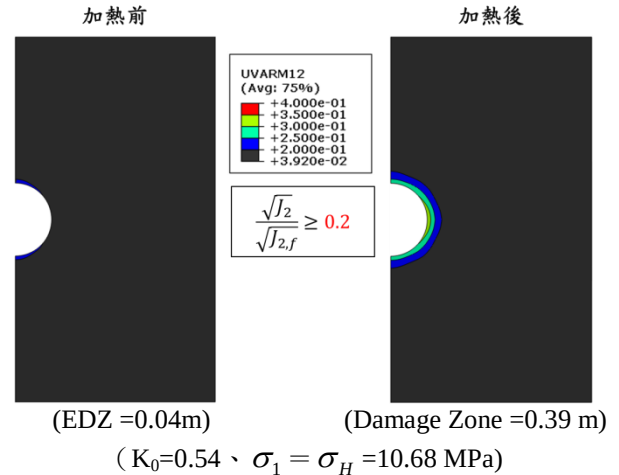


圖 3.4 岩覆深度 300m 處垂直處置坑受熱前後之損傷區

IV. 結論

本研究蒐集國外對花崗岩受熱應力作用之研究經驗，並實際以本地金門花崗岩的力學試驗資料建構其合適的受力損傷軟化模式，輔以 ABAQUS 程式進行開挖擾動及溫度傳輸之應力分析，進行處置坑受開挖擾動與受熱應力兩者耦合作用之模擬。獲致以下主要結論：

1. 據 ABAQUS 模擬結果顯示，金門花崗岩在深度 $Z=500\text{m}$ 或 $Z=300\text{m}$ 處置坑，如果受 80°C 衰變熱源熱應力作用後(原岩盤基礎溫度 30°C)，在深度 $Z=300\text{m}$ 處置坑受施工品質優良開挖作用致應力重新調整之力學作用後，EDZ 損傷區約 0.21m，受熱應力長期作用後擴大為 0.5m 約增大 2 倍；在 $Z=500\text{m}$ 處 EDZ=0.46m 受熱應力後擴大為 0.63m，顯示損傷範圍皆會受熱應力再度擴大。
2. 對本地金門潛在場址實測的應力場狀態而言，在 300m 建置地質處置坑洞，對垂直方式處置坑其側向土壓力係數 $K_0=0.54$ ，開挖後幾乎未發生 EDZ 力學損傷區，受熱應力後之損傷範圍也較水平方式處置坑 ($K_0=1.267$) 為小，初步顯示我國金門潛在場址處置坑以垂直存放方式較優。

參考文獻

- [1] 台灣電力公司(2010)，「用過核子燃料最終處置計畫潛在處置母岩特性調查與評估階段—99 年度計畫」。
- [2] 蔡美貞(2006)，木山層砂岩破裂音源之空間特性，碩士論文，台灣大學。
- [3] Andersson, J.C. C.D. Martin and H. Stille(2009), The Åspö pillar stability experiment: Part II- Rock mass response to couples excavation-induced and thermal-induced stresses, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 46:879-895.

應用資源化鐵氧化物吸附材除放射元素之共離子競爭效應與動力學探討

Application of waste iron oxide on absorptive removal of radioactive element: Kinetics and the effect of co-existing ions

計畫編號：102-NU-E-006-003-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：黃耀輝

e-mail：yhhuang@mail.ncku.edu.tw

計畫參與人員：陳怡如、劉佳勳、林郁芳

執行單位：國立成功大學化學工程學系（所）

摘要

吸附法在環境技術中為相對高效且低廉的方法，尤其如水溶液中移除放射物質議題，藉由適當材料表面性質控制達到安定化效果，不僅要求高負載容量，其選擇性吸附能力與共離子效應之優劣是考驗處理效率的重要因子。本團隊收集實廠流體化床 Fenton 反應槽所產生的固體副產物，稱為 BT 鐵氧化物系列，已證實為大比表面積(150-250 m²/g)之針鐵礦(Goethite, α -FeOOH, 0.25-1.5 mm)晶相。基於初步成果中以 BT 除 Sr²⁺之優異效能，在初始濃度 10 ppm 及溶液 pH=11 的情況下，進行吸附實驗，研究結果發現可達 99% 去除率。以瓶杯實驗配製 Mg、Ca、Ba 與 Sr 不同莫耳比等條件，隨著溶液中的競爭離子濃度增加，鋇的去除率則下降。並吸附不同濃度之 Na、K、Mg、Ca、Ba 等實際水體環境，符合二階動力式。

關鍵詞：選擇性吸附、流體化床、針鐵礦、競爭吸附

Abstract

The adsorption process, which is cheap and easy to handle, is normally adopted to immobilize the radioactive ions. By modifying the surface properties of adsorbent, not only the adsorption capacity but also its selectivity can be enhanced moderately. Our previous work has successfully applied a waste iron oxide recovered from real fluidized-bed Fenton equipment, which was composed of homogeneous goethite (α -FeOOH) and named BT series, for aqueous Sr²⁺ removal. Due to the high specific surface area (150-250 m² g⁻¹) of BT adsorbent having 0.25-1.5 mm scaled size, this project aims to explore the capability of BT for absorptive removal of Sr. The initial concentration of Sr²⁺ is 10 ppm, and the pH values of solution in the adsorption experiments were 11. We found that 99% removal of Sr. The effects of co-existing cations on Sr removal using BT was examined with Na, K, Mg, Ca and Ba ions in various concentrations. Meanwhile, the kinetics of competitive adsorption for the removal of Sr was therefore studied.

Key Words: Selectivity; Goethite; Fluidized-bed; Competitive adsorption

I. 前言

1-1 背景

在 2011 年，日本因發生 9 級大地震引發海嘯，造成福島核電廠大量輻射物質隨著洋流佈及整個太平洋，破壞整個地球生態。銈-90、銇-134、銇-137 和碘-131 同為對健康影響最大的放射性同位素，流入海洋中輻射物質濃度相對於海水背景組成元素如 Na、Mg、Ca、Cl、S、K...等極為微量，在相對高濃組成元素中移除放射性元素。吸附法是水處理技術中相對高效且成本低廉的處理程序，藉由選擇高吸附容量的吸附材之表面性質控制達到安定化輻射污染物效果。

1-2 研究目的

依據初步成果中所選定資源產物 BT 吸附除 Sr²⁺之優異效能，將設計共離子環境，採用模擬污水環境常見之候選二價共離子與放射性元素進行吸附研究，包括移除率、吸附容量等，並進一步探討 BT 在共離子環境中吸附熱力、動力學及文獻蒐集。

II. 主要內容

2-1 吸附材 BT 成因與特性介紹

為克服 Fenton 法產出污泥造成二次污染，本團隊近年致力於結合產業界架設運作大型反應槽體以處理實廠廢水排放。流體化床 Fenton 乃引進化工技術之概念，以添加擔體方式改變亞鐵催化後 Fe(OH)₃ 沉澱，在控制特定水力條件下使之排除大量水分，改以氧化鐵結晶型態披覆擔體表面，即 FBR-Fenton 法。流體化床 Fenton 法結合異相催化與結晶成核反應，使 Fenton 反應後鐵離子析出生成鐵氧化物，有效抑制鐵污泥產出，且鐵氧化物本身為 H₂O₂ 催化劑，具有觸媒功能，併進協助破壞並礦化有機物，展現極優良的污染處理效能。

2-2 鐵氧化物-針鐵礦(Goethite)吸附材

根據許多研究指出針鐵礦是一種優良吸附材。一般實驗室製備方案是以 Fe²⁺/Fe³⁺ 加鹼產生沉澱，經過長期陳化而相轉換、成核、再結晶等行為，形成針鐵礦微粒，普遍微觀形貌如圖 2-1。相關文獻皆指出經調整表面電性，針鐵礦是吸附陰離子或陽離子元素的優良材料。而此類應用存在兩項值得改良的缺點，一是人工合成方式產出針鐵礦幾乎是微奈米級晶粒[1]，約數百奈米均徑，導致固液分離步驟繁雜，降低回收效率，乃至難以後續材料再生；二是合成法必有原料成本與能耗等經濟效益

考量，欲成為現行吸附或觸媒材使用首選，仍須實廠應用及市場取向等考驗。也因此，更凸顯本計畫選用資源再生 Fenton 系統之廢棄物作為吸附材，兼具尺度合宜與針鐵礦之大比表面積本質等突出的表現。

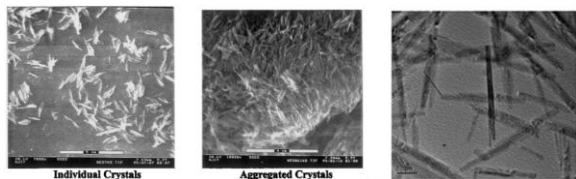
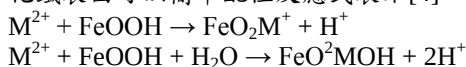


圖 2-1 針鐵礦微粒[2]

2-3 共離子吸附

Schenck (1983)分析Co 離子於針鐵礦表面行為，其吸附量隨pH 提升至7 達最大值，pH 6-7.5 之間為單純Co(II)離子，然XPS 顯示pH 8 與10 則分別形成Co(OH)₂與CoOOH 披覆[3]。藉溫度參數建立Co 與Cd 於針鐵礦表面錯合模型，二者皆為吸熱行為；其陽離子鍵結氫氧化鐵表面可以簡單配位反應式表示[4]：



Guo (2009)以針鐵礦吸附U(VI)元素，並評估磷酸、碳酸及黃腐酸等作用，發現pH 4.5 使吸附率達100%，對照pH 吸附邊界實驗數據與理論，認定U 係以單分子內球錯合模型與鐵氧化物鍵結，即-FeOUO₂⁺與-FeOUO₂OH，並且磷酸存在有利於U 固定化[5]。Trivedi (2001)評估針鐵礦對金屬離子Zn、Ni、Ca 等吸附性差異，結論指出FeOOH 表面親和性大致與金屬離子水合半徑成反比[2]，符合McKenzie (1980)早先已測驗結果：Cu>Pb>Zn>Co>Ni>Mn[6]。

2-4 實驗方法

2-4-1 純化 BT9

BT 樣品回收自實廠 FBR 反應槽副產物，預測FeOOH 基質結構上仍鍵結許多殘餘的反應藥劑或有機質，此類雜質成分比例屬微量，但卻關鍵影響應用 BT 之表面特性，故以流體化床反應系統加鹼 NaOH 清洗。將約 100 g BT9 置入流體化床反應器中，並配製 pH=11 的 100 L 進料溶液，調控蠕動幫浦至適當流速進行實驗，直到進料溶液 pH 與出流水 pH 值相當，實驗裝置如圖 2-2 所示。



圖 2-2 純化 BT9 流體化床反應器示意圖

2-4-2 吸附實驗裝置及步驟

將旋轉儀置入恆溫冰箱並調整至所需轉速及溫度後，配製所需濃度的鋇溶液 10mL 及 0.05g BT9 置入離心管中，將離心管固定於旋轉儀上進行吸附實驗，並隨時間取樣，將樣品過濾後量測其 pH 值，並將樣品酸化

後進行 ICP-OES 量測，吸附實驗裝置如圖 2-3 所示。



圖 2-3 吸附實驗設備裝置圖

III. 結果與討論

3-1 pH 對 BT9 吸附的影響

在不同的 pH 下測量其鋇離子濃度的吸附實驗，將 5 g/L 的 BT9 吸附材置於 10 ppm 鋇溶液中，溶液 pH 範圍控制在 7~12。如圖 3-1 所示，在 pH 值 9.02 以上，可達到 99 % 以上的鋇去除率，隨著溶液 pH 愈大，吸附速率也愈快，去除率增加，反應六小時後速率趨於穩定達到吸附平衡。

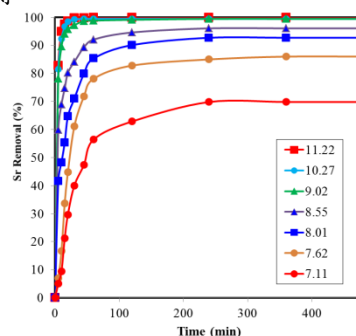


圖 3-1 5g BT9 於不同 pH 下的鋇去除率隨時間的關係圖 (5g/L BT9、溫度 25℃、[Sr²⁺]_i=10 ppm)

3-2 BT9 吸附鋇的熱力學探討

探討溫度對於 BT9 吸附行為的影響，以求得熱力學參數(ΔG、ΔS、ΔH)。溶液 pH 控制於 11，在不同溫度下(15℃、30℃、50℃)反應 24 小時後，各別的吸附量與吸附質平衡濃度的關係如圖 3-2 等溫吸附曲線，可知吸附量隨溫度越高而增大，在 50℃ 下其吸附量為最高。

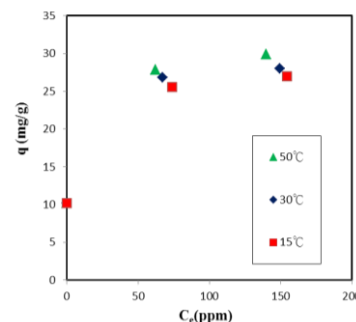


圖 3-2 不同溫度下 BT9(控制於 pH=11)吸附鋇之等溫吸附曲線

$$\Delta G = -RT \ln K_0 \quad (3-1)$$

$$\ln K_0 = \frac{\Delta S}{R} - \frac{\Delta H}{RT} \quad (3-2)$$

以 $\ln K_0$ 對 $1/T$ 作圖求其斜率及截距，再乘上理想氣體常數 R (8.314 J/K mol)，代入式 3-2 可得熱力學參數 ΔS 及 ΔH ；把 $\ln K_0$ 代入式 3-1 即可得不同溫度的 ΔG 。如表 3-1，各溫度下的 ΔG 皆為負值，表示 BT9 在其溫度下之鋇吸附為自發性反應， ΔH 為 2.14 kJ/mol 為吸熱反

應。

表 3-1 BT9 於不同溫度下(控制於 pH=11)吸附鋇的熱力學參數

	K_0	ΔG (kJ/mol)	ΔS (J/mol·K)	ΔH (kJ/mol)
15°C	11.04	-5.75		
30°C	12.00	-6.26	27.49	2.14
50°C	12.19	-6.72		

3-3 等溫吸附曲線

由 Langmuir 及 Freundlich 等溫吸附模式，探討特定溫度下，溶液 pH 控制於 11 時，平衡吸附量與吸附質平衡濃度的關係。我們將實驗數據代入 Langmuir(式 3-3) 及 Freundlich(式 3-5)等溫吸附公式中。由式 3-4 以 C_e/q_e 對 C_e 作圖 3-3 得直線關係，其斜率為 $1/q_{max}$ ，截距為 $1/(K_L q_{max})$ ，可得 K_L 及 q_{max} 。由式 3-6 將 $\ln q_e$ 對 $\ln C_e$ 作圖 3-4，其斜率為 $1/n$ ，截距為 $\ln K_F$ ，可得 K_F 及 n 。

Langmuir 等溫吸附式如下：

$$q_e = q_{max} \left(\frac{K_L C_e}{1 + K_L C_e} \right) \quad (3-3)$$

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{C_e}{q_{max}} + \frac{1}{K_L q_{max}} \quad (3-4)$$

Freundlich 等溫吸附式如下：

$$q_e = K_F C_e^{1/n} \quad (3-5)$$

$$\ln q_e = \frac{1}{n} \ln C_e + \ln K_F \quad (3-6)$$

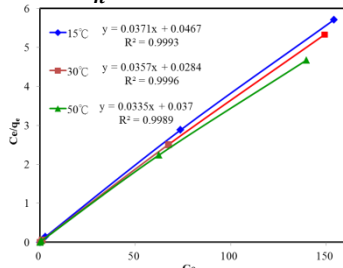


圖 3-3 不同溫度下 BT9 吸附鋇之 Langmuir model 等溫吸附曲線

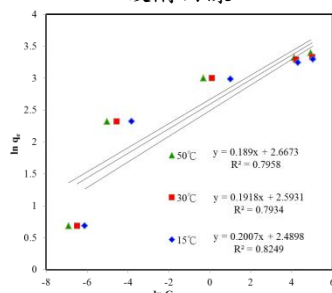


圖 3-4 不同溫度下 BT9 吸附鋇之 Freundlich model 等溫吸附曲線

把實驗數據帶入各公式中所得的參數及線性回歸值整理如表 3-2，由 R^2 值發現其結果較接近於 Langmuir 等溫吸附模式，代表 BT9 吸附鋇為單層吸附模式，也可得各溫度下的最大吸附量。

表 3-2 不同溫度下 BT9(控制於 pH=11)吸附鋇利用 Langmuir 及 Freundlich 所求得之參數及線性回歸值

Langmuir				Freundlich		
	R^2	q_{max} (mg/g)	K_L		n	K_F
15°C	0.9993	26.95	0.79	15°C	0.8249	4.98
30°C	0.9996	28.01	1.26	30°C	0.7934	5.21
50°C	0.9989	29.85	0.91	50°C	0.7958	5.29

3-4 溶液含 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 、 K^+ 之共離子效應探討

本實驗使溶液中含有 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 、 K^+ 共存，以 BT9 吸附材 5g/L、溫度 25°C、控制 pH 值為 9、 $[Sr^{2+}] = [K^+] = [Mg^{2+}] = [Ba^{2+}] = [Ca^{2+}] = 0.114$ mM ($[Sr^{2+}]_i = 10$ ppm) 來進行 24 小時反應的吸附實驗，如圖 3-5 的去離率隨時間的關係圖。以 K^+ 去除率為最低，而 Mg^{2+} 去除率為最高，BT9 對 Mg^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 、 Ca^{2+} 、 K^+ 的去離率由高至低為 88.6%、76.5%、72.9%、49.4%、1.3%。

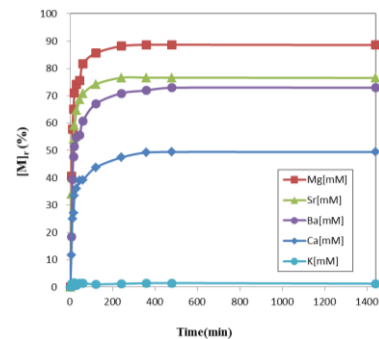


圖 3-5 BT9 吸附 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 、 K^+ 之去除率隨時間的關係圖

3-5 溶液含 Sr^{2+} 、 Ca^{2+}/Sr^{2+} 、 Mg^{2+}/Sr^{2+} 、 Ba^{2+} 共離子吸附及動力學探討

本實驗的溶液中含有 Sr^{2+} 及 Ca^{2+}/Sr^{2+} 及 Mg^{2+}/Sr^{2+} 及 Ba^{2+} 時，以 $[Ca^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 、 $[Mg^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 及 $[Ba^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 莫耳比變化來探討 BT9 吸附鋇的動力學。將 5 g/L 的 BT9 吸附材置於 10 ppm 鋇溶液中，控制溶液 pH 為 11.2，莫耳比分別為 0、1、10、100，隨時間而取樣並量測其 pH 值。

$$\ln \left(\frac{q_e}{q_e - q_t} \right) = k_1 t \quad (3-7)$$

$$\frac{1}{q_t} = \frac{1}{q_e} + \frac{1}{k_2 q_e^2 t} \quad (3-8)$$

動力吸附模式為探討吸附時間與吸附量變化的關係，能夠知道吸附速率快慢、平衡吸附量及吸附速率常數，利用一階動力模式(式 3-7)，以 $\ln(q_e/q_e - q_t)$ 對 t 作圖，可由斜率得一階速率常數 k_1 。利用二階動力模式(式 3-8)，以 $1/q_t$ 對 $1/t$ 作圖，可得二階速率常數 k_2 ，及 BT9 平衡吸附量 q_e 。由 R^2 值可知不同莫耳比之吸附曲線較符合二階動力模式，理論平衡吸附量也隨著莫耳比增加而減少。

3-6 共離子競爭效應探討

本節探討三種不同鹼土族離子各自對於鋇吸附之影響，以長條圖(圖 3-6)來比較競爭效應，當 $[Mg^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 、 $[Ca^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 、 $[Ba^{2+}]/[Sr^{2+}]$ 莫耳比為 0、1、10、100，用 IMR(different molar ratios)來表示，當 $IMR=1$ 時， Mg^{2+}

相較於其他兩者有明顯的競爭效果，使 Sr^{2+} 去除率降低，隨著 IMR 增至 10 及 100，三者實驗條件下的鋇去除率皆明顯下降許多，顯示在共離子溶液中，2A 族離子對於 Sr^{2+} 的吸附有競爭效應導致除鋇效果下降。

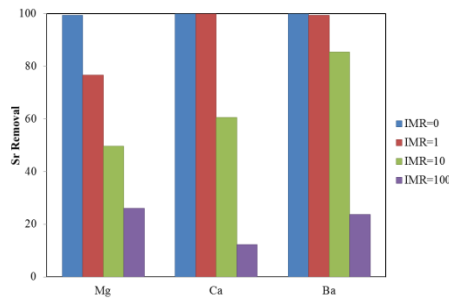


圖 3-6 Mg、Ca、Sr、Ba 共離子競爭吸附比較圖

IV. 結論

1. BT9 利用 BET 所測得之比表面積為 $232 \text{ m}^2/\text{g}$ ；由 XRD 分析比對為 Goethite, $\alpha\text{-FeOOH}$ ；SEM 觀察表面型態呈多孔性結構，可提供較多的吸附位置；且 EDS 半定量分析顯示 BT9 之鐵氧莫耳比為 1:2。
2. BT9 對鋇的吸附速率及去除率和 pH 有很大的關係，在 pH 值 9.02、10.27 及 11.22 時，可達到 99 % 以上的鋇去除率，隨著溶液 pH 愈大，吸附速率及去除率增加，反應六小時後速率趨於穩定達到吸附平衡。
3. ΔG 在 15、30、 50°C 吸附實驗下皆為負值，表 BT9 在這些溫度下，吸附鋇皆為自發性的反應；而 ΔH 為正值表示此系統為吸熱反應。
4. 由等溫吸附曲線得結果接近於 Langmuir 等溫吸附模式，代表 BT9 吸附鋇為單層吸附模式。
5. BT9 對於帶 1 價的 K 離子幾乎不吸附，只吸附帶 2 價電的鹼土族離子。且經過 24 小時的吸附實驗後，BT9 對 Mg、Sr、Ba、Ca 和 K 的去除率由高到低的順序為：88.6%、76.5%、72.9%、49.4%、1.3%。此順序與水合離子數 (N, the number of waters of hydration) 和水合半徑 (RH, the order of the hydrated radius) 的比值一致。
6. 不論是含 Ca、Sr 共同離子吸附或含 Mg、Sr 共同離子吸附及 Ba、Sr 共同離子吸附，皆符合二階動力式。
7. 當 IMR=1 時，Mg 離子相較於其他兩者有明顯的競爭效果，當 IMR=100 時，三者實驗條件下的鋇去除率皆明顯下降許多，表在共離子溶液中，2A 族離子對於 Sr 的吸附競爭效應明顯。而海水中 Ca 和 Mg 濃度很高，因此 BT9 在此條件下將大幅降低對 Sr 的移除效果。

參考文獻

- [1] Alvarez, M., et al., 2006. Structural characterization and chemical reactivity of synthetic Mn-goethites and hematites, Chemical Geology 231, 288-299.
- [2] Trivedi, P. et al., 2001. Adsorption of metal ions onto goethite: single-adsorbate and competitive systems. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 191, 107-121.

- [3] Schenck, C.V., Dillard, J.G., 1983. Surface Analysis and the Adsorption of Co(II) on Goethite. Journal of Colloid and Interface Science 95, 398-409
- [4] Angove, M.J., 1999. The Influence of Temperature on the Adsorption of Cadmium(II) and Cobalt(II) on Goethite. Journal of Colloid and Interface Science 211, 281-290.
- [5] Guo, Z., 2009. Sorption of U(VI) on goethite: Effects of pH, ionic strength, phosphate, carbonate and fulvic acid. Applied Radiation and Isotopes 67, 996-1000.
- [6] McKenzie, R.M., 1980. The adsorption of lead and other heavy metals on oxides of manganese and iron. Australian Journal of Soil Research 18, 61-73.

放射性廢氣處理技術研究

計畫編號：NSC 102-2623-E-214-004-NU

計畫類別：□個別型計畫 ■整合型計畫

計畫主持人：王詩涵、陳榮輝

e-mail：shwang@isu.edu.tw

計畫參與人員：紀佳好

執行單位：義守大學化學工程學系

摘要

本計畫所擬開發處理的廢氣為放射性鉀氣與氙氣，有二大部分，第一部分核電廠的放射線廢氣處理主要技術為木炭床吸附分離，此分離技術單純是以巨型的管柱延遲放射線廢氣Kr-85(氪)及Xe-133(氙)為目的，而其中微量的半衰期長達10.76年，長期以來一直被忽略，因此以生活環境及人體安全為前提，使用傳統拖延方式是無法解決目前問題。本研究採用變壓吸附法(pressure swing adsorption, PSA)作為放射線廢氣的純化，利用高壓吸附及低壓脫附再生的循環操作原理，比較起傳統方式更能有效的減少廢氣處理系統空間及成本。但是PSA為一個多變數的複雜分離系統，如何有效地找出最佳分離操作條件是重要的，利用離線式基因演算法(Genetic Algorithms)計算最佳化的搜尋方法。本研究利用純化分離技術手段封存最高純度的放射性氬及氙氣同時縮減管柱大小使吸附劑能不斷的連續進行純化及再生利用。第二部分則是高選擇性氬氣氧化觸媒之開發，用於核電廠中樹脂溼式處理後生成高濃度氬氣之分解，探討銅銀觸媒之反應動力學，並借重DRIFT及FTIR光譜研究其反應機構，同時探討於現實反應環境中水氣及二氧化碳之影響，進而獲得觸媒反應最佳條件應用於試量產機台，使其於低溫(445 K)下使能分解66.7%氬氣生成氬氣及水，並建立再生技術，台建立安全且高效率之高濃度氬氣尾氣觸媒分解技術，結合兩者未來可有效解決核電廠廢氣處理問題。

關鍵詞：基因演算法，純化分離技術，變壓吸附法，氬氣氧化分解觸媒，銅銀雙金屬觸媒。

Abstract

This project aims on developing a platform technology for treating radioactive waste gases. The study is divided into two parts. In the first part, the main technology in the treatment of radiation off-gas is gas solid adsorption (GSA) separation system which uses huge columns to delay the radioactive isotopes of Krypton and Xenon. However, tracing Krypton-85 with half-life of 10.76 years has long been ignored, on the premise of natural environments and human health, traditional delay technology cannot solve the current problem. In this research, pressure swing adsorption (PSA) is used to purify radioactive off-gas of Krypton. Based on the operating principle of high-pressure adsorption and low-pressure desorption regeneration cycle, it is more compact and economical than traditional methods. PSA is a multivariable complex separation system. In this research, a genetic algorithm is used to effectively identify

the optimum separation operation conditions. In this work, purifying separation techniques are used to achieve high-purity radioactive Krypton and Xenon, reduce column volume, achieve continuous purification and recycle the adsorbent. In the second part, a highly selective oxidation catalyst is developed for the decomposition of high concentration ammonia to nitrogen. The catalysts for ammonia oxidation to nitrogen were synthesized by co-deposition of two different metals/oxide nanoparticles onto alumina supporting materials utilizing supercritical fluid technique. The reaction kinetics and mechanism were investigated by DRIFT and XPS. The effect of the environmental gases such as water and carbon dioxide was studied as well. Based on those results, the reaction conditions were optimized and applied to a pilot plant system for ammonia decomposition. It can decompose 66.7% ammonia to nitrogen at low temperature, 445K, completely with high selectivity, >99.9%. The stability and the regeneration process were studied. A highly selective oxidation catalyst for high concentration NH_3 was successfully developed for the waste gas from nuclear power plant. By integrating the simulation and experiment results, a smart waste gas treatment system would be developed eventually.

Keywords: genetic algorithm, pressure swing adsorption, purifying separation techniques, ammonia selective oxidative catalyst, copper/silver bimetallic catalyst.

由於廢氣在核能廢棄物中占了非常重要的一部分，本研究針對開發放射性鉀氣吸附製程模擬、設計與控制技術以及開發高選擇性且高效率之高濃度氬氣分解觸媒為主的兩大部分研究進行討論。

I. 開發放射性鉀氣吸附製程模擬、設計與控制技術

1.1 簡介

放射性鉀氣廢氣一般採用活性碳吸附延滯其排放時間，此分離技術單純是以巨型的管柱延遲放射線廢氣Kr-85(氪)及Xe-133(氙)為目的，活性碳吸附延滯床一般的流程如圖1，但其中微量的Kr-85半衰期長達10.76年，長期以來一直被忽略，導致大氣中Kr-85在全球排放總量已經超過背景值數千倍。因此以生活環境及人體安全為前提，使用傳統拖延方式是無法解決目前問題，本研究利用純化分離技術手段，期望能封存最高純度的放射性Kr氣及Xe氣，同時縮減管柱大小使吸附劑能不斷的連續進行純化及再生利用。前一期在發展單管真空變壓吸附於核廢氣的處理，此研究已發表在 Chemical

Engineering Research and Design[1]。由於單管處理量有限，本期擴展至多管真空變壓吸附於核廢氣的處理。

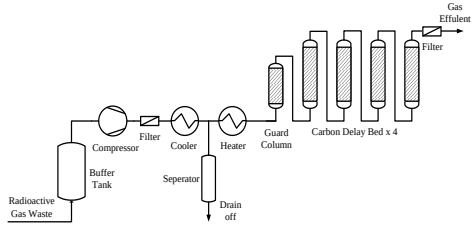


圖 1：活性碳吸附床延滯排放氣體流程示意圖

1.2 過去研究

在過去研究 Kr 及 Xe 氣分離中，Steinberg and Manowitz [2]以多階段蒸餾法逐步分離出 Kr 及 Xe，但分離純度並不理想且製程複雜，Hutter et al. [3]於 140K 低溫下精餾方式分離，但導致操作成本過高。Stern and Wang [4]利用矽膠作為滲透膜以多級串聯(multistage permeation cascades)傳輸的設計方式，雖然分離效果不錯，但是處理的總量過少。Munakata et al. [5]採用氣固管柱吸附法(gas solid adsorption, GSA)方式，將十餘種吸附劑進行惰性氣體吸附能力比較實驗，選擇活性碳作為吸附劑，其優點為吸附能力強又容易取得。Munakata et al. [6][7]通過具體 GC 實驗數據，建立 GSA 對流體及固體相動態模擬的物性參數，如軸向擴散速率、固體內表面擴散速率，及吸附平衡式等。

1.3 吸附床模式

流體相和固體相的濃度隨時間和距離變化如圖 2 所示。

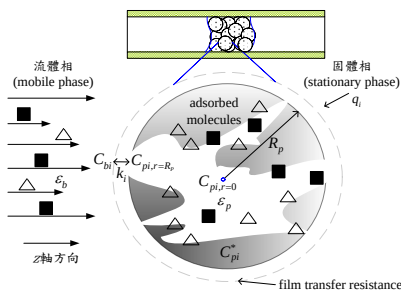


圖 2：內粒子相的放大圖

本項工作利用活性碳作為吸附劑進行吸附 Kr 及 Xe 氣實驗數據驗證[6]，首先驗證等溫吸附式的準確性，其粒子飽和吸附量 $q_{i,max}$ (mol/kg) 成分 i 分別為 12 及 9.9，亨利常數 $b_{i,0}$ (mol/kg Pa) 成分 i 分別為 3.0×10^{-9} 及 4.7×10^{-9} ，等量吸附熱 $-\Delta H$ (J/mol) 成分 i 為 22×10^3 及 28×10^3 ，在多組溫度下，以不同壓力下得到吸附劑的吸收量，圖 3 為 Kr 及 Xe 之吸附曲線圖，圖中線形部份為模擬吸附曲線，黑標記部份為實驗數據點。由圖中可以發現 Langmuir 等溫吸附式，與實驗數據點相當接近，因此，本項工作可藉由等溫吸附式模擬多管吸附模式。

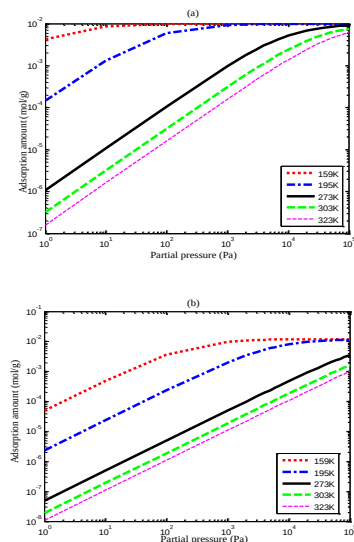


圖 3：模擬(a)Kr 及(b)Xe 在不同溫度之吸附曲線與實驗數據對照

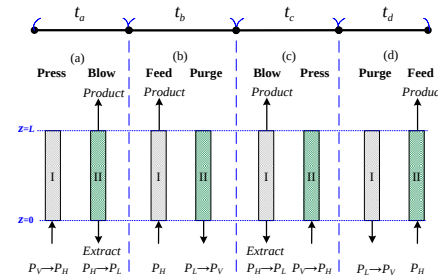


圖 4：兩管柱四步驟 VPSA，操作示意圖

1.4 多管變壓吸附最佳化設計

VPSA 藉由不同高/低/真空壓力及四種切換時間的組合，可得到欲分離成份的純度，但是 VPSA 的操作條件，包括各段的壓力及切換時間，其變數過多不易找到最佳解，且可能非全域(global)最佳值。因此使用基因演算法(genetic algorithms, GA)計算出最佳的參數值，達到最佳的連續操作製程。

設母體大小(population size)固定為 50 及 100 個世代條件下，圖 5 為 VPSA 類型，演算過程中圓圈的最佳值分成數小段漸近收斂，50 世代得最佳值-0.9834。VPSA 最佳的操作條件於表 1。圖 6 比較 VPSA 及 IPSA 在 20 循環下收集兩管柱萃取端的平均濃度變化，IPSA 為加入閒置(idle)步驟，擺脫不同管柱在一步驟下皆用同一操作時間的限制(Kim et al. (2005)及 Mofarahi et al. (2008))。在 Xe 氣方面 IPSA 略高於 VPSA 如圖 6(a)，但是在 Kr 氣方面，如圖 6(a)黑框放大圖於圖 6(b)顯然 Kr 也高出 VPSA 約 7 倍，其原因於 IPSA 的高低壓力差較 VPSA 大，在吹出步驟時 Kr 及 Xe 氣濃度同時被拉大，導致在計算平均純度時效益差於 VPSA 類型。

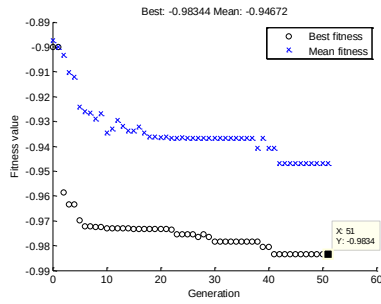


圖 5：GA 在 VPSA 各世代的演化趨勢

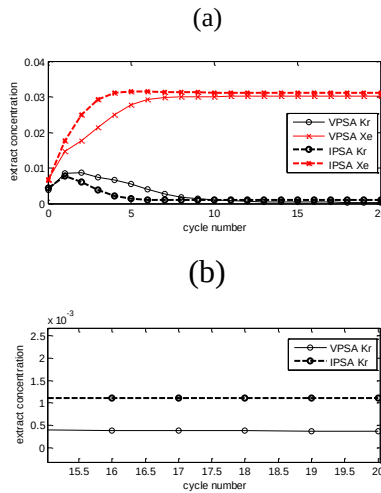


圖 6：VPSA 及 IPSA 在 20 循環下，兩管柱於萃取端的濃度變化。

表 1：VPSA 最佳的操作條件

操作變數	最佳條件
高壓 P_H	1.97×10^5 (Pa)
低壓 P_L	1.02×10^5 (Pa)
真空壓 P_V	0.5×10^5 (Pa)
加壓步驟 t_a	4.98 (S)
進料步驟 t_b	17.5 (S)
吹出步驟 t_c	4.98 (S)
沖洗步驟 t_d	17.5 (S)

圖 7(a)為 VPSA 於 Bed I 的 1, 5 及 50 次循環下，在出口端的 Kr 及 Xe 氣濃度變化，其中 a、b、c、d 分別為操作的加壓、進料、吹出、沖洗四個步驟，系統於第 5 次循環後逐步穩定與 50 次循環濃度變化相似，圖 7(b)為管柱二於各個循環濃度變化，如箭頭處在第 1 次循環時管柱內無任何成份，所以濃度為零直至第三步驟加壓時濃度才逐漸上升，其餘變化過程與圖 4-7(a)相對應的步驟濃度分佈相近(如 Bed I 於 a 時與管柱二的 a 相較)，圖 7(c)為在各個循環下收集兩管的 Kr 及 Xe 氣平均純度變化。

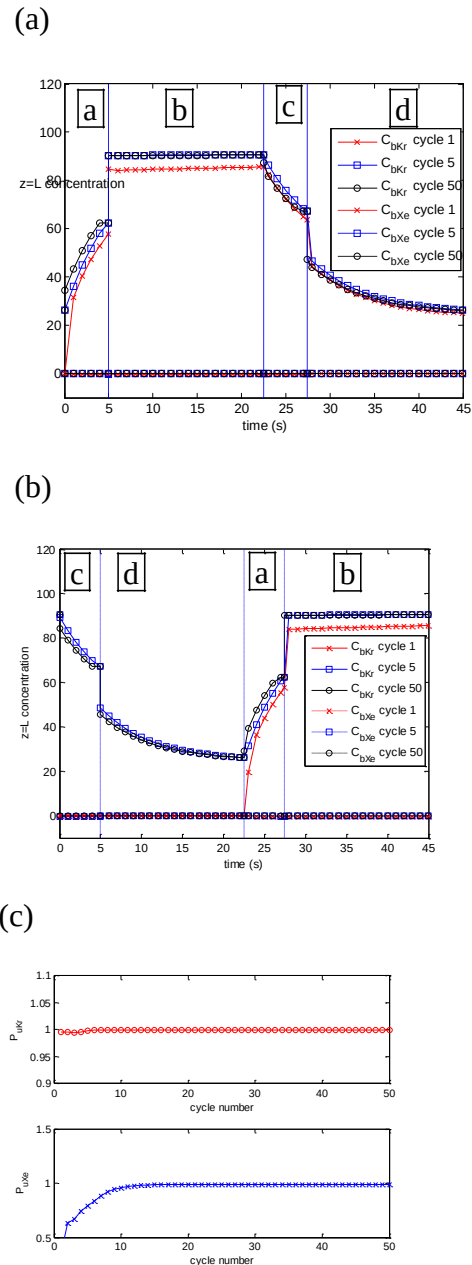


圖 7：VPSA 最佳操作條件下出口端 Kr 氣及進口端 Xe 氣，(a) Bed I 的 1, 5 及 50 次循環濃度變化，(b) Bed II 的 1, 5 及 50 次循環濃度分佈，(c) 每個循環下收集 Kr 及 Xe 氣平均純度變化過程。

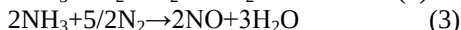
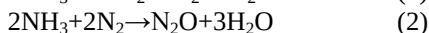
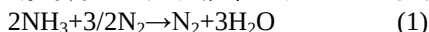
II. 高選擇性氮氣廢氣氧化觸媒之開發

2.1 簡介

核電廠之廢樹脂經溼式氧化處理後，產生大量高濃度氮氣(約 66.7%)，需經過分解後始能進行排放，大量處理氮氣的方法有氧化分解法、還原分解法與回收法，回收法為將氮氣純化回收或再製造其他產品(如硫酸銨)，因核電廠之氮氣具有低放射性不適用此法，目前台灣核電廠主要以還原分解法處理之，其反應溫度高(>600°C)，且其主要產物為氫氣，有安全上之虞慮；一般若使用氧化分解法，其反應溫度較還原分解法低，主要產物為氮氣和水，然常會伴隨氮氧化物(NOx)的產生，

造成後續環境污染的問題，需要後續處理步驟，因此極需製備高選擇性且可以低溫反應之氮氣氧化觸媒。

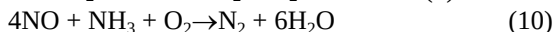
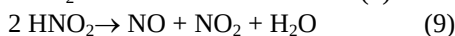
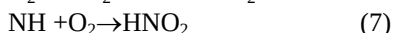
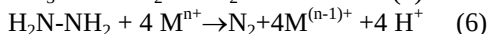
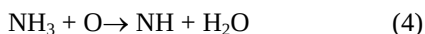
氮氣氧化過程中會有以下三個反應同時進行，



氮氣氧化除了生成 N_2 之外，亦可能進一步氧化為 NO 或 N_2O ，然而後二者為空氣污染的元兇，因此開發高穩定性且高選擇性之氮氣氧化觸媒為重要的課題。

為了提高選擇性以及降低氧化溫度，許多不同種類的材料被應用做為觸媒材料，其中一類為貴金屬觸媒，包括Pt, Pd, Ru, Ir [10]以及Ag[11]；另一類為過度金屬及其金屬氧化物，如 MnO_2 , Co_3O_4 , Fe_2O_3 , CuO , MoO_3 , V_2O_5 。

氮氣氧化觸媒之反應機構主要可以分成兩大類，一為直接路徑，根據Zawadzki於1950年Pt催化氮氣分解的imides反應機構中，提出當氮氣與觸媒表面反應時會生成imide的結構，此種hydrazinium-type intermediate進而生成 NO 及 NO_2 ， O 與快速分解之 NH 反應生成中間產物，又與 O 或 NH_3 反應，由於過程中有許多步驟之中間步驟，因此其產物有 NO , NO_2 , N_2O 及 N_2 等，其量決定於觸媒表面之 O 如(4-6)所示[12]。



另一個路徑則由Ramis等人，藉由FT-IR探討過渡金屬及金屬氧化物進行氮氣分解反應，提出了i-SCR(in-situ, 或internal selective catalytic reduction) 的反應機構，當氮氣進行氧化時，同時 NO 與氮氣進行(10)反應，當(4-6)之反應增加時，(10)之SCR反應則較為被抑制，因此有許多酸性或金屬氧化物觸媒，原先在其他反應中為SCR觸媒，卻對氮氣氧化生成氮氣有極高選擇性，因此於不同的反應環境及不同的觸媒種類，將進行不同的催化路徑[13]。若能了解觸媒之反應機構則可適時之調整其反應條件，進而提升其反應效率。

近年來為了結合兩種不同類型觸媒之優點，藉此可以增加反應活性同時可以增加 N_2 之選擇性，如沉積Pt, Pd, Rh於Fe-exchanged zeolite擔體之觸媒[14]以活性碳為擔體之銅基觸媒，此類的觸媒於氮氣觸媒選擇性氧化反應中可使95—97%氮氣轉化[15]；Lu等人亦發現 CuAl_2O_4 較 CuO 對氮氣催化效果為佳[11]，本研究亦選用氧化鋁為擔體之銅基觸媒進行高濃度氮氣氧化分解之應用，且具有高選擇性觸媒之應用。

由於超臨界流體其性質介於液體及氣體間，且同時具有零表面張力之特性，對於在多孔性材料中沉積物質有極高之優勢。大部分的文獻中水熱法主要以等容系統為主，壓力隨溫度變化而改變，本研究擬以等壓之系統，利用其物理化學性質在超臨界狀態下的變化，以超臨界水熱進行銅基觸媒之合成並進行催化測試。

由反應速率、生成物之溫度差、觸媒價格[11]，我們選擇合成銅基觸媒作為本次實驗所使用之觸媒，並希望以 Cu^0 為主；我們於先前的研究中成功使用超臨界水熱法合成銅基觸媒[16]來進行氮氣氧化反應，在實驗過程中以高 NH_3 進料濃度下於低溫進行氮氣氧化反應，銅基觸媒的轉化率可以達到要求，可是在選擇性方面較差[16]，基於成本與反應速率選擇銀做為雙金屬觸媒的第二種成分[11]，本研究中以銅基觸媒為基礎添加不同比例的銀來提高選擇性並尋找銅/銀的合適比例。

2.2 結果與討論

2.2.1 ICP 分析:

表 2:不同銅/銀莫耳比例合成觸媒其實際銅/銀比例

Mole 比例	Cu(wt%)	Ag(wt%)	Cu/Ag 重量比例
Ag	0	39.15	
Cu/Ag=70	21.3	0.36	60
Cu/Ag=5	19.5	4.1	4.7
Cu/Ag=2	24.8	18.2	1.4
Cu/Ag=1	17.7	30	0.6

2.2.2 銅/銀基觸媒之結構分析:

利用 X 光光電子能譜儀(XPS)分析結果討論觸媒上沉積物銅與銀粒子之化學結構並利用紅外線光譜儀(FT-IR)來對照。

由圖8(a). XPS之Cu圖譜可以得知合成之銅/銀基觸媒其銅粒子以Cu為主，幾乎沒有 CuO 存在。由圖8(b). XPS之Ag圖譜中得知，合成之銅/銀基觸媒若不添加銅其銀粒子以 Ag_2O 為主，添加銅之後其銀粒子以 AgO 為主。由圖9可以得知不同Cu/Ag其化學結構之變化

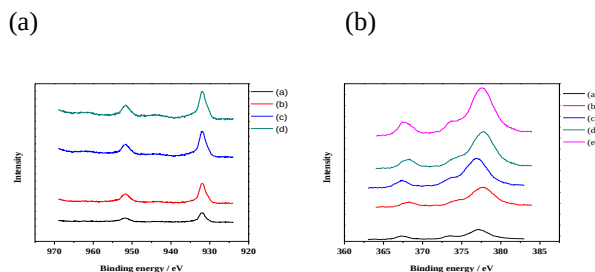


圖 8(a): 以 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒XPS之Cu 2p圖譜：(a) Cu/Ag=60 (b) Cu/Ag=4.7 (c) Cu/Ag=1.4 (d) Cu/Ag=0.6；(b): 以 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銀/銅基觸媒XPS之Ag 3d圖譜：(a) Ag (b) Cu/Ag=60 (c) Cu/Ag=4.7 (d) Cu/Ag=1.4 (e) Cu/Ag=0.6

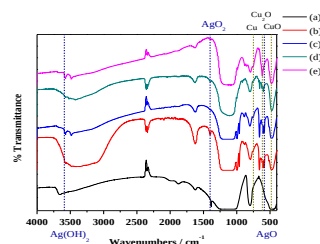


圖 9: 以 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銀/銅基觸媒在不同銅/銀比例下其 FT-IR 圖譜：(a) Ag (b)

Cu/Ag=60 (c) Cu/Ag=4.7 (d) Cu/Ag=1.4 (e) Cu/Ag=0.6

2.2.3 銅/銀基觸媒之催化能力分析:

氮氣與氧氣的比例、氣體流速也會影響其反應結果，改變不同的氣體流速藉以尋求轉化率較佳的操作條件[16]，本研究所得最佳之氮氣與氧氣的比例為1:5，當氧氣比例提升時，氧化反應之選擇性變差，若氧氣比例較低時，轉化率差。

由圖10.可以得知Cu/Ag=60,其氮氣氧化之轉化率較佳，Cu/Ag之值越高其轉化率越高；先前本研究團隊所合成之銅基觸媒，雖然於最佳反應條件下可100%分解66.7%高濃度氮氣，但仍有約12 ppm之NO_x生成，為了解決此問題，以Cu/Ag雙金屬觸媒進行氧化分解66.7%之氮氣，由圖11.可以得知不管何種銅/銀比例，幾乎無NO_x的生成，其反應之選擇性趨近100%。由圖12. 可以得知溼度對轉化率之影響，由圖13.可以得知NH₃=66.7%、O₂/NH₃=5、氣體流速為234L/hr的操作條件下加熱至225℃進行測試，觸媒有長時間的穩定性，若以上述之最佳反應條件可得60小時以上之100%轉化率。表3為使用不同銅/銀比例之觸媒於不同動力學公式所得之動力學參數，使用Power-Rate law其n值範圍過大不能很好模擬；使用Mars-Van Krevelen model較Power-Rate law佳。

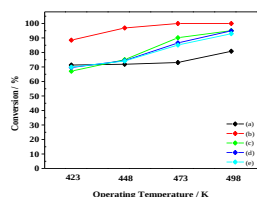


圖 10: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體以超臨界水熱合成之銀/銅基觸媒在不同銅/銀比例下對轉化率之影響；操作條件 O₂/NH₃=5 : (a) Ag (b) Cu/Ag=60 (c) Cu/Ag=4.7 (d) Cu/Ag=1.4 (e) Cu/Ag=0.6

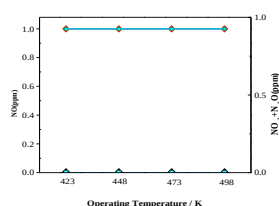


圖 11: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體以超臨界水熱合成之銀/銅基觸媒在不同銅/銀比例下其選擇性之比較；操作條件 O₂/NH₃=5 : ◆:NO □: NO₂+N₂O ; black line: Ag ; red line: Cu/Ag=60 ; blue line: Cu/Ag=4.7 ; dark cyan line: Cu/Ag=1.4 ; magenta line: Cu/Ag=0.6

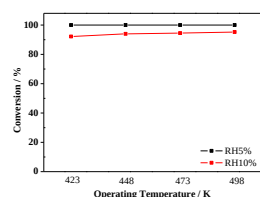


圖 12: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒

(Cu/Ag = 60)濕度對轉化率之影響；操作條件O₂/NH₃ =5，225 °C

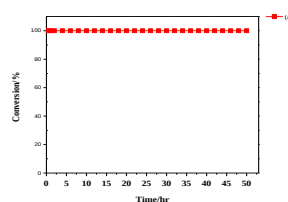


圖 13: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒 (Cu/Ag = 60)在長時間下對轉化率之影響

表 3: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體合成之銅/銀基觸媒在不同銅/銀比例下之活化能及碰撞因子

Power-Rate law: $r = k[C]^n$					
$K = A \cdot e^{-E_a/RT}$					
	Ag	Cu/Ag=60	Cu/Ag=4.7	Cu/Ag=1.4	Cu/Ag=0.6
E_a (KJ/mol)	29.10	9.60	15.91	21.55	24.92
Mars-Van Krevelen model: $1/r_1 = \alpha/(k_1 C_{O_2}) + 1/(k_2 C_1)$					
$K = A \cdot e^{-E_a/RT}$					
	Ag	Cu/Ag=60	Cu/Ag=4.7	Cu/Ag=1.4	Cu/Ag=0.6
$k_1 : E_a$ (KJ/mol)	2.71	2.70	8.24	0.96	5.99
$k_{O_2} : E_a$ (KJ/mol)	1.22	6.42	13.96	24.83	20.60

2.2.4 銅/銀基觸媒再生測試:

經由FT-IR結果分析顯示，造成觸媒失活之最主要原因為水氣之強烈吸附，因此本研究分別利用鍛燒及二氧化碳處理的方式進行觸媒之再生，由圖14-15之結果顯示，以超臨界二氧化碳處理再生後之觸媒，其再生效果較佳且於175℃低溫反應下亦可達高轉化率及高選擇性，故可有效解決經濟問題，具有潛力應用於實廠。

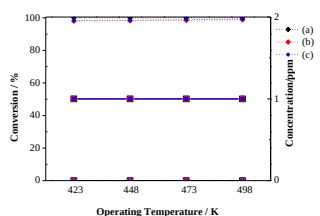


圖 14: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒 (Cu/Ag=60)使用不同鍛燒溫度再生對轉化率與選擇性之影響；操作條件 O₂/NH₃ =5 : (a)未使用過之觸媒 (b)使用過後經再生之觸媒(鍛燒 500°C、1hr) (c)使用過後經再生之觸媒(鍛燒 500°C、2hr)；菱形:轉化率，實心方塊: NO Concentration，空心方塊: N₂O+NO₂ Concentration

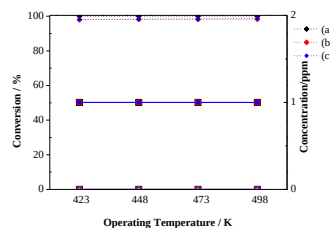


圖 15: 以 γ -Al₂O₃ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒 (Cu/Ag=60)使用不同條件再生對轉化率與選擇性之影響；操作條件O₂/NH₃ =5 : (a)未使用過之觸媒 (b)使用過後經再生之觸媒(超臨界CO₂、80°C、1hr) (c)使用過後經再生之觸媒(超臨界CO₂、110°C、1hr)；菱形:轉化率，實心

方塊:NO Concentration，空心方塊： $\text{N}_2\text{O}+\text{NO}_2$ Concentration

2.2.5 觸媒床放大測試:

將使用之觸媒床放大為 2" (如圖 16.) 以利將本觸媒應用於實廠上，為了應用於實廠上，並解決可能有的壓降問題，本研究利用 0.5 mm 氧化鋁顆粒為擔體，若不經表面處理，由於銅於氧化鋁表面附著性差，其轉化率低，故放大實驗均使用經表面處理之 0.5 mm 氧化鋁為擔體。圖 17 為使用銅/銀基觸媒於不同溫度下其轉化率與選擇性之變化，圖 18 為使用銅/銀基觸媒於不同流速下其轉化率與選擇性之變化，圖 19 可以得知 $\text{NH}_3=66.7\%$ 、 $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$ 、氣體流速為 1029.6L/ hr 的操作條件下加熱至 225°C 進行測試，觸媒有長時間的穩定性，圖 20 為使用銅/銀基觸媒於反應時改變不同進氣氣體下其轉化率與選擇性之變化，圖 21 為使用銅/銀基觸媒於反應時添加不同比例 CO_2 下其轉化率與選擇性之變化，由圖 22-23 之結果顯示，以超臨界二氧化碳處理再生後之觸媒，其再生效果較佳且於 175°C 低溫反應下亦可達高轉化率及高選擇性。



圖 16: 觸媒床放大後 NH_3 觸媒氧化反應裝置圖

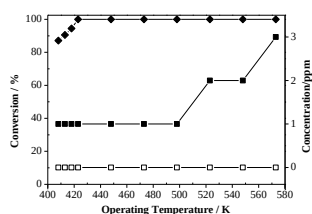


圖 17: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)於不同溫度對轉化率與選擇性之影響；操作條件 $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$ ；菱形:轉化率，實心方塊:NO Concentration，空心方塊： $\text{N}_2\text{O}+\text{NO}_2$ Concentration

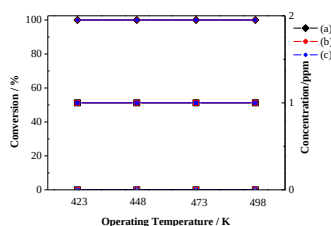


圖 18: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)於不同流速對轉化率與選擇性之影響

響;操作條件 $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$;(a)流速 702L/ hr,(b) 流速 936L/ hr,(c) 流速 1029.6L/ hr；菱形:轉化率，實心方塊:NO Concentration，空心方塊： $\text{N}_2\text{O}+\text{NO}_2$ Concentration

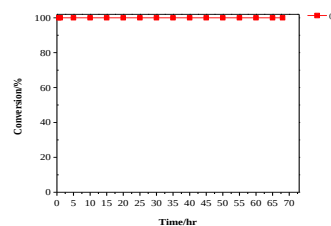


圖 19: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)在長時間下對轉化率之影響

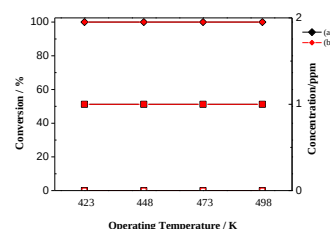


圖 20: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)於不同反應氣體對轉化率與選擇性之影響；操作條件(a) $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$ (b) $\text{Air}/\text{NH}_3=25$

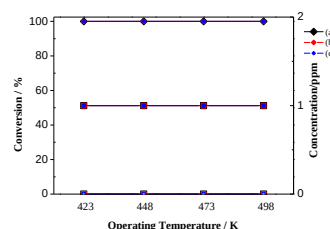


圖 21: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)於反應時添加不同比例 CO_2 對轉化率與選擇性之影響；操作條件 $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$ ；(a) $\text{CO}_2=0\%$ ，(b) $\text{CO}_2=0.04\%$ ，(c) $\text{CO}_2=1\%$

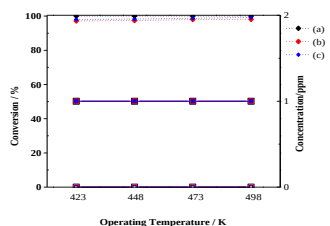


圖 22: 以 0.5mm $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 為擔體以超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)使用不同鍛燒溫度再生對轉化率與選擇性之影響；操作條件 $\text{O}_2/\text{NH}_3=5$:(a)未使用過之觸媒 (b)使用過後經再生之觸媒(鍛燒 500°C、1hr) (c)使用過後經再生之觸媒(鍛燒 500°C、2hr)；菱形:轉化率，實心方塊:NO Concentration，空心方塊： $\text{N}_2\text{O}+\text{NO}_2$ Concentration

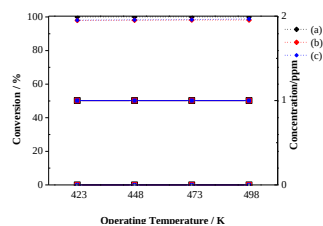


圖24: 以0.5mm γ -Al₂O₃為擔體超臨界水熱合成之銅/銀基觸媒(Cu/Ag=60)使用不同條件再生對轉化率與選擇性之影響；操作條件O₂/NH₃=5:(a)未使用過之觸媒 (b)使用過後經再生之觸媒(超臨界CO₂、80℃、1hr) (c)使用過後經再生之觸媒(超臨界CO₂、110℃、1hr)；菱形:轉化率，實心方塊:NO Concentration，空心方塊：N₂O+NO₂ Concentration

表 4: 參考文獻裡使用之觸媒、NH₃ 進料濃度、轉化率100%溫度、選擇性之比較

catalyst	Temp. (K)	NH ₃ (ppm)	N ₂ selectivity (%)	Ref
Pt-Pd-Rh	623	800	70	17
Ce ₂ O ₃ -Cu-Mn/TiO ₂	473	500	96	18
Cu/TiO ₂ , Cu/Al ₂ O ₃	523	400	>90	19
Fe/ZSM-5	773	1000	>97	20
Pt/CuO/Al ₂ O ₃	483	700	90	21
Cu/Al ₂ O ₃	423	6.67×10 ⁵	99.8	22
Cu/Ag/Al ₂ O ₃	448	6.67×10 ⁵	>99.9	This work

III. 結論

年度原子能科技學術研討暨成果發表會精簡報告範例格式，年度原子能科技學術研討暨年度原子能科技學術研討暨成果發表會精簡報告範例格式，年度原子能科技學術研討暨報告範例格式。

上述之研究結果於第一部份之研究，本研究成功地採用變壓吸附法(pressure swing adsorption, PSA)作為放射線廢氣中 Kr 氣的純化，利用高壓吸附及低壓脫附再生的循環操作原理，比較起傳統方式更能有效的減少廢氣處理系統空間及成本。但是 PSA 為一個多變數的複雜分離系統，如何有效地找出最佳分離操作條件是重要的，利用離線式基因演算法(Genetic Algorithms)計算最佳化的搜尋方法。本研究利用純化分離技術手段封存最高純度的放射性 Kr 氣及 Xe 氣，同時縮減管柱大小使吸附劑能不斷的連續進行純化及再生利用。

第二部分則成功地利用超臨界流體合成銅/銀雙金屬氧化分解觸媒之高濃度氨氣分解，並且可以於低溫 448K 可 100%分解 66.7%氨氣，且具有>99.9%的選擇性，環境中的水氣當相對濕度>10%對反應效率有影響，而二氧化碳則無顯著效應，對於 FTIR 分析材料得知其失活的原因主要為水氣的強吸附，因此利用鍛燒的方式可有效再生觸媒，同時本研究亦成功的建立式量產系統，無論在量及效率上皆可以符合核電廠之需求，具有發展的潛力，將可有效解決目前的問題。

參考文獻

[1] J. Chen, S. J. Hsu and T. Y. Wei, Optimization design for removal of radioactive Kr from Xe using pressure

swing adsorption, 91(4),649-659(2012)

[2] M. Steinberg and B. Manowitz, Recovery of Fission Product Noble Gases, Industrial and Engineering Chemistry, 51, 47-50 (1959).

[3] E. Hutter, J. Amend, R. V. Ammon, W. Bumiller and G. Neffe, Final Results and Consequences of the Development of a Cryogenic Krypton Separation System, Proc. 19th. DOE/NRC Nuclear Air Cleaning Conference, p.549-559 (1986).

[4] S. A. Stern and S. C. Wang, Permeation Cascades for the Separation of Krypton and Xenon from Nuclear Reactor Atmospheres, AIChE Journal, 26(6), 891-901 (1980).

[5] K. Munakata, S. Yamatsuki, K. Tanaka and T. Fukumatsu, Screening Test of Adsorbents for Recovery of Krypton, Journal of Nuclear Science and Technology, 37(1), 84-89 (2000).

[6] K. Munakata, T. Fukumatsu, S. Yamatsuki, K. Tanaka and M. Nishikawa, Adsorption Equilibria of Krypton, Xenon, Nitrogen and Their Mixtures on Molecular Sieve 5A and Activated Charcoal, Journal of Nuclear Science and Technology, 36(9), 818-829 (1999).

[7] K. Munakata, K. Tanaka, S. Yamatsuki, T. Fukumatsu, S. Kanjo, Y. Yokoyama and M. Nishikawa, Dynamics of Adsorption of Kr and Xe on MS5A and Activated Charcoal, Journal of chemical engineering of Japan, 34(7), 853-861 (2001).

[8] M. B. Kim, J. G. Jee, Y. S. Bae and C. H. Lee, Parametric Study of Pressure Swing Adsorption Process to Purify Oxygen Using Carbon Molecular Sieve, Industrial and Engineering Chemistry, 44(18), 7208-7217 (2005).

[9] M. Mofarahi, Z. Moghadaszadeh and J. Towfighi, Study of a Four-Bed Pressure Swing Adsorption for Oxygen Separation from Air, Proceedings of the World Academy of Science and Technology, 42, 716-720 (2008).

[10] N.I. Il'chenko, Catalytic-Oxidation of Ammonia .1. Reaction-Kinetics and Mechanism, Russ. Chem. Rev., 45, 1119-1134(1976)

[11] L. Gang, B. G. Anderson, J. van Grondelle, R. A. van Santen, W.J.H. van Gennip, J. W. Niemantsverdriet, P. J. Kooyman, A. Knoester and H. H. Brongersma, Alumina-Supported Cu-Ag Catalysts for Ammonia Oxidation to Nitrogen at Low Temperature, Journal of Catalysis, 206(1), 60-70(2002)

[12] J.Zawadzki, The mechanism of ammonia oxidation and certain analogous reactions, Discuss. Faraday Soc. 8, 140-152(1950).

[13] G. Ramis, L. Yi, G. Busca, M. Turco, E. Kotur and R. J. Willey, Adsorption, activation and oxidation of ammonia over SCR catalysts, Journal of Catalysis, 157(2), 523-535(1995).

[14] Long, R.Q.; Yang, R.T.; Noble metal (Pt, Rh, Pd) promoted Fe-ZSM-5 for selective catalytic oxidation of ammonia to N₂ at low temperatures, Catal. Lett, 78, 353(2002)

[15] Huang, C. M., Activity of Cu-activated carbon fiber catalyst in wet oxidation of ammonia solution, J. Hazard. Mater, 166, 235(2009)

[16] 王詩涵*, 杜佳簇, 李彥勳, 水熱法製備銅基觸媒於低溫催化氨氣氧化之應用, 第 30 屆台灣觸媒及反應工程研討會,國立東華大學,民國 101 年 6 月

- [17] C.M. Hung, Cordierite-supported Pt–Pd–Rh ternary composite for selective catalytic oxidation of ammonia, Powder Technology, 200,78-83(2010)
- [18] K. Duan, X. Tang, H. Yi, P. Ning, L. Wang, Rare earth oxide modified Cu-Mn compounds supported on TiO₂ catalysts for low temperature selective catalytic oxidation of ammonia and in lean oxygen, Journal of Rare Earths, 28, 338-342(2010)
- [19] S.He, C.Zhang, M. Yang, Y. Zhang, W.Xu, N. Cao, H. He, Selective catalytic oxidation of ammonia from MAP decomposition, Separation and Purification Technology, 58, 173-178(2007)
- [20] G. Qi, R. T. Yang, Selective catalytic oxidation (SCO) of ammonia to nitrogen over Fe/ZSM-5 catalysts, Applied Catalysis A: General, 287,25-33(2005)
- [21] G. Olofsson, L. R. Wallenberg, A. Andersson, Selective catalytic oxidation of ammonia to nitrogen at low temperature on Pt/CuO/Al₂O₃, Journal of Catalysis, 230,1-13(2005)
- [22] 王詩涵*, 杜佳簇, 李彥勳, 水熱法合成銅基觸媒於催化高濃度氨氣分解之應用, 第十一屆超臨界流體技術應用與發展研討會暨第二屆海峽兩岸超臨界流體技術研討會, 2012.

放射性廢液處理系統技術研究

The development of treatment technologies for radioactive liquid wastes

計畫編號：NSC 102-2623-E-214-003-NU

計畫類別：☐個別型計畫 ☒整合型計畫

計畫主持人：梁明在

e-mail：mtliang@isu.edu.tw

執行單位：義守大學化學工程學系、清華大學生醫工程與環境科學系

摘要

本計畫為總計畫的第 2 子計畫，主要負責放射性廢液處理技術開發。本計畫預計開發連續式吸附技術以及逆滲透技術進行低放射性廢液的處理。在連續式吸附技術上將由義守大學主導，本計畫已成功應用 SMB 的工程技術於活性碳吸附床，未來將應用開發於高鹽份廢水的處理，研究的主要工作在於離子交換樹脂或是萃淋樹脂的篩選，以及連續式操作的技術開發。不但可提高洗衣廢水的活性碳處理效能，未來更可針對緊急事故的高鹽分水提供另一種高效率的處理技術。在逆滲透(Reverse Osmosis)膜技術開發上由清華大學主導，目前已經建立了研發平台，以及觀察薄膜堵塞的分析方法。未來的主要工作包括：(1) 薄膜材質、操作影響因數與去除效能之選評、薄膜堵塞機制之探討；(2) 開發並建立高回收率、低濃縮廢液產生的設計方法，同時評估高濃度濃縮液對薄膜堵塞產生之影響與清洗方法建立；(3) 廢液處理程序整合與最佳化組合評估。預期可建立高污染放射廢液、符合嚴格排放活度要求與零排放目標的最佳處理流程組合。本計畫的開發將可有效協助確保核電廠的日常運轉安全，早日達成「廢液」與「活度」零排放的目標。另外，針對緊急事故所產生的高鹽份廢水，也能提供一系列的處理技術，提供國人更安全的生活保障。

關鍵詞：連續式吸附、逆滲透、放射性廢液

Abstract

This is the 2nd project of the project entitled as The Development of Treatment Technologies for Low Level Radioactive Wastes. In this project, the development of treatment technologies for radioactive liquid wastes is concerned. The objectives include development of the continuous adsorption technology and the reverse osmosis.

I-Shou University is charged to develop the continuous adsorption technology. This technology has been applied to the activated carbon in the first year, and it will be further applied to the treatment of wasted water with high salt content. The study will focus on the screening of ion-exchanger resin and extruding resin, and the operating method of the device. It can increase the effectiveness of activated carbon for the wasted water from laundry, also it can provide high efficiency alternative for the wasted water with high salt content due to emergency event.

Tsing-Hua University is assigned to develop the reverse osmosis technology. So far, a research platform was built-up and a method for observing the plugging of the membrane was developed. In the future, this study will focus on (1) evaluation and selection of the film material, operation

factors and removal efficiency, the cleaning of the plugged film and exploring pre-treatment technology of control; (2) developing the RO process design capacity for high recovery rate and less concentrate produced. Evaluation of membrane fouling mechanism and best cleaning methods; (3) waste processing program integration and optimization's evaluation. It is expected to establish the best process which meet the stringent effluent standard requirement and the goal of "liquid zero discharge".

The development by this project is expected to help the confirmation of daily safety for nuclear power plants, and to fulfill the promise of zero discharge of wasted liquid and radioactivity. In addition, this project will be able to provide serial technologies for the treatment of wasted water derived from emergency event. It promises more safety with the use of nuclear power.

Keywords: Continuous adsorption, reverse osmosis, radioactive wasted liquid

I. 前言

世界上正在運轉的核電廠已超過 400 座，占世界總發電量的 20%，但核裂變在產生巨大能量的同時，也不可避免的產生放射性廢氣、廢液。由於放射性物質會污染環境，因此對放射性廢物必須進行有效地的處理和處置，這其中對於放射性廢水的處理成為放射性廢物處理中一個重要組成部分，各國為此開展了大量廢水處理技術研究。放射性核素用任何處理方法都不能改變其固有的放射性衰變特性，因此其處理一般遵循兩個基本原則：(1) 將放射性廢水排入水體，通過稀釋和擴散達到無害水準。主要適用於極低水準的放射性廢水的處理。(2) 將放射性廢水濃縮後，將其濃縮產物與人類的生活環境長期隔離，任其自然衰減。對高、中、低水準放射性廢水均適用[1]。

目前國內放射性廢料約 90~95% 來自核能電廠，其餘 5~10% 則來自研究機構及醫、農、工等各業界。核能電廠所需核燃料之開採、製備、使用及用後處理等過程中均會產生廢料，由於國內核燃料採購自美國，且並未將用過核燃料送往再處理，故除了用過之核燃料屬高放射性廢料外，其餘所有廢料均是由電廠運轉及設備拆除過程中所產生之低放射性廢料，包括電廠操作、維護及除汙所產生之廢水、交換後之廢樹脂、受汙衣物、工具及廢棄零組件、設備等[2-5]。未來核電廠的除役，也將或多或少產生不少種類不同的廢液與廢棄物，這些除役所產生的廢液也應及早規劃因應。

核電廠經由核燃料的循環過程中，產生來自不同類型的放射性廢棄物。低放射性廢棄物相對與核分裂產物

和超鈾廢棄物是比較低，並且在放射性廢棄物很高的比例[6]。隨著環保意識掘起，處理液體廢棄物的技術也跟著要求不斷提高，以利於得到更好的水質。因此，有幾中方法已經廣範被應用來減少大量的液體廢棄物，如萃取、沉澱、蒸發、離子交換和薄膜分離[7]。然而，在這些處理過程中存在著不同的限制。溶劑萃取主要是降解的問題，這可能會產生二次性廢棄物。沉澱及萃取的方法也有相同限制，使得淨化效果降低。蒸發法具有較高的去污因子，但是相對操作成本較高及一些放射性元素會導致管子被腐蝕。離子交換有幾個可避免的問題，像是選擇性、再生及大量的樹脂的處理[8]。由於沒有單一程序可以處理不同物化特性的液體廢棄物，而薄膜過濾是一種可以有效處理低放射性廢棄物的方法。隨著薄膜技術的引進，其它程序也可能會延長薄膜壽命，對於處理低放射性廢棄物可能會更有效。

薄膜過濾是廣範應用在海水淡化、廢水回收及處理核電廠所產生的放射性液體廢棄物[9-14]。這是相對經濟化、方便操作以及薄膜技術具有良好的化學和輻射穩定性，提供固定的DF的進水量。根據孔径大小和操作壓力，薄膜技術可以分為微濾模(MF)、超濾膜(UF)、奈濾膜(NF)及逆滲透薄膜(RO)。MF 和 UF，其孔径大小在 0.01 至 1 μ m 之間，可以經由通過篩分機制來移除廢水中的次微米級的顆粒及膠體，而 NF 和 RO 是用來移除大小為 0.01 μ m 以下的溶解性鹽類和離子。[15-20]另外，膠體溶解性鹽類(像是 Cr、Mn、Fe 及 SiO₂)在低放射性廢液中，像是 Cs、Na、Zn 和 Sb，主要來自離子物質[21]。因此，以達到物種更好的移除這些離子效果，NF 和 RO 是選擇作為主要薄膜測試的研究。

薄膜經由長時間操作下，堵塞是一個嚴重的問題，造成流通量下降或增加穿透膜的壓力。有幾種技術已經被應用在觀測薄膜表面堵塞的情形，包括 SEM-EDS、AFM、超音波系統及顯微鏡，但是以上技術仍不足以了解在膜表面上元素分佈及定量[22-28]。雷射剝蝕感應耦合電漿質譜儀(LA-ICP-MS)是一個表面強而有力的工具及單一分析技術，可應用於鑑定複雜樣品中的元素污染及空間分佈。我們使用 LA-ICP-MS 用來研究薄膜堵塞後的形態、元素含量及薄膜沉澱的特徵，以得到更多有效的證明，並幫助我們決定方法用於薄膜和清洗。

II. 主要內容

2.1 連續層析技術

由於所購置的 ICP 對於 Na 與 Cs 的偵測極限低，並無法進行 Na 與 Cs 的分析，所以改用離線測試方式進行 Na 與 Cs 的分析，本計畫選用 Na 與 Cs 的冷實驗分離作為本研究的模式，選用多種市售的離子交換樹脂(DIAION UBKN1U、DIAION SP825L、DIAION SP20SS)及萃淋樹脂(P507)進行 Na 與 Cs 離子分離效果的調查，並以源子吸收光譜進行 Na 與 Cs 離子的分析。

2.1.1 鈉鉍金屬吸附行為之研究

為建立鈉鉍金屬在離子交換樹脂中的吸附及脫附模式，本計畫採用單支管柱進行鈉與鉍金屬的吸附及脫附實驗。本計畫針對不同濃度的金屬離子吸附、不同 pH 值的酸進行脫附等為實驗操作條件。再經由模擬計算不同

濃度下的鈉與鉍之吸附參數，以應用於後續研究。鈉與鉍金屬的吸附及脫附實驗步驟如下：

- 以 2N 鹽酸進行樹脂再生，使殘留於樹脂上的離子脫附，並測定殘餘液中，鈉及鉍離子含量；
- 以去離子水清洗管柱，以去除管柱內的鹽酸，並測定殘餘液中，鈉及鉍離子含量；
- 將不同濃度的金屬溶液泵入管柱中進行吸附實驗，並測定殘餘液中，鈉及鉍離子含量；
- 以液泵將去離子水泵入管柱中，以去除未吸附於樹脂上的鈉離子，並測定殘餘液中，鈉及鉍離子含量；
- 以液泵將 0.5N 鹽酸泵入管柱中，使鈉離子進行脫附，並測定殘餘液中，鈉及鉍離子含量；

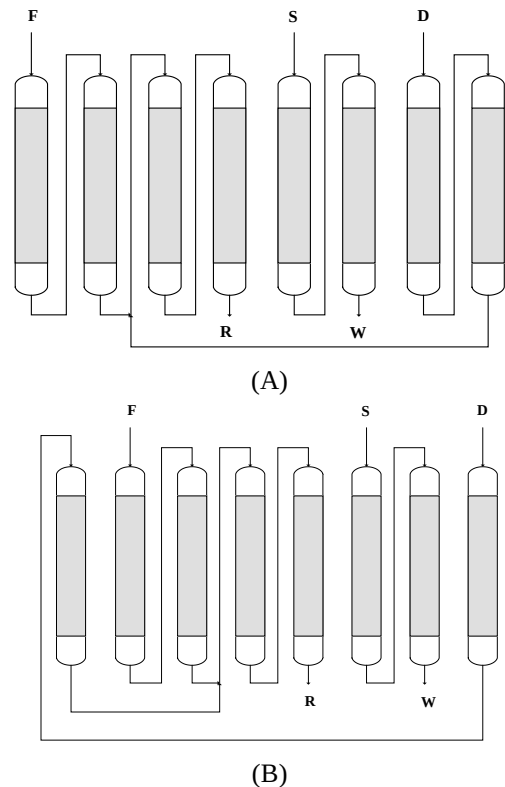


圖 1、SMB 出入口及管柱配置圖

2.1.2 連續式分離試驗

本研究系將選用之樹脂填充於八支管柱當中，各出入口及填充管柱配置如圖 1(A)所示。八支管柱可區分為四個區段，每一區段包含有兩支管柱。第一及第二管柱組成第一區段，稱為吸附段(adsorption)；第三及第四管柱組成第二區段，稱為分餾段(regeneration)；第五及第六管柱組成第三區段，稱為再生段(fractionation)；第七及第八管柱組成第四區段，稱為脫附段(desorption)；試驗一開始係將模擬受污海水、2 N 鹽酸水溶液及的 0.5 N 鹽酸水溶液分別泵入第一管柱、第五管柱及第七管柱中，並設定各出入口的切換時間。模擬受污海水進入第一管柱，並於流經第二管柱時，與第八管柱的回流液進行混合，再流至第三管柱中。在第一至第四管柱中，鈉離子與鉍離子有選擇性地被吸附於管柱中，而作為強吸附物質的鈉離子，則大量由第四管柱流出；強酸水溶液進入第五管柱中，其目的在於再生管柱中的離子交換樹脂，使大量的鉍離子由第六管柱流出；弱

酸溶液進入第七支管柱中，則是為了有選擇性地脫附弱吸附物質，隨後即回流至第三管柱，如圖 1(A) 所示位置。當試驗時間達到切換時間後，各出入口將切換至下一填充管柱，如圖 1(B) 所示位置。當試驗時間達到下一個切換時間後，各出入口將切換至下一填充管柱，以此類推。本實施例所述連續式分離裝置，其各出入口係於每 36 分鐘切換一次，稱為一個階段，切換八個階段稱為一個循環。

2.2 逆滲透處理技術

核廠產生之廢液中之含活度核種，在水中多以陽離子、陰離子、原子或與水中酸鹼離子、有機物形成其氧化物或複合物之微細膠體顆粒。其中如 Cr-51、Mn-54、Co-60、Co-58、Fe-59 和 Ag-110 均是以微米級(sub-micron)或膠體(colloidal)的微小顆粒型態存在，其顆粒大小約為 0.05~0.5 μm 。一部份核種如 C、Cs、Na、Pu、Rb、Sb、Sr 及 U 是以離子(ion)與原子(atom)型態存在，這些物質形成所謂溶解性固體(dissolving solid)或鹽類。若以傳統 5 μm 濾心或活性炭只能過濾一部份，無法完全有效過濾，必須再使用離子交換樹脂吸附，若單獨使用樹脂吸附，廢液中細微顆粒不純物與有機物包覆，將造成堵塞或降低樹脂交換能力，使活性炭、樹脂廢消耗量大。薄膜具有物料無相變、耗能低、設備簡單、操作方便、適應性強和低操作成本等優點，以逆滲透薄膜作為核心，可有效濾除微米級或膠體顆粒型態之核種，同時有效去除有機物、奈米級微粒、原子與離子型態之溶解性固體或鹽類，因此薄膜分離法在放射性廢水處理中有更為廣泛的應用前景。

本分項工作將規劃建置一個薄膜試驗研發平台，以逆滲透膜技術為核心進行研究為達成主要目標，本分項工作利用實驗室平板膜試驗設備，如圖 3 至圖 5 所示，以人工調配廢水，對不同薄膜種類與材質進行測試，選擇出回收率高且對污染物去除可達預期效率之薄膜種類與材質，並建立實驗室薄膜基礎性試驗基本資料。



圖 3、薄膜過濾系統

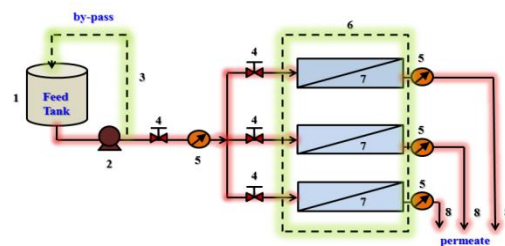


圖 4、過濾系統的原理圖：

另外，針對薄膜表面堵塞之探討，本分項工作嘗試利用雷射剝蝕感應耦合電漿質譜儀技術(Laser Ablation Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, LA-ICP-MS)作薄膜無機金屬積垢之分析，藉由雷射剝蝕系統將薄膜樣品汽化再導入質譜儀進行元素分析，然後再利用 MATLAB 軟體對雷射連續線掃描之數據作處理，進一步得到薄膜之二維平面影像，藉此了解積垢在表面的分布情況與多寡，以此評估後續清洗對策。

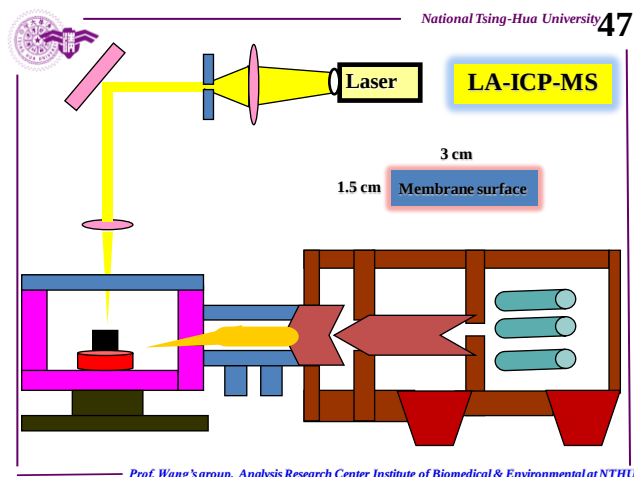


圖 5、LA-ICP-MS 示意圖

III. 結果與討論

3.1 連續式層析技術

3.1.1 樹脂篩選

本計畫選購市售離子交換樹脂(DIAION UBKN1U、DIAION SP825L、DIAION SP20SS)及萃淋樹脂(P507)，調查不同樹脂對於鈉離子吸附及脫附行為的影響。實驗結果如圖 6 所示。結果顯示，圖 6A 為鈉離子於不同樹脂中的吸附曲線，橫軸為殘於液體積與管柱體積的比值(V/V_B)，縱軸為殘餘液中鈉離子濃度與初始濃度(C/C_0)。圖 6B 為鈉離子於不同樹脂中的脫附曲線，由圖可知，鈉離子一旦吸附於 DIAION SP825L、DIAION SP20SS 及 P507 樹脂之後，則難以再進行脫附，而 DIAION UBKN1U 對鈉離子的吸附及脫附效果較佳，故本計畫採用 DIAION UBKN1U 樹脂進行後續研究。

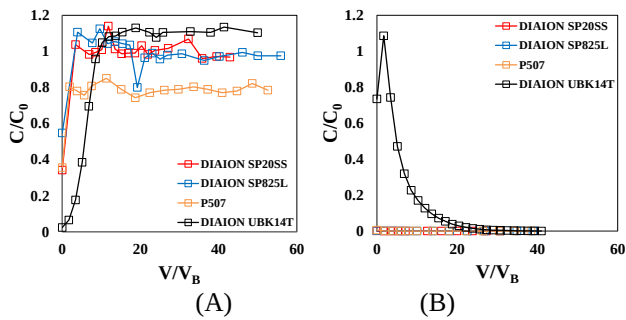


圖 6、不同樹脂對於鈉離子吸附及脫附曲線

3.1.2 建立金屬離子吸附及脫附之操作條件

本計畫針對鈉離子與鉍離子於 DIAION UBK14T 樹脂中之最佳吸附條件進行探討，隨後再針對淡水、海水中金屬離子於不同濃度下的吸附行為進行探討，最後再以不同 pH 值的鹽酸進行鈉離子與鉍離子之脫附行為探討。

3.1.3 鈉離子與鉍離子之吸附行為探討

本計畫改變鈉離子濃度為 5.9 g、7.9 g 及 10.7 g，以及改變鉍離子濃度為 6.0 g、6.8 g 及 34 g，調查鈉離子與鉍離子在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為，實驗結果如圖 7 所示，圖中的空心正方形為實驗數據點，曲線為模擬所得之突破曲線。結果顯示，當鈉離子與鉍離子的濃度增加時，DIAION UBK14T 樹脂對於鈉離子與鉍離子的吸附效果也隨之提升。此外，根據突破曲線模擬的結果，吾人可推算 UBK-14T 樹脂對於鈉離子與鉍離子的吸附量為 34.7 mol/g。

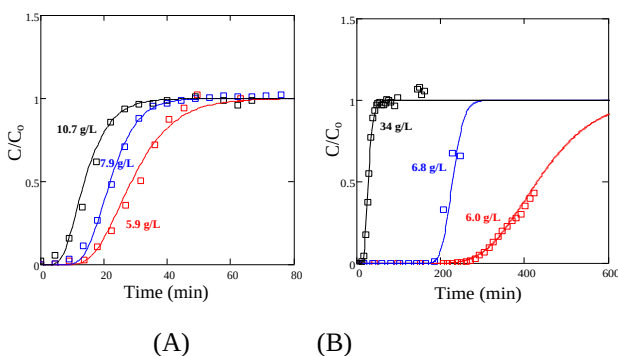


圖 7、不同濃度的鈉離子與鉍離子單獨在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為

3.1.4 海水中鈉離子與鉍離子之吸附行為探討

為模擬污染海水中鈉離子與鉍離子在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為，本計畫預先配製含有 10.7

g/L 鈉離子之模擬海水溶液，並分別添加不同濃度的氯化鉍，以模擬海水受污，其鉍離子的濃度為 0.68 g、2.0 g、3.4 g、6.0 g 及 34 g，用以調查模擬污染海水中鈉離子與鉍離子在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為，實驗結果如圖 8 所示，圖中空心正方形為實驗數據點，曲線為模擬所得之突破曲線。結果顯示，當鉍離子的濃度低於 3.4 g/L 時，鈉離子在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為為明顯變化。但是當鉍離子濃度高於 6.0 g/L 時，鈉離子的亨利常數 G 明顯降低，推測鈉離子與鉍離子產生了競爭吸附。

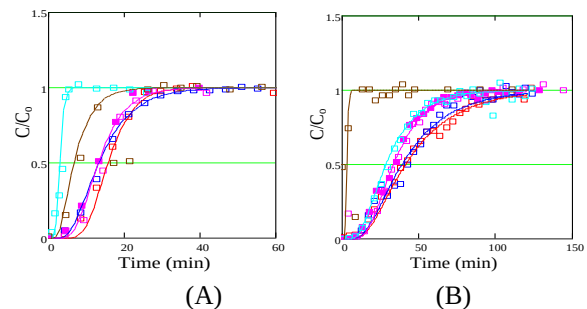


圖 8、模擬污染海水中鈉離子與鉍離子在 DIAION UBK14T 樹脂上的吸附行為

3.1.5 不同濃度鹽酸對於鈉離子與鉍離子之脫附行為的影響

本計畫進一步以不同濃度的鹽酸進行鈉離子與鉍離子的脫附試驗，調查不同濃度的鹽酸對於模擬污染海水中鈉離子與鉍離子脫附行為的影響。本計畫預先配製含有 10.7 g/L 鈉離子和 2.0 g/L 鉍離子的模擬污染海水溶液，再以不同濃度的鹽酸測試鈉與鉍的脫附行為，實驗結果如圖 9 所示，圖 9A 為鈉離子的脫附曲線，圖 9B 為鉍離子的脫附曲線。結果顯示，1.0 N 及 2.0 N 的鹽酸皆可有效使鈉離子與鉍離子完全脫附，但是 0.5N 的鹽酸僅能使鈉離子全脫附，而無法使鉍離子完全脫附。由以上結果可知，使用 0.5N 的鹽酸進行鈉離子與鉍離子的脫附時，將較易達到鈉離子與鉍離子的分離效果。

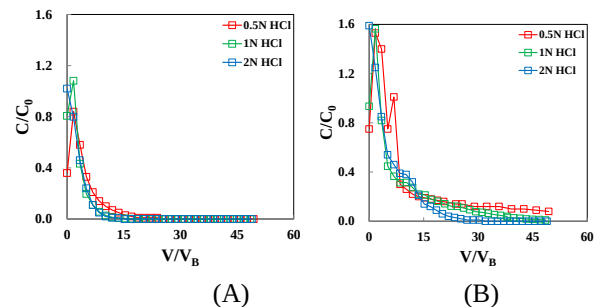


圖 9、不同濃度鹽酸對於鈉離子與鉍離子之脫附行為影響

3.1.6 連續式分離試驗結果

藉由鈉離子與鉍離子的吸附與脫附試驗，本計畫規劃如表 1 所示的試驗條件。本計畫將 DIAION UBK14T

樹脂填充於 4.8 cmID × 30 cm 的管柱中，並以計量泵將模擬受污海水、強酸溶液及弱酸溶液分別經由 F、S 及 D 入口泵入系統中，定時自 R 及 W 出口取樣後，以原子吸收光譜(AAS)分析鈉離子與鉍離子的含量，試驗結果如表 2 所示。結果顯示，R 出口收取的樣品(後稱 R 樣品)含有大量鈉離子，W 出口收取的樣品(後稱 W 樣品)含有大量鉍離子，顯示本計畫所規劃設計的 SMB 設備可有效分離海水中的鈉離子與鉍離子。

表 1、SMB 試驗之操作條件

	Feed (F)			Weak acid(D)		Strong acid (S)	
	Na (mg/L)	Cs (mg/L)	Flow rate (mL/min)	C _{HCl} (N)	Flow rate (mL/min)	C _{HCl} (N)	Flow rate (mL/min)
1	10700	2000	19.21	1.0	24.99	5.0	15.51
2	10700	2000	19.21	1.0	24.22	5.0	19.29
3	10700	2000	19.21	1.0	28.03	5.0	26.34

表 2、樣品中鈉離子與鉍離子含量

	Feed+ Weak acid (R)			Strong acid (W)		
	Na (mg/L)	Cs (mg/L)	Flow rate (mL/min)	Na (mg/L)	Cs (mg/L)	Flow rate (mL/min)
1	4039.13	2.08	44.20	231.46	1389.50	15.51
2	4680.25	0.01	43.43	503.43	2338.56	19.29
3	3309.70	0.56	47.24	231.46	1389.50	26.34

比較第 1 組及第 2 組試驗可知，增加強酸溶液的流速會導致 R 樣品中鉍離子的含量明顯減少，推測可能是高流速的強酸溶液可使鉍離子脫附較完全所致。本計畫進行幾次試驗後，發現使用較低濃度的強酸溶液(2N 及 3N)在約 20 mL/min 的流速下，仍然無法使鉍離子完全從樹脂上脫附。因此，本計畫進一步將強酸溶液的流速提高到 26.34 mL/min，R 樣品中的鉍離子應該會如預期地降低。然而，第 3 組實驗 R 樣品的鉍離子濃度卻提高至 0.56 mg/L。由表 19 可觀察到，第 3 組試驗弱酸溶液的流速由 24.99 增加至 28.03，推測可能是當弱酸溶液流速增加時，樹脂上的鉍離子會被脫附而導致 R 樣品被鉍離子污染。由以上結果可知，選擇性吸附及離子交換樹脂的再生對於鈉離子與鉍離子的分離影響甚大，因此精確地控制流速對於本技術而言是非常重要的。

3.2 逆滲透處理技術

3.2.1 單溶質系統的結垢影響

大量的研究已經證明薄膜技術是很適合用於處理廢水中污染物的方法。因此，本研究探討處理模擬廢水中同時含有有機物(螯合劑及界面活性劑)和金屬離子。我們首先探討 APDC (有機物)與不同金屬離子(無機物)在 RO 薄膜上阻塞影響。三種金屬離子 Co^{2+} 、 Sr^{2+} 及 Cs^{+} 的選擇分別代表過渡金屬、鹼土金屬和鹼性元素。阻塞的實驗是經由三通道高壓平板膜過濾系統進行過濾，金屬離子及 APDC 的濃度分別 10ppm 和 50ppm 於進料溶液中 ($\text{pH}=3$)。APDC 在本實驗中由於它具有很強的結合能

力，它可與金屬離子形成錯合物。因此，我們可以透過使用 LA-ICP-MS 檢測錯合物結構中金屬離子，可以有效追蹤有機阻塞物的研究。

為了防止金屬的氫氧化物和碳酸鹽的形成，進料溶液的 pH 值控制在 3。圖 10 分別顯示出 APDC-Co、APDC-Sr 和 APDC-Cs 通量的變化，可以發現 APDC-Co 會隨著時間的變化，其通量有明顯遞減。APDC 的存在會影響 Co^{2+} 、 Sr^{2+} 及 Cs^{+} 吸附於薄膜的嚴重程度。

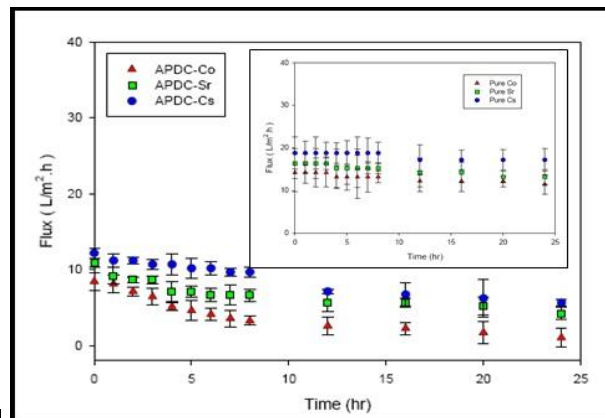


圖 10、錯合物與非錯合物的通量變化

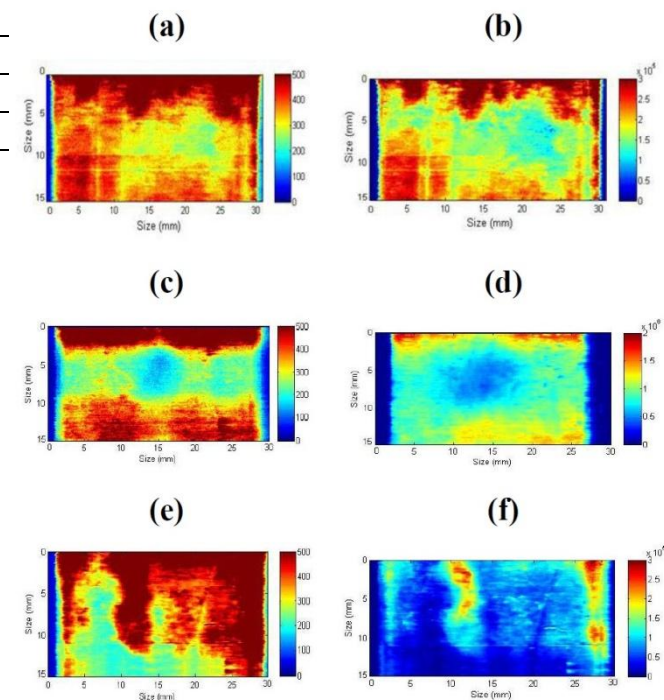


圖 11、薄膜影像的元素分佈。APDC-Co: (a) S (b) Co; APDC-Sr: (c) S (d) Sr; APDC-Cs: (e) S (f) Cs

根據以上結果可以得知反應中含 APDC 可以提高與金屬離子之間移除率，主要是由於結合力強容易形成穩定錯合物。為了進一步研究，進行了 LA-ICP-MS 分析薄膜的元素分佈的影像。圖 11 分別顯示 APDC-Co、APDC-Sr 和 APDC-Cs 的 S 影像分佈及金屬離子。根據觀察後影像中 APDC-Co 的 S 和 Co 的分佈大多是類似。文獻指出，APDC 通常與過渡金屬元素很容易結合，可以形成一個穩定的疏水性錯合物[71]。相反的，APDC-Sr 和 APDC-Cs 中 S 和金屬離子之間的分佈相似程度較低。圖中可

能顯示 APDC 與 Co^{2+} 幾乎具有相同的移除率。因此，LA-ICP-MS 以 Co 作為追蹤 APDC 於薄膜上是最合適的無機元素。

3.2.2 探討追蹤劑 Co 於不同的界面活性劑和螯合劑能力

圖 12 是不同的進料溶液，其隨著時間的通量的變化。APDC-Co 的通量具有最低的通量，主要是由於其空間障礙小及有更好的結合能力。我們能夠辨別錯合物在薄膜表面上累積的強度。有機物移除率由 TOC 分析 (圖 13 (a))，並使用 ICP-MS (圖 13 (b)) 分析無機物(Co)的移除率，APDC-Co 確實在 24 小時的操作時間後出現最高的移除率。

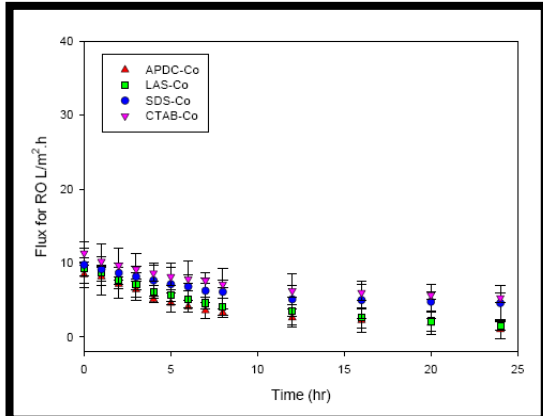


圖 12、錯合物之通量變化

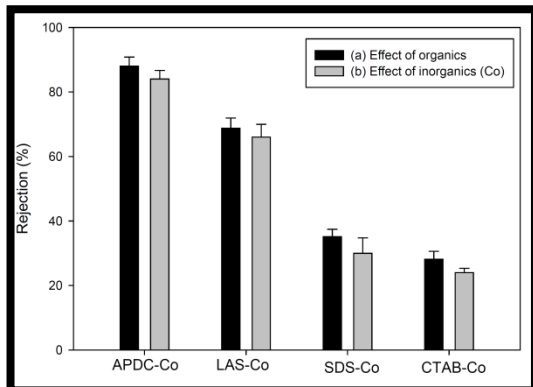


圖 13、過濾 24 小時後的錯合物之移除率

3.2.3 應用超聲影像技術觀察 RO 和 NF 膜阻塞情形

(A) 膜清洗的二維影像的比較

我們已經證明 LA-ICP-MS 分析是一種很有潛力的工具，它可以用來得到薄膜元素的 2D 或 3D 的結垢元素分佈，並區分無機及有機物的結垢。另一方面，超聲波圖像系統 (UIS) 已被 Sanderson 等人證明可以有效地應用於薄膜結垢的分析，運用在造紙廠廢水中觀察薄膜表面阻塞情形。在本節中，我們打算使用的 UIS，它主要是一個快速和線上評估清洗效率的方法，探討了不同的清洗試劑影響，以去除薄膜結垢。此訊息可以在此過程中提供一種快速的方法來評估清洗效果。

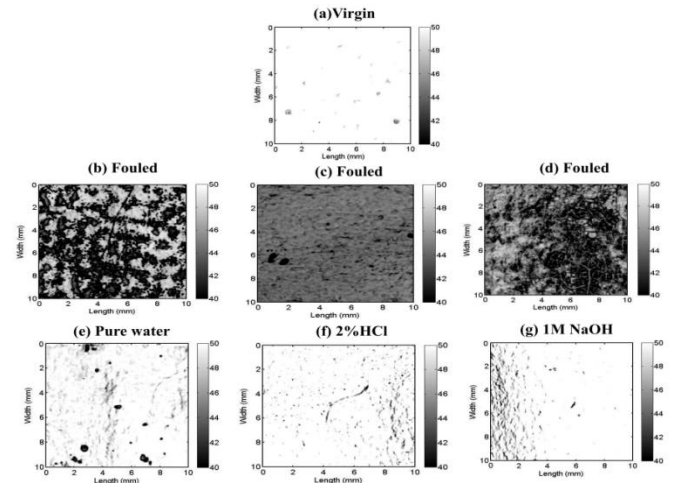


圖 14、RO 薄膜表面的二維影像: (a) 乾淨 ; (b), (c) and (d) 阻塞後 ; (e) 純水清洗 ; (f) 2% HCl 清洗 (g) 1M NaOH 清洗

三種清潔方法分別探討純水、2% HCl 和 1M NaOH 作為清洗試劑，分別在實驗中 (見 3.4.1 節)。圖 14 和 15 顯現出 RO 和 NF 在不同的結垢條件下的 2D 超聲波影像，其超聲波發送到薄膜表面，將能量反射回來為超聲波的一部分，由於薄膜的表面非常光滑。相反地，阻塞物將沉積在薄膜表面上會產生明顯的散射訊號，圖 14 和 15 所示的各種方法，其清洗效果是不同的，可接收到的訊號的變化，在不同的過程中上可以用來顯示適時的清洗效果。例如，如果主要是由濾餅所形成結垢模式，阻塞物大多數可以簡單地由純水去除。此結果可以證明 RO 及 NF 裡面的阻塞機制的吸附行為。研究所提供的清潔過程之前和之後的訊號差應該一個評估過程清洗效率的指標

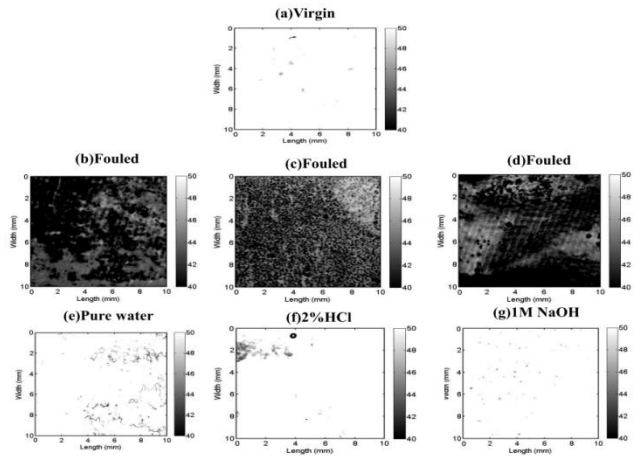


圖 15、NF 薄膜表面的二維影像: (a) 乾淨 ; (b), (c) and (d) 阻塞後 ; (e) 純水清洗 ; (f) 2% HCl 清洗 (g) 1M NaOH 清洗

(B) 建立薄膜清洗前後的厚度評估

為了理解阻塞物是否沉積在表面上或在內部孔洞中吸附，三維超聲波薄膜厚度可以用來觀察，如圖 16 和圖 17 是 RO 和 NF 在不同的操作階段後的厚度影像，如圖中結果所示，厚度代表著結合超聲系統所檢測到的像素信號，反應出沉積在 RO 膜阻塞物的位置，顏色代表著每個像素的訊號強度。很明顯厚度和訊號的強度分別已檢測到顯著阻塞物量，沉積在薄膜內 (圖 16 (a) (b) (c))。然而，厚度以及薄膜的訊號強度的降低，主要是由清洗

後的結果(圖 16 (d)(e)(f))。換句話說,從超聲波系統可以觀察到的訊號分佈的變化可以被用來評估薄膜中結垢物情形,圖 17 顯示 NF 薄膜有相同的結果,有幾個異常出現的厚度影像,這可能是測量過程中產生的不必要的氣泡,然而,其微弱的訊號是可以忽略不計。量化訊號用 1cm×1cm 的薄膜面積已總結(平均值)及表 4.8 中列出。阻塞物的數據可以被認為是一個有效的結垢物訊號和清洗前後的差異,顯示了清洗效率。

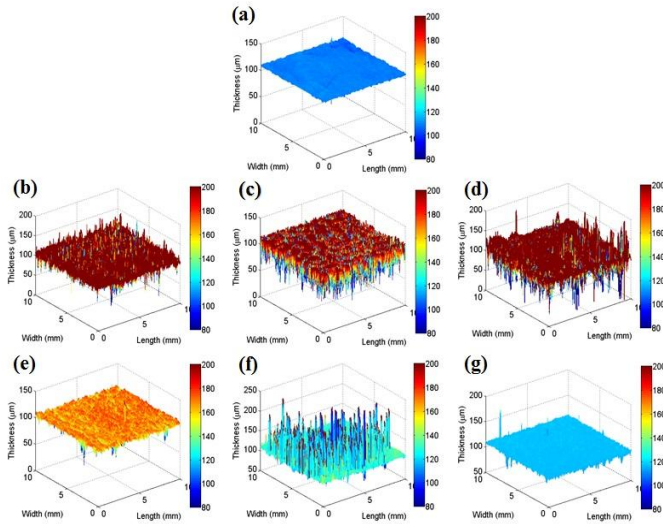


圖 16、RO 薄膜三維厚度的超音波影像: (a)乾淨;(b),(c) and (d) 阻塞後 ;(e) 純水清洗 ;(f) 2% HCl 清洗 (g) 1M NaOH 清洗

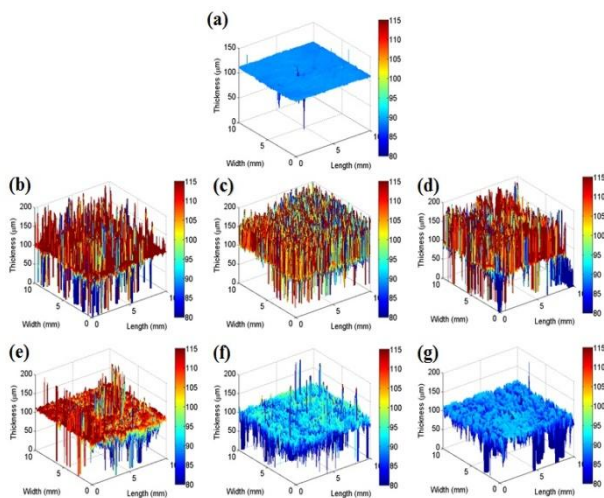


圖 17、NF 薄膜三維厚度的超音波影像: (a)乾淨;(b),(c) and (d) 阻塞後 ;(e) 純水清洗 ;(f) 2% HCl 清洗 (g) 1M NaOH 清洗

結果顯示,1MNaOH 清洗 RO 和 NF 膜是最好的清潔劑。圖 16 和圖 17 中的超音波影像可以進一步分為兩部分,有兩種類型的結垢時阻塞於薄膜,沉積在薄膜的表面上所形成的濾餅機制。進入薄膜過濾的污垢會保留在薄膜過中通過吸附機制,這是有意義的,薄膜內層代表結垢物的濾餅形成或吸附模式。這兩種薄膜經由純水只能清理的薄膜表面上的結垢物。另一方面,NaOH 和 HCl 在去除結垢物在薄膜內部。其結果,超聲波影像技術可以提供不同薄膜的阻塞影像,它的操作速度及數據屬性(um-nm)較 SEM 好,它具有潛力可以成為一個有用的

工具,可以清楚地觀察薄膜過濾的現象。

根據上述的清潔效果,不同的清洗劑的清洗效率會有所不同,其中,1M 的 NaOH 清洗效率是最好的,而最差的清洗試劑是純水。結果顯示,鹼性清洗劑的清洗效率優於酸性試劑。這是因為 OH⁻, pH 值和離子強度所提高的結果。造成阻塞物溶解度增加。

IV. 結論

本計畫各分項工作獲致以下結論:

1. DIAION UBK14T 樹脂可有效對 Na 與 Cs 進行吸附,並且具有選擇性,適合應用於高鹽分廢水處理的後續研究。
2. Na 的突破曲線在 Cs 濃度低於 3.4 g/L 以下時,並沒有太大的差異。但是當 Cs 濃度在 6.0 g/L 時,Na 與 Cs 產生了明顯的競爭吸附,當 Cs 的濃度提高到 34 g/L 時,Cs 變成優先吸附的離子。
3. 本計畫所建立的吸附行為模式在不同 Na 與 Cs 濃度下,可有效預測 DIAION UBK14T 樹脂對於 Na 與 Cs 的吸附行為。
4. 本計畫證實將陽離子交換樹脂應用於 SMB 可有效分離受銻離子污染的海水。
5. 本計畫的連續式分離技術僅參照鈉離子與銻離子的吸、脫附行為來設定操作條件,建議可針對最佳化的條件進行研究,對於未來放射性廢液的處理工作具有正面意義。
6. NF270 和一些商業用的 RO 薄膜皆可用於模擬放射性廢水含有溶解性鹽類和過渡金屬,且結果顯示 RO 的聚酰胺薄膜(AD)在移除這些污染物方面具有最佳效果。
7. 透過 LA-ICP-MS 對阻塞薄膜進行分析,可得阻塞物空間分布資訊,進一步探討阻塞物特性,可幫助我們用於後續薄膜清洗對策與績效評估之研究。

參考文獻

- [1] 中國大百科全書環境科學編委會編,中國大百科全書·環境科學,中國大百科全書出版社,北京,2002。67。
- [2] 原子能委員會放射性物料管理局,放射性物料法規彙編,1999。
- [3] 原子能委員會放射性物料管理局,放射性廢料安全管理報告書,1994。
- [4] American Nuclear Society, Liquid Radwaste Waste Processing System for Light Water Reactor Plants, ANSI/ANS-55.6 (1993).
- [5] International Atomic Energy Agency, Advances in Technologies for the Treatment of Low and Intermediate Level Radioactive Liquid Wastes, IAEA Technical Reports Series No.370, IAEA, Vienna (1994).
- [6] Choo, K.-H.; Kwon, D.-J.; Lee, K.-W.; Choi, S.-J., Selective removal of cobalt species using nanofiltration membranes. Environmental science & technology 2002, 36, 1330-1336.
- [7] Combined methods for liquid radioactive waste

- treatment. In IAEA TECDOC-1336, 2003.
- [8] Rahman, R.; Ibrahim, H.; Hung, Y. T., Liquid radioactive wastes treatment: a review. *Water* 2011, 3, 551-565.
- [9] Greenlee, L.; Lawler, D.; Freeman, B.; Marrot, B.; Moulin, P., Reverse osmosis desalination: water sources, technology, and today's challenges. *Water Res.* 2009, 43, 2317-2348.
- [10] 林炳昌, 模擬移動床技術, 化學工程出版社, 北京, 2007。
- [11] Li, D.; Wang, H., Recent developments in reverse osmosis desalination membranes. *J. Mater. Chem.* 2010, 20, (22), 4551-4566.
- [12] Lee, K. P.; Arnot, T. C.; Mattia, D., A review of reverse osmosis membrane materials for desalination—Development to date and future potential. *Journal of membrane science* 2011, 370, (1–2), 1-22.
- [13] Singh, P. S.; Rao, A. P.; Ray, P.; Bhattacharya, A.; Singh, K.; Saha, N. K.; Reddy, A. V. R., Techniques for characterization of polyamide thin film composite membranes. *Desalination* 2011, 282, (0), 78-86.
- [14] Zou, L.; Vidalis, I.; Steele, D.; Michelmores, A.; Low, S. P.; Verberk, J. Q. J. C., Surface hydrophilic modification of RO membranes by plasma polymerization for low organic fouling. *Journal of membrane science* 2011, 369, (1–2), 420-428.
- [15] Shin, D. H.; Kim, N.; Lee, Y. T., Modification to the polyamide TFC RO membranes for improvement of chlorine-resistance. *Journal of membrane science* 2011, 376, (1–2), 302-311.
- [16] Yang, H.-L.; Lin, J. C.-T.; Huang, C., Application of nanosilver surface modification to RO membrane and spacer for mitigating biofouling in seawater desalination. *Water Res.* 2009, 43, (15), 3777-3786.
- [17] Ferjani, E.; Lajimi, R. H.; Deratani, A.; Roudesli, M. S., Bulk and surface modification of cellulose diacetate based RO/NF membranes by polymethylhydrosiloxane preparation and characterization. *Desalination* 2002, 146, (1–3), 325-330.
- [18] El-Saied, H.; Basta, A. H.; Barsoum, B. N.; Elberry, M. M., Cellulose membranes for reverse osmosis Part I. RO cellulose acetate membranes including a composite with polypropylene. *Desalination* 2003, 159, (2), 171-181.
- [19] Cheryan, M., *Ultrafiltration And Microfiltration Handbook*. Technomic Publishing Co.: Lancaster, PA, 1998.
- [20] Baker, R. W., *Membrane Technology and Applications*. 2nd ed.; John Wiley & Sons: 2004.
- [21] Kim, E.-S.; Kim, Y. J.; Yu, Q.; Deng, B., Preparation and characterization of polyamide thin-film composite (TFC) membranes on plasma-modified polyvinylidene fluoride (PVDF). *Journal of membrane science* 2009, 344, (1–2), 71-81.
- [22] Ghosh, A. K.; Hoek, E. M. V., Impacts of support membrane structure and chemistry on polyamide–polysulfone interfacial composite membranes. *Journal of membrane science* 2009, 336, (1–2), 140-148.
- [23] Kwak, S.-Y.; Jung, S. G.; Yoon, Y. S.; Ihm, D. W., Details of surface features in aromatic polyamide reverse osmosis membranes characterized by scanning electron and atomic force microscopy. *J. Polym. Sci., Part B: Polym. Phys.* 1999, 37, (13), 1429-1440.

放射性固體廢棄物處理技術研究
The development of treatment technologies for radioactive solid wastes

計畫編號：NSC 102-623-E-214-002-NU
計畫類別：☐個別型計畫 ☒整合型計畫
計畫主持人：吳裕文
e-mail：ywwwu@isu.edu.tw
執行單位：義大學化學工程系

摘要

本計畫為三年期計畫的第三年度計畫，研究的主要目的在開發利用超臨界二氧化碳進行放射性固體廢棄物的除污技術，這種無二次污染之虞的除污技術將可廣泛用在處理核電廠的非金屬固體廢棄物，如保溫隔熱材、活性碳、以及地表土等。在第一年度當中，本計畫已經證實，結合使用 D2EHPA 萃取劑的超臨界二氧化碳，可以有效再生受金屬污染的活性碳，本計畫並已完成先導萃取設備的試作，更利用實驗結果建立了一套萃取除污的動力學模式。鑒於日本 311 地震，緊急核安事故經常產生大量的高鹽分廢水以及受污土壤與建築瓦礫等，因此本計畫於第二年以後利用所建立的放廢處理研發平台評估本項技術在土壤與建築瓦礫的除污之相關研究。本計畫以二-(2-乙基己基)磷酸(D2EHPA)當作金屬萃取劑，在 35 MPa 下針對不同溫度、不同稀釋劑，以及萃取劑與稀釋劑比例進行試驗。結果顯示在 120°C 以及 350 bar 之下，使用二-(2-乙基己基)磷酸配合甲醇做為稀釋劑，能夠有效移除土壤及建築瓦礫中的鈷。隨著溫度以及萃取劑濃度的提高，土壤及建築瓦礫中鈷的移除率也隨之上升。在精進萃取除污動力學模式方面，本計畫於本年當中以 SFC(supercritical fluid chromatography)來調查萃取劑以及配位化合物在固體表面的吸附行為以及其吸附動力學，最後完成放大除污試驗，並與前兩年的實驗結果相互驗證比較，以為未來的放大設計與最佳操作條件提供理論的依據。

關鍵詞：固體輻射廢棄物、除污、超臨界二氧化碳、活性碳、土壤、建築瓦礫。

Abstract

This project is the third year project for a three-year proposal. The objective of the project is to employ supercritical carbon dioxide to develop a novel decontamination technology for the radioactive solid wastes. The novel decontamination possesses advantage without creating secondary pollution for treating non-ferrous solid wastes, such as fireproof board for insulation, activated carbon, and contaminated soil. In the first year, this project has demonstrated the use of D2EHPA as the extractant with supercritical carbon dioxide can effectively regenerate the wasted activated carbon. Also, experimental results from the pilot unit are used for establishing a kinetic model for the reactive decontamination. In addition, the earthquake in Fukushima first nuclear power plant showed that large amount of wasted water and debris and contaminated soil will need to be created after the stricken. It therefore needs to re-evaluate the feasibility to apply the developed technology by this project as an alternative to the emergency response system. In the second year, the feasibility was

studied in the same platform as that used in the first year. At 35 MPa, D2EHPA was used as the extractant to extract cobalt at different temperature. Several diluents with various concentrations were added and testified for their effects on the extraction. The results reveal that the content of Cobalt in the soil and debris can be effectively reduced by the supercritical carbon dioxide. The removal efficiency increases with temperature and concentration of extractant in the supercritical fluid. In the this year, the authors focus on the improvement of the kinetic model by applying SFC (supercritical fluid chromatography) to study the adsorption of extractant and coordinated complex onto the surface. Also, the scale-up experiment has been performed, and the established model was successfully implanted and fitted to the experimental results, which will provide useful information for future's scale up design and optimization. Keywords: radioactive solid waste, decontamination, supercritical carbon dioxide, activated carbon, soil, debris

I. 前言

利用超臨界二氧化碳進行放射性固體廢棄物的除污技術已經被證實可行，這種無二次污染之虞的除污技術將可廣泛用在處理核電廠的非金屬固體廢棄物，如保溫隔熱材、活性碳、以及地表土等。2011 年日本 311 地震導致福島核電廠遭受重創，周遭的土壤遭受嚴重污染，未來更將有大量的建築瓦礫需要移除以及處理，因此如何應用本計畫所開發的除污技術於土壤以及建築瓦礫等粉粒性廢棄物的除污，成為本計畫的主要工作項目。

本計畫的第一年已經完成了運轉中核電廠的低放射性廢棄物活性碳之再生技術，第二年則為因應日本核災所亟需處理的廢土與建築瓦礫，因此展開了利用相關研發平台進行土壤除污的可行性評估。本計畫在第二年度以鈷做為試驗的模擬核種，並以所建置的先導研發平台進行土壤以及建築瓦礫的除污試驗，完成調查各種參數對除污效果的影響，包括稀釋劑種類、萃取劑的混合比例、萃取劑濃度、二氧化碳流速、以及溫度等。所調查的受污土壤係以南台灣取樣的過篩細砂以及粉碎磚塊作為處理的標的。本年度當中以 SFC(supercritical fluid chromatography)來調查萃取劑以及配位化合物在固體表面的吸附行為以及其吸附動力學。另外，也同時進行放大除污試驗，並與前兩年的實驗結果相互驗證比較，以為未來的放大設計與最佳操作條件提供理論的依據。

II. 主要內容

在建立除污動力學上，第一年的研究結果顯示，萃取劑在固體表面的吸附平衡及其吸附動力學，以及萃取劑與金屬的配位反應，扮演著決定性的角色。因此本計畫，將首先以 SFC(supercritical fluid chromatography)來探

討萃取劑的等溫吸附行為以及其軸擴散與質傳行為，進而建立等溫吸附線以及吸附動力學。本計畫在第二年當中已經可以利用萃取曲線進行 curve fitting 的方式找出模式中的參數。唯為進一步精進所建立的模式，則須另外由其他方式測量出模式的各個參數，並帶入模式中加以計算，再將計算所得的結果與實驗的結果相互比對。

本計畫擬利用自組的 SFC 設備，如圖 1，進行吸附行為的探討。依據層析理論，只要利用吸收峰的滯留時間，便可得到萃取劑在土壤或建築瓦礫的吸附行為，因此所建立的模式當中 K_1 便可加以測量得知。最後，本計畫將利用自組的 SFE 放大設備，進行放大除污試驗，並與前兩年的實驗結果相互驗證比較，以為未來的放大設計與最佳操作條件提供理論的依據。

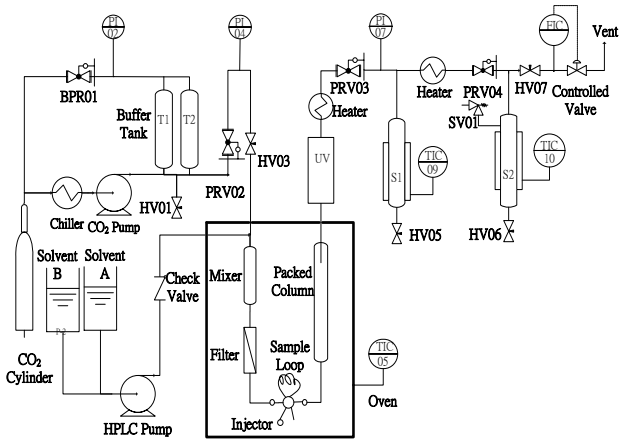


圖 1、超臨界流體層析儀流程圖

2.1 萃取動力學的精進

2.1.1 吸附理論

將含有吸附質的溶液開始注入一個固定床之後，其在床體的出口端所測量的濃度曲線，一般稱之為突破曲線(breakthrough curve)。也就是一個階梯函數的輸入後其表現的應答曲線。該曲線為吸附行為最重要的特徵。吸附床的質量平衡方程式可以表示成如下：

$$\varepsilon_e \frac{\partial c}{\partial t} + \rho_p (1 - \varepsilon_e) \frac{\partial q}{\partial t} + \varepsilon_e \frac{\partial (vc)}{\partial z} - \varepsilon_e (D_m + E_D) \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} = 0 \quad (1)$$

其中 c 為吸附質濃度， ε_e 為固體吸附劑粒子間的空隙率， ρ_p 為含有內部孔洞的固體吸附劑密度， q 為吸附質在固體外部表面以及內部孔洞的全部吸附量， v 為流動相在固體吸附劑粒子間的流速， D_m 與 E_D 為溶質擴散係數與渦流擴散係數， $D_m + E_D$ 又統稱為軸向擴散係數或軸向分散係數(axial dispersion coefficient)， z 與 t 則表示吸附床的軸向座標與時間。假如吸附過程的阻力很小，也就是說質傳速度很快，而且吸附的平衡關係為線性的話：

$$q = Kc \quad (2)$$

其中， K 為平衡吸附常數，其吸附床質量平衡方程式為：

$$\left(1 + \frac{1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_e} \rho_p K\right) \frac{\partial x}{\partial t} + v \frac{\partial x}{\partial z} - (D_m + E_D) \frac{\partial^2 x}{\partial z^2} = 0; \quad \begin{cases} x(z, 0) = 0 \\ x(0, t) = 1 \\ x(\infty, t) = 0 \end{cases} \quad (3)$$

其中 $x = c/c_F$ ，而 c_F 為進口溶液的溶質濃度，因此該微分方程的解可以寫成[41]

$$x = \frac{c}{c_F} = \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{z - \frac{vt}{1 + \frac{1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_e} \rho_p K}}{\sqrt{\frac{4(D_m + E_D)t}{1 + \frac{1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_e} \rho_p K}}} \right) \right] \quad (4)$$

對於進料濃度產生變動時，則可以使用 superposition 方式而獲知當進料濃度產生變動之後的解。例如當 t 之後其濃度下降為 0，則其突破曲線的解為

$$x_{pulse} = x(z, t) - x(z, t - \Delta t) \quad (5)$$

對於一個很短時間的脈衝進料， Δt ，則其解可以表示成

$$x_{impulse} = \alpha \frac{\partial x(z, t)}{\partial t} \quad (6)$$

式(4)提供了一個簡易的方程式以做為模擬突破曲線之用。因此只要能由 SFC 或得突破曲線，便可利用回歸方式計算得知平衡吸附常數， K ，以及軸向分散係數， $D_m + E_D$ 。

對於脫附曲線，則(4)式的互補函數即可代表脫附的結果：

$$x = \frac{c}{c_F} = 1 - \frac{1}{2} \left[1 - \operatorname{erf} \left(\frac{z - \frac{vt}{1 + \frac{1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_e} \rho_p K_d}}{\sqrt{\frac{4(D_m + E_D)_d t}{1 + \frac{1 - \varepsilon_e}{\varepsilon_e} \rho_p K_d}}} \right) \right] \quad (7)$$

其中在軸向分散係數以及吸附常數的下標 d 代表脫附所得的輸送性質。

在相同的溫度、壓力、以及二氧化碳流速之下，不同濃度的低揮發性有機物，其吸附常數並不相同。對於活性碳中的甲醇與己烷而言，其吸附常數隨濃度增加而降低。這代表著等溫吸附線的斜率會隨著濃度的增加而下降，屬於一種向下凹的曲線。在經過一系列不同濃度的實驗之後，便可以依據下式繪製出等溫吸附線了。

$$q_{i+1} = q_i + K_{i+1}(C_{i+1} - C_i) \quad (8)$$

由於甲醇與己烷在活性碳中的等溫吸附線都屬於向下凹的曲線，因此本研究將實驗活性碳部分的數據以 Langmuir 吸附模式加以回歸。Langmuir 的等溫吸附模式可以表示成如下：

$$q = \frac{aC}{1 + bC} \quad (9)$$

其中 a 與 b 為模式的參數。

除了利用模擬回歸計算出軸向分散係數以外，也可以利用半實驗公式加以估算。在填充床的質傳校正式可以使用如下的公式[42]：

$$\varepsilon_e \mathbf{Pe} = 0.2 + 0.011 \mathbf{Re}^{0.48} \quad (10)$$

式中 $\mathbf{Pe}$ 與 $\mathbf{Re}$ 為無因次的 Peclet number 與 Reynolds number，其定義如下：

$$\mathbf{Pe} = \frac{d_p v}{D_m + E_D}; \quad \mathbf{Re} = \frac{\varepsilon_e \rho_f v d_p}{\mu} \quad (11)$$

其中 d_p 為固體吸附劑的粒徑， μ 與 ρ_f 為流動相的黏度與密度。

2.1.2 材料與管柱

本研究將活性碳填充於內徑與長度分別為 1.0 與 25

cm 的填充管柱，其空管柱的體積 V 為 19.6350 mL，所裝載的活性碳總重共有 8.4775 g。

本研究將取自高屏溪的土壤及購自建材行的磚塊填充於內徑與長度分別為 2.12 與 10.0 cm 的不鏽鋼填充管柱，其空管柱的體積 V 約為 17.65 mL，所裝載的土壤及磚塊之總重分別為 22.5884 g 及 18.5727 g。

2.1.3 甲醇於活性碳中的吸附試驗

本計畫使用 SFC 進行甲醇於活性碳中的吸附試驗。首先，經過加壓後的二氧化碳液體暫存於高壓緩衝槽當中，然後再利用調壓閥將二氧化碳液體輸出並設定壓力。該二氧化碳液體與 HPLC 泵所送出的輔溶劑混合之後，在烘箱內形成均相的超臨界流體，然後通過預先填充活性碳的管柱。經過活性碳填充床的超臨界流體再藉由配有高壓流動槽(high pressure flow cell)的紫外光偵測器來偵測其中各成份的吸收強度，通過紫外光偵測器的超臨界流體經二次降壓將輔溶劑沉降於分離槽，低壓的二氧化碳再以質量流量計控制其出口流量，該流量係先經濕式流量計校正後，再轉換為質量流量。本計畫所組裝的 SFC 設備同時配裝有六孔注射閥，可提供液體樣品的分析之用。

本計畫利用 HPLC 泵將甲醇注入 SFC 系統，然後觀察其在 212 nm 波長下的吸收強度隨時間的變化，以調查甲醇在不同溫度、壓力及二氧化碳流速下的吸附情形。

2.1.4 D2EHPA 於土壤及磚塊中的吸附試驗

本計畫使用 SFC 進行 D2EHPA 於土壤及磚塊中的吸附試驗。首先，經過加壓後的二氧化碳液體暫存於高壓緩衝槽當中，然後再利用調壓閥將二氧化碳液體輸出並設定壓力。該二氧化碳液體與 HPLC 泵所送出的輔溶劑混合之後，在烘箱內形成均相的超臨界流體，然後通過預先填充土壤及磚塊的管柱。經過固體填充床的超臨界流體再藉由配有高壓流動槽(high pressure flow cell)的紫外光偵測器來偵測其中各成份的吸收強度，通過紫外光偵測器的超臨界流體經二次降壓將輔溶劑沉降於分離槽，低壓的二氧化碳再以質量流量計控制其出口流量，該流量係先經濕式流量計校正後，再轉換為質量流量。本計畫所組裝的 SFC 設備同時配裝有六孔注射閥，可提供液體樣品的分析之用。

本計畫利用 HPLC 泵將 D2EHPA-甲醇溶液注入 SFC 系統，然後觀察其在 212 nm 波長下的吸收強度隨時間的變化，以調查 D2EHPA 在不同溫度、壓力及甲醇莫耳分率下的吸附情形。

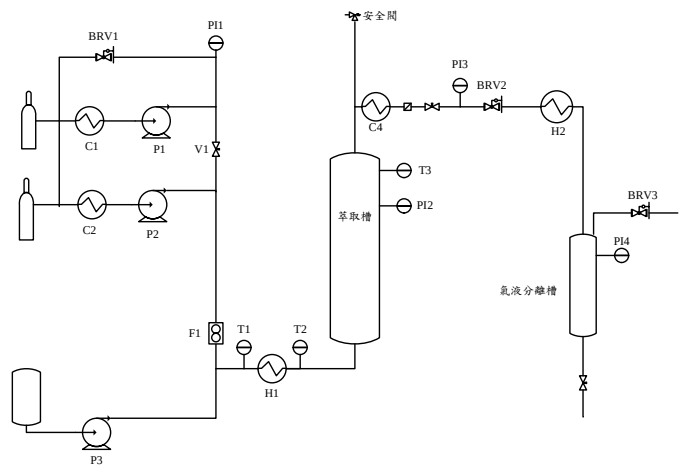


圖 3、放大除污設備之流程圖

2.2 放大除污試驗

本研究用以進行放大試驗之除污設備，為自行組裝之機台，配置有一 6 L 萃取槽，其流程圖如圖 3 所示。其一般操作步驟如下：

- (1) 將受污土壤或建築瓦礫置入洗淨槽後，設定洗淨槽的溫度，並開始加熱；
- (2) 液態二氧化碳從鋼瓶流出後經幫浦增壓及預熱後，以背壓閥調整至條件壓力；
- (3) 當洗淨槽到達設定溫度後，啟動 HPLC 幫浦，開始將萃取劑與稀釋劑餉入；
- (4) 定期洩壓收集分離槽的液體樣品，並以 ICP 分析其被萃取出來的金屬總量 W_E ，並累計為 W_{ET} ；
- (5) 實驗結束後，分析殘留於固體樣品中的金屬含量， W_R ；
- (6) W_R 與 W_{ET} 合併計算當做全部的金屬總量，再以 $W_E/(W_R+W_{ET})$ 計算出不同時間的萃取程度；
- (7) 將萃取程度隨取樣時間作圖，繪製成萃取曲線。

III. 結果與討論

3.1 萃取動力學的精進

3.1.1 D2EHPA 於活性碳中的吸附試驗

本計劃針對 D2EHPA 於活性碳中的吸附行為進行調查。圖 4 係為 D2EHPA 在土壤填充管柱的突破曲線以及其利用式(4)模擬計算所得到的典型結果，其操作壓力與溫度為 19.3 MPa 與 80°C，而二氧化碳與甲醇的莫耳流速分別為 0.0857 與 0.0140 mol/min。在時間為 5 分鐘時，D2EHPA-甲醇溶液開始泵入系統，然後在大約 12 分鐘左右，D2EHPA 的濃度波開始在管柱出口端出現。圖中的紅色十字號為 UV 紀錄的吸收強度，而黑色虛線則是根據式(4)模擬計算的結果。

在 19.3 MPa, 80°C，不同的二氧化碳流速下，依據 D2EHPA 不同濃度的吸附常數，可利用式(6)計算出等溫吸附線，如圖 5 藍色記號所示，其參數 a 及 b 分別為 70.886794 及 0.065712。本研究進一步將不同溫度、壓力、以及二氧化碳流速下所得到的等溫吸附線加以回歸，結果整理於表 1 中。

$$q_{i+1} = q_i + K_{i+1}(C_{i+1} - C_i) \quad q_i = 0 \quad C_i = 0 \quad (12)$$

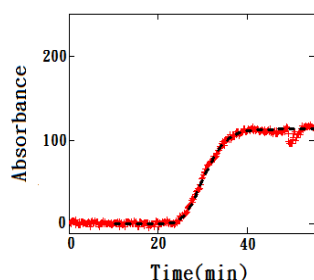


圖 4、以 SFC 調查 D2EHPA 通過活性碳的吸附行為

本計畫針對溫度為 80℃，壓力為 19.3 MPa 的條件下，甲醇莫耳分率在對於 D2EHPA 吸附量的影響進行調查，結果如圖 6 所示。結果顯示當甲醇莫耳分率在 0.0979 與 0.140 時，D2EHPA 吸附量隨甲醇莫耳分率增加而降低但並不顯著。但是當甲醇濃度進一步增加至 0.186 時，其吸附量急速下降，其原因尚待進一步的研究。

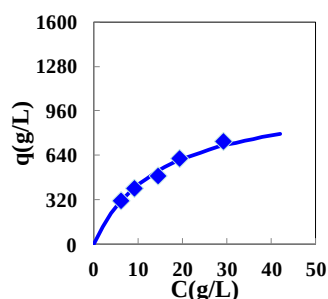


圖 5、D2EHPA 於二氧化碳環境下在活性碳的等溫吸附行為

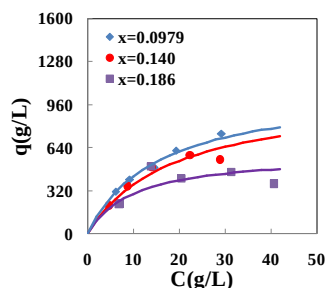


圖 6、甲醇濃度對 D2EHPA 吸附行為的影響

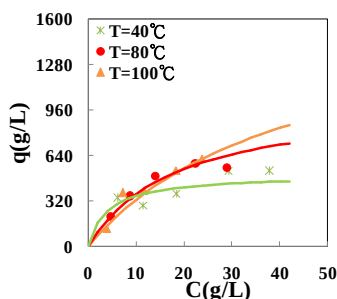


圖 7、二氧化碳溫度對 D2EHPA 吸附行為的影響

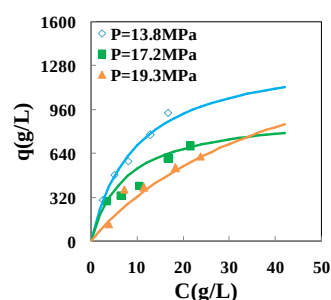


圖 8、二氧化碳流速對甲醇吸附行為的影響

在溫度效應方面，本計畫在甲醇莫耳分率為 0.140，壓力為 19.3 MPa 的操作條件下，針對溫度對於 D2EHPA 的吸附影響進行調查，結果如圖 7 所示。結果顯示，當溫度從 40 上升至 80℃ 時，吸附量與亨利常數明顯上升，但是當溫度上升至 100℃ 時，則等溫吸附行為並無太大差異。

在壓力效應方面，本計畫在甲醇莫耳分率為 0.140，溫度為 80℃ 的操作條件下，針對壓力對 D2EHPA 的吸附影響進行調查，結果如圖 8 所示。結果顯示，17.2 與 19.3 MPa 時，其等溫吸附行為並沒有太大的差異，但是當壓力下降之 13.8 MPa 時，其吸附量顯著提升。

3.1.2 D2EHPA 於土壤中的吸附試驗

本計劃針對 D2EHPA 於土壤中的吸附行為進行調查。圖 9 係為 D2EHPA 在土壤填充管柱的突破曲線以及其利用式(4)模擬計算所得到的典型結果，其操作壓力與溫度為 19.3 MPa 與 80℃，而二氧化碳與甲醇的莫耳流速分別為 0.0857 與 0.0140 mol/min。在時間為 5 分鐘時，D2EHPA-甲醇溶液開始泵入系統，然後在大約 12 分鐘左右，D2EHPA 的濃度波開始在管柱出口端出現。圖中的紅色十字符號為 UV 紀錄的吸收強度，而黑色虛線則是根據式(4)模擬計算的結果。

在 19.3 MPa，80℃，不同的二氧化碳流速下，依據 D2EHPA 不同濃度的吸附常數，可利用式(6)計算出等溫吸附線，如圖 10 藍色記號所示。本研究進一步將不同溫度、壓力、以及二氧化碳流速下所得到的等溫吸附線加以回歸，結果整理於表 2 中。

$$K = \frac{\Delta q}{\Delta C} \quad (13)$$

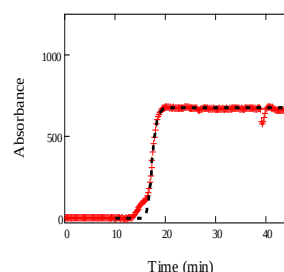


圖 9、以 SFC 調查 D2EHPA 通過土壤的吸附行為

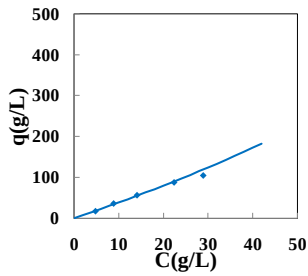


圖 10、D2EHPA 於二氧化碳環境下在土壤的等溫吸附行為

表 2、D2EHPA 於超臨界二氧化碳環境下在土壤的等溫吸附參數

No.	P (MPa)	T (°C)	MeOH (X)	K
1	19.3	80	0.0979	8.36
2	19.3	80	0.1401	3.77
3	19.3	80	0.1856	3.07
4	19.3	40	0.1401	3.62
5	19.3	100	0.1401	4.91
6	13.8	100	0.1401	2.70
7	17.2	100	0.1401	3.90

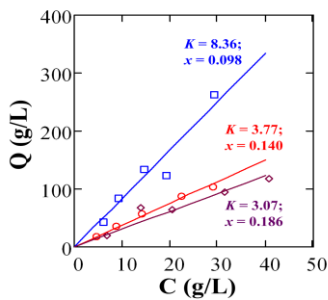


圖 11、甲醇濃度對 D2EHPA 吸附行為的影響

本計畫針對溫度為 80°C，壓力為 19.3 MPa 的條件下，甲醇莫耳分率在對於 D2EHPA 吸附量的影響進行調查，結果如圖 11 所示。結果顯示當甲醇莫耳分率在 0.140 與 0.186 時，D2EHPA 吸附量隨甲醇莫耳分率降低而增加但並不顯著。但是當甲醇濃度進一步降低至 0.098 時，其吸附量急速增加，其原因尚待進一步的研究。

在溫度效應方面，本計畫在甲醇莫耳分率為 0.140，壓力為 19.3 MPa 的操作條件下，針對溫度對於 D2EHPA 的吸附影響進行調查，結果如圖 12 所示。結果顯示，當溫度從 40 上升至 80 °C 時，等溫吸附行為並無太大差異，但是當溫度上升至 100 °C 時，則吸附量與亨利常數明顯上升。這個隨溫度上而上升的現象，推測係因為 D2EHPA 在低溫下需要與甲醇在土壤表面競爭吸附有關。

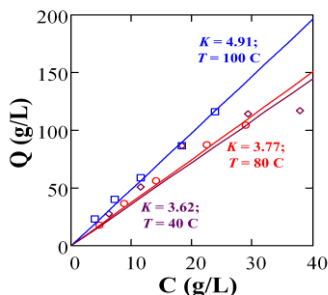


圖 12、二氧化碳溫度對 D2EHPA 吸附行為的影響

在壓力效應方面，本計畫在甲醇莫耳分率為 0.140，溫度為 80°C 的操作條件下，針對壓力對 D2EHPA 的吸附影響進行調查，結果如圖 13 所示。結果顯示，17.2 與 19.3 MPa 時，其等溫吸附行為並沒有太大的差異，但是當壓力下降之 13.8 MPa 時，其吸附量顯著下降。這個結果與活性碳的研究不同，顯示 D2EHPA 的吸附，並不是由 D2EHPA 在超臨界二氧化碳中的溶解度所主導。

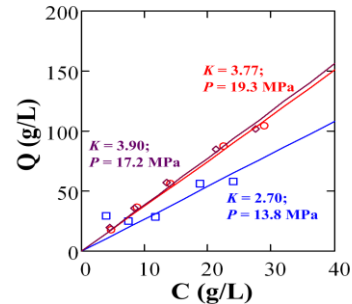


圖 13、二氧化碳流速對甲醇吸附行為的影響

3.1.3. D2EHPA 於磚塊中的吸附試驗

本計畫針對 D2EHPA 於磚塊中的吸附行為進行調查。本計畫在甲醇莫耳分率為 0.140，壓力為 19.3 MPa 的操作條件下，針對溫度對於 D2EHPA 的吸附影響進行調查，結果如圖 14 所示。結果顯示，當溫度從 80 上升至 100 °C 時，則吸附量與亨利常數隨之上升。

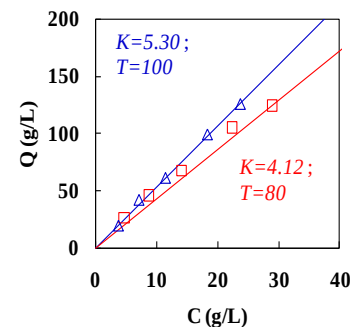


圖 14、二氧化碳溫度對甲醇吸附行為的影響

3.2 表面擴散及離子交換反應活化能計算

本計畫於前二年所建立的模式，式(14)：

$$\frac{d[M^{2+}]}{dt} = -k_2 K_1^2 \left\{ [M^{2+}] \left(\frac{[HA^+]}{1 + a[HA^+] + b[HX^+]} \right)^2 \times (1 - \exp(-k_m t))^2 - \frac{([M^{2+}]_0 - [M^{2+}])^2}{\beta_m} \right\} \quad (14)$$

一共有三個參數， k_m 、 $k_2 K_1^2$ 、 β_m 。提高 $k_2 K_1^2$ 可使萃取程序快速達到最大萃取率，但由於 $k_2 K_1^2$ 主要是增加萃取初期的萃取率，無法改變最大萃取率， k_m 則是影響萃取曲線的斜率， k_m 增加則萃取率越高，而 β_m 與萃取效果呈正相關。本計畫針對活性碳、土壤及建築瓦礫的除污試驗及模擬結果進行動力學參數的計算。

3.2.1 活性碳除污

本計畫於第一年採用活性碳中鈷的除污試驗結果進行模擬。模擬所使用的參數整理於表 3，除污試驗的結果如圖 15 所示。圖中的符號表示實驗結果，曲線則是根據式(14)所繪製的預測曲線。雖然本計畫之模式未進行最佳化，卻可觀察到合理的預測結果。本計畫所建立的萃取動力學模式，獲得 k_m 、 $k_2 K_1^2$ 及 β_m 等動力學參數，未來

可用來模擬放大試驗所需的參數。其中，表面擴散活化能可藉由 $\ln k_m$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=12.5$ kJ/kmol，如圖 16 所示；而離子交換反應活化能則是藉由 $\ln k_2$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=16.7$ kJ/kmol；最大萃取常數 β_m 與萃取效率有關，但由於 β_m 受到多個參數影響，因此本研究尚未釐清 β_m 與溫度或其他參數之間的相關性。

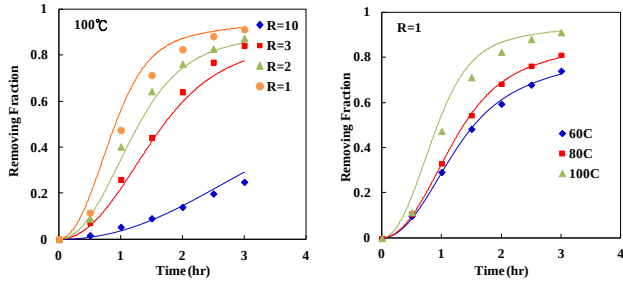


圖 15、活性碳中鈷的除污試驗與模擬結果

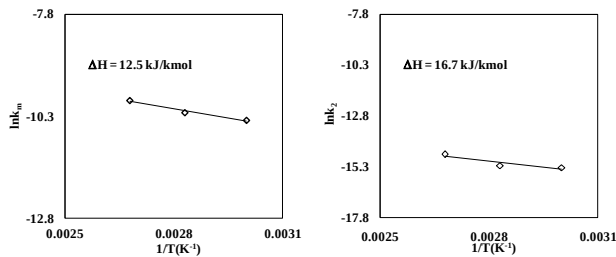


圖 16、活性碳中鈷的萃取動力學參數

表 3、活性碳中鈷萃取除污預測曲線所使用的參數

$T(^{\circ}C)$	k_m (L/kmol Co)	$k_2 K_1^2$ (1/sec)	β_m (1/sec)	a
60	3.04×10^{-4}	0.206	4.41×10^5	
80	3.67×10^{-4}	0.227	7.85×10^5	1
100	4.94×10^{-3}	0.397	3.95×10^6	

3.2.2 土壤除污

本計畫於第二年採用土壤中鈷的除污試驗結果進行模擬。模擬所使用的參數整理於表 4，除污試驗的結果如圖 17 所示。圖中的符號表示實驗結果，曲線則是根據式 (14) 所繪製的預測曲線。雖然本計畫之模式未進行最佳化，卻可觀察到合理的預測結果。

本計畫所建立的萃取動力學模式，獲得 k_m 、 $k_2 K_1^2$ 及 β_m 等動力學參數，未來可用來模擬放大試驗所需的參數。其中，表面擴散活化能可藉由 $\ln k_m$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=2.6$ kJ/kmol，如圖 18 所示；而離子交換反應活化能則是藉由 $\ln k_2$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=3.4$ kJ/kmol；最大萃取常數 β_m 與萃取效率有關，但由於 β_m 受到多個參數影響，因此本研究尚未釐清 β_m 與溫度或其他參數之間的相關性。

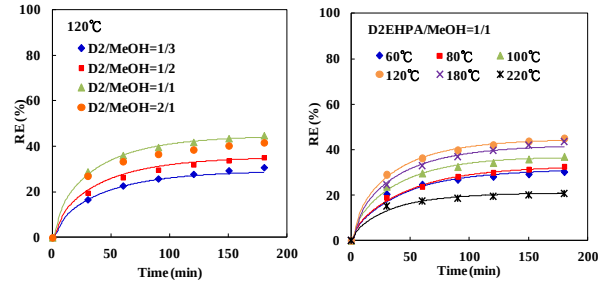


圖 17、土壤中鈷的除污試驗與模擬結果

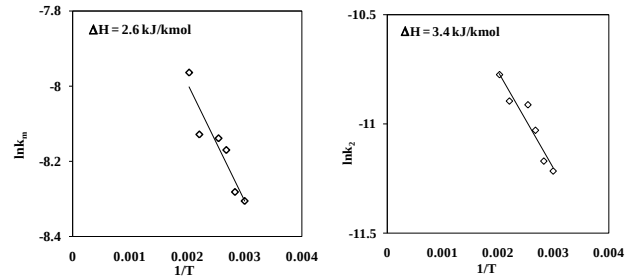


圖 18、土壤中鈷的萃取動力學參數

表 4、土壤中鈷萃取除污預測曲線所使用的參數

$T(^{\circ}C)$	k_m (L/kmol Co)	$k_2 K_1^2$ (1/sec)	β_m (1/sec)	a
60	2.47×10^{-4}	2.11	2.36×10^3	
80	2.53×10^{-4}	2.23	3.57×10^3	
100	2.83×10^{-4}	2.57	7.08×10^3	5
120	2.92×10^{-4}	2.89	6.11×10^3	
180	2.95×10^{-3}	2.94	1.39×10^4	
220	3.48×10^{-3}	3.32	2.39×10^3	

3.2.3 建築瓦礫除污

本計畫於第二年採用土壤中鈷的除污試驗結果進行模擬。模擬所使用的參數整理於表 5，除污試驗的結果如圖 19 所示。圖中的符號表示實驗結果，曲線則是根據式 (14) 所繪製的預測曲線，與土壤除污的結果有相同的趨勢。雖然本計畫之模式未進行最佳化，卻可觀察到合理的預測結果。

本計畫所建立的萃取動力學模式，獲得 k_m 、 $k_2 K_1^2$ 及 β_m 等動力學參數，未來可用來模擬放大試驗所需的參數。其中，表面擴散活化能可藉由 $\ln k_m$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=2.6$ kJ/kmol，如圖 20 所示；而離子交換反應活化能則是藉由 $\ln k_2$ 與 $1/T$ 之線性迴歸求得 $\Delta H=3.4$ kJ/kmol；最大萃取常數 β_m 與萃取效率有關，但由於 β_m 受到多個參數影響，因此本研究尚未釐清 β_m 與溫度或其他參數之間的相關性。

表 5、土壤中鈷萃取除污預測曲線所使用的參數

$T(^{\circ}C)$	k_m (L/kmol Co)	$k_2 K_1^2$ (1/sec)	β_m (1/sec)	a
60	8.72×10^{-5}	0.529	1.18×10^5	
80	9.28×10^{-5}	0.567	1.31×10^5	10
120	1.22×10^{-4}	0.607	4.22×10^5	

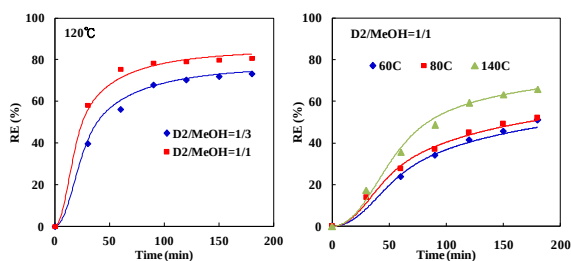


圖 19、萃取劑與稀釋劑混合比例對建築瓦礫中鈷除污的影響

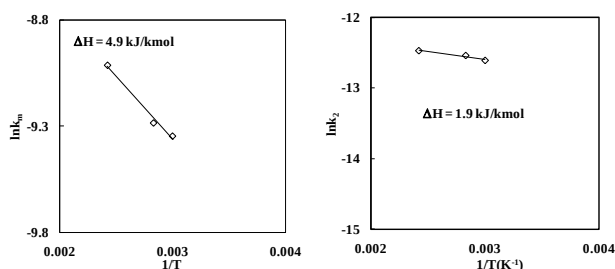


圖 20、磚塊中鈷的萃取動力學參數

3.3 放大除污試驗與模擬

3.3.1 土壤中鈷的放大除污

本計畫使用放大除污設備(萃取槽為 6 L)在 125 g/min 的二氧化碳流速,萃取劑與稀釋劑混合比例為 1/1,而且進料流速為 15 mL/min 的條件下,以 120°C 的操作溫度,調查土壤中鈷的除污效果,並與小型設備(萃取槽為 0.5 L)除污結果作比較,最後再以萃取動力學進行模擬,如圖 21A 所示,其中,實心數據點為實際的實驗結果,實線則為利用萃取動力學模擬的曲線。結果顯示,小型設備與放大設備對於土壤上的鈷最大移除率分別達~45%與~37%。顯示放大萃取槽後,雖然經過 6 小時的萃取之後,其最大移除率仍然偏低,推測主要是因為放大設備所載入的金屬總量較多所致。如果考慮 D2EHPA 的耗量與載入的鈷量為基礎來進行比較的話,則可以發現放大設備之實際除污效果較小型設備為佳,而模擬結果則與小型設備差異不大,如圖 21B。推測主要係因為放大設備的 L/D = 4.8 而小型設備的 L/D = 3.3(19.7/5.9),因為較大的 L/D 會有較長的滯留時間,所以 D2EHPA 的使用效率較佳。此外,由於放大設備的模擬曲線係根據小型設備的參數進行模擬,因此放大設備的模擬曲線才會與實際的萃取效果有所差異。如果依照圖 211B 的趨勢來看,只要足夠的 D2EHPA 輸入量,也應該可以使最大移除率達到 45%的程度。

另外,兩組實驗因為操作條件不同,所以也可能造成最大移除率不同。小型設備的土壤載入量、二氧化碳流量及萃取劑與稀釋劑流速分別為 450 g、30 g/min 及 4.5 ml/min,其比例為 15:1:0.15,而放大後的設備之土壤載入量、二氧化碳流量及萃取劑與稀釋劑流速分別為 6000 g、125 g/min 及 15 ml/min,其比例為 48:1:0.12。依據萃取的動力學模式,金屬萃取的最大移除率受到溶質在超臨界二氧化碳中的溶解度以及質傳速率所影響。如果比較兩組實驗二氧化碳在萃取槽內的線性流速,則其線性流速大致相同,因此推測質傳係數應該相近。但是放大設備的稀釋劑與萃取劑濃度則大約只有小型設備的 80%,因此放大設備的輔溶劑濃度偏低,所以可能影響超臨界流

體的物性進而使得超臨界流體對溶質的溶解力降低,因此降低了最大移除率。所以,如果可以增加萃取劑與稀釋劑混合溶液的流速至 18.75 mL/min 以上,則最大移除率應可以更有效提升。

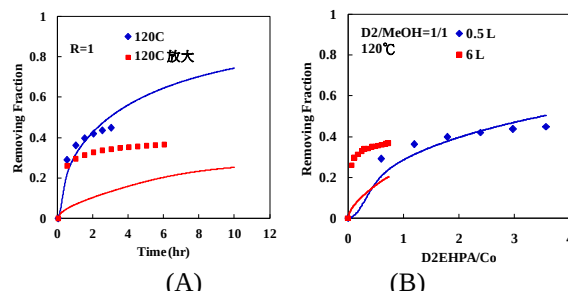


圖 21、小型設備與放大設備與之鈷除污效果比較

3.3.2 磚塊中鋇的放大除污

鋇-90 為核分裂的原料之一,其半衰期約為 30 年,在核反應爐的用過核燃料及核廢料中佔有重要分量,未來也需要進行處理,因此本計畫嘗試進行鋇的除污。結果發現,磚塊中鋇的除污與鈷的除污結果有相似的趨勢,如圖 22 所示。因此本計畫進一步使用放大設備在 150 g/min 的二氧化碳流速,萃取劑與稀釋劑混合比例為 1/1,進料流速為 15 mL/min 的條件下,以 120°C 的操作溫度,調查磚塊上的鋇除污效果,並與萃取槽為 0.5 L 設備之除污結果作比較,如圖 23A 所示,其中,實心數據點為實際的實驗結果,實線則為利用萃取動力學模擬的曲線。3 小時的除污結果顯示,0.5 L 設備與 6 L 設備對於粉碎磚塊上的鋇最大移除率分別約達~70%與~20%。顯示放大萃取槽後,雖然經過 3 小時的萃取之後,其最大移除率仍然偏低,推測主要是因為放大設備所載入的金屬總量較多所致。如果考慮 D2EHPA 的耗量與載入的鋇量為基礎來進行比較的話,則可以發現 6 L 設備之除污效果與 0.5 L 設備差異不大,如圖 23B。

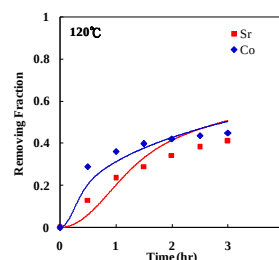


圖 22、土壤中鈷與鋇除污結果比較

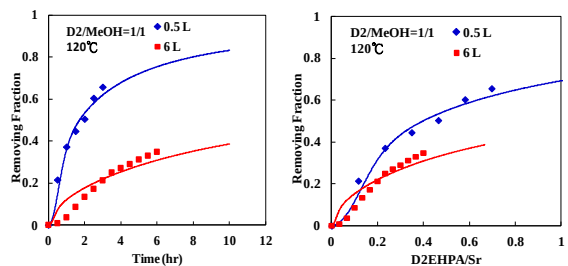


圖 23、小型設備與放大設備與之鋇除污效果比較

IV. 結論

本計畫獲致以下結論:

1. 受鈷污染的活性碳、土壤及建築瓦礫,可有效利用超

- 臨界流體萃取技術加以部份移除，使用小型設備時，土壤中鈷的移除率可達 45%，建築瓦礫中鈷的移除率可達 80%，而使用放大設備時，土壤中鈷的移除率可達 37%，建築瓦礫中鋁的移除率可達 37%，對於土壤及建築瓦礫的除污具有正面意義。
- 藉由超臨界層析儀進行萃取劑於各基材中的吸附行為研究，可進一步得知萃取劑於活性碳、土壤及建築瓦礫中具有不同的吸附行為，對於萃取動力學參數的模擬及預測有所助益。
 - 當溫度增加時，萃取劑於基材表面的吸附量會增加，使萃取劑易於與金屬進行反應而達到提升萃取率的效果。
 - 本計畫所建立的動力學模式在不同萃取劑與稀釋劑比例及不同溫度等操作條件下，可有效預測鈷的萃取除污結果，對於放大試驗的預測結果，可作為未來實場放大的依據。
 - 鈷萃取方面，擴散速率常數 k_m 及離子交換反應常數 k_2 與溫度呈正相關，推測整個萃取程序是由表面擴散及離子交換反應主導，本計畫更可利用萃取劑在各基材上的吸附行為來計算表面擴散活化能及表面吸附活化能。
 - 最大萃取常數 β_m 與萃取效率有關，但由於 β_m 受到多個參數影響，因此本計畫尚未釐清 β_m 與溫度或其他參數之間的相關性。
 - 本計畫證實使用超臨界二氧化碳於土壤及建築瓦礫的除污為可行的技術，對於後續的放大設計，也能提供具體的數據做參考。
 - 本計畫已確認萃取動力學模式在土壤與建築瓦礫除污的適用性，並調查了萃取劑在活性碳、土壤及建築瓦礫的吸附行為，用以精進萃取動力學，可作為未來放大設計之參考。

參考文獻

- [1] 郭子禎, "超臨界流體精密洗淨技術簡介", 經濟部技術處, 超臨界二氧化碳洗淨設備技術引進成果發表會暨 2003 年超臨界流體技術聯誼會, 高雄市, (2003)
- [2] Project: "Solvent waste minimization by supercritical CO₂ cleaning", Craig Taylor, Los Alamos National Laboratory, duration: (9/90-9/96)
- [3] B. Edward, K. Dieter, K S. Schumacher, "Supercritical fluids for single wafer cleaning", Solid State Technology, pp. 117-120, June (1992)
- [4] J. B. McClain, "Design of nonionic surfactants for supercritical carbon dioxide", SCIENCE, Vol. 274, pp. 2049-2052, (1996)
- [5] N. G.. Smart, "Solubility of chelating agent and metal-containing compounds in supercritical fluid carbon dioxide," Talanta, 44, pp. 137-150, (1997)
- [6] C.M.Wai, "Evaluation of dithiocarbamates and β -diketones as chelating agents in supercritical fluid extraction of Cd, Pb, and Hg from solid samples," Talanta, 43, pp. 2083-2091, (1996)
- [7] S. Traian, S. Thomas, and I. B. Eric, "Non-fluorous polymer with very high solubility in supercritical CO₂ down to low pressures," NATURE, Vol. 405, pp. 165-168, (2000)
- [8] M. A. Biberger, "Photoresist and photoresist residue removal with supercritical CO₂ -A novel approach to cleaning wafers," Semiconductor Fabtech-12th Edition, pp. 239-243, (2000)
- [9] C. K. Ober, "Using supercritical CO₂ as an environmental benign processing solvent in nanolithography," 2003 NNUN REU Program at Cornell NanoScale Facility, pp. 36-37, (2003)
- [10] C. K. Ober, "Environmentally friendly resist development using supercritical CO₂," NNUN Abstracts 2002, Materials, Physics, Processes & Characterization, pp. 58, (2002)
- [11] E. Hayduk, "Characterization of supercritical CO₂ developable photoresists for non-wetting surfaces," National Nanofabrication Users Network, pp. 11-12
- [12] C. K. Ober, "Fluoropolymer resists for 157-nm lithography、supercritical CO₂ developable photoresist system," CNF Project#386-90, National Nanofabrication Users Network, pp. 284~287, (2003)
- [13] M.B.Korzenski, "Chemical additive formulations for silicon surface cleaning in supercritical carbon dioxide," 2003 Electrochemical Society, Abs. 792, 2004th Meeting, (2003)
- [14] <http://www.jst.go.jp/report/report347>
- [15] 日本工業新聞, "It is a Washing Solvent about Dry Cleaning and the Supercritical CO₂," 2002.09.26, (2002) http://www.itec-es.co.jp/Ehp3/p_drycleaning.htm
- [16] 詹育智, "利用超臨界流體萃取配合放射性示蹤技術進行矽晶圓表面超潔淨清洗效率之探討," 清華大學原子科學研究所, 碩士論文(1998)
- [17] 吳柏偉, "矽晶圓微量金屬超潔淨研究", 清華大學材料科學研究所, 碩士論文(1999)
- [18] 廖俊雄、姜元昇, "利用超臨界流體清洗半導體晶片的方法與其設備", 中華民國專利, 專利公告號 451337 號, (2000)
- [19] Wei-Lung Chou,, Chih-Ta Wang, Kai-Chiang Yang, Yen-Hsiang Huang, "Removal of gallium (III) ions from acidic aqueous solution by supercritical carbon dioxide extraction in the green separation process," Journal of Hazardous Materials 160 (2008) 6-12
- [20] Wei-Lung Chou, Kai-Chiang Yang, "Effect of various chelating agents on supercritical carbon dioxide extraction of indium(III) ions from acidic aqueous solution," Journal of Hazardous Materials 154 (2008) 498-505
- [21] S. M. Chitanvis, C. W. Patterson, W. D. Spall, and K. E. Laintz, "Dynamics of particles removal by supercritical carbon dioxide," in supercritical fluid cleaning, ed. by J. McHardy and S. P. Sawan, 2000, NOYES Pub., Westwood, NJ, USA
- [22] S. N. Joung, S. J. Yoon, S. Y. Kim, K. P. Yoo, "Extraction of Lanthanide ions from aqueous solution by modified supercritical CO₂: tri-n-butylphosphate + CO₂ and bis-2-ethylexylhexyl phosphoric acid + CO₂," J. Supercritical fluids, 18 (2000) 157-166
- [23] Y. Meguro, S. Iso, Z. Yoshida, O. Tomioka, Y. Enokida, I. Yamamoto, "Decontamination of uranium oxides from solid wastes by supercritical CO₂ fluid leaching method using HNO₃-TBP complex as a Reactant," J. Supercritical fluids, 31 (2004) 141-147
- [24] Vincent, T.; Mukhopadhyay, M.; Wattal, P.K. "Direct in situ supercritical fluid extraction of neodymium ion

- from its oxide using thenoyl tri fluoro acetone-tri butyl phosphate-methanol in carbon dioxide,” J. Supercritical fluids, 48 (2009) 230-237
- [25] Y. Enokida, I. Yamamoto, C. M. Wai, “Extraction of uranium and lanthanides from their oxides with a high-pressure mixture of TBP-HNO₃-H₂O-CO₂” ACS Symposium Series, 860 卷 10-22 頁, 2003
- [26] Enokida, Youichi; Yamamoto, Ichiro. “Vapor-liquid equilibrium of UO₂(NO₃)₂•2TBP and supercritical carbon dioxide mixture.” J.Nucl.Sci.Technol., Suppl.3 卷 270-273 頁 2002
- [27] Tomioka, Osamu; Enokida, Youichi; Yamamoto, Ichiro., “Selective recovery of neodymium from oxides by direct extraction method with supercritical CO₂ containing TBP-HNO₃ complex,” Separation Science and Technology, 37 卷 5 号 1153-1162 頁 2002
- [28] O. Tomioka, Y. Meguro, Y. Enokida, I. Yamamoto, A. Yoshida, “Dissolution behavior of uranium oxides with supercritical CO₂ using HNO₃-TBP complex as a reactant,” Journal of nuclear science and technology, 38 (2001) 1097-1102
- [29] T.Shimada,S.Ogumo,K.Sawada,Y.Enokida,I.Yamamoto, “Selective extraction of uranium from a mixture of metal or metal oxides by a tri-n-butylphosphate Complex with HNO₃ and H₂O in supercritical CO₂,” ANALYTICAL SCIENCES, 22 卷 11 号 1387-1391 頁 2006/11
- [30] K.Sawada,Y.Enokida,I.Yamamoto, “Extractability of metals in municipal solid wastes fly ash using supercritical CO₂ containing Cyanex 302,” ANALYTICAL SCIENCES, 22 卷 11 号 1465-1467 頁 2006/11
- [31] J. S. Wang, M. Koh, C. M. Wai, Nuclear Laundry using supercritical fluid solutions,“ Ind. Eng. Chem. Res. 43 (2004) 1580-1585
- [32] 王少芬、魏建謨, 核廢料處理的新技術—超臨界流體萃取, Chemistry (The Chinese Chem. Soc., Taipei), 61 (2003) 1-9
- [33] C. M. Wai, S. F. Wang, “Supercritical fluid extraction: metal as complexes,” Journal of chromatography A,” 785 (1997) 369-383
- [34] C. Erkey, “Supercritical carbon dioxide extraction of metals from aqueous solutions: a review,” Journal of supercritical fluids, 17 (2000) 259-287
- [35] J. Sunarso, S. Ismadji, “Decontamination of hazardous substrates from solid matrices and liquids using supercritical fluids extraction: a review,” Journal of hazardous materials, 161 (2009) 1-20
- [36] C. M. Wai, “supercritical fluid extraction technology for nuclear waste management,” in Hazardous and radioactive waste treatment technologies handbook, ed. H. O. Chang, 2001, CRC Press
- [37] . Jackson, J. L. Fulton, “Surfactants and microemulsions in supercritical fluids,” in Supercritical fluid Cleaning, ed. by J. McHardy and S. P. Sawan, 2000, NOYES Pub., Westwood, NJ, USA
- [38] D. L. Apodaca, E.R. Birnbaum, T. M. McCleskey, T. M. Young, “Extraction of metals from soils using fluoro-supported ligands in CO₂” in Nuclear site remediation, ed. by P. G. Eller and W. R. Heineman, 2000, ACS symposium series 778
- [39] Febrianto, J., Kosasih, A.N., Sunarso, J., Jua, Y.H., Indraswati, N., Ismadji, S., “Equilibrium and kinetic studies in adsorption of heavy metals using biosorbent: A summary of recent studies,” J. Hazardous Materials, 162 (2009) 616-645
- [40] Vijayaraghavan, K., Palanivelu, K., Velan, M., “Biosorption of Copper(II) and Cobalt(II) from Aqueous Solutions by Crab abd Shell Particles,” Bioresource Technology, 97 (2006) 1411-1419
- [41] Wankat, P.C., “rate-controlled separations,” Kluwer, Amsterdam, the Netherlands, 1990
- [42] Chung, S.F., Wen, C.Y., “Longitudinal dispersion of liquid flowing through fixed and fluidized beds,” AIChE J., 14 (1968) 857-866; Wen, C.Y., Fan, L.T., “Models for flow systems and chemical reactors,” Marcel Dekker, New York, 1975
- [43] Chang, C.J., Day, C.Y., Ko, C.M., Chiu, K.L., Densities and P-x-y diagrams for carbon dioxide dissolution in methanol, ethanol, and acetone mixtures, Fluid Phase Equilibria 131 (1997) 243-258

放射性碘治療患者住院與返家輻射劑量評估及影響因子探討

The Evaluation of Hospital and Household Radiation Exposure from Patients Receiving Radioiodine therapy and Influence from Related Factors

計畫編號：101-2623-E-182A-001-NU

計畫類別：☒個別型計畫 ☐整合型計畫

計畫主持人：郭昇峯

e-mail：shengfoung@gmail.com

計畫參與人員：林仁德、林昆儒、劉妙真、陳晃洋、詹勝傑、陳思達、江坤俊

執行單位：長庚醫療財團法人基隆院區新陳代謝科

摘要

本計畫研究需接受 30mCi 以上大劑量放射碘治療因而要住院隔離的甲狀腺癌患者。於住院期間、剛出院一個星期內返家後這三個階段分別以輻射偵檢儀，全身掃描，以及 Thermoluminescent Dosimeter (TLD)量測患者的體外劑量，而在出院返家時，給予每位患者 TLD 帶回家固定在家中客廳、臥室、浴室。一個月後將 TLD 取回送至核能研究所分析。同時我們觀察患者之接受治療時的血液中的血球及發炎指數 CRP 在作放射碘治療前後的變化，以及是否接受基因重組甲促素(recombinant human thyrotropin, Thyrogen) 進行統計分析求得當中的相關性。

目前由核能研究所完成了 76 名病患出院後膠片配章的計讀。另外共有 101 名病患在服用大劑量碘-131 出院後，完成抽血報告，血液中白血球在服用大劑量碘-131 之前及一星期後有明顯下降。未施打及施打基因重組甲促素兩組之間白血球下降幅度則有差異，其他在血紅素血小板及 CRP 則差異較小。這些本土資訊提供放射性碘治療的甲狀腺癌患者接受放射碘治療的住院及出院後輻射防護建議。

關鍵詞：甲狀腺癌、放射碘、基因重組甲促素、腎功能、輻射安全。

Abstract

This study surveyed thyroid cancer patients with large dose of 30 mCi or more I-131 therapy who needed to be admitted to the isolation room in the hospital. The patients' radiation exposure will be

measured in three different stages. During admission, we will use Ludlum Model 375 radiation detector system to measure the dose rate of each patient after administration of radioiodine. On the 3rd, 5th and 8th day after administration of radioiodine, patients will undergo whole body scintigraphy. At patients' discharge, TLD will be given for patients to place in the living room, bed room and bathroom of their houses. TLDs will be retrieved one month later and sent to INER for analysis. The analysis of the serum inflammatory marker and bone marrow suppression markers before and after radioiodine therapy between thyroxine withdrawal and recombinant human thyrotropin injection groups were also performed.

There have been 76 patients who completed the reading of thermo luminescent dosimeter by INER after their discharge from large dose of radio-iodine therapy. In addition, there have been 101 patients who completed the blood test. The WBC count was decreased one week after radioiodine treatment compared with that before radioiodine treatment. The WBC count was lower in patients with thyroxine withdrawal than those with recombinant human thyrotropin injection, but no difference in RBC count, platelet count and serum CRP level. The data gives useful information in thyroid cancer patients taking high dose of radioiodine treatment, and helps to suggest dose adjustment concerning about radiation safety for patient themselves and our environment.

Keywords: thyroid cancer, radioiodine, rh-TSH, renal function, radiation safety.

I. 前言

本計畫研究對象為罹患甲狀腺癌，臨床評估需接受 30mCi 以上大劑量放射碘治療因而要住院隔離的患者。我們需要本土資訊放射性碘治療患者以給予接受放射碘治療的國人住院及出院後輻射防護建議。

II. 主要內容

本研究將於住院期間、剛出院一個星期內返家後這三個階段分別以輻射偵檢儀，全身掃描，以及 Thermoluminescent Dosimeter (TLD)量測患者的體外劑量，而在出院返家時，給予每位患者 8 個 TLD 帶回家固定在家中客廳、臥室、浴室、廚房。一個月後將 TLD 取回送至核能研究所分析。同時我們觀察患者之接受治療時的血液中的血球及發炎指數 CRP 在作放射碘治療前後的變化，以及是否接受基因重組甲促素(recombinant human thyrotropin, Thyrogen) 進行統計分析求得當中的相關性。

III. 結果與討論

目前共有 101 名病患在服用大劑量碘-131 出院後，有 76 名由核能研究所完成了出院後膠片配章的計讀。分組前患者返家後一個月對家中空間輻射劑量增加的影響如下：客廳 0.12 毫西弗，臥室 0.18 毫西弗，浴室 0.12 毫西弗。若將患者分為施打以及未施打基因重組甲促素兩組，則施打基因重組甲促素組對客廳、臥室、及浴室的輻射劑量影響較高。

另外，在大約 101 位有抽血報告的病人中，我們發現血液中白血球在服用大劑量碘-131 之前及一星期後有下降，其他在血紅素血小板及 CRP 則沒有差異。未施打及施打基因重組甲促素兩組之間白血球下降幅度則有差異，其他在血紅素血小板及 CRP 則差異較小。

IV. 結論

■ 明確量化出國內接受大劑量放射碘-131 治療的甲狀腺癌病患對醫護人員、照料者等關鍵群體的非預期劑量影響時間表，如此核醫醫師、輻

射防護師或臨床醫師可利用此劑量影響時間表來決定外釋返家的最佳時間，以及提供患者客製化的居家輻射防護依循。

- 血液中白血球在服用大劑量碘-131 之前及一星期後有下降，其他在血紅素血小板及 CRP 則沒有差異。未施打及施打基因重組甲促素兩組之間白血球下降幅度則有差異，其他在血紅素血小板及 CRP 則差異較小。
- 另外，我們比較施打人工合成促甲狀腺素(rh-TSH)及 thyroxine withdrawal 兩種方法腎功能(Ccr) 前後的變化，進而影響 I-131 從腎臟排除的速率。血液中的血球在施打人工合成促甲狀腺素(rh-TSH)及 thyroxine withdrawal 兩組也有所不同。

參考文獻

1. Schlumberger M.J., Papillary and follicular thyroid carcinoma N Engl J Med, **338**, 297-306 (1998)
2. Siegel J.A., Revised Nuclear Regulatory Commission regulations for release of patients administered radioactive materials: outpatient iodine-131 anti-B1 therapy J Nucl Med, **39**, 28S-33S (1998)
3. Sisson J.C., Freitas J., McDougall I.R., et al., Radiation safety in the treatment of patients with thyroid diseases by radioiodine 131I : practice recommendations of the American Thyroid Association Thyroid, **21**, 335-346 (2011)
4. Grigsby P.W., Siegel B.A., Baker S., et al., Radiation exposure from outpatient radioactive iodine (131I) therapy for thyroid carcinoma JAMA, **283**, 2272-2274 (2000)
5. de Carvalho J.W., Sapienza M., Ono C., et al., Could the treatment of differentiated thyroid carcinoma with 3.7 and 5.55 GBq of (131I)NaI, on an outpatient basis, be safe? Nucl Med Commun, **30**, 533-541 (2009)
6. Menzel C., Kranert W.T., Dobert N., et al., rhTSH stimulation before radioiodine therapy in thyroid cancer reduces the effective half-life of (131I) J Nucl Med, **44**, 1065-1068 (2003)
7. Hanscheid H., Lassmann M., Luster M., et al., Iodine biokinetics and dosimetry in radioiodine therapy of thyroid cancer: procedures and results of a prospective international controlled study of ablation after rhTSH or hormone withdrawal J Nucl Med, **47**, 648-654 (2006)
8. Hermanska J., Karny M., Zimak J., et al., Improved prediction of therapeutic absorbed doses of radioiodine in the treatment of thyroid carcinoma J Nucl Med, **42**, 1084-1090 (2001)

放射治療計畫系統給予劑量之評估驗證與劑量測量技術開發研究

Development of the dose delivery verification method and measurement technology for radiotherapy planning system

計畫編號：NSC 102 - 2623 - E - 010 - 003 - NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：許世明

e-mail：smhsu@ym.edu.tw

計畫參與人員：李振弘、蕭安成、劉任哲、李偉誌

執行單位：國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系

摘要

國內每年約有 120 萬人次的病患接受放射治療；對於放射治療而言，輻射安全與劑量給予的準確性是一重要議題；本研究進行放射治療計畫系統給予劑量之評估驗證與劑量測量技術開發研究。實驗結果顯示照野因子、及照野平坦性與對稱性，測量值與射束資料最大劑量誤差分別為 1.6%、3.2%、及 2.6%，故自行設計之劑量測量方式穩定性高；亦探討射束參數，量測劑量值與醫院射束資料相互吻合；而自行設計之不均質假體用於測量放射治療計畫系統，可判定各演算法劑量給予之差異，顯示此不均質郵校假體具有鑑別放射治療計畫系統演算的能力。

關鍵詞：放射治療，假體，輻射劑量。

協助主管機關評估各臨床單位劑量校驗的準確性，達到提升我國臨床放射治療品質之目的。

II. 主要內容

放射治療在癌症的應用，越來越廣泛，治療計畫系統劑量給予之準確性為一重要議題，本研究除了進行直線加速器基本輸出的劑量驗證外，亦建立放射治療計畫系統劑量驗證模式，確保輻射劑量輸出的準確性。人體解剖構造包含許多不同密度的物質，當高能光子射束穿透各種密度的物質時，將會造成不同程度的劑量沉積；然而，不同治療計畫系統所使用的劑量演算法，其輻射與物質作用方面略有不同，將造成計算治療劑量之差異；因此，本研究設計不均質物質假體進行測量，藉以評估 TPS 劑量給予之準確性。

Abstract

Nearly 1.2 million cancer patients receive radiation treatments per year in Taiwan. Radiation safety and dose accuracy are the important issues for these treatments. Therefore, we developed the dose delivery verification methods and measurements technology for radiotherapy planning system. Our results demonstrated that the maximum dose difference of the verification on dosimetric parameter, field size factor, field flatness and symmetry were 1.6%, 3.2% and 2.6% respectively. The self-designed methods of dose measurement were stable. By using the dose measurement, the beam parameters calculated values were consistent with hospital beam data. The application of self-designed inhomogeneous postal phantoms on the dose output of treatment planning system can measure the difference of inhomogeneous correction capability between each algorithm. Accordingly, the inhomogeneous postal phantoms have the function to identify the correction capability of algorithms.

Keywords: phantom, radiation dose, radiotherapy.

III. 結果與討論

本實驗 TLD 測量值與游離腔測量劑量，最大差異為 1.6%，證明本實驗所自行設計的劑量評估驗證系統是可行的。該系統量測值與臨床射束資料相互比較，TPR 差異小於 2%，符合游離輻射防護法之輻射醫療曝露品質保證標準所規定。EBT3 與 TPS 演算法在均質情況下，於深度 2 cm 處，AAA 與 EBT3 底片平均差異為 1.2%，PBC 與 EBT3 底片平均差異為 0.05%；而在深度 8 cm 處 AAA 與 EBT3 底片平均差異為 1.1%，PBC 與 EBT3 底片平均差異為 0.6%。郵寄劑量稽核系統在國外已有數十年的發展歷史，早期主要針對射束參數執行劑量驗證，近期逐漸發展各式擬人型郵寄假體，進行放射治療計畫系統劑量輸出準確性驗證，由發展過程可見到，郵校假體設計逐漸朝向簡單化，以降低假體重量，進而節省郵寄成本，亦可減少各醫院操作人員執行劑量照射之架設誤差。

IV. 結論

以郵寄方式將郵校系統及郵校程序書，送至國內各大醫療院所執行劑量驗證，統計分析國內醫療機構間，劑量輸出的穩定性及治療計畫系統給予劑量之準確性，可提供主管單位執行國內放射治療設備醫療曝露品保作業之參考；亦期望能建立國內郵寄劑量計劑量稽核系統，以提升國內放射治療品質。

參考文獻

- [1] Radiotherapy and Oncology 2007;84:67-74.
- [2] Radiotherapy and Oncology 2012;102:135-141

I. 前言

劑量計驗證系統在國外已行之有年，而台灣每年約有 120 萬人次接受放射治療，為了維護病人的治療品質，進行劑量驗證是必須的，但台灣並非 IAEA 之會員國，亦僅有少部分醫院曾參與過美國 RPC 劑量驗證系統；加上我國尚未建立標準化的劑量驗證技術，以進行國內放射治療儀器劑量輸出及 TPS 給予劑量之評估驗證；因此本研究提供國內建立放射治療劑量驗證系統的參考數據，

核醫個人劑量系統之研發

Development of A Patient-Specific Dosimetry System

計畫編號：NSC 102-NU -E-007 -007 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：莊克士

e-mail：kschuang@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：陸正昌、林信宏、詹美齡

執行單位：國立清華大學醫環系

摘要

在這個計劃裡，我們結合個人劑量系統與 TLD 實際劑量的測量，來推斷在核醫檢查時，個體所受的劑量以及各器官的時間-活度曲線 (time-activity curve)。我們將 TLD 貼在身體表面數個位置，以測量 TLD 所接收到的吸收劑量。假設射源是集中在少數幾個重要器官(可由核醫影像得知)，則由 SimSET 算出每個射源器官到各個 TLD 及全身的 S 值，經由簡單的矩陣運算，可推出各個射源器官的總衰變數與全身的總劑量。若是分段計測得到不同時期的 TLD 劑量，可推知各射源活度的時間變化曲線。這提供一種新的非侵入式方法，在核醫檢查時測量體內各器官藥物濃度隨時間的變化。它可以應用在核醫放射免疫治療(radioimmunotherapy；RIT)或標靶治療(target therapy)上；RIT 使用的輻射劑量非常大，因此各器官(腫瘤與靈敏組織)的劑量分布對於治療計畫是相當重要的。RIT 的個人劑量因為核種特性、器官吸收差異、生物動力學的不同等問題導致不易正確地評估。本方法能更精確的評估治療所需的藥量，對於病人治療的效果影響很大。初步成果已寫成論文並為國際 SCI 期刊(*Rad Prot Dosimetry* [1] 與 *Phys Rad Chem*[2])所接受。

關鍵詞：核醫，個人劑量，時間-活度曲線，SimSET，熱發光劑量計。

Abstract

In this project, we will combine the modified SimSET dose system with TLD measurements for whole-body dose evaluation in clinical setting. Numerous TLD will be placed around the surface of a phantom during nuclear examination (PET or SPECT). Assuming the activities are limited to a few organs, we can compute the S value of individual organ to each TLD by SimSET simulation. Since the measured dose in TLD is contributed from each organ, we can compute the total decay for each organ using simple linear algebra. Finally, the total dose to whole body can be calculated. Furthermore if the TLDs were read at different time, using the same scheme we can calculate the total decays of each tissue within the two measurements and the time-activity curve of each tissue can be generated. This is a novel noninvasive method to monitor the change of drug concentration as a function of time during the nuclear examination. This method can be applied to radioimmunotherapy (RIT). As the dose employed in RIT is very high and the knowledge of dose distribution in organs is important to the treatment planning. Due to the wide variation in nuclide, tissue absorption, pharmaceutical

dynamics among each individual the patient-specific dosimetry is difficult to obtain. Our method can estimate the dose distribution to each organ and is able to determine more accurate the amount of isotopes to be administered. This will improve the outcome in RIT. Part of the results was accepted to be published in *Rad Prot Dosimetry* (SCI) [1] and *Phys Rad Chem* (SCI) [2].

Keywords: nuclear medicine, patient-specific dose, time-activity curve, SimSET, TLD

I. 前言

本實驗室將核醫影像常用之 Monte Carlo (MC)模擬軟體 SimSET (Simulation System for Emission Tomography)修改為核醫劑量評估程式，並命名為 SIMDose。它是 image-based 個人化劑量評估系統，可根據核醫影像之像素值，直接計算在該活度分布下整體器官之劑量分布。但是若要求得整個診療過程身體所獲得的輻射劑量，則必須有器官在不同時間的活度分布資訊，再把各時間點得到的劑量分布對時間積分才可。不同時間的活度分布可利用 PET 或 SPECT 持續的對病人進行掃描得到，但這需要耗費相當多的人力與物力。這個計劃的主要目的是利用 TLD 貼在體外表皮，取代 PET 或 SPECT 的掃描，去測量不同時間點到的劑量，再進一步推知各器官的活度分布，並計算出整體劑量。

II. 主要內容

我們利用熱發光劑量計(TLD)方法得到核醫檢查時，射源在各器官的總衰變數，再據以計算全身劑量。假設射源是集中在少數幾個重要器官(可由核醫影像得知)，我們將以 TLD 貼在身體表面數個位置(數目由射源器官的多寡決定)，可測量到核醫檢查時 TLD 所接收到的吸收劑量。則由 SIMDose 算出各個射源器官到 TLD 的 S 值(cGy/MBqs)，經由簡單的矩陣運算，可推出各個射源器官的總衰變數；最後即可評估在整個檢查過程中全身的總劑量。令 S_{ij} 值代表在 j 射源到第 i 顆 TLD 所造成的能量沉積， S_{ij} 可利用 SIMDose 方法計算而得。則身體四周 TLD 的劑量可以表示為

$$\begin{cases} D_1 = \tilde{A}_1 S_{11} + \tilde{A}_2 S_{12} + \tilde{A}_3 S_{13} + \tilde{A}_B S_{1B} \\ D_2 = \tilde{A}_1 S_{21} + \tilde{A}_2 S_{22} + \tilde{A}_3 S_{23} + \tilde{A}_B S_{2B} \\ D_3 = \tilde{A}_1 S_{31} + \tilde{A}_2 S_{32} + \tilde{A}_3 S_{33} + \tilde{A}_B S_{3B} \\ D_4 = \tilde{A}_1 S_{41} + \tilde{A}_2 S_{42} + \tilde{A}_3 S_{43} + \tilde{A}_B S_{4B} \end{cases} \quad (1)$$

其中 $\tilde{A}_i$ 代表在器官 i 所發生的總衰變量， D_i 為 TLD_i 所測

得的劑量。由於 S_{ij} 已知，利用簡單聯立方程式求解，可得到各個器官的 A_j 。一旦算出各器官的總衰變數，即可得到全身劑量。

若在診療過程的不同時期，持續用 TLD 分段去測量表面劑量，並據以算出不同時間點各個器官的 A_j 與全身劑量，再對時間積分就可得到整個診療過程的總劑量。

III. 結果與討論

我們完成以熱發光劑量計(TLD)貼在 NEMA-like 的圓柱假體 (直徑=20 公分;長=16 公分) 表面(如圖一所示)，模擬核醫檢查時 TLD 所接收到的吸收劑量。NEMA-like 的假體內有三顆直徑分別為 8 (A1), 6(A2), 4(A3) 公分的小球。TLD 擺放的位置是以到各射源最短距離為基礎，由於背景體計較大，並未有一個最小距離，我們就最後決定其位置，並選擇遠離其他 TLD 之處。表一列出由 SIMDose 算出假體內各個射源器官到 TLD 的 S 值 (mGy/MBq s)，可看出除了背景(AB)外，其餘射源都有一顆 TLD 離它最近，其 S 值也遠高於其他 TLD。照射時間經過調整使得總衰變數(光子數目)為定值(~108)。在照射一段時間之後，我們讀取 TLD 劑量，令其分別為 D_1, D_2, D_3 , 及 D_B 。由於 D_i 為測量值，而 S_{ij} 為已知，經由簡單的矩陣運算，可解出聯立方程式(1)得到各個射源的累積衰變次數，再除以照射時間就可推知各射源活度(A_j)。定義 percent sum of square error (PSSE) 為

$$PSSE = \sqrt{\frac{\sum_i (S_i - C_i)^2}{\sum_i S_i^2}} \times 100\% \quad (2)$$

來評估計算誤差，在此 S_i 與 C_i 分別代表實際值與計算值。表二顯示在 8 種(type01-type08) 不同活度分布下所得到之結果，顯示大部分 PSSE 均小於 3%。我們也測試當 TLD 擺放位置變動 1cm 時所造成 PSSE 也都在 5% 之內(表三)；或 TLD 計讀誤差在 25% 以下時，PSSE 也都維持在 6.5% 左右(表四)。可見本方法在不同情況下皆可獲得準確度相當高的結果。

最後我們以 ORNL 所發展的數位假體來驗證本方法，假體的活度分布係採用 MIRD 所建議的 PET 掃描時 F-18 在體內的時間活度曲線(time-activity curve; TAC)。在注入 F18 後，初始時每隔 15 分鐘計讀一次，在一小時後換成每隔 60 分鐘計讀，每次寄讀時共模擬 5 108 衰變。我們將 10 個 TLD 擺放在 ORNL 表面上，其位置如圖二所示，TLD 儘量選擇在靠近器官的表面上。圖三(a)繪出體內 5 個主要器官(腦、心臟、肺、肝與膀胱) 其活度與時間的變化曲線。體內除了主要器官外都設為背景，其活度是注入身體的總活度扣除各器官活度後之剩餘活度，我們假設器官內所有活度都是均勻分布。利用貼在表面 TLD 的計讀劑量，經由方程式(1)的求解，我們可以推估出各器官的活度。圖三(b)將各個器官的活度變化依時間點畫出，估計出的活度變化與原本的趨勢一樣，兩者基本上差異不大。將算出來的活度與原模擬值比較，八個時間點的 PSSE 分別為 8.94%, 17.9%, 19.7%, 11.8%, 14.1%, 5.66%, 8.19%, 及 5.93%，考慮到全身只使用到 10 個 TLD，這種誤差其實不大。圖四(a)顯示當使用模擬的活度分布來推估全身劑量時，其 PSSE 在八個時間點分別為 5.91%, 10.7%, 11.3%, 6.75%, 9.44%, 6.53%, 7.78%, 及 3.71%。劑量率的 PSSE 比活度的小約 30%。

IV. 結論

我們發展出一套藉由體外劑量之測量即可算出體內活度分布的方法，可用來計算診療過程中各器官所受劑量及身體的整體劑量。我們利用 ORNL 假體進行模擬，初步結果顯示本法相當 robust，誤差範圍不大。這個方法可以算出體內藥物濃度的分布隨時間的變化，在藥物動力學研究上的用途非常廣闊。這個方法可以推廣到放射免疫治療(radioimmunotherapy; RIT)，由各器官的時間活度曲線可以估算最佳治療所需的藥量，提升治療的效果。

參考文獻

- [1] KS Chuang, CC Lu, HH Lin, SL Dong, HJ Yang, CT Shih, CH Lin, WL Yao, YC Ni, ML Jan, SJ Chang (2013) Improvements on a patient-specific dose estimation system in nuclear medicine examination, *Rad. Prot. Dosimetry* (SCI).
- [2] CC Lu, HH Lin, KS Chuang, SL Dong, J Wu, YC Ni, and ML Jan (2014) Development and Validation of a Fast Voxel-Based Dose Evaluation System in Nuclear Medicine, *Phys Rad Chem* (SCI)

Table 1. The S values ($\times 10^{-15}$ mGy/MBq.s) of the TLD-object pairs for NEMA-like phantom.

	A_1	A_2	A_3	A_B
D_1	41.1	3.38	1.48	7.36
D_2	3.40	38.0	4.37	10.0
D_3	1.81	5.28	90.3	8.61
D_B	3.16	4.57	11.1	10.7

Table 2. The PSSE of simulated and calculated activities with various distributions in the NEMA-like phantom.

	Type 01		Type 02		Type 03		Type 04		Type 05		Type 06		Type 07		Type 08	
	S	C	S	C	S	C	S	C	S	C	S	C	S	C	S	C
BG	1	0.98	3	3.03	0	0.0	0	0.10	0	0.0	10	9.75	10	10.29	100.0	99.48
A1	5	4.97	3	3.04	0	0.00	0	0.05	10	9.96	0	0.05	10	9.73	7.23	6.74
A2	3	2.91	5	4.96	0	0.00	10	9.59	0	0.02	0	0.02	0	0.00	3.05	2.33
A3	1	1.05	5	4.96	10	9.96	0	0.02	0	0.01	0	0.04	0	0.02	0.90	1.07
PSSE	1.82%		0.4%		0.92%		4.25%		0.46%		2.61%		2.81%		1.03%	

BG: background; S: simulated activity (mCi); C: calculated activity (mCi)

Table 3. The mean and standard deviation of the calculated activities of the NEMA-like phantom from 100 simulations with the TLD placed at various distances away from each optimal location.

		2.5 mm		5.0 mm		7.5 mm		10.0 mm		12.5 mm		15.0 mm		17.5 mm		20.0 mm	
	S	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std
BG	1	0.94	0.12	0.90	0.18	0.95	0.16	1.07	0.27	1.08	0.36	1.12	0.36	1.12	0.40	1.16	0.48
A1	5	5.01	0.03	5.01	0.05	4.93	0.08	4.80	0.15	4.75	0.18	4.71	0.24	4.52	0.28	4.51	0.39
A2	3	2.94	0.05	2.93	0.05	2.91	0.06	2.86	0.09	2.81	0.12	2.76	0.15	2.73	0.17	2.65	0.20
A3	1	1.04	0.01	1.03	0.02	1.01	0.03	0.97	0.05	0.97	0.07	0.95	0.09	0.94	0.09	0.93	0.11
PSSE		1.57%		2.10%		2.08%		4.27%		5.42%		6.63%		9.45%		10.4%	

(C_m , std): mean and standard deviation of calculated activity

Table 4. The mean and standard deviation of calculated activities of the NEMA-like phantom from 100 simulations with various TLD reading errors.

		5%		10%		15%		20%		25%		30%		35%		40%	
	S	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std	C _m	std
BG	1	0.95	0.19	1.02	0.39	0.97	0.56	1.12	0.67	1.21	0.93	1.04	1.05	1.06	1.06	1.16	1.19
A1	5	4.97	0.16	4.95	0.34	5.02	0.45	4.99	0.66	4.70	0.84	4.95	1.09	4.89	1.10	4.93	1.32
A2	3	2.93	0.13	2.86	0.26	2.87	0.40	2.82	0.50	2.89	0.65	2.94	0.77	2.84	0.84	2.81	0.94
A3	1	1.06	0.05	1.05	0.10	1.08	0.15	1.04	0.19	1.00	0.23	1.05	0.29	1.03	0.36	1.03	0.37
PSSE		1.82%		2.63%		2.61%		4.04%		6.37%		1.68%		3.44%		4.34%	

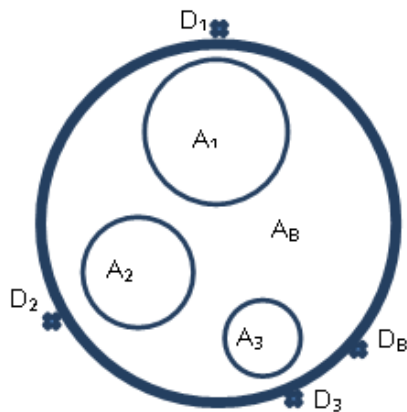


Figure 1. The NEMA-like phantom with three source organs (A₁–A₃) and four TLD (D₁–D₃, D_B) as marked by “x”.

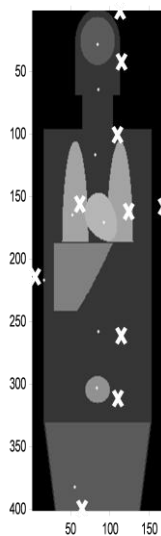


Figure 2. The locations to place TLD on the surface of ORNL phantom. The locations of TLD in the experiment were marked by “x”.

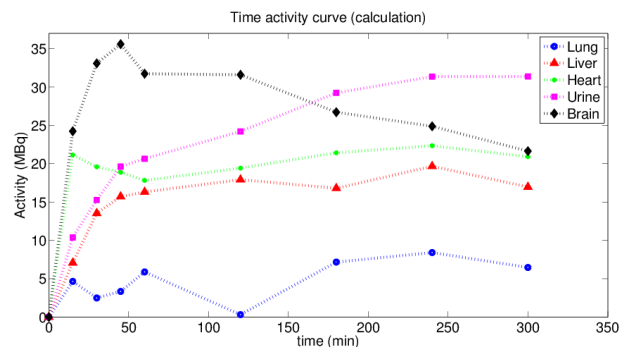
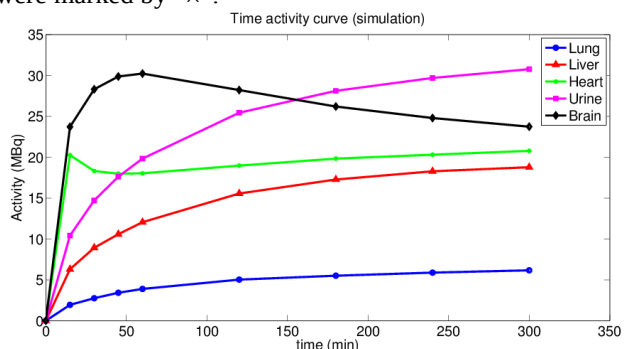


Figure 3. Time-activity curves for decay-corrected FDG activity in normal human brain, heart, lungs, liver, and urine. (a) Simulated TAC (adapted from MIRD 19 report) and (b) calculated TAC.

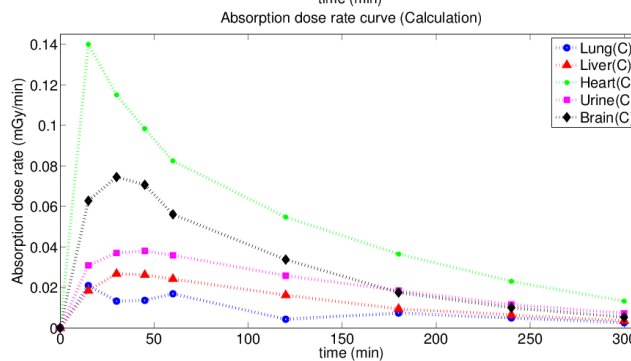
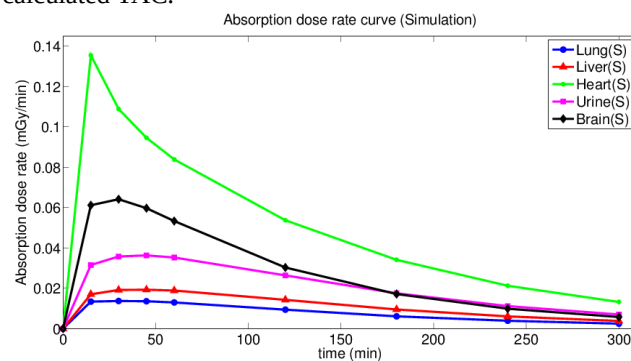


Figure 4. The absorbed dose rates (mGy/min) in normal human brain, heart, lungs, liver, and urine at the time of measurement based on (a) simulated data and (b) calculated data. The dose rate was not normalized for the physical decay.

建置 Tc-99m TRODAT-1 自動化定量分析平台

Establishment of an automated Tc-99m TRODAT-1 quantification analysis system 計

畫編號：NSC 102-NU -E-075 -002 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：楊邦宏

e-mail：bhyang@vghtpe.gov.tw

計畫參與人員：官郁翔

執行單位：臺北榮民總醫院

摘要

^{99m}Tc-TRODAT-1 為核子醫學用於診斷多巴胺神經系統萎縮情形的示蹤劑(tracer)，本研究欲建立一套 ^{99m}Tc-TRODAT-1 自動化專家評估系統對影像進行專一攝取率(specific uptake ratio, SUR)與不對稱性指標(asymmetric index, ASI)之計算，並得到高準確性與高再現性的評估與分期結果，以解決以往 semi-quantification 衍生的耗時費工、再現性(reproducibility)低與人為主觀等問題[1]。

本研究以回溯性方式收集 143 位受試者影像，包含 59 位正常受試者與 84 位帕金森氏症患者。首先以專家系統搭配 MR-based TRODAT(MBT) template、HMPAO-based TRODAT(HBT) template、IBZM template 與 HMPAO template 對正常受試者影像進行分析，並與人工圈選 ROI 結果進行平均變異性(variability)與組內相關係數(intraclass correlation coefficient, ICC)之比較[2]，其中以搭配 MBT template 之結果與人工圈選 ROI 之結果最為接近(variance=9.27%；ICC=0.7)。

使用紋狀體假體模擬不同缺損程度之影像，分別使用專家系統與人工圈選 ROI 的方式比較兩種方法的 SUR 值相關性。在臨床影像試驗中，以視覺檢驗法(visual inspection)對影像依據粗糙分期(rough scale)進行分類[3]，再使用專家系統與人工圈選 ROI 進行分析並觀察兩者 SUR 結果之相關性(相關係數 0.7323)，並以 ROC curve 制定 SUR 分期點[4]。

本研究建置專家評估系統搭配 MBT template，在假體試驗以及臨床試驗中皆證實專家評估系統可取代傳統人工圈選分析方式，可對影像進行高準確性與高再現性之評估與分期。

關鍵詞：自動量化、^{99m}Tc TRODAT-1、藥物空間模板、單光子電腦斷層造影。

Abstract

^{99m}Tc TRODAT-1 is a SPECT dopamine transporter (DAT) tracer that probes dopaminergic cell loss in Parkinson's disease (PD). Semi-quantification by drawing regions of interest (ROIs) manually is a common method to evaluate ^{99m}Tc TRODAT-1 SPECT images. However, it is time consuming, low reproducibility and subjective observer. Our aim was to develop the expert system that could automatically quantify TRODAT-1 SPECT images

The present study collected 59 controls and 84 patients with PD retrospectively. There were the MR based ^{99m}Tc-TRODAT-1 (MBT) template and ^{99m}Tc-HMPAO based TRODAT (HBT) template created by control images. Then

MBT template, HBT template, 123I-IBZM template and ^{99m}Tc-HMPAO template were compared with manual ROI analysis, respectively. The images of striatal phantom were analyzed by expert system and manual ROI analysis, respectively. The specific uptake ratio (SUR) of striatal uptake was delimited into three parts which were normal range, mildly reduced and severely reduced by receiver operating characteristic (ROC) curve.

In the comparison of template, the variability and intra-class correlation coefficient (ICC) between MBT template and manual VOI analysis is better than others, which were 9.27% and 0.7, respectively. In phantom study, the Pearson correlation coefficient between expert system and manual ROI analysis for bilateral striatum is 0.951(p<0.05). The cut points of SUR in rough scale for normal range, mildly reduced and severely reduced of striatal uptake is 0.989 (sensitivity=100%, specificity=97.6%) and 0.438 (sensitivity=87.8%, specificity=64.5%) respectively.

The expert system is useful for the detection of reduced striatal uptake on ^{99m}Tc TRODAT-1 SPECT images automatically, and especially diagnosis in early PD.

Keywords: Automated quantification, ^{99m}Tc TRODAT-1, Template, SPECT.

I. 前言

目前主要是以 visual inspection 或是人工圈選 ROI 進行 semi-quantification 等方式評估 ^{99m}Tc-TRODAT-1 影像的缺損程度，但是上述方式則會因個人主觀而造成人為誤差、耗工費時、再現性低等缺點[1]。為了解決上述的問題，本研究欲建置一套專家評估系統，搭配自製專屬於 ^{99m}Tc-TRODAT-1 的藥物模板進行影像分析[2]，觀察三度空間中紋狀體活性攝取的變化，並進行假體影像試驗與臨床影像試驗，區分不同退化程度的帕金森氏症影像專一攝取率，期改善臨床傳統手工圈選方法之耗時費工、再現性低(reproducibility)及人為主觀等問題。

II. 主要內容

本研究以回溯性方式收集 143 位受試者影像，包含 59 位正常受試者與 84 位帕金森氏症患者。首先使用專家系統搭配 MBT template、HBT template、IBZM template 與 HMPAO template 對 59 位正常受試者影像進行分析，並與人工圈選感興趣區域結果進行平均變異性(variability)與組內相關係數(intraclass correlation coefficient, ICC)之比較，其中以搭配 MBT template 之結果與人工圈選 ROI 之結果最為接近(variance=9.27%；ICC=0.7)。

為了驗證系統準確性，使用紋狀體假體模擬不同缺損程度影像，並分別使用專家系統與人工圈選 ROI 的方式對模擬影像進行分析並觀察兩種方法的左、右以及雙側紋狀體之 SUR 以及 ASI 的相關性，其相關係數分別為 0.91、0.97、0.95 與 0.91 ($p < 0.05$)，呈現高度正相關。

在臨床影像試驗中，首先以視覺檢驗法(visual inspection)對影像依據粗糙分期(rough scale)[3]進行分類，亦使用專家系統與人工圈選 ROI 進行分析並觀察兩者 SUR 結果之相關性，其相關係數為 0.7323 ($p < 0.0001$)，此外亦利用 receiver operating characteristic (ROC) curve 建立 SUR 分期點[4]，用以區別各種不同嚴重程度之影像。

III. 討論

在各項藥物模板比較結果中，MBT template 為四種不同藥物空間模板中最適合專家評估系統來使用，其分析結果與傳統臨床人工圈選 ROI 結果最為接近。假體試驗主要是驗證專家評估系統的可行性(feasibility)與準確性(accuracy)，以傳統臨床所使用的人工方式圈選 ROI 之結果做為比較的對象，採用 Pearson's correlation coefficient 分別對右側紋狀體 SUR、左側紋狀體 SUR、雙側紋狀體 SUR 以及 ASI 之結果觀察兩種不同的分析方法之相關性，其結果皆呈現高度正相關(high-positive correlation)，證明在假體試驗中，可使用專家評估系統代替人工圈選 ROI 的方式進行分析，且其 p value 皆小於 0.05，具有統計意義。

從臨床目視判讀的結果得知，專家系統的分期點在區分正常影像與紋狀體攝取減少影像有著很好的表現，如此一來，在早期帕金森氏症(early PD)病患的診斷上，可比傳統人工圈選 ROI 分析更早發現，甚至是在尚未有臨床表徵前即有可能發現。

IV. 結論

本研究所建置之專家評估系統採用三維空間全自動計算與分析，並搭配 ^{99m}Tc -TRODAT-1 影像專屬的藥物空間模板 MBT template 進行影像正規化，經過假體影像試驗與臨床影像試驗後，已證實在本研究的試驗中可代替傳統人工圈選的方式進行分析，並且在臨床影像中，針對視覺檢驗法的粗糙分期建立專家系統分期點，可正確且有效的對影像進行分期。

參考文獻

- [1] Ralph Buchert, Georg Berding, Florian Wilke, et al. IBZM tool: a fully automated expert system for the evaluation of IBZM SPECT studies. EJNM 2006; 33(9):1073-83
- [2] Aurelie Kas, Pierre Payoux, Marie Odile Habert et al. Validation of a Standardized Normalization Template for Statistical Parametric Mapping Analysis of 123I-FP-CIT Images. J Nucl Med (2007) 48:1459 – 1467
- [3] Wen-Sheng Huang, Meei-Shyuan Lee, Jiann-Chyun Lin, et al. Usefulness of brain ^{99m}Tc -TRODAT-1 SPET for the evaluation of Parkinson's disease. EJNM, 2004; 31:155-161
- [4] W. J. Youden. Index for rating diagnostic tests, Cancer; 3:

氟-18 標誌解膠酵素抑制胜肽 PET 造影劑之研製

Preparation of F-18 Labeled Peptidic Gelatinase Inhibitor for PET Imaging

計畫編號：NSC 102-2623-E-182-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：魏孝萍

e-mail：spwey@mail.cgu.edu.tw

計畫參與人員：鄂婷偉

執行單位：長庚大學醫學影像暨放射科學系

摘要

腫瘤細胞開始移動及轉移之前，需要 matrix metalloproteinase (MMP) 解膠酵素分解細胞基底膜及細胞外基質。許多惡性腫瘤的 MMP 過度表現，使腫瘤 MMP 的分布資訊可以成為檢測腫瘤轉移有價值的生物指標。環狀 CTTHWGFTLC 胜肽(cCTT) 為近期文獻報導一種可抑制解膠酵素功能的環狀胜肽，可用於治療惡性腫瘤。本研究探討以氟-18-氟化鋁方法製備氟-18-AIF-NOTA-cCTT 胜肽耦合物用以發展檢測腫瘤MPP分布的 PET 造影劑。

關鍵詞：氟-18 標誌正子放射斷層掃描藥物，解膠酵素抑制胜肽，腫瘤造影劑。

Abstract

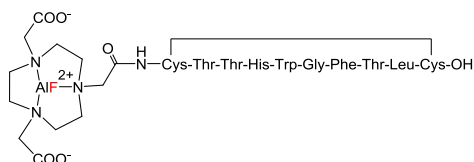
The initiation of migration and metastasis of tumor cells requires gelatinase proteolytic function of matrix metalloproteinase (MMP) to degrade the basement membrane and extracellular matrix. The overexpression of MMP, particularly MMP2 and MMP9, in many tumors makes that the distribution of MMP may become a valuable biomarker to evaluate the capability of distant metastasis of the tumor cells. A cyclic peptide, CTTHWGFTLC (cCTT), was recently reported as an effective MPP gelatinase inhibitor for tumor therapy. The aims of this project are to develop an F-18 labeled CTT-based NOTA-peptide conjugate using F-18-AIF approach as a PET imaging tracer to detect MPP distribution in tumors.

Keywords: F-18 labeled PET tracer, peptidic gelatinase inhibitor, tumor imaging agent.

I. 前言

由結締組織細胞合成的 matrix metalloproteinases (MMP) 酵素為一群鋅依賴中性內胜肽酶，能夠分解大多數細胞外基質，並參與組織重組以及細胞移動。在許多惡性腫瘤，MMP 酵素則會大量表現，這種機制使得腫瘤細胞有能力進行遠端轉移。研究發現 MMP 酵素家族當中的 MMP-2 (gelatinase A) 及 MMP-9 (gelatinase B) 的過度表現與腫瘤病人的不良預後關係密切。抑制 MMP-2 及 MMP-9 應能抑制惡性腫瘤的轉移，因此 MMP-2 及 MMP-9 可以做為腫瘤治療及探測的標靶。

Koivunen 等人利用 phage display peptide libraries 技術篩選出環型 CTTHWGFTLC (cCTT) 胜肽作為 MMP 抑制劑。Hanaoka 等人發展銥-111 標誌 DTPA-cCTT 作為偵測腫瘤細胞解膠酵素的造影劑。然而，銥-111 在國內生產量少價昂，且 SPECT 造影解析度與靈敏度也不如 PET。本研究使用氟-18-AIF 方法製備氟-18 標誌環狀 CTT 胜肽，並評估作為腫瘤表現 MMP 解膠酵素 PET 造影劑之可行性。



II. 主要內容

製備氟-18 標誌 NOTA-cCTT

氟-18-氟離子由林口長庚醫院迴旋加速器設施提供。取一冷凍乾燥 50 µg NOTA-cCTT 試管，加入 3 µl 2 mM 三氯化鋁-2 mM 醋酸钠溶液及 200 µl 氟-18-氟化鈉-生理食鹽水溶液。以 1M 醋酸調整溶液 pH 值至 4，99°C 加熱 10 分鐘完成。

純化氟-18 標誌 AIF-NOTA-cCTT

氟-18-AIF-NOTA-cCTT 溶液以 WFI 稀釋至 5 ml，通過 Oasis HLB Plus Short Cartridge。先以 1 ml WFI 沖洗 Cartridge 兩次，再以 3 ml 20% 乙醇溶液沖洗 Cartridge 一次，最後以純乙醇將產物洗出。以無菌生理食鹽水稀釋乙醇溶液至適當濃度，並通過一 Millex Millex GV 0.22-µm 無菌過濾匣 (Millipore, Bedford, MA, USA) 除菌。

氟-18 標誌 AIF-NOTA-cCTT 化學純度分析

HPLC 為 Agilent 1200 series，分析管柱為 Phenomenex Gemini 5 µm C18 (250 × 4.6 mm)，移動相為含有 0.1% 三氟乙酸之水溶液 (solvent A) 與含有 0.09% 三氟乙酸的 80% 乙腈水溶液 (solvent B) 梯度濃度在 0-20 分鐘內 solvent B 濃度由 35% 提升至 55%；流速為 1 ml/min。220 nm 紫外光吸光度與放射活度分別由系統連接之紫外光光譜儀以及放射活度偵檢器 (Packard 150TR) 計讀。HPLC 圖譜以 Agilent ChemStation for LC and LC/MS systems 軟體進行分析。

III. 結果與討論

醋酸钠濃度影響

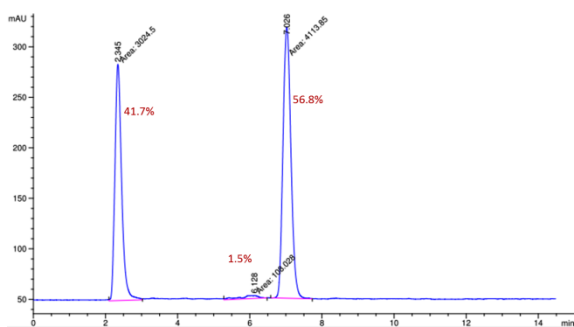
使用 0.1 M 醋酸钠溶液進行標誌反應，未純化前之放射化學產率為 15.0%。若將醋酸钠溶液濃度提升至 0.5 M，其純化前的放射化學產率可提升至 29.4%，但標誌溶液會出現混濁，因此後續實驗仍維持使用 0.1 M 醋酸钠溶液。

反應溶液極性影響

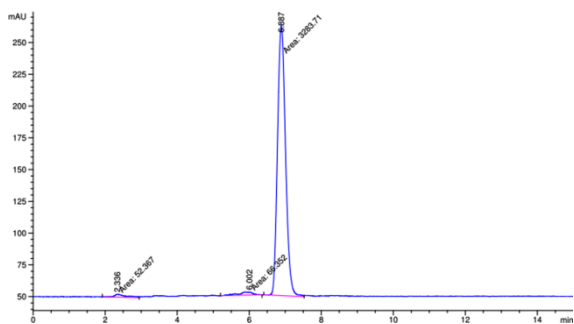
反應溶液中加入與氟-18-氟化鈉溶液等體積之乙醇，其放射化學產率可由 15.0% 大幅提升至 78.3%。

氟-18 標誌 AIF-NOTA-cCTT 純化

使用 Waters Sep-Pak Light C18 Cartridge 管柱純化前放射化學純度為 80.4 ± 3.8% (n = 3)；純化後放射化學純度可提升至 92.3 ± 0.7% (n = 3)，最終產率 18.2 ± 3.0% (n = 3)，管柱殘留為 17.0 ± 3.4% (n = 3)。使用 Waters Oasis HLB Plus Short Cartridge 管柱純化前放射化學純度為 70.6 ± 2.5% (n = 3)；純化後放射化學純度可提升至 98.5 ± 0.6% (n = 3)，最終產率則為 23.8 ± 2.8% (n = 3)，管柱殘留為 2.3 ± 0.8% (n = 3)。Oasis HLB Plus Short Cartridge 管柱優於使用 Sep-Pak Light C18 Cartridge 管柱。



HPLC 分析純化前氟-18 標誌 AIF-NOTA-cCTT 放射性圖譜



HPLC 分析純化後氟-18 標誌 AIF-NOTA-cCTT 放射性圖譜

IV. 結論

本研究使用氟-18-AIF法在水相中成功製備氟-18 標誌環狀CTT胜肽。經由系統性探討反應使用的醋酸鈉濃度、乙醇、pH 值，以及加熱時間，標誌效率可以達到80%。以Waters Oasis HLB Plus Short Cartridge管柱固態萃取法純化氟-18標誌AIF-NOTA-cCTT，放射化學純度可高達98%。然而純化後的產率僅約24%，顯示純化過程會耗損相當量的標誌產物，值得後續研究再改進。後續的研究還包括以腫瘤細胞及荷瘤動物進行體外及體內的生物特性評估，進一步確認氟-18標誌AIF-NOTA-cCTT 做為檢測腫瘤MPP 分布之 PET 造影劑的可行性。

參考文獻

1. Koivunen E, Arap W, Valtanen H, et al. Tumor targeting with a selective gelatinase inhibitor. *Nat Biotechnol* 1999;17:768-774.
2. Hanaoka H, Mukai T, Habashita S, et al. Chemical design of a radiolabeled gelatinase inhibitor peptide for the imaging of gelatinase activity in tumors. *Nucl Med Biol* 2007;34:503-510.
3. Wester HJ, Schottelius M. Fluorine-18 labeling of peptides and proteins. *Ernst Schering Res Found Workshop* 2007;(62):79-111.
4. McBride WJ, Sharkey RM, Karacay H, D'Souza CA, Rossi EA, Laverman P, Chang CH, Boerman OC, Goldenberg DM. A novel method of ^{18}F radiolabeling for PET. *J Nucl Med*. 2009;50(6):991-998.
5. Laverman P, McBride WJ, Sharkey RM, Eek A, Joosten L, Oyen WJ, Goldenberg DM, Boerman OC. A novel facile method of labeling octreotide with ^{18}F -fluorine. *J Nucl Med* 2010;51(3):454-461.
6. Liu S, Liu H, Jiang H, Xu Y, Zhang H, Cheng Z. One-step radiosynthesis of ^{18}F -AIF-NOTA-RGD₂ for tumor angiogenesis PET imaging. *Eur J Nucl Med Mol Imaging* 2011;38(9):1732-1741.
7. Guo J1, Lang L, Hu S, Guo N, Zhu L, Sun Z, Ma Y, Kiesewetter DO, Niu G, Xie Q, Chen X. Comparison of three dimeric ^{18}F -AIF-NOTA-RGD tracers. *Mol Imaging Biol* 2014;16(2):274-283.

8. Wan W1, Guo N, Pan D, Yu C, Weng Y, Luo S, Ding H, Xu Y, Wang L, Lang L, Xie Q, Yang M, Chen X. First experience of ^{18}F -alfatide in lung cancer patients using a new lyophilized kit for rapid radiofluorination. *J Nucl Med* 2013;54(5):691-698.
9. McBride WJ1, D'Souza CA, Karacay H, Sharkey RM, Goldenberg DM. New lyophilized kit for rapid radiofluorination of peptides. *Bioconjug Chem* 2012;23(3):538-547.
10. D'Souza CA1, McBride WJ, Sharkey RM, Todaro LJ, Goldenberg DM. High-yielding aqueous ^{18}F -labeling of peptides via Al ^{18}F chelation. *Bioconjug Chem* 2011;22(9):1793-1803.
11. Kiesewetter DO1, Guo N, Guo J, Gao H, Zhu L, Ma Y, Niu G, Chen X. Evaluation of an [^{18}F]AIF-NOTA analog of exendin-4 for imaging of GLP-1 receptor in insulinoma. *Theranostics* 2012;2(10):999-1009.
12. McBride WJ1, D'Souza CA, Sharkey RM, Goldenberg DM. The radiolabeling of proteins by the [^{18}F]AIF method. *Appl Radiat Isot* 2012;70(1):200-204.
13. Iddon L1, Leyton J, Indrevoll B, Glaser M, Robins EG, George AJ, Cuthbertson A, Luthra SK, Aboagye EO. Synthesis and in vitro evaluation of [^{18}F]fluoroethyl triazole labelled [Tyr₃]octreotate analogues using click chemistry. *Bioorg Med Chem Lett* 2011;21(10):3122-3127.
14. McBride WJ1, D'Souza CA, Sharkey RM, Karacay H, Rossi EA, Chang CH, Goldenberg DM. Improved ^{18}F labeling of peptides with a fluoride-aluminum-chelate complex. *Bioconjug Chem* 2010;21(7):1331-1340.

發展 ^{64}Cu 標誌之錯合物作為第二型拓撲酶表現腫瘤之正子斷層造影劑

計畫編號：102-NU-E-010-0010-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：陳傳霖

e-mail：clchen2@ym.edu.tw

計畫參與人員：張文議、詹振勳

執行單位：國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系

摘要

一系列縮氨基硫脲銅錯合物($\text{Cu}[\text{TSC}]\text{Cl}$)能作為催化抑制第二型拓撲異構酶藥物，其抑制濃度範圍分別介於 $0.78\sim 21.21\mu\text{M}$ 之間。由細胞毒殺試驗中， $\text{Cu}[\text{TSC}]\text{Cl}$ 能夠有效地抑制第二型拓撲異構酶高表現的增生癌細胞(LL/2)；而在細胞型態分析試驗中 $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 能夠誘導 LL/2 細胞產生核濃縮現象。

關鍵字：縮氨基硫脲類化合物，第二型拓撲異構酶

Abstract

The corresponding copper (II) thiosemicarbazone ($\text{Cu}[\text{TSC}]\text{Cl}$) were shown to catalytically inhibit topoisomerase II α a range of drug concentration from 0.78 to $21.21\mu\text{M}$. In cytotoxicity tests were also shown to the $\text{Cu}[\text{TSC}]\text{Cl}$ inhibit the proliferation of cancer cells expressing high levels of topoisomerase II α (LL/2) at lower concentrations. $\text{Cu}(\text{Dp4pT})\text{Cl}$ was also able to induce LL/2 cell nuclear condensation in cell morphological analysis.

Keywords: : Thiosemicarbazone, Topoisomerase II α

I. 前言

過去 30 年來，科學家發現縮氨基硫脲類化合物(Thiosemicarbazone, TSC)有廣泛的生物特性，例如：抗細菌、真菌與抗病毒等[1]；而近幾年更進一步發現縮氨基硫脲類化合物有對抗癌細胞的特性[2]。有許多文獻指出縮氨基硫脲類化合物類化合物及其與銅錯合物皆能有效抑制第二型拓撲異構酶 II 活性。本研究目的為發展一系列新銅縮氨基硫脲類藥物，探討此些藥物抑制腫瘤第二型拓撲異構酶活性及對腫瘤細胞之毒殺能力，並進一步藉由標誌銅-64 以評估其作為第二型拓撲酶表現腫瘤之正子斷層造影劑之潛力。

II. 主要內容

利用加成反應[3,4]，分別合成出四類不同的縮氨基硫脲衍生物；2-乙醯比啉縮氨基硫脲(Pm4pT , Pm44mT)、2-雙比啉縮氨基硫脲(Dp4pT , Dp44mT)、2-甲醛比啉縮氨基硫脲(P4pT , P44mT)及 2-甲醛喹啉縮氨基硫脲(Q44mT)等七個縮氨基硫脲衍生物，再進行銅離子螯合配位，即可得到七個縮氨基硫脲-銅錯合物。經由 Topoisomerase II α 藥物篩檢測定可觀察此些縮氨基硫脲-銅錯合物對於第二型拓撲酶之抑制能力，再利用此些錯合物進行細胞毒殺試驗，並選擇較具毒殺效果的藥物進行腫瘤細胞型態分析，評估腫瘤細胞之第二型拓撲異構酶表現量、藥物毒殺抑制腫瘤細胞之能力與流式細胞儀分析。

III. 結果與討論

本研究所合成之縮氨基硫脲-銅錯合物皆具有抑制第二型拓撲酶活性之能力，此些藥物抑制濃度約在 $0.78\sim 21.21\mu\text{M}$ 之間；其中以 $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 具有最佳之抑制效果(IC_{50} 為 $0.78\pm 0.14\mu\text{M}$)；於第二型拓撲酶高表現的 LL/2 細胞毒殺試驗中，此類縮氨基硫脲-銅錯合物其抑制濃度約在 $0.26\sim 0.69\mu\text{M}$ 之間，而 $\text{Cu}[\text{Dp4PT}]\text{Cl}$ 的抑制效果最佳(GI_{50} 為 $0.26\pm 0.02\mu\text{M}$)；而低表現第二型拓撲酶的 MCF-7 細胞其抑制濃度約在 $0.64\sim 1.16\mu\text{M}$ 之間。腫瘤細胞型態分析結果發現，於培養液加入 $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 之 LL/2 細胞與 MCF-7 細胞後皆有明顯核濃縮現象。流式細胞儀結果顯示 LL/2 細胞加入 $\text{Cu}[\text{Dp4PT}]\text{Cl}$ 培養 24 小時後，細胞明顯停留在 S 期。

IV. 結論

成功合成出七個縮氨基硫脲-銅錯合物衍生物，其中 $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 於第二型拓撲酶之抑制能力及 LL/2 細胞毒殺試驗中皆有最佳結果。於腫瘤細胞型態分析結果中， $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 也能夠有效造成核濃縮現象；流式細胞儀結果顯示經過 $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 培養後的 LL/2 細胞會大量停留在細胞週期的 S 期； $\text{Cu}[\text{Dp4pT}]\text{Cl}$ 有潛力未來可發展 Cu-64 放射性標幟縮氨基硫脲錯合物衍生物作為與第二型拓撲異構酶相關的腫瘤正子造影探針。

參考文獻

- [1] Giorgio Pelosi. Thiosemicarbazone Metal Complexes: From Structure to Activity. The Open Crystallography Journal, 2010, 3, 16-28
- [2] Zeglis BM, Divilov V, Lewis JS. Role of metalation in the topoisomerase II α inhibition and antiproliferation activity of a series of α -heterocyclic-N4-substituted thiosemicarbazones and their Cu(II) complexes. J Med Chem. 2011;54:2391-8.
- [3] West, D. X.; Thientanavanich, I.; Liberta, A. E. Copper(II) complexes of 6-methyl-2-acetylpyridine-N(4)-substituted thiosemicarbazones. Transition Met. Chem. 1995, 20 (3), 303-308.
- [4] Klayman, D. L.; Bartosevich, J. F.; Griffin, T. S.; Mason, C. J.; Scovill, J. P. 2-Acetylpyridine thiosemicarbazones. 1. A new class of potential antimalarial agents. J. Med. Chem. 1979, 22 (7), 855-859.

利用 ^{123}I -ADAM 造影評估抗憂鬱劑對腦中血清素轉運器造影佔有率之影響

Using I-123 ADAM SPECT study to evaluate the effect of antidepressant drugs in the SERT occupancies

計畫編號：NSC 102-NU-E-075-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：王世楨

e-mail：jwshyh@vghtpe.gov.tw

計畫參與人員：周元華、陳冠伶

執行單位：台北榮民總醫院核子醫學部

摘要

血清素轉運器造影在核醫學上扮演重要的角色，因為藥理學上血清素轉運器阻斷劑可有效的治療憂鬱症，本研究目的在於探討 ^{123}I -ADAM 在高純度的血清素轉運器 Escitalopram 不同劑量下對於血清素轉運器的佔有率。每位受試者接受三次單光子造影分別為基礎值、5 mg 及 15mg 單一口服及一次核磁共振腦部造影，核磁共振腦部造影之目的為排除腦部外傷之可能性，並且做為影像分析時解剖位置定位之依據。腦影像分析處理及 MRI 與 SPECT 影像融合則利用 PMOD 軟體處理。目標分析時，主要以縫核尾核、殼核及整個基底核為目標。小腦由於具有較低的血清素轉運器，因此選為參考區 (reference region)。造影結果除採目視外，為計算血清素轉運器的特異性結合比例 (specific uptake ratio, SUR)。兩組受試者之間臨床基本資料的比較採用 Student t-test 比較，病患組受測之資料則採用 one-way ANOVA。研究結果顯示 escitalopram 5 mg 的佔有率範圍為 14~68 % 而 15 mg 的佔有率範圍為 73-93%。此外，由 PMOD 軟體分析之結果變異性較小，反觀手動圈選分析的變異性較大。

關鍵字：血清素轉運器(SERT)、 ^{123}I -ADAM、憂鬱症、單光子電腦斷層造影

Abstract

Serotonin transporter (SERT), a trans-membrane protein which was attractive a lot attention in research of major depressive disorder because inhibits serotonin transporter could be applied for the treatment of depression. ^{123}I -ADAM was a specific radio-tracer which could be for the image of SERT with the technique of single photon emission computed tomography (SPECT). However, some pharmacological characteristics need to be further evaluated. The aim of this study was to evaluate the binding of ^{123}I -ADAM to serotonin transporter under different dose of selective serotonin reuptake inhibitor (SSRI). Each subject received three SPECT examinations within one month included baseline, 5 mg and 15 mg escitalopram, which is the purest SSRI. Occupancy of SERT after medication was measured outcome. Ten subjects has been recruited. Each subject received three SPECT measurements, including a baseline, 5 mg and 15 mg oral escitalopram. Image analysis included PMOD、EM model and manual analysis. The results showed that the occupancy of escitalopram 5mg was 14~68% and 15mg was 73-93%. The results also showed that PMOD and EM model is relatively stable. Manual

analysis is quite varied. Considering the data published by Caucasian, the occupancy of SERT by escitalopram was low and needs to be further explored.

Keywords: SERT, ^{123}I -ADAM, depression, SPECT

I. 前言

腦部功能影像之神經科學近年來益受重視，核研所對於血清素轉運器造影藥物 ^{123}I -ADAM 已研製成功 (Newberg, Plossl et al. 2004)，但是對於其在人體腦部分佈的情況之研究仍在萌芽階段。血清素轉運器主要控制腦中血清素濃度的多寡，血清素系統在許多的文獻中指出跟神經疾病有密不可分的現象，例如 neurodegenerative disorder, major depression, obsessive compulsive disorders, Tourette's syndrome, mood disorder, 以及 eating disorder 等疾病 (Hesse S 2004; N. Herold 2006; Haugbol S 2007; Vibe G. Frokjaer 2008)。而且過去的研究顯示血清素神經物質傳導系統對於人們情緒的調節及常見之精神疾病，例如：憂鬱症、焦慮症及自殺行為之病因學中扮演極重要的角色 (Du, Faludi et al. 1999)。血清素在腦中濃度之調節主要是受到血清素轉運器這種蛋白質調控，目前醫藥界最普遍使用的治療憂鬱症之抗憂鬱劑 (血清素轉運器抑制劑 serotonin reuptake inhibitor (SSRI))，也是透過抑制此類蛋白質而間接的提高了血清素之濃度，達到治療憂鬱症之目的 (Nikolas Klein and Alexander Holik 2007)。這些研究結果均支持血清素轉運器在腦中的重要性。在人體中利用核醫技術進行蛋白質受體造影之技術，是最近二十年中所發展出來的。 ^{123}I -ADAM 有良好結合性的化合藥物，可用於單光子電腦斷層造影 (SPECT)，在國外研究及國內動物研究中，顯示其具有良好的影像造影功能 (Newberg, Plossl et al. 2004)。此外，本單位之前已經發表對於 ^{123}I -ADAM 在正常人的定量分析實驗 (Yang, Wang et al. 2008)，以及其在東方人腦中血清素轉運器的分佈情形 (Chou, Yang et al. 2009)，建立了最佳取像時間點，對於此藥物影像分析及運用有很深的認識。但是在使用精神藥物後其腦中血清素濃度的變化情形卻是未知，即便造影憂鬱症患者後，也無法告訴臨床醫師真正抗憂鬱藥劑的藥效，對於是否需要減少用藥劑量，一直都是看心測分數或是血液藥物的濃度變化當作參考，對臨床來說非常困擾，而 ^{123}I -ADAM 卻可以用影像的表現方式來告訴我們到底腦中的血清素轉運器的密度多寡，提供臨床醫師更多資訊，實為造福病患一大福音。

早期抗憂鬱藥使用 citalopram 具有 S(+) 和 R(-) 兩種消旋酸混合物，但是研究發現 S-citalopram 對於 SERT 的抑

制作用藥效最好, escitalopram 為純的 S-citalopram 消旋酸, 也因此為目前臨床使用新的抗憂鬱藥(Rybakowski and Borkowska 2004; Storustovu, Sanchez et al. 2004; Chen, Larsen et al. 2005)。由於目前臨床都是以血漿濃度高低當作監測藥效劑量作用在 SERT 目標區的評估, 然而很重要的研究發現, 使用抗精神藥物的血漿藥物動力學中顯示在大腦中有很明顯的解離作用, 表示並非全部結合在 SERT 上, 藉由血液中的藥物濃度並無法真正了解腦中 SERT 的密度(Tauscher, Jones et al. 2002), 也因此經常造成臨床用藥劑量的困擾, 以及病患精神量化分數與其血漿濃度沒有很重要的相關性表現。因此利用影像受體佔有率的研究模式, 可以真正確定藥物在腦中受體之作用, 並且可間接的提供臨床治療藥物的適當劑量。國外已經開始使用 escitalopram 藥物劑量分為 5mg、10mg、20mg 以及 citalopram 藥物 10mg 和 20mg 配合 ^{123}I -ADAM 核醫影像來研究正常健康人的腦中佔有率(Klein, Sacher et al. 2006; Klein, Sacher et al. 2007), 在服用 escitalopram 六小時後, 分別在 5mg、10mg、20mg 劑量在中腦(midbrain)的佔有率各別是 $60\pm 6\%$, $64\pm 6\%$, $75\pm 5\%$, 而在服用 citalopram 六小時後, 分別在 10mg、20mg 劑量在中腦(midbrain)的佔有率各別是 $65\pm 10\%$, $70\pm 6\%$, 為首次利用影像分析的方式來瞭解腦中真正的功能研究, 並且也證明了 ^{123}I -ADAM 有很高的重複性與再現性。然而, 根據文獻血清素轉運器濃度不但受到性別、季節等影響(Neumeister, Pirker et al. 2000; Staley, Krishnan-Sarin et al. 2001), 在 5-HTTLPR genotype 基因研究中也顯示憂鬱病患及種族不同, 其血清素轉運器濃度也不一樣(Brummett, Boyle et al. 2008), 並且這幾篇文獻的受試者樣本數很少, 無法代表所有族群腦部影像分佈情形。國外一直在重視新的核醫藥物的研製與診斷效益的評估, 而反觀在台灣目前對於血清素疾病的偵測苦無真正一個新的放射藥物出現, 精神病患用藥後到底其腦中神經傳導物質改變了什麼? 一直是臨床感興趣的地方, 我們不能僅以國外的文獻報導及其治療精神疾病劑量為國人診治, 必須要為國人多建立更多不具侵入性的診斷腦部利器。因此 ^{123}I -ADAM 為國內核能研究所所開發的新一代造影腦中血清素轉運器的核醫藥物, 目前正準備上市中我們將利用目前臨床上具有選擇性最高的血清素轉運器之藥物 escitalopram 的佔有率實驗和建立國人 ^{123}I -ADAM 血清素轉運器在人腦中造影模式的再現性探討, 利用三年的時間評估 ^{123}I -ADAM 對於腦中血清素轉運器之選擇性。

II. 主要內容

第三年的研究目的在於建立抗憂鬱藥物在正常人腦的佔有率數據, 驗證 ^{123}I -ADAM 造影之可行性

1. 完成 ^{123}I -ADAM 血清胺轉運器造影劑之臨床分析造影流程, 使其能被正確應用於臨床腦神經功能評估, 提供臨床量化之統計數據, 增加篩檢精神與神經疾病之靈敏度。

2. 比較三種不同藥物使用 ^{123}I -ADAM 血清胺轉運器造影劑佔有率以及再現性比較, 從而了解血清素對於憂鬱患者、自殺患者、阿茲海默症、帕金森氏症等疾病的致病機制。

3. 建立自動化血清胺轉運器與參考區比值之軟體, 提供臨床簡便的辨別精神疾病之類型。

4. 透過本計畫之執行, 將建立自動化影像分析平台系

統;並建立國人對於 ^{123}I -ADAM 之標準檢查作業流程, 以幫助 ^{123}I -ADAM 使用之普及性。

每位受試者均須經過精神科醫師會談後排除重大精神疾病後始可進入本研究。每位受試者須於一個月內進行三次 ^{123}I -ADAM 造影。第一次為 baseline, 第二次及第三次分別服用 5mg 及 15mg 之 escitalopram, 以確定是否有劑量反應曲線, 影像分析之方式則採用本小組過去已發表之模式。

III. 結果與討論

造影血清素轉運器(serotonin transporter, SERT)是在研究情感性精神病的病因學中一項重要的技術。原委會在發展出 ^{123}I -ADAM 的造影劑後, 對於台灣在這個研究領域中有莫大的幫助。然而對於一個新的造影劑開始使用前, 須先經過一連串品質保證的研究, 本小組在過去三年中, 曾經完成了藥物動力學及再測信度的研究, 且已發表於國際知名的期刊。本研究目的在於探討以標準 selective serotonin reuptake inhibitor (SSRI) 之用藥進行對於 ^{123}I -ADAM 之結合干擾, 此研究結果可以同時獲得 ^{123}I -ADAM 之結合效率, 又可當作是一項“佔有率”研究之資料。

本研究於今年已完成 6 人, 每位受試者接受三次 ^{123}I -ADAM 的造影, 並間隔二週, 第一次為基礎值, 第二次給予口服標準藥品 escitalopram 5mg, 第三次則給予口服 15mg escitalopram。使用 PMOD 進行影像分析。

研究結果顯示 escitalopram 5 mg 的佔有率範圍為 14~68 %而 15 mg 的佔有率範圍為 73-93%。此外, 由 PMOD 軟體分析之結果變異性較小, 反觀手動圈選分析的變異性較大。

IV. 結論

血清素轉運器造影在核醫學上扮演重要的角色, 因為藥理學上血清素轉運器阻斷劑可有效的治療憂鬱症, 造影血清素轉運器(serotonin transporter, SERT)是在研究情感性精神病的病因學中一項重要的技術。原委會在發展出 ^{123}I -ADAM 的造影劑後, 對於台灣在這個研究領域中有莫大的幫助。然而對於一個新的造影劑開始使用前, 須先經過一連串品質保證的研究, 本小組在過去三年中, 曾經完成了藥物動力學及再測信度的研究, 且已發表多篇研究論文於國際知名的期刊。

參考文獻

- [1] Brummett, B. H., S. H. Boyle, et al. (2008). "Effects of environmental stress and gender on associations among symptoms of depression and the serotonin transporter gene linked polymorphic region (5-HTTLPR)." *Behav Genet* 38(1): 34-43.
- [2] Chen, F., M. B. Larsen, et al. (2005). "The S-enantiomer of R,S-citalopram, increases inhibitor binding to the human serotonin transporter by an allosteric mechanism. Comparison with other serotonin transporter inhibitors." *Eur Neuropsychopharmacol* 15(2): 193-198.
- [3] Chou, Y. H., B. H. Yang, et al. (2009). "Imaging the serotonin transporter using (^{123}I)ADAM in the human brain." *Psychiatry Res* 172(1): 38-43.
- [4] Du, L., G. Faludi, et al. (1999). "Frequency of long allele in serotonin transporter gene is increased in depressed

- suicide victims." *Biol Psychiatry* 46(2): 196-201.
- [5] Haugbol S, P. L., Regeur L, et al (2007). "Cerebral 5-HT_{2A} receptor binding is increased in patients with Tourette's syndrome." *Int J Neuropsychopharmacol* 10: 245 – 252.
- [6] Hesse S, B. H., Schwarz J, Sabri O, Muller U (2004). "Advances in in vivo imaging of serotonergic neurons in neuropsychiatric disorders." *Neurosci Biobehav* 28: 547 – 563.
- [7] Klein, N., J. Sacher, et al. (2006). "In vivo imaging of serotonin transporter occupancy by means of SPECT and [123I]ADAM in healthy subjects administered different doses of escitalopram or citalopram." *Psychopharmacology (Berl)* 188(3): 263-272.
- [8] Klein, N., J. Sacher, et al. (2007). "Higher serotonin transporter occupancy after multiple dose administration of escitalopram compared to citalopram: an [123I]ADAM SPECT study." *Psychopharmacology (Berl)* 191(2): 333-339.
- [9] N. Herold, K. U., L. Franke, H. Amthauer, L. Luedemann, H. Bruhn, R. Felix, R. Uebelhack, and M. Plotkin (2006). "Imaging of serotonin transporters and its blockade by citalopram in patients with major depression using a novel SPECT ligand [123I]-ADAM." *J Neural Transm* 113: 659 – 670.
- [10] Neumeister, A., W. Pirker, et al. (2000). "Seasonal variation of availability of serotonin transporter binding sites in healthy female subjects as measured by [123I]-2 beta-carbomethoxy-3 beta-(4-iodophenyl)tropane and single photon emission computed tomography." *Biol Psychiatry* 47(2): 158-160.
- [11] Newberg, A. B., K. Plossl, et al. (2004). "Biodistribution and imaging with (123)I-ADAM: a serotonin transporter imaging agent." *J Nucl Med* 45(5): 834-841.
- [12] Nikolas Klein, J. S., Thomas Geiss-Granadia, Nilufar Mossaheb, Trawat Attarbaschi, Rupert Lanzenberger, Christoph Spindelegger, and S. A. Alexander Holik, Robert Dudczak, Johannes Tauscher, Siegfried Kasper (2007). "Higher serotonin transporter occupancy after multiple dose administration of escitalopram compared to citalopram: an [123I]ADAM SPECT study." *Psychopharmacology* 191: 333 – 339.
- [13] Rybakowski, J. and A. B. Borkowska (2004). "[Escitalopram--second generation of serotonin transporter inhibitors?]." *Psychiatr Pol* 38(2): 227-239.
- [14] Staley, J. K., S. Krishnan-Sarin, et al. (2001). "Sex differences in [123I]beta-CIT SPECT measures of dopamine and serotonin transporter availability in healthy smokers and nonsmokers." *Synapse* 41(4): 275-284.
- [15] Storustovu, S., C. Sanchez, et al. (2004). "R-citalopram functionally antagonises escitalopram in vivo and in vitro: evidence for kinetic interaction at the serotonin transporter." *Br J Pharmacol* 142(1): 172-180.
- [16] Tauscher, J., C. Jones, et al. (2002). "Significant dissociation of brain and plasma kinetics with antipsychotics." *Mol Psychiatry* 7(3): 317-321.
- [17] Vibe G. Frokjaer, L. H. P., Jacob Madsen, Robin de Nijs, Claus Svarer, Aase Wagner, and Gitte M. Knudsen (2008). "Evaluation of the Serotonin Transporter Ligand 123I-ADAM for SPECT Studies on Humans." *J Nucl Med* 49: 247 – 254.
- [18] Yang, B. H., S. J. Wang, et al. (2008). "Evaluation of reference tissue model and tissue ratio method for 5-HTT using [(123)I] ADAM tracer." *Comput Methods Programs Biomed* 92(3): 294-298.

應用 [^{123}I]-ADAM micro-SPECT 在臨床前篩選平台進行抗 MDMA 神經毒性藥物之研究 (II)

Investigating drugs against MDMA-induced neurotoxicity in pre-clinical screening platform using [^{123}I]-ADAM micro-SPECT(II)

計畫編號：NSC 102-2623-E-016-005-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：馬國興

e-mail：kuohsing91@yahoo.com.tw

計畫參與人員：林于茹、翁紹儒、趙韻婷、林家望

執行單位：國防醫學院生物及解剖學科

摘要

搖頭丸 (3,4-Methylenedioxymethamphetamine, MDMA) 是“安非他命”的衍生物，也是一種非法藥物，流行於國內青少年間，已成為重要的社會議題。許多研究顯示，MDMA 使用後會造成的副作用包括心率不整、高血壓、低血鈉、體溫過高 (hyperthermia)、血清素症候群 (serotonin syndrome) 以及肝腎衰竭。持續服用高劑量的 MDMA 引發的神經毒性可能會對血清素系統造成損害；而此血清素系統毒性機轉可能與氧化壓力、能量代謝異常、和發炎反應有關。MDMA 在臨床研究上，卻發現它具有治療頑固型創傷後症候群與癌症相關焦慮症的作用。先前的研究顯示 paroxetine、amitriptyline (TCA) 與 3-methyladenine (3MA) 可能具有神經保護效應，而這些藥物的神經保護機制可能是藉由阻礙血清素神經元再攝取 MDMA 或其毒性代謝、神經新生、抗氧化、或抗發炎有關。但這些藥物對於 MDMA 誘發的血清素神經毒性是否真正具有緩解作用，所知仍甚為有限。本實驗分別評估此三種藥物在大鼠腦中，對 MDMA 引發血清素系統毒性是否具有保護作用。以非侵入性的微單光子電腦斷層造影配合核子醫學藥物 [^{123}I]-ADAM (血清素轉運體的造影劑) 與血清素轉運體 (serotonin transporter, SERT) 結合的特性，對各實驗組別血清素系統改變進行評估。本實驗初步研究結果顯示：大鼠經 MDMA 處理後一週及四週，顯示各腦區 (中腦、視丘、紋狀體和額葉皮質) 的專一性攝取率，相較於控制組有明顯減少，而在 MDMA/paroxetine、TCA 或 3-MA 共同注射後一週及四週，大鼠的各腦區對於 [^{123}I]-ADAM 的攝取率有顯著高於 MDMA 組。最後以免疫組織化學染色觀察大鼠各腦區血清素轉運體的分佈及表現，確認與微單光子電腦斷層攝影造影結果趨勢相符。實驗結果證實計畫中選用的抗神經毒性藥物皆具有良好的神經保護效果，且能夠對抗 MDMA 在大鼠腦部引起的血清素神經毒性。本研究也確立微單光子電腦斷層造影搭配 [^{123}I]-ADAM 之技術能夠做為有效的臨床前篩選平台，也藉此技術平台發掘更多具有神經保護潛力之藥物。

關鍵詞：搖頭丸、[^{123}I]-ADAM、微單光子電腦斷層造影

Abstract

3,4-Methylenedioxymethamphetamine (MDMA) is an

illegal drugs, which is amphetamine's derivatives. It is very popular among the youth and has become an important social issue. Many studies have shown that MDMA intoxication caused the side effects including arrhythmia, hypertension, hyponatremia, hyperthermia, serotonin syndrome as well as liver and kidney failure. The neurotoxicity induced by the sustained high doses of MDMA may cause damage to the serotonin system; and this mechanism of MDMA-induced serotonergic neurotoxicity may be associated with oxidative stress, metabolic compromise, and inflammatory responses. However, in clinical research, it has found the potential of MDMA to treat of post-traumatic syndrome and intractable cancer-related anxiety. Previous studies have shown that paroxetine, amitriptyline (TCA) and 3-methyladenine (3MA) may have neuroprotective potential, and suggest the mechanisms of blocking MDMA or its metabolites on the serotonin transporters (SERT), neurogenesis, antioxidant, or anti-inflammation. However, the effects of these drugs for MDMA-induced serotonergic neurotoxicity remain to be elucidated. In this study, three drugs were assessed in the rat brain of MDMA-induced serotonin toxicity using non-invasive micro-SPECT coupled with [^{123}I]-ADAM (a serotonin transporter imaging agent) as observation platform. The SPECT data showed that the MDMA-treatment in rats at the 1st week and 4th week, specific uptake ratios (SURs) of [^{123}I]-ADAM were markedly decreased in various brain regions (midbrain, thalamus, striatum and frontal cortex) than those of the control group. In the MDMA/paroxetine, MDMA/TCA and MDMA/3MA co-treated groups, the SURs of [^{123}I]-ADAM in these regions were significantly higher than those of MDMA-induced group. The immunohistochemical staining of SERT also showed the comparable results to the [^{123}I]-ADAM/micro-SPECT image. In this study, the results suggested the micro-SPECT coupled with [^{123}I]-ADAM could be a preclinical screening platform to evaluate the effects of drugs against MDMA-induced neurotoxicity.

Keywords: 3,4-Methylenedioxymethamphetamine (MDMA), [^{123}I]-ADAM, micro-SPECT

I. 前言

國內毒品濫用的情形日益嚴重，造成經濟巨大損失，也已經成為重要的社會議題。

3,4-Methylenedioxymethamphetamine (MDMA 或搖頭丸) 是安非他命的衍生物，在台灣是一種常見於舞會中被濫用的毒品，濫用者服用 MDMA 後可能在中樞與周邊神經引發一些急性效應，如欣快感(euphoria)、食慾降低、警覺性增加、與體溫上升 (Yamamoto and Raudensky, 2008)，然而 MDMA 卻具有治療頑固型創傷後症候群與癌症相關焦慮症的潛能，目前已在許多醫學中心進行臨床試驗(Doblin, 2002; Morton, 2005)。MDMA 中毒所造成的嚴重副作用則包括導致心率不整、高血壓、低血鈉、體溫過高(hyperthermia)、血清素症候群 (serotonin syndrome)以及肝腎衰竭 (Henry et al., 1992; Schifano, 2004)。以往的文獻顯示 MDMA 對於大部分物種的血清素神經元都具有毒性，在齧齒類動物的研究中，MDMA 造成動物腦部血清素系統(serotonin system)中許多代謝物與標示物(marker)的減少，包括血清素 (serotonin) 含量下降、血清素轉運體 (serotonin transporter)密度減少與血清素合成酶 tryptophan hydroxylase 活性下降 (Stone et al., 1986; Battaglia et al., 1988; O' Hearn et al., 1988)。在靈長類動物的研究也有類似的發現 (Ricaurte et al., 1988)。而在人類的臨床研究中也發現 MDMA 濫用者其腦脊髓液中的血清素代謝物 5-hydroxyindoleacetic acid 明顯降低 (Ricaurte et al., 1990; McCann et al., 1994)，血清素轉運體密度減少 (McCann et al., 1998; McCann et al., 2005)，而血清素轉運體密度減少與患者的認知功能的異常與衝動行為有關 (McCann et al., 2005)。目前學界認為 MDMA 造成血清素系統毒性的機轉與氧化壓力 (oxidative stress)、能量代謝異常等生理現象，和發炎反應有關。在 MDMA 誘發氧化壓力的研究中已累積許多相關文獻 (for review see Puerta et al., 2009)，目前普遍被接受的毒性機轉依序分述如下：(1) MDMA 引發血清素神經元與多巴胺神經元分別大量釋放血清素與多巴胺。(2) 血清素活化突觸後 GABA 中間神經元的 5-HT_{2A/2C} 接受器，造成 GABA 傳導減少，導致多巴胺的生成與釋放上升。(3) 細胞外多巴胺濃度大量增加，最後經由血清素轉運體進入血清素神經纖維末端。(4) 多巴胺進入血清素神經元末端後，被單胺氧化酶 (monoamine oxidase)代謝引發自由基的形成，最後造成血清素神經纖維末端退化 (for review see Puerta et al., 2009)。在 MDMA 誘發的能量代謝異常方面，先前有研究顯示 MDMA 會造成大鼠的紋狀體與海馬迴的 adenosine triphosphate (ATP)減少，但注射能量基體 (energy substrates) ubiquinone 或 nicotinamide 卻會在紋狀體與海馬迴緩解 MDMA 所引起的血清素排空 (Darvesh and Gudelsky, 2005)，而 MDMA 亦會導致粒線體內電子傳遞鏈 (electron transport chain) complex IV 的活性下降 (Burrows, 2000) 和 complex I、complex II 的活性下降 (Quinton and Yamamoto, 2006)。在 MDMA 誘發的發炎反應的相關研究方面，有文獻顯示 MDMA 會誘發小膠細胞 (microglia) 的活性增加 (Orio et al., 2004)，而小膠細胞的活性增加可導致神經系統的前發炎細胞激素 (proinflammatory cytokines)、前列腺素 (prostaglandins)、NO (nitric oxide) 與過氧化物 (superoxide) 的釋放而導致神經組織受損 (Kreutzberg, 1996; Yamamoto and Raudensky, 2008)。而抗發炎藥物 minocycline 可緩解 MDMA 在小鼠紋狀體與海馬迴誘發的血清素的神經毒性 (Zhang et al., 2006)。

血清素 (serotonin)，又稱為 5-羥色胺 (5-hydroxytryptamine; 5-HT)，在人體內約有 80%位於腸胃道中的嗜鉻細胞 (enterochromaffin cell) (Berger, Gray et al. 2009)，其餘分布於中樞神經系統與血小板內，為一種單胺類神經傳導物質 (monoamine neurotransmitter)。當神經衝動時，訊號傳到突觸前神經末梢時會以胞吐作用將血清素釋出至突觸間隙，釋出的血清素部分會與突觸後神經元膜上的接受器 (serotonin receptor) 結合，並進行一連串的訊息傳遞。釋出後的血清素，最後會經由突觸前神經元膜上的血清素轉運體 (serotonin transporter; SERT) 回收至神經元內，回收後會再形成突觸小泡進行再利用，或是被單胺酸氧化酶 (monoamine oxidase; MAO) 分解為 5-HIAA (5-hydroxyindoleacetic acid)。血清素神經元細胞體主要源起於腦幹的縫核 (raphe nucleus)，其分佈路徑可分為吻端與尾端兩個細胞群體，其中尾端的細胞群體位於髓腦的巨縫核 (nucleus raphe magnus)、蒼白縫核 (nucleus raphe pallidus) 和暗縫核 (nucleus raphe obscurus)，其路徑下行至脊髓。而吻端的細胞群體主要位於中腦的背縫核 (dorsal raphe nucleus) 與橋腦的中央上核 (nucleus centralis superior)，其路徑主要投射至大腦額葉 (frontal lobe)、紋狀體 (striatum)、丘腦 (thalamus)、下丘腦 (hypothalamus)、杏仁核 (amygdaloid nucleus) 和海馬迴 (hippocampus) 等區域 (Jacobs and Fornal, 1999)。血清素在中樞神經系統中為一必要之神經傳導物質，其參與並控制著許多行為，如：睡眠-覺醒週期、食慾、激素分泌、攻擊性、體溫、情緒認知功能以及動作調控、疼痛壓力回應及免疫等功能的調節，其中最主要的功能為控制情緒認知的回應 (Nagai 1992, Launay, Callebert et al. 1994, Fuller 1996)。

血清素轉運體 (serotonin transporter; SERT) 主要位於血清素神經細胞本體及突觸前的軸突末梢上，主要功能為調控突觸血清素 (serotonin) 濃度 (Owens and Nemeroff, 1994)。於腦部主要分佈於中腦、下視丘、紋狀體等區域 (Booij J, de Win MM., 2006)，而小腦相較於其他腦區含有最少量的血清素轉運體 (Lin KJ, et al. 2006)。主要生理功能是將細胞外過量的血清素轉運回神經細胞末端，使血清素受細胞內單胺氧化酶分解或重新儲存回囊泡之中，以調控血清素的傳導 (Marcusson JO, Ross SB. 1990)。有許多研究顯示，血清素轉運體除了基本生理功能外，也與許多精神疾病治療藥物和神經毒性藥物有重要的關聯性 (Battaglia, Yeh et al. 1988)。與血清素轉運體相關的用藥多應用於精神科方面用藥，如選擇性血清素再吸收抑制劑 (Selective Serotonin Re-uptake Inhibitor; SSRI) (Shelton RC, 2004)，主要作用機轉為阻斷突觸前神經元上的血清素再吸收部位，抑制突觸裂隙的血清素再吸收，以維持血液中血清素濃度 (Blair P, de Montigny C., 1999)。一般而言，許多迷幻藥的化學結構和人體內影響情緒反應的神經傳導物質相似，常常因藥物濫用而影響到神經傳導物質的合成及運送。

Paroxetine 是一個強力的選擇性血清素 (5-hydroxytryptamine, 5-HT) 再吸收抑制劑 (SSRI)。常用來治療因腦部血清素不平衡所引起的憂鬱症，為第二型的抗憂鬱藥。主要用於治療抑鬱症的症狀，如：重度憂鬱症 (Major Depressive Disorder)、輕度憂鬱症 (dysthymia) (Gartlehner, Gaynes et al. 2008)。

Amitriptyline，又稱為 Elavil；為一種口服和注射三環類抗抑鬱藥，主要功用是做為血清素-正腎上腺素再吸收抑制劑。臨床上用於治療抑鬱症、神經痛、注意缺陷過動障礙、恐慌症、恐懼症、疼痛，並治療飲食失調(Leucht, Huhn et al. 2012)。

3-Methyladenine (3-MA)廣泛應用的細胞自噬抑制劑，可抑制 PI3K class III 的活性。自噬作用一般被認為是細胞因應壓力環境並維持體內平衡一個機制，在一般正常情形時，自噬體形成與自噬溶小體的降解維持平衡狀態 (autophagic flux)，維持細胞質內容物及胞器的 turnover，直到近幾年研究發現許多疾病與自噬作用 (autophagy) 有密切關連性包括癌症及神經退化症 (Klionsky 2007; Mizushima et al., 2008)。

單光子電腦斷層造影 (single-photon emission computed tomography; SPECT) 或正子斷層造影 (positron emission tomography; PET) 等活體造影技術，配合適當的放射性造影劑，可在動物及人類大腦進行活體血清素轉運體研究。 [^{123} I]ADAM [2-((2-((dimethylamino)methyl)phenyl)thio)-5-iodophenylamine] 是一種適用於單光子電腦斷層造影的核醫藥物，此核醫藥物對於血清素轉運體具有高親合力與高專一性。在先前的人體試驗研究中，將健康的受試者分為三組，一組預先服用 paroxetine (血清素轉運體阻斷劑; SSRI)，一組服用安慰劑，另一組服用 methylphenidate (多巴胺轉運體阻斷劑)，三組進行都 [^{123} I]ADAM/SPECT 大腦造影，結果顯示服用 paroxetine 的受試者的各腦區 [^{123} I]ADAM 攝取明顯比服用安慰劑或 methylphenidate 的受試者低，而服用安慰劑組與 methylphenidate 的受試者的各腦區 [^{123} I]ADAM 攝取並無有意義的差別，顯示 [^{123} I]ADAM 對於人類腦中的血清素轉運體有很高的選擇性 (Van de Glessen and Booij, 2010)。而運用 [^{123} I]ADAM 在中度到重度憂鬱症 (major depressive disorder) 的患者所進行的研究，則是發現這些憂鬱症的病患的中腦對於 [^{123} I]ADAM 的攝取量低於健康受試者 (Newberg et al., 2005)。而本研究團隊更是研發出 [^{123} I]ADAM 與 [^{99m} Tc]TRODAT (一種結合於多巴胺轉體的造影藥物) 的雙同位素同時電腦斷層造影技術，我們以此造影技術在獼猴模式進行一系列的藥理研究，結果顯示此技術可以同時顯示獼猴的多巴胺轉體與血清素轉運體的狀態，而可能具有很大的臨床運用潛力 (Ma et al., 2009a)。此技術運用於巴金森氏症獼猴模式，則是發現也可同時顯示動物的多巴胺及血清素系統異常 (Li et al., 2009)。目前 [^{123} I]ADAM 相關的研究已有超過七十篇國際期刊論文發表，這些文獻顯示 [^{123} I]ADAM 配合單光子電腦斷層造影深具臨床應用的價值。

II. 主要內容(材料與方法)

一、實驗動物及藥物處理

本研究之實驗動物為 8 週齡，體重約 250-350 克的雄性 Sprague-Dawley 大鼠。將 SD 雄性大鼠分為八組，每組四隻大鼠進行下列藥物處理：

1. 控制組：大鼠皮下注射 normal saline (0.9% NaCl) (連續注射 4 天，每天 2 次)。
2. SAL/MDMA 組(預先皮下注射 saline 後再施行 MDMA 皮下注射 10 mg/kg，連續注射 4 天，每天 2

次)。

3. Co-treatment 組：(a). 先於腹腔注射 Paroxetine 5 mg/kg 後再施行 MDMA 皮下注射 10 mg/kg；(b). 皮下注射 Amitriptyline 5 mg/kg 後再施行 MDMA 皮下注射 10 mg/kg；(c). 皮下注射 3-MA 15 mg/kg 後再施行 MDMA 皮下注射 10 mg/kg，連續注射 4 天，每天 2 次)。
4. 藥物控制組：(a). 腹腔注射 Paroxetine 5 mg/kg；(b). 皮下注射 Amitriptyline 5 mg/kg；(c). 皮下注射 3-MA 15 mg/kg，連續注射 4 天，每天 2 次。

二、微單光子電腦斷層造影

大鼠在注射藥物後 7 天、28 天分別進行 [^{123} I]-ADAM 微單光子電腦斷層造影。造影程序與影像獲取根據先前的文獻(Hwang et al., 2007)並略做修改。以配置低能量 pinhole 準直儀並內建 CT 的雙頭單光子電腦斷層攝影儀 (FLEX SPECT, Gamma Medica, Northridge, California, USA) 進行腦部造影。將獲得之 SPECT 影像利用 PMOD 軟體圈選關心區域 (regions of interest; ROIs)，圈選於中腦 (midbrain)、下視丘 (hypothalamus)、視丘 (thalamus)、紋狀體 (striatum)、額葉皮質 (frontal cortex) 以及小腦 (cerebellum)。專一性攝取率 (specific uptake ratio; SUR) 的計算方式為 (目標腦區-小腦) / 小腦 (Ma et al., 2009)。

三、免疫組織化學染色

免疫組織化學染色法根據已發表之文獻 (Zhou et al., 1998)，於本研究再稍作變更。大鼠經灌注後將腦組織取出，固定後進行矢狀切片 (coronal section, 30 μ m)，切片檢體分別與一級抗體 (rabbit anti-SERT antibody, 1:2000; Chemicon International, Temecula, CA) 以及二級抗體 (goat anti-rabbit biotinylated IgG, 1:200; Vector, Burlingame, CA) 反應後，以 0.05% diaminobenzidine (溶於 0.05 M Tris-buffer 之 0.1% H_2O_2 , pH 7.6) 呈色，再以 0.1M PBS 清洗 3 次後以封片膠封片。

III. 結果與討論

研究結果顯示，MDMA 給予後一週，MDMA 組大鼠中腦 (midbrain)、下丘腦 (hypothalamus)、丘腦 (thalamus)、紋狀體 (striatum) 與額葉皮質 (frontal cortex) 等腦區對 [^{123} I]ADAM 專一性攝取率較控制組平均減少 42%，大鼠進行共同注射 MDMA 與 Amitriptyline、Paroxetine 或 3-MA 後一週，大鼠的各個腦區對於 [^{123} I]ADAM 的攝取情形都顯著的高於 MDMA 組 (圖 1)，經量化分析結果得知 MDMA-3MA、MDMA-TCA 與 MDMA-Paroxetine 組別各個腦區的專一攝取率分別較 MDMA 組高 51%、51% 與 41.2% (圖二)。神經保護藥物和 MDMA 共同注射後四週，大白鼠的各腦區對於 [^{123} I]ADAM 的攝取仍然呈現較 MDMA 組高的趨勢 (圖 3、圖 4)。本實驗之動物在造影後犧牲進行免疫組織化學染色，血清素轉運體免疫反應 (serotonin transporter immunoreactive, SERT-ir) 結果與造影結果趨勢相符 (圖 5)，量化結果亦呈現相同趨勢 (表 1)。

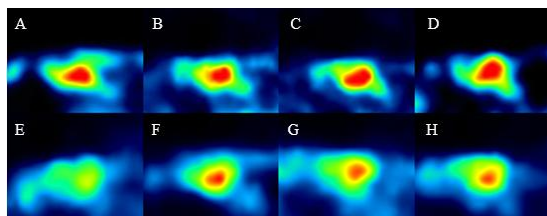


圖 1、A. 正常組；B. 3-MA 控制組；C. Amitriptyline 控制組；D. Paroxetine 控制組；E. MDMA 組；F. MDMA+3-MA 組；G. MDMA +Amitriptyline；H. MDMA+Paroxetine。

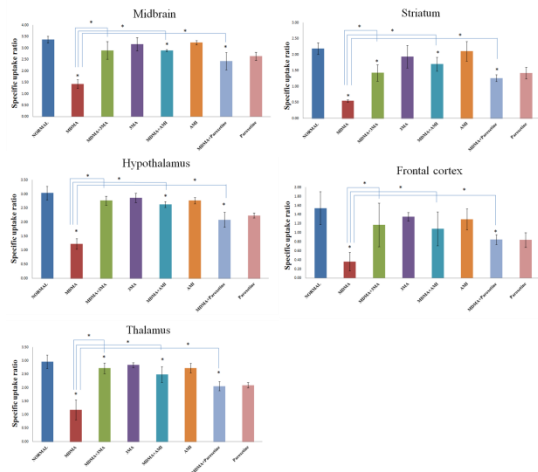


圖 2、 $[^{123}\text{I}]$ -ADAM/micro-SPECT 結果經過量化後顯示，正常大鼠經 MDMA 處理後一週，對 $[^{123}\text{I}]$ ADAM 的專一性攝取率明顯降低($p<0.05$)。此外，MDMA+3MA、MDMA+ Amitriptyline、MDMA+Paroxetine 的專一性攝取率明顯較 MDMA 組高($p<0.05$)。

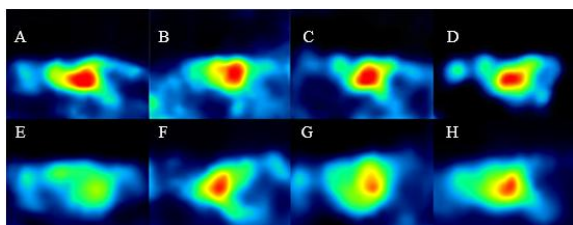


圖 3、A. 正常組；B. 3-MA 控制組；C. Amitriptyline 控制組；D. Paroxetine 控制組；E. MDMA 組；F. MDMA+3-MA 組；G. MDMA +Amitriptyline；H. MDMA+Paroxetine。

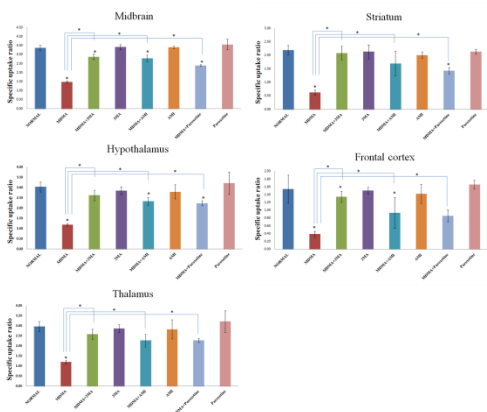


圖 4、 $[^{123}\text{I}]$ -ADAM/micro-SPECT 結果經過量化後顯示，正常大鼠經 MDMA 處理後一週，對 $[^{123}\text{I}]$ ADAM 的

專一性攝取率明顯降低($p<0.05$)。此外，MDMA+3MA、MDMA+ Amitriptyline、MDMA+Paroxetine 組別的專一性攝取率明顯較 MDMA 組高($p<0.05$)。

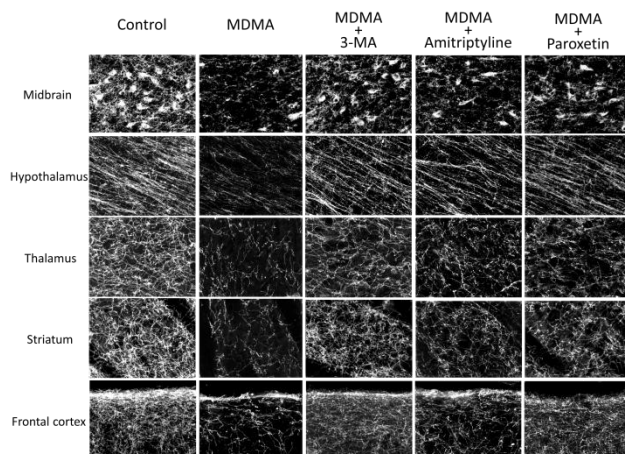


圖 5、藥物給予後大鼠造影後，犧牲進行血清素轉運體免疫組織化學染色血清素轉運體免疫反應 (SERT-ir) 在各腦區之暗視野顯微影像。MDMA 給藥後，血清素神經纖維密度明顯較控制組 (control) 稀疏，而 MDMA+3MA、MDMA+ Amitriptyline、MDMA+Paroxetine 組別的血清素神經纖維密度明顯比 MDMA 組表現濃密。

	Midbrain	Hypothalamus	Thalamus	Striatum	Frontal cortex
Normal	1.100 ± 0.15	0.886 ± 0.06	0.742 ± 0.1	0.655 ± 0.1	0.515 ± 0.06
MDMA	0.543 ± 0.1 *	0.275 ± 0.06 *	0.165 ± 0.05 *	0.121 ± 0.05 *	0.0514 ± 0.04 *
MDMA+3MA	1.063 ± 0.2 #	0.842 ± 0.11 #	0.547 ± 0.04 #	0.453 ± 0.1 #	0.376 ± 0.06 #
MDMA+AMI	0.818 ± 0.12 #	0.646 ± 0.09 #	0.515 ± 0.04 #	0.408 ± 0.09 #	0.284 ± 0.09 #
MDMA+Paroxetine	0.984 ± 0.1 #	0.665 ± 0.23 #	0.522 ± 0.22 #	0.428 ± 0.16 #	0.349 ± 0.15 #

表 1、正常組與給予藥物組大鼠各腦區之光學密度值。染色結果量化計算光學密度比率，計算方式為(目標區域光學密度-胼胝體光學密度)/胼胝體光學密度。量化結果顯示 MDMA 組大鼠各腦區血清素轉運體光學密度比率皆低於正常組大鼠 ($*p<0.05$)。MDMA+3MA、MDMA+AMI 與 MDMA+Paroxetine 組各腦區血清素轉運體光學密度比率皆高於 MDMA 組 ($#p<0.05$)。

IV. 結論

實驗結果證實計畫中選用的抗神經毒性藥物皆具有良好的神經保護效果，且能夠對抗 MDMA 在大鼠腦部引起的血清素神經毒性。本研究也確立單光子電腦斷層造影搭配 $[^{123}\text{I}]$ ADAM 之技術能夠做為有效的臨床前篩選平台，也藉此技術平台發掘更多具有神經保護潛力之藥物。

參考文獻

- [1] Yamamoto BK, Raudensky J. The role of oxidative stress, metabolic compromise, and inflammation in neuronal injury produced by amphetamine-related drugs of abuse. *J Neuroimmune Pharmacol.* 2008 Dec; 3(4):203-17.
- [2] Doblin R.A clinical plan for MDMA (Ecstasy) in the treatment of posttraumatic stress disorder (PTSD):partnering with the FDA. *J Psychoactive Drugs.* 2002 Apr-Jun;34(2):185-94.

- [3] Morton J. Ecstasy: pharmacology and neurotoxicity. *Curr Opin Pharmacol.* 2005 Feb;5(1):79-86. Henry JA, Jeffreys KJ, Dawling S. Toxicity and deaths from 3,4-methylenedioxymethamphetamine ("ecstasy"). 1992 *Lancet* 340, 384-387.
- [4] Schifano F. A bitter pill. Overview of ecstasy (MDMA, MDA) related fatalities. *Psychopharmacology (Berl)* 2004 173, 242-248.
- [5] Stone DM, Stahl DC, Hanson GR, Gibb JW. The effects of 3, 4-methylenedioxymethamphetamine (MDMA) and 3, 4-methylenedioxyamphetamine (MDA) on monoaminergic systems in the rat brain. *Eur J Pharmacol.* 1986 Aug 22; 128(1-2):41-8.
- [6] Battaglia G, Yeh SY, and De Souza EB. MDMA-induced neurotoxicity: parameters of degeneration and recovery of brain serotonin neurons. *Pharmacol Biochem Behav.* 1988 Feb;29(2):269-74.
- [7] O'Hearn E, Battaglia G, De Souza EB, Kuhar MJ, and Molliver ME. Methylenedioxyamphetamine (MDA) methylenedioxymethamphetamine (MDMA) cause selective ablation of serotonergic axon terminals in brain: immunocytochemical evidence for neurotoxicity. *J Neurosci.* 1988 8(8):2788-803.
- [8] Ricaurte GA, Forno LS, Wilson MA, DeLanney LE, Irwin I, Molliver ME, Langston JW. (+/-)3, 4-Methylenedioxymethamphetamine selectively damages central serotonergic neurons in nonhuman primates. *JAMA.* 1988 Jul 1; 260(1):51-5.
- [9] Ricaurte GA, Finnegan KT, Irwin I, Langston JW. Aminergic metabolites in cerebrospinal fluid of humans previously exposed to MDMA: preliminary observations. *Ann N Y Acad Sci.* 1990; 600:699-708; discussion 708-10.
- [10] McCann UD, Ridenour A, Shaham Y, Ricaurte GA. Serotonin neurotoxicity after (+/-)3,4-methylenedioxymethamphetamine (MDMA; "Ecstasy"): a controlled study in humans. *Neuropsychopharmacology.* 1994 Apr;10(2):129-38.
- [11] McCann UD, Szabo Z, Scheffel U, Dannals RF, Ricaurte GA. Positron emission tomographic evidence of toxic effect of MDMA ("Ecstasy") on brain serotonin neurons in human beings. *Lancet.* 1998 Oct 31;352(9138):1433-7.
- [12] McCann UD, Szabo Z, Seckin E, Rosenblatt P, Mathews WB, Ravert HT, Dannals RF, Ricaurte GA. 2005. Quantitative PET studies of the serotonin transporter in MDMA users and controls using [¹¹C]McN5652 and [¹¹C]DASB. *Neuropsychopharmacology.* 2005 Sep;30(9):1741-50.
- [13] Puerta E, Hervias I, Aguirre N. On the mechanisms underlying 3, 4-methylenedioxymethamphetamine toxicity: the dilemma of the chicken and the egg. *Neuropsychobiology.* 2009;60(3-4):119-29.
- [14] Darvesh AS, Gudelsky GA. Evidence for a role of energy dysregulation in the MDMA-induced depletion of brain 5-HT. *Brain Res.* 2005 Sep 21;1056(2):168-75.

探討 cortisol 血中濃度及對於憂鬱症患腦中血清素轉運器之影響(III) Effect of plasma cortisol levels on serotonin transporter binding in major depressive-third year

計畫編號：NSC102-2623-E-075-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：周元華

e-mail：c520608@ms64.hinet.net

計畫參與人員：高子凱

執行單位：臺北榮民總醫院

摘要

本研究之目的在於使用 ^{123}I -ADAM 造影，初發且未曾服藥之憂鬱症患者腦中血清素轉運器，同時探討可體素在憂鬱症患者腦中對於血清素轉運器調節之影響。本計畫進行三年。每位受試者接受單光子造影腦中之血清素轉運器及血中可體素之測定。每位病患均接受蒙哥馬利憂鬱症量表之評估，以確認其憂鬱症嚴重之程度。本計劃三年中順利達成目標，共計納入正常人 76 位及初發未用藥的憂鬱症患者 36 位。但是，因為藥物的供應或是未成功的造影使得同時完成 MRI 及 SPECT 的患者共計有 26 位。在這些患者中，年齡及教育程度分別為 44 歲、45 歲及 14 年、12.8 年二組，二組間並無明顯之差異。而在血清素轉運器的數值中，二組間也無明顯的差異，可體素與血清素轉運器之間亦無明顯的相關。而在臨床嚴重度及可體素之間則有明顯的相關。這個三年的研究同時也增加了另一組對照組，主要為雙相情緒障礙的個案，但是我們亦無法發現可體素與血清素轉運器之間的相關性。總結而言，這個三年的研究證實了可體素在正常人中與血清素轉運器具有相關性；而在雙相情緒障礙的患者中則沒有相關性；而在憂鬱症的患者則仍有不一致的結果。這個研究提供了對於情緒障礙疾患的病因學基礎，也同時提供了未來治療此二項疾患的策略。

關鍵詞：憂鬱症，血清素轉運器，可體素。

Abstract

The aim of this study was to investigate the serotonin transporter (SERT) by using ^{123}I -ADAM in drug naïve major depressive disorder (MDD). Meanwhile, the effect of cortisol on SERT was discussed. Each subject underwent single photon emission computed tomography (SPECT) for the image of brain SERT as well as the measurement of plasma cortisol. Montgomery Asberg depressive rating scale (MADRS) was used for the measurement of severity of depression. Total recruitment was 76 healthy controls and 36 patients during three years. The numbers reached the target. The average age of subjects was 44 and 45 years, whereas the average duration of education was 14 and 12.8 years. There was no significant difference in demographic data, SERT availability and cortisol levels between groups. Notably, for the purpose of comparison another group with the diagnosis of bipolar disorder (BD) was added as a reference group. However, the association of cortisol and SERT availability only can be found in healthy controls but not in MDD or BD. Although there were some limitations in

this study, it provides the information that cortisol could affect the SERT availability only in healthy controls but not in diseases state. The disruption in association of cortisol and SERT availability in diseases may play a role in the etiology of MDD.

Keywords: major depressive disorder, serotonin transporter, cortisol.

I. 前言

血清素異常造成憂鬱症的理論仍然是一項最主要的憂鬱症病因學假說。過去動物行為的研究中顯示，憂鬱症的老鼠在其腦中的血清素有明顯下降之情況。這項假說已被過去的幾個腦影像學的研究中證實，同時顯示調控血清素最重要的一項蛋白質血清素轉運蛋白有下降之情況，以至於造成血清素之調節功能不佳。然而是什麼原因造成血清素下降仍然不清楚，也是研究人員極待了解之情況。然而在給予血清素轉運蛋白抑制劑後在臨床上的研究，可因間接的增加了血清素的濃度而改善了憂鬱症之情況。然而如果血清素轉運蛋白在第一次發病之憂鬱症患者已明顯的下降，那短期的阻斷血清素轉運蛋白或許對於憂鬱症治療有效，那長時間服用後，又將造成何種影響呢？

II. 主要內容

可體素與血清素轉運蛋白之間的關係過去的研究並不多見且不明確，雖然過去有探討可體素對於不同血清素轉運器基因型對於壓力的耐受性及可體素間之關係，顯示對於具有 s-form 之變異型基因憂鬱症患者之預後較差，且病況也較為嚴重。然而直接利用腦影像學技術探討其二者間相關性之文章甚少，且最重要的原因在於具有高選擇性的血清素轉運器造影劑之發展較慢。因此本研究的目的是在於探討壓力荷爾蒙 cortisol 對於憂鬱症患者腦中血清素轉運器之影響。

III. 結果與討論

三年中共計收納正常對照組 76 人及初發未用藥憂鬱症患者 36 位，因供藥不足或病患中途退出的因素，而實際完成血清素轉運器造影的患者共計 26 位，在採用年齡及性別配對的條件下，而總共分析了 26 位正常人及 26 位初發未用藥憂鬱症患者。表一所列為正常人及病患之基本資料顯示年齡及性別並無差異，而憂鬱症患者的蒙哥馬利憂鬱量表之總分為 36.2。血清素轉運器在不同的腦區有著不同程度的分佈，然而在二組之間並無明顯的

差異，而 cortisol 在憂鬱症的患者中有較高之趨勢。在相關性的研究中顯示，血中 cortisol 的濃度與腦中不同區域的血清素轉運器並無明顯的相關性，但是在選取不同的個案時，則可看到 cortisol 在正常人具有調節血清素轉運器的作用，而這個作用卻無法在憂鬱症及雙向情緒障礙的患者出現(資料未列出)。有趣的是 cortisol 與蒙哥馬利憂鬱症量表的分數有顯著的相關，代表著二者之間可能有互相影響之可能。

IV. 結論

本研究的結果顯示血清素轉運器在不同的疾病中，可能有著不同的結果，而在壓力荷爾蒙 cortisol 的作用中，在正常人及病人及不同疾病間的差異亦有不同之作用，此項研究提供了一項重要的發現，對於未來在新藥開發的過程提供了不同的目標。

限制

這個研究中有幾個限制因素

1. 技術上目前分析血清素轉運器所選用的腦區太大，因此造成了明顯的 partial volume 效應
2. 就樣本數而言依然太少，使的在結果的解釋力上具有限制
3. 憂鬱症患者因太具有異質性，因此個案的選擇不易，將來的研究可能須對於憂鬱症患者的單一症狀進行研究，而目前的病患仍然無法代表整體的憂鬱症患者
4. 未來 ^{123}I -ADAM 供藥的穩定性也是一大挑戰。時常因供應之問題而無法完成造影，也使得病患流失，未來如果真要 ^{123}I -ADAM 上市使用，這點是急需改善的。

參考文獻

- [1] Birmaher B, Axelson D, Strober M, et al. Clinical course of children and adolescents with bipolar spectrum disorders. Archives of General Psychiatry 2006 Feb;63(2):175-183.
- [2] Bloom BS. Prevalence and economic effects of depression. [Review] [27 refs]. Managed Care 2004;13(6 Suppl Depression):9-16.
- [3] Berndt ER, Bir A, Busch SH, Frank RG, Normand SL. The medical treatment of depression, 1991-1996: productive inefficiency, expected outcome variations, and price indexes. Journal of Health Economics 2002;21(3):373-396.

比較與結合 ^{188}Re -Liposome 及體外放射治療對荷腫瘤動物之分子影像、輻射劑量、藥物動力學及療效研究

Combination of ^{188}Re -Liposome and external beam radiotherapy- Analysis for molecular imaging, radiation dose, pharmacokinetics and efficacy

計畫編號：NSC 102-2623-E-195-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：陳裕仁

e-mail：chenmdphd@gmail.com

計畫參與人員：游祥霖、劉欣怡

執行單位：馬偕紀念醫院放射腫瘤科

摘要

放射線治療是利用高能量放射線治療癌症且成為重要治療方式之一，體外放射治療及體內放射治療是兩種不同的放射療法方式。體外放射治療是從患有腫瘤病人體外以高能量X放射線照射，而體內放射治療則以具有放射活性的核種或是奈米載體植入癌症病患體內。放射線標定的奈米微脂體在藥物運送中是有用的載體且在放射治療及影像診斷上具有潛力應用，銻-188 (^{188}Re) 放射性同位素包覆於微脂體具有高效能、穩定性佳、以及方便等特性，可用於體內放射治療，但銻-188-微脂體對治療腫瘤之潛力仍需研究確認。

為了解體內及體外放射治療的療效，以及兩者結合應用之療效及劑量評估，我們建立食道癌BE3細胞表現冷光基因，利用皮下腫瘤動物模式評估體外放射治療對銻-188微脂體之藥物動力學及劑量分布的影響，以及結合體內及體外放射治療後之療效評估及活體分子影像。研究結果顯示，先施與荷腫瘤動物體外放射治療可增加銻-188微脂體在血液中的短效分布，在注射銻-188微脂體24小時後，體外放射治療可增加銻-188微脂體於尿液和糞便中的排出，而體外放射治療不影響腫瘤對銻-188微脂體的吸收量，利用microSPECT/CT進行活體影像分析也無顯著差異。在療效評估上，結合體內及體外放射治療比單獨治療成效更好，腫瘤生長抑制率顯示，單獨給與銻-188微脂體體內放射治療為24%，單獨給與體外放射治療為34%，結合體內及體外放射治療則增加為49%，顯示合併治療對腫瘤生長抑制有加成作用。在生物安全分析上，荷腫瘤動物之血液生化參數結果顯示，合併體內及體外放射治療不會造成免疫功能與肝腎功能降低等副作用，無顯著生物毒性，未來臨床試驗的應用上可作為參考。

關鍵詞：銻-188-微脂體、體外放射治療、體內放射治療

Abstract

Radiation therapy is one of the most important therapeutic methods for cancer treatment. Two kinds of radiation therapy are commonly used to deliver radiation dose: external beam radiotherapy (EBRT) and internal beam radiotherapy (IBRT). EBRT uses modality delivering radiation from outside toward tumor site, whereas IBRT utilizes a small radioactive seeds placed inside body to treat cancer cells. Radiolabeled nanoliposomes are exciting carriers in drug delivery as their potential in both

radiotherapy and diagnostic imaging. Rhenium ^{188} (^{188}Re)-Liposome has been introduced in IBRT as the enhanced bioavailability, stability, and convenience. However, the potential of ^{188}Re -liposome in treating cancer remains to be further verified.

To evaluate the therapeutic effect after combination of EBRT and IBRT *in vivo*, we established esophageal cancer cell line BE3 cells stably expressing luciferase gene for xenograft model. The effect of radiation on pharmacokinetics and biodistribution of ^{188}Re -Liposome and on the therapeutic efficacy after the combination of radiation and ^{188}Re -Liposome were analyzed. Our results indicated radiation increased blood absorption of ^{188}Re -Liposome at short wavelength, while long-term execution of ^{188}Re -Liposome from uterine and feces were enhanced by radiation. Within tumor site, radiation did not interfere the absorption of ^{188}Re -Liposome by BE3-luc cells, consistent to the result of live imaging analyzed by microSPECT/CT. Therapeutic efficacy test showed combination of EBRT and IBRT achieved better inhibition on tumor growth than individual treatment, as the tumor growth inhibition for radiation (34 %), for ^{188}Re -Liposome (24 %), and for combination treatment (49 %). In terms of biosafety, blood chemistry analysis revealed no significant immunological and hematological toxicities after combination of EBRT and IBRT. These data provided valuable references for clinical application of ^{188}Re -Liposome for the patients with esophageal cancer in the future.

Keywords: ^{188}Re -Liposome, external beam radiotherapy, internal beam radiotherapy

I. 前言

行政院衛生署統計公佈，民國 101 年十大癌症死亡率排名中口腔/食道癌為第五/第九，胰臟癌為第八。臨床治療策略除了手術切除，多合併放射治療及化學治療以提高存活率。合併化學治療是腫瘤發生轉移時不可避免的治療方式，但化學藥物非特異性的聚積常導致病人不適與副作用。因此，我們期望利用微脂體(Liposome)能特異性聚積在腫瘤處的特性，標幟核種銻-188 的微脂體作為體內放射治療的治療策略，進一步合併體外放射治療，期望在無顯著生物毒性/副作用的條件下，達到更好的腫瘤控制效果。

II. 主要內容

篩選有效攝入銻-188微脂體之癌細胞

以皮下注射方式將腫瘤細胞注入裸鼠右後腿，帶腫瘤生長至待測大小後，以尾靜脈注射方式注射銻-188微脂體(500 uCi)，注射1, 4, 24, 48小時後進行microSPECT/CT影像分析。測試口腔/食道癌細胞中，BE3與SAS細胞可成功攝入銻-188微脂體(圖一A,B)，OECM1細胞攝入銻-188微脂體的比例較低(圖二A)；胰臟癌細胞MiaPaCa2無法特异性攝入銻-188微脂體(圖二B)。

分析銻-188微脂體合併體外放射治療後之藥物動力學

用於合併治療之體外放射治療最適劑量，先前利用CT26細胞測試為3 Gy。待小鼠腫瘤(BE3-luc cells)長至200 mm³後，於馬偕醫院進行體外放射治療，經過二小時運送時間，於核研所進行體內放射治療，以尾靜脈注射銻-188微脂體(60 uCi)，注射後0.08, 0.25, 1, 4, 16, 24, 48, 96小時以眼窩採血方式收集等體積血液，以Cobra II Auto-Gamma counter測量放射活度。結果顯示體外放射治療會增加銻-188微脂體在血液中短效分布。

分析銻-188微脂體合併體外放射治療後之生物劑量分布

與上述實驗步驟相同，注射銻-188微脂體1, 4, 24, 48小時後，先擠出尿液，以二氧化碳方式犧牲老鼠後，取出各項器官組織，包括大腦、心臟、肺、舌頭、口腔、食道、肝、胃、大腸、小腸、胰臟、脾、腎、睪丸、肌肉、皮膚、骨頭、骨髓、淋巴結、血液、糞便、腫瘤共二十三樣。結果顯示體外放射治療可提高銻-188微脂體長時間後於尿液的排出量，由tumor/muscle比值顯示BE3-luc細胞可有效攝入銻-188微脂體，可惜攝入量在有無放射線存在下並無顯著差異。

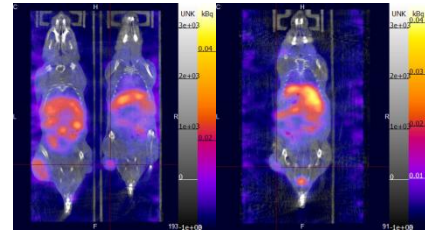
結合體外/體內放射治療之療效分析

待小鼠腫瘤長至200 mm³後，於馬偕醫院進行體外放射治療(2 Gy)，經過二小時運送時間，於核研所進行體內放射治療，以尾靜脈注射銻-188微脂體(300 uCi)，一週後每週兩次紀錄老鼠體重、腫瘤大小及活體影像。結果顯示老鼠體重隨時間減輕，有無放射線存在並無顯著差異，腫瘤生長抑制在合併治療組中抑制效果最好，腫瘤生長抑制率在單獨體外放射治療為34%，單獨體內放射治療為24%，合併治療為49%，顯示合併治療和單獨治療相比有加成效果(圖三)，活體影像分析顯示晚期腫瘤出現壞死現象，在合併治療組中多出現壞死以及Luciferase消失情形。

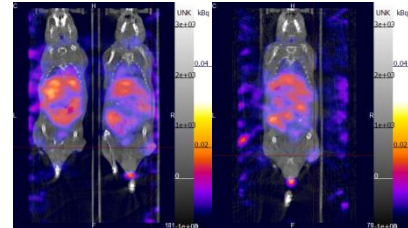
結合體外/體內放射治療之生物安全性分析

與療效實驗步驟相同，利用眼窩採血方式收集血液用於血球計數分析，剩餘血液進行離心取出血漿，新鮮測量肝功能指數ALT以及腎功能指數CRE。結果顯示合併治療和單獨治療相比，不會造成更高的免疫及肝腎功能傷害，顯示合併治療所產生的副作用低，但對腫瘤抑制效果最佳。

(A)

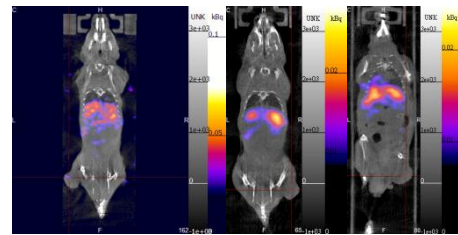


(B)

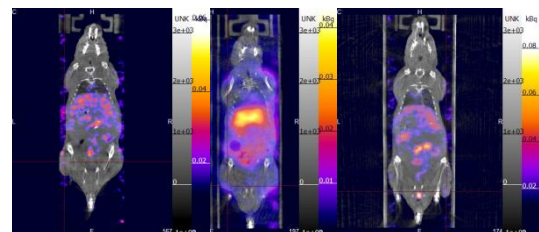


圖一、食道癌BE3細胞與口腔癌SAS細胞可特异性攝入銻-188微脂體。(A)皮下注射不同細胞數之BE3食道癌細胞，經microSPECT/CT影像分析顯示腫瘤大於150 mm³者(如紅色十字游標顯示)，注射銻-188微脂體24小時後可觀察到BE3細胞特异性攝入銻-188微脂體。(B)腫瘤大小大於150 mm³之口腔癌SAS細胞也可特异性攝入銻-188微脂體。

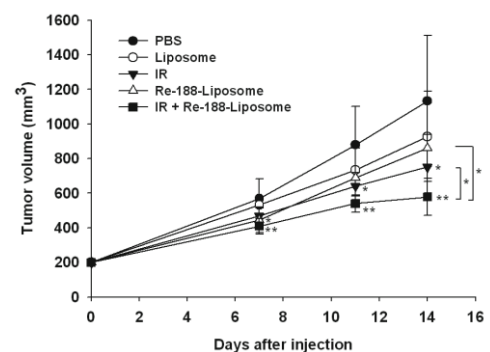
(A)



(B)



圖二、口腔癌OECM1細胞與胰臟癌MiaPaCa2細胞攝入銻-188微脂體量不高。(A)如紅色十字游標顯示，口腔癌OECM1細胞部份攝入銻-188微脂體。(B)胰臟癌MiaPaCa2細胞攝入銻-188微脂體的量較低。



圖三、合併體外體內放射治療對腫瘤生長抑制效果最佳。

相較於單獨治療，合併體外體內放射治療於注射後14天之腫瘤大小有顯著差異，腫瘤抑制率在體外放射治療組(1R, 2Gy)為34%，在體內放射治療組(Re-188-Liposome, 300 uCi)為24%，在合併治療組為49%，顯示合併治療對腫瘤生長抑制效果優於單獨治療。(n=5) * $p < 0.05$, ** $p < 0.01$

III. 結果與討論

目前研究結果證實食道癌 BE3 細胞與口腔癌 SAS 細胞可特異性攝入銻 188 微脂體，而胰臟癌細胞 MiaPaCa2 攝入銻 188 微脂體的比例不高，推測由於胰臟癌細胞貼附緊密微脂體難以進入細胞。合併體外體內放射治療後，藥物動力學分析顯示放射線可增加銻 188 微脂體於血液中的短效分布（4 小時內），而生物劑量分析顯示體外放射治療可增加銻 188 微脂體於尿液中排出量（24 小時後），於腫瘤處的聚積劑量在放射線照射後則無統計上顯著差異。

合併體外體內放射治療之療效分析顯示，合併治療方式對腫瘤生長控制優於單一治療方式，由於 BE3-luciferase 細胞生長最終發生壞死萎縮現象，無法觀察老鼠存活率分析，未來希望改用其他細胞株（如 SAS 細胞）進行分析。而合併治療在生物安全性方面，白血球數與肝腎功能指標均顯示合併治療相較於單一治療方式，不會產生更高的生物毒性，指標數值均落於正常數值範圍之內。

IV. 結論

合併體外體內放射治療可有效抑制腫瘤生長速度，效果較單一放射治療方式更佳，且生物安全性評估上均為可接受的安全範圍內。在生物劑量分布上，體外放射治療可增加銻 188 微脂體之排出量，不影響銻 188 微脂體在腫瘤的聚積量，最終達到控制腫瘤生長的加成效果。

參考文獻

1. Bardeesy N, Depinho RA. Pancreatic cancer biology and genetics. *Nat Rev Cancer*. 2002, 2: 897-909.
2. Walsh TN, Noonan N, Hollywood D, Kelly A, Keeling N, Hennessy TPJ. A prospective randomised trial of multimodal treatment plus surgery versus surgery alone for oesophageal adenocarcinoma. *N Engl J Med* 1996, 335: 462-467.
3. Das A, Singh V, Fleischer DE, Sharma VK. A comparison of endoscopic treatment and surgery in early esophageal cancer: an analysis of surveillance epidemiology and end results data. *Am J Gastroenterol*. 2008, 103:1340-1345.
4. Jemal A, Siegel R, Ward E, Murray T, Xu J, Smigal C, Thun MJ. Cancer statistics, 2006. *CA Cancer J Clin* 2006, 56, 106-130.
5. Pouliot J, Bani-Hashemi A, Chen J, Svatos M, Ghelmansarai F, Mitschke M, Aubin M, Xia P, Morin O, Bucci K, Roach III M, Hernandez P, Zheng Z, Hristov D, Verhey L. (2005) *Int J Radiat Oncol Biol Phys*. 61, 552-560.
6. Létourneau D, Wong JW, Oldham M, M, Gulam M, Watt L, Jaffray DA, Siewerdsen JH, Martinez AA. (2005) *Radiother Oncol*. 75, 279-286.

7. Mitra A, Nan A, Line BR, Ghandehari H. (2006) *Curr Pharm Des* 12, 4729-4749.
8. Davis ME, Chen ZG, Shin DM. (2008) *Nat Rev Drug Discov* 7, 771-782.
9. Allen TM, Cullis Pr. (2004) *Science* 303, 1818-1832.
10. Torchilin VP. (2005) *Nat Rev Drug Discov* 4, 145-160.
11. Häfeli U, Tiefenauer LX, Schbiger PA, Weder HG. (1991) *Int J RadAppl Instrum B* 18, 449-454.
12. Bao A, Goins B, Klipper R, Megrete G, Phillips WT. (2003) *J Nucl Med* 44, 1992-1999.
13. Chen LC, Chang CH, Yu CY, Chang YJ, Hsu WC, Ho CL, Yeh CH, Luo TY, Lee TW, Ting G. (2007) *Nucl Med Biol* 34, 415-23.
14. Chang YJ, Chang CH, Chang TJ, Yu CY, Chen LC, Jan ML, Luo TY, Lee TW, Ting G. (2007) *Anticancer Res* 27, 2217-25.
15. Wang SX, Bao A, Herrera SJ, Phillips WT, Goins B, Santoyo C, Miller FR, Otto RA. (2008) *Clin Cancer Res* 14, 3975-83
16. Chang YJ, Chang CH, Yu CY, Chang TJ, Chen LC, Chen MH, Lee TW, Ting G. (2010) *Nucl Med Biol* 37, 95-104.
17. Chen MH, Chang CH, Chang YJ, Chen LC, Yu CY, Wu YH, Lee WC, Yeh CH, Lin FH, Lee TW, Yang CS, Ting G. (2010) *Anticancer Res* 30, 65-72.
18. Ma HB, Di ZL, Wang XJ, Kang HF, Deng HC, Bai MH. (2004) *World J Gastroenterol* 10, 1669-1771.
19. Furuse J, Ogino T, Ryu M, Kinoshita T, Konishi M, Kawano N, Ishikura S, Shimizu W, Sekiguchi R, Moriyama N, Iwasaki M, Yoshino M. (2000) *Hepatogastroenterology* 47, 1142-1146.

醣質藥物核研 DTPA-hexa lactoside(HexLac)與 Tc-99m galactosyl human serum albumin(GSA)在土撥鼠肝炎感染模型攝取之比較

Comparison of hepatic asialoglycoprotein receptor agents: DTPA-hexa lactoside (HexLac) versus Tc-99m galactosyl human serum albumin using woodchuck hepatitis and hepatoma model

計畫編號：NSC 102-NU -E-002-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：顏若芳

e-mail：rfyen@ntu.edu.tw

計畫參與人員：顏若芳、吳慧琳、王美惠

執行單位：國立台灣大學醫學院放射線科

摘要

研究目的：In-111/Tc-99m DTPA-hexa lactoside (HexLac) 是核研發展的特異標定在肝臟細胞膜上的受體 Asialoglycoprotein receptors (ASGP-R) 的藥劑，過去我們以土撥鼠自然感染土撥鼠肝炎病毒(WHV)的模型已經顯示HexLac的攝取和肝炎感染後肝臟產生纖維化或硬化程度呈負相關性，我們也發現在肝細胞癌病灶的攝取量更低。另外Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA) 是國外已上市的ASGP-R藥物，但是一直尚未見到大規模臨床運用。本研究計劃評估：

1. 比較In-111/Tc-99m HexLac及Tc-99m GSA在土撥鼠自然感染肝炎病毒的模型的攝取差異。
2. 找出In-111/Tc-99m HexLac較Tc-99m GSA的優勢，為進一步臨床試驗之準備與實證。

研究方法：以臨床用的SPECT/CT gamma camera在分別在無肝炎病毒感染、有肝炎病毒感染及有肝炎病毒感染且已形成肝癌病灶的土撥鼠，每隻土撥鼠進行Tc-99m GSA及In-111/Tc-99m HexLac動態及斷層面造影，定量其在各重要器官的分佈、肝臟攝取速率、liver/blood pool ratio、及Specific ASGP-R binding potential等，並比較兩種藥物的特異性binding。

預期成果：找出In-111/Tc-99m HexLac相較Tc-99m GSA在評估存活肝細胞及殘留肝功能的優勢，做為即將進行的臨床試驗之實證。

關鍵詞：肝細胞膜受體、In-111/Tc-99m DTPA-hexa lactoside (HexLac)、Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA)、肝炎、肝硬化、肝癌、土撥鼠模型

Abstract

PURPOSE: In-111/Tc-99m DTPA-hexa lactoside (HexLac) is an asialoglycoprotein receptor (ASGP-R) targeting agent developed by Institute of Nuclear Energy Research (INER). We have demonstrated that it is a highly specific ASGP-R targeting agent which reflect the viability of hepatocytes. The tracer uptake is significantly correlated with the hepatic function reserve. We also notice that hepatoma is HexLac non or low-avid. In the meanwhile, Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA) is a commercial ASGP-R agent since 2000. Up to now, its

clinical usefulness is still very limited. The objectives of this study are to: (1) compare the uptake difference between In-111/Tc-99m HexLac and Tc-99m GSA using the woodchuck hepatitis B virus (WHV)-infected model, and (2) find out the advantages of In-111/Tc-99m HexLac over Tc-99m GSA.

METHODS:

1. Animals: 2 healthy, 2 chronic woodchuck hepatitis B virus (WHV)-infected and 2 HCC-bearing woodchucks,
2. Imaging: Using a commercial SPEC/CT (Symbia T2, Siemens Healthcare) equipped with medium energy collimators, dynamic and SPECT imaging will be performed after injection of ASGP-R tracers (HexLac and GSA)
3. Data analysis:
 - a. For dynamic study, the regions of interest will be drawn on the heart and liver and total count/sec for each ROI will be recorded.
 - b. For SPECT images, the average radioactivity count for liver, heart, kidneys, urinary bladder will be obtained by placing the region of interest (ROI) inside the corresponding organs. Specific SGP-R binding potential will be calculated for each woodchuck by the equation: (Mean count ROI (liver)- Mean count ROI (heart))/Mean count ROI (heart). The specific binding potentials of Tc-99m GSA and In-111/Tc-99m HexLac will be compared.

Keywords: asialoglycoprotein receptor (ASGP-R); In-111/Tc-99m DTPA-hexa lactoside (HexLac); Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA); hepatitis, liver cirrhosis; hepatoma; woodchuck model

I. 前言

在台灣，因為慢性B型肝炎，C型肝炎，及酒精性肝炎人數多，肝臟長期的處在發炎狀態，肝細胞慢慢被破壞，肝臟纖維化也持續進行，至一個程序就進展到肝硬化，影響肝臟功能。我們也知道正常肝臟可以忍受70-80%切除，殘餘肝臟仍可以在術後6-12個月再生回復到開刀前大小。但是肝硬化病人對於肝切除的忍受度就差很多，肝再生能夠也變差。所以在接受肝臟切除手術之前能正確評估殘留肝臟功能是非常的重要。¹

目前在臨床上通常以 Indocyanine green (ICG) clearance test 來做肝功能的評估，ICG於靜脈注射後迅速

與白蛋白結合，而分佈於全身的血管內經由肝選擇的吸收，並代謝於膽汁中。然後抽血測其吸光變化，以得知染料的代謝速率。但ICG 和臨床及病理常有不合的發現。這可能因以有效肝臟血流和肝內及肝外分流(shunt)造成。²

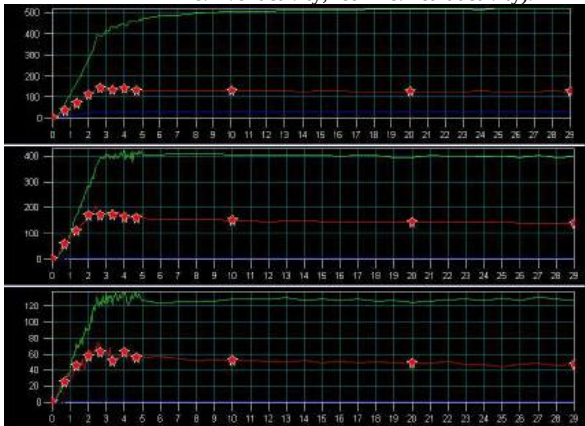
Ashwell 等人發現在正常肝細胞膜上具有特異性的 asialoglycoprotein (ASGP)受體。³ASGP受體表現在哺乳動物的正常肝細胞sinusoidal及lateral表面，⁴每一個細胞約有140,000±65,000個binding sites。而且ASGP受體表現在患有慢性肝臟病變病人之肝細胞則有減少情形。⁵有學者發表可合成ASGP類似物-diethylenetriamine pentaaceticacid galactosyl-human serum albumin (GSA)，以Tc-99m標誌，可以正確評估肝功能。⁶利用造影計算出的GSA-Rmax和肝臟病變嚴重程度成反相關性。⁷作者認為可以用Tc-99m GSA-Rmax來做肝臟手術前肝功能的測定。但是GSA是利用一個大的蛋白質做為galactose 或lactose的骨架，分子較大，目前已有研究以dextran 或 chitosan 做骨架。⁸原子能委員會核能研究所也開發出 DTPA-HexLac：



98-99年核能研究所已建立完整小鼠肝纖維化與急性肝炎模式及藥物生物分佈實驗，但是因為小鼠肝炎模式和人類感染B/C型肝炎病毒後導致肝纖維化並不相同。台大肝炎中心長期以土撥鼠模式研究肝炎病毒感染慢性肝炎，肝纖維化及肝癌形成的過程。土撥鼠 (woodchuck, Marmota monax) 會感染一種DNA virus (Woodchuck hepatitis virus [WHV])，該病毒的型態和複製過程和人類hepatitis B virus (HBV)非常相似。^{9,10}所以是非常理想用來研究hepatitis B和HBV-associated HCC 的動物模式。100年我們已經在in-vitro土撥鼠的病理切片證實HexLac binding在正常土撥鼠肝臟表面，且在有帶原的土撥鼠肝臟切片該binding減少。並有in vivo 動態影像定量分析顯示ASGP-R binding potential 在正常土撥鼠最高，有肝炎的土撥鼠低，帶有肝癌病灶的土撥鼠最低。

	Woodchuck 1 healthy	Woodchuck 2 HBV infected	Woodchuck 3 With hepatoma
Body weight (g)	3500	4900	3800
Gender	F	M	F
Tracer dose (Ci)	127	173	114
GOT	48*	19	120
GPT	11	19	23
GT	1	24	146
Dynamic			
Equilibrium Total count liver/heart ratio	4.0	2.7	2.2
SPECT			
Specific ASGP-R binding potential: (liver-heart) /heart	8.25	0.15	0.03

Figure 1. Dynamic studies of 3 woodchucks (green line: liver activity; red line: heart activity).



該實驗顯示DTPA-HexLac是特異標誌在ASGP-R 的藥物，其攝取可以正確反應肝細胞活性，而且和肝臟殘留功能顯著相關，肝細胞癌病灶的攝取量更低。加上目前核研HexLac除以In-111標誌外，也發展以Tc-99m 標誌。另外Tc-99m galactosyl human serum albumin (GSA) 是國外已上市的ASGP-R藥物，但是一直尚未見到有大規模臨床運用。所以本研究目的：

1. 比較 In-111 (Tc -99m) HexLac 及Tc-99m GSA 在土撥鼠自然感染肝炎病毒的模型的攝取差異。
2. 找出 In-111 (Tc -99m) HexLac較Tc-99m GSA的優勢，為進一步臨床試驗之準備與實證。

II. 主要內容

延續100年研究所用commercial SPECT/CT (Symbia T2, Siemens Healthcare) equipped with medium energy collimator. Dynamic and SPECT imaging will be performed for 3 kinds of woodchucks: healthy control, chronic hepatitis B, and HBV-associated hepatoma.

1. 使用cross over design：第一批土撥鼠先做HexLac再做GSA，第二批土撥鼠先做GSA再做HexLac
2. Dynamic study will be performed for 60 minutes was performed for each woodchuck immediately after tracer injection (total volume of 10 cc with infusion speed of

300 ml/min) followed by SPECT/CT acquisition. SPECT/CT imaging will be taken by 60 projections over a circular orbit of 360° [30 second per angle] and its data were stored in 128 x 128 matrices. CT transmission scan will be performed after the completion of emission data acquisition. Emission data will be reconstructed by FLASH-3D algorithm.

3. For data analysis in dynamic study, the regions of interest will be drawn on the heart and liver and total count/sec for each ROI will be recorded. For SPECT images, the average radioactivity count for liver, heart, kidneys, urinary bladder will be obtained by placing the region of interest (ROI) inside the corresponding organs. Specific ASGP-R binding potential will be calculated for each woodchuck by the equation: (Mean count ROI (liver)- Mean count ROI (heart))/Mean count ROI (heart).

預期完成之工作項目：

計劃執行期間，計劃進行土撥鼠數批，每批土撥鼠將分別進行HexLac及GSA studies。

- 甲、比較兩種同位素藥物的攝取速率和影像等結果，定量其在各重要器官的分佈、肝臟攝取速率、liver/blood pool ratio、及Specific ASGP-R binding potential 等，並比較兩種藥物的特異性binding。
- 乙、找出HexLac相較GSA在評估存活肝細胞及殘留肝功能的優勢，做為即將進行的臨床試驗之實證。

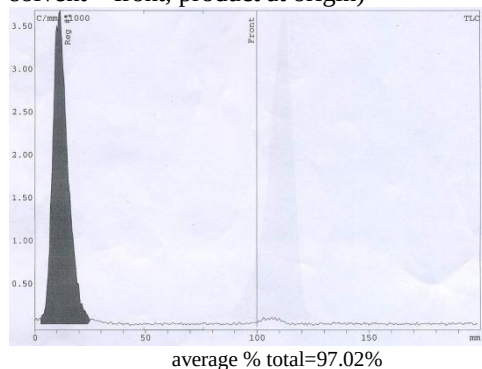
對於學術研究、國家發展及其他應用方面預期之貢獻：HexLac為本國自己研發的核醫藥物，如能找到重要臨床適應症，將能使核子醫學的分子影像在肝臟疾病多一個有用利器。

III. 結果與討論

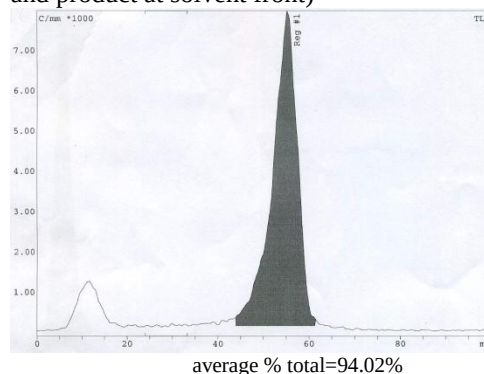
於2013年5-8月進行土撥鼠Tc-99mTriGalNac藥物標誌率分析，動態影像及SPECT造影。於2013年8-9月進行Tc-99m galactosyl human serum albumin(GSA) 動態影像及SPECT造影。兩隻非帶原，一隻帶原無腫瘤及兩隻帶原有腫瘤的土撥鼠已完成Tc-99m TriGalNac及Tc-99m GSA 的造影。

1. Tc-99m TriGalNac藥物標誌率分析(共四次實驗)

- a. ITLC-SG (mobile phase: acetone): free Tc at solvent front, product at origin)



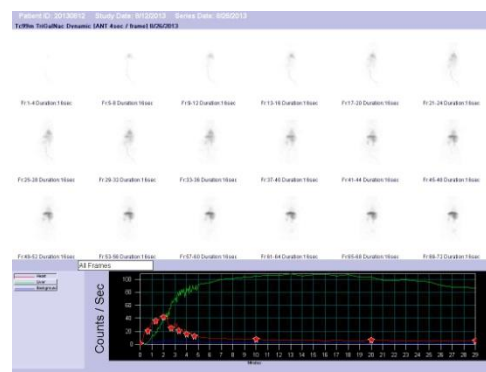
- b. RP-TLC (mobile phase: ACN/H2O=1:1: both free Tc and product at solvent front)



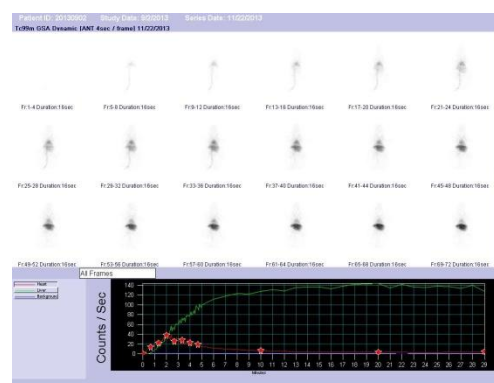
2. 同位素藥物劑量及Imaging protocol
 - a. Dose 0.5 mCi 以normal saline dilute到10CC
 - b. Infusion at 300 ml/hr
 - c. Dynamic acquisition
 - 4 sec/frame for 5 min
 - 1 min/frame for 30 min
 - d. SPECT protocol
 - 6 degree a step, 60 sec acquisition each step.

3. 動態影像Tc-99m TriGalNac與Tc-99m GSA比較

- a. Tc-99m TriGalNac



- b. Tc-99m GSA



c. Tc-99m TriGalNAc與Tc-99m GSA之比較

		TriGalNAc		GSA	
		第15分鐘	第30分鐘	第15分鐘	第30分鐘
	土撥鼠	Liver /Heart	Liver /Heart	Liver /Heart	Liver /Heart
非帶原	1	6.71	9.53	25.17	38.37
	2	14.28	12.4	48.78	45.33
帶原無腫瘤	1	7.59	6.53	20.2	26.14
帶原且有腫瘤	1	16.1	10.46	38.13	38.14
	2	12.16	11.06	30.22	54.73

4. SPECT 照影分析中。

IV. 結論

本計畫進行到去年九月土撥鼠已經準備進入冬眠，不適合繼續進行實驗。已辦理展延至今年 7 月，預計 5 月土撥鼠冬眠甦醒，完成另一隻帶原無腫瘤之 Tc-99m TriGalNAc 與 Tc-99m GSA 照影後，執行 GSA 標誌率分析，完成全部實驗並撰寫結果。

參考文獻

- [1] LinTY, Lee CS, Chen CC, et al. Regeneration of human liver after hepatic lobectomy studied by repeated liver scanning and repeated needle biopsy. Ann Surg. 1979;190:48-53.
- [2] Moody FG, Rikkers LF., Aldrete JS. Estimation of the functional reserve of human liver. Ann Surg. 1974;180:592-598.
- [3] Morell AG, Irvine RA, Sternlieb I, et al. Physical and chemical studies on ceruloplasmin. V. metabolic studies on sialic acid-free ceruloplasmin in vivo. J Biol Chem. 1968;243:155-159.
- [4] Burgess JB, Baenziger JU, Brown WR. Abnormal surface distribution of the human asialoglycoprotein receptor in cirrhosis. Hepatology. 1992;15:702-706.
- [5] Sawamura T, Nakada H, Hazama H, Shiozaki Y, Sameshima Y, Tashiro Y. Hyperasialoglycoproteinemia in patients with chronic liver diseases and/or liver cell carcinoma: asialoglycoprotein receptor in cirrhosis and liver cell carcinoma. Gastroenterology. 1984;87:1217-1221.
- [6] Ha-Kawa SK, Tanaka Y, Hasebe S, Kuniyasu Y, Koizumi K, Ishii Y, et al. Compartmental analysis of asialoglycoprotein receptor scintigraphy for quantitative measurement of liver function: a multicentre study. Eur J Nucl Med. 1997;24:130-137.
- [7] Kwon AH, Ha-Kawa SK, Uetsuji S, Inoue T, Matsui Y, Kamiyama Y. Preoperative determination of the surgical procedure for hepatectomy using technetium-99m-galactosyl human serum albumin (99mTc-GSA) liver scintigraphy. Hepatology. 1997;25:426-429.
- [8] Yang W, Mou T, Shao G, et al. Copolymer-based hepatocyte asialoglycoprotein receptor targeting agent for SPECT. J Nucl Med 2011;52:978-985.
- [9] Tennant BC, Toshkov IA, Peek SF, Jacob JR, Menne S,

Hornbuckle WE et al. Hepatocellular carcinoma in the woodchuck model of hepatitis B virus infection. Gastroenterology. 2004;127:S283-S293.

- [10] Huang KW, Wu HL, Lin HL, Liang PC, Chen PJ, Chen SH et al. Combining antiangiogenic therapy with immunotherapy exerts better therapeutical effects on large tumors in a woodchuck hepatoma model. Proc Natl Acad Sci USA. 2010;107:14769-14774.

應用多模組分子影像於銻-188-微脂體奈米核醫藥物之自發性體轉移肺癌小鼠模式療效評估

Study of Therapeutic Efficacy of Rhenium-188-Liposomal Radiopharmaceutical against Systemic Metastasized NSCLC Mice Model Using Multimodality Molecular Imaging

計畫編號：NSC 102-NU-E-010-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：李易展

e-mail：yjlee2@ym.edu.tw

計畫參與人員：李德偉、張志賢、游祥霖、林亮廷

執行單位：國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系

摘要

根據行政院衛生署國民健康局癌症統計報告，國人罹患肺癌之診斷死亡比僅 1.2 案/死亡；且肺癌診出時，已轉移的第四期佔總診斷數之 53.6%。顯見罹患肺癌後發生全身轉移後的治療相形重要。當前對於轉移性癌症的治療主要以化學治療以及標靶治療為第一線處置。然而嚴重的副作用與高單價，都是罹病家庭的重擔。奈米微脂體藥物非但提供較經濟的選項，也能增加藥物的專一性。核能研究所近年成功開發出銻-188 奈米微脂體藥物，藉由腫瘤新生血管的疏漏特性，而能夠有效地積聚於腫瘤處。將治療藥物 Doxorubicin 包埋其中，可加強傳遞效果，增加腫瘤抑制能力。此外，銻-188 發散的伽瑪射線可經單光子斷層掃描儀器非侵入式地觀察藥物積聚及分布。在我們過去研究中，我們成功建立肺癌以及鼻咽癌的小動物模式，並確認銻-188 微脂體藥物於腫瘤位置的積聚。進一步地，我們也證實此類藥物在兩種癌症的原位接植模式中，皆具腫瘤抑制效果。

總結來說，本研究計畫將著重於開發體轉移模式，我們將使用心臟、尾靜脈注射以及脾肝轉移模式，建立人類肺癌體轉移小鼠，搭配多模組分子影像系統，對銻-188 微脂體藥物分布以及藥物動力學研究。接著利用 OLINDA/EXM 程式計算個器官之吸收劑量，力求完整的前臨床測試，以期此藥物於人類癌症能有廣大助益。關鍵詞：奈米核醫藥物、銻-188-微脂體、人類非小細胞肺癌、癌症轉移、分子影像

Abstract

Lung cancer is documented with 53.6% of all diagnosed cases were staged four, the metastatic stage, according to the database of Bureau of Health Promotion. Considering the behavior and position of lung cancers, most of the patients suffered from metastatic cancers are treated with chemotherapy for tumor control. However, use of chemotherapy is usually accompanied by severe side effects because of low specificity. Recently, liposomal drugs have been developed for a better accumulation and resident time in tumor location. The enhanced permeability and retention (EPR) effect is a special environment caused by the leaky blood vessel networks established by tumor tissue. Liposomal drugs can easily pass through the immature

vasculatures, and specifically accumulate inside the lesions. In addition, the liposomal drugs are conjugated with a theragnostic radioisotope, rhenium-188, for enhancing therapeutic efficacy through radiotherapy in closer range. Rhenium-188 emits not only therapeutic β particles but also detectable γ rays. In our previous study, we have successfully established orthotopic human lung cancer and nasopharyngeal cancer mouse model. The accumulation of injected liposomal drugs was confirmed by nanoSPECT imaging and bio-distribution analysis. The therapeutic efficacy evaluation showed the both lung and nasopharyngeal cancers were suppressed in response to ^{188}Re liposomal drugs. In this proposal, we tend to establish a systemic metastatic lung cancer mouse model by intravenous, intracardiac and hepatosplenic injection. Thus, we can evaluate the tumor suppressive effect of ^{188}Re liposomal drugs against metastatic cancers. Not only the therapeutic efficacy, but also the radiation dose of each organ will be calculated through OLINDA/EXM software estimation. These results will be important pre-clinical evidence, and will become a solid fundament of new drug development. In conclusion, this project is a study of using multiple reporter system as a preclinical platform for monitoring the therapeutic efficacy of liposomal drug in lung metastatic cancer mouse model.

Keywords: nanoradiopharmaceutical, rhenium-188-liposome, NSCLC, cancer metastasis, molecular imaging

I. 前言

在先前研究中，本實驗室成功使用病毒系統建構帶有報導基因之頭頸癌細胞株，包含人類非小細胞肺癌 NCI-H292、人類口腔癌細胞 SAS、人類下咽部上皮細胞癌 FaDu 細胞及 OECM-1 細胞等。使前述細胞株具穩定表現螢光蛋白、螢火蟲螢光酶、以及第一型簡單疱疹病毒胸腺嘧啶激酶等三種分子造影功能。並且證實小鼠接植有原位頭頸癌並注射銻-188-微脂體後可確實利用單光子造影技術發現確實有積聚效果。利用螢光蛋白做細胞分選後取得穩定細胞株，並使用 IVIS 系統取得細胞數量與冷光強度之正相關。胸腺嘧啶激酶之活性則使用氚標定之胸腺嘧啶類似物 2'-fluoro-2'-deoxyarabinofuranosyl-5-ethyluracil (FEAU) 攝取實驗予以定量。動物模式使用裸鼠於原位接植，並使用 IVIS 系統追蹤其冷光訊號。進一步地我們將植有人類頭頸癌腫瘤

之裸鼠，進行奈米型藥物銻-188-微脂體之療效評估，並對照銻-188 於局部細胞之造影效果與細胞本身之核子醫學造影探針，以證明此類微脂體奈米藥物確實可抑制原位頭頸癌的生長。接續先前研究，本計劃擬建立人類頭頸癌之原位及轉移小鼠模式，並利用體外光學及核子醫學造影技術追蹤並合併臨床第一線化療藥物配合定量評估治療效果，以期獲得整體並有利的人類頭頸癌治療或抑制效果證明，在未來將此類藥物送上臨床，為癌症病患之一大福音。

II. 主要內容

本實驗室已成功建立人類頭頸癌及肺癌小鼠模式，透過銻-188-微脂體藥物，完成對人類頭頸癌及肺癌的治療效果探討。先前研究證實銻-188-微脂體藥物可透過 EPR 效應使其專一地累積在植入人類 FaDu 頭頸癌及肺癌腫瘤的小鼠原位接種 (orthotopic implantation)，並可以與分子影像相輔相成。透過生物體分布評估分析 (Bio-distribution)、療效評估、藥物動力學、輻射劑量評估、以及多模組分子核醫造影分析，具體呈現了銻-188-微脂體藥物抑制人類頭頸癌及肺癌的效果。本研究構想中，本實驗室將利用銻-188-微脂體藥物於人類頭頸癌及肺癌全身性轉移模式的上述各項指標，並以此為基礎，進一步探討銻-188-微脂體藥物合併第一線化療藥物是否也可在小動物體內，具抑制頭頸癌及肺癌生長的效果，以及是否能有效降低系統毒性。以此為目的，本研究將建立人類頭頸癌及肺癌全身性轉移小動物模式，用以評估銻-188-微脂體藥物於此類癌症末期之療效。總結來說，本計畫之實驗目的可歸納如下：

1. 建立人類非小細胞肺癌於小鼠之全身轉移動物模型
2. 建立以多模組分子影像系統為基礎之人類下咽部鱗狀細胞癌細胞株
3. 了解銻-188 微脂體藥物於荷人類頭頸部腫瘤小鼠之生物體分布
4. 評估銻-188 微脂體抑制人類頭頸癌原位接種模式小鼠生長及其治療效果

III. 結果與討論

第一部分 - 人類非小細胞肺癌相關研究

在非小細胞肺癌方面，我們以 NCI-H292 細胞為主，先植入三合一報導基因表現載體後，再利用皮下腫瘤模式驗證腫瘤體積與光學定量的相關性。接著建立原位的人類肺癌動物模式。由於腫瘤本身體積過小，可能因為不易形成新生血管，而使銻-188-微脂體藥物無法累積足夠的劑量在 nanoSPECT/CT 儀器中偵測到藥物積聚效果。此一假設利用光學系統徹底分離左右肺後，使用伽馬計數器定量分析，證實植有腫瘤的左肺確實有較高的藥物積聚，表示腫瘤體積會影響銻-188-微脂體藥物的積聚，雖然不易直接觀察到影像上的積聚，但事實上仍然會有藥物累積的效果。利用生物體分布分析量化腫瘤及其他器官於特定時間點的攝取量，也提供較準確的劑量評估

依據。於療效評估方面，我們使用單次劑量銻-188 微脂體奈米藥物治療後，與控制組相較可見明顯抑制非小細胞肺癌，經 Kaplan- Meier 數據分析後可得知生存期延長的效果。由此成果得知，於銻-188-微脂體藥物於肺癌的治療上，並不需要很大的劑量才能達到抑制腫瘤生長的效果，如此可降低放射性藥物的使用劑量，以降低對正常組織的潛在傷害。此外，我們也積極開發人類癌症全身轉移小鼠模式。我們首先採用心臟注射方式 (intracardiac injection)，讓細胞自體循環散佈全身後，隨機於小鼠體內形成腫瘤，實際形成位置及大小則相同仰賴光學影像追蹤。未來我們也將利用此模式探討銻-188-微脂體藥物能否能控制轉移性肺癌。

第二部分 - 人類頭頸癌相關研究

本實驗室同時建立原位的頭頸癌模式，將帶有冷光酵素及 HSV1-tk 報導基因的 FaDu 頭頸癌細胞種入裸鼠咽喉部，逐週利用 IVIS 光學造影系統追蹤腫瘤生長情形。由圖可示，在口腔內的腫瘤隨時間而增大，表現的冷光訊號也隨之增加。HSV1-tk 基因的表現則利用 123I-FIAU 為造影探針，取腫瘤生長至第三週的老鼠利用 nanoSPECT/CT 造影，可更清楚觀察到腫瘤於口腔內生長的空間位置。利用此動物模式，我們透過尾靜脈注射 500

Ci 銻-188-微脂體藥物，於注射後 24 小時進行 nanoSPECT/CT 造影，結果證實了銻-188-微脂體藥物能夠確實積聚在原位的頭頸癌組織。更進一步地，我們使用光學造影定量研究做療效評估，在 16 天的連續追蹤裡，也證實銻-188-微脂體藥物確實能夠有效抑制人類下咽部癌症的生長。因此，這些研究成果顯示，銻-188-微脂體藥物可抑制人類頭頸癌的生長，對正在進行臨床研究的該類藥物是一令人振奮的消息。

IV. 結論

於本年度研究中，本實驗團隊成功使用心室注射法建立人類非小細胞肺癌之小鼠全身轉移模式，並使用生物冷光造影系統檢視其腫瘤生長狀態；然而微脂體藥物主要經由肝臟及脾臟代謝，大量的銻-188-微脂體積聚增加了腹部病灶於影像判讀上的不確定性，藥物實際積聚效應之探討仍待進一步的分析。另一方面，為建立距離肝脾位置較遠的腫瘤模式，本實驗室積極研究人類頭頸部癌症的原位小鼠模式，經由口腔定位注射人類下咽部鱗狀細胞癌 FaDu 細胞，並成功使其於小鼠頸部生成腫瘤。緊接著，經尾靜脈注射銻-188-微脂體藥物後，利用核研所 nanoSPECT/CT 儀器可於藥物注射後 24 小時，觀測到相當明顯的藥物積聚效應。另一方面，生物體分布分析也清楚證明在 24 小時乃至 48 小時時間點，腫瘤-非腫瘤積聚比可攀至 50 倍以上，顯見此藥物專一性極佳。進一步地，針對本團隊利用生物冷光造影追蹤銻-188-微脂體藥物治療原位人類頭頸癌之療效評估方面，IVIS 造影結果清楚顯示本藥物有效地抑制了人類頭頸癌細胞的生長。本年度研究成果在在說明了銻-188-微脂體藥物應用於治療人類頭頸癌方面，可望獲得顯著的效果，也期許本研究成果可作為臨床試驗之重要基礎。除此之外，本研究成果亦已完成國際期刊論文撰寫並投稿於知名國際期刊 Journal of Nuclear Medicine。

参考文献

1. Bao, A., et al., *¹⁸⁶Re-liposome labeling using ¹⁸⁶Re-SNS/S complexes: in vitro stability, imaging, and biodistribution in rats.* J Nucl Med, 2003. 44(12): p. 1992-9.
2. Chang, Y.J., et al., *Therapeutic efficacy and microSPECT/CT imaging of ¹⁸⁸Re-DXR-liposome in a C26 murine colon carcinoma solid tumor model.* Nucl Med Biol. 37(1): p. 95-104.
3. Chang, Y.J., et al., *Therapeutic efficacy and microSPECT/CT imaging of ¹⁸⁸Re-DXR-liposome in a C26 murine colon carcinoma solid tumor model.* Nucl Med Biol, 2010. 37(1): p. 95-104.
4. Chen, M.H., et al., *MicroSPECT/CT imaging and pharmacokinetics of ¹⁸⁸Re-(DXR)-liposome in human colorectal adenocarcinoma-bearing mice.* Anticancer Res. 30(1): p. 65-72.
5. Hong, H., et al., *Non-Invasive Cell Tracking in Cancer and Cancer Therapy.* Curr Top Med Chem, 2010.
6. Ibrahimi, A., et al., *Highly efficient multicistronic lentiviral vectors with peptide 2A sequences.* Hum Gene Ther, 2009. 20(8): p. 845-60.

藉輻射照射進行醫療用奈米複合生長因子之骨材臨床前動物試驗之應用療效評估：
以粉狀水膠混合血小板膠重建顱骨缺損：動物實驗
Reconstruction of cranial bone defect with powder hydrogel and platelet gel

計畫編號：NSC 102-2623-E-016 -004 -NU

計畫類別：□個別型計畫 ■整合型計畫

計畫主持人：陳天牧

e-mail：timmo@ms22.hinet.net

計畫參與人員：蔡瑞哲、伍德馨、張光偉、方旭偉

執行單位：國防醫學院外科學系整形外科

摘要

本計畫為「藉輻射照射進行醫療用奈米複合生長因子之骨材臨床前動物及生物性試驗之應用療效評估」子計畫一，主要目的在於建立較大動物，紐西蘭大白兔，對於醫療用奈米複合生長因子之骨材於顱骨缺損的效益評估，並且配合兩種市售品，分別為市售品 I(磷酸鈣類的粉狀骨材)與 II(collagen 粉狀骨材)混和血小板膠作為較大動物顱骨缺損修復比較。為了瞭解顱骨受損後初期(4 周)以及長期(12 周)的癒合情形，並且於動物犧牲後進行骨組織切片分析與比較。本研究將動物分成實驗組，陽性對照組，陰性對照組等，將大白兔的顱骨製造 15mm 的缺損(critical size defect 15 mm)，並且將受試材料與血小板膠依一定比例混和分別於 4 周以及 12 周時觀察骨缺損癒合情形，並且進行外觀觀察以及組織癒合的討論。本計畫結合子計畫二醫療用奈米複合生長因子體外模型測試結果，可以提供未來更為完善的醫療用奈米複合生長因子臨床前測試數據，對於醫療用奈米複合生長因子骨材商品化具有顯著的幫助。

關鍵詞：水膠，血小板膠，顱骨手術。

Abstract

Reconstruction of post traumatic craniofacial bone defect is needed to provide brain protection and to restore esthetic contour. Currently, the most commonly used materials for craniofacial bone defect are autogenous bone graft and methyl methacrylate. Neither are idea. Various experimental and clinical studies suggest that platelet growth factor may stimulate mesenchymal stem cell to differentiate into osteoblast.

In this animal study, we will use hydrogel powder carrying platelet gel to reconstruct critical sized calvarial bone defect in rabbit (15mm in diameter). Group 1: the bone defect reconstructed with hydrogel and platelet gel Group 2: the bone defect reconstructed with hydrogel. Group 3: the bone defect not reconstructed. Group 4: The bone defect reconstructed with commercial calcium phosphate and platelet gel. Group 5: The bone defect reconstructed with collagen with platelet gel.

The healing of bone defect will be evaluated by micro-CT scan 4 and 12 weeks after surgery in vivo. The animals will be sacrificed after CT scan study. The bone defect with surrounding 2-3 mm normal bone will be harvested, evaluation of new bone formation includes (1) Gross observation, (2) Micro-radiography (3) Histologic

study. Based on the data, We will evaluate the safety and efficacy of hydrogel powder /platelet combination to reconstruct full-thickness calvarial bone defect in rabbits.

Keywords: hydrogel powder, platelet gel, calvarial bone defect.

I. 前言

戰傷或疾病性(如腦瘤切除術後)造成之顱骨，顏面骨缺損，傳統之治療包括自體骨移植及骨水泥(methyl methacrylate)重建骨缺損。自體骨有來源不足(大面積缺損及兒童病患)，供應區產生各類併發症(出血，疼痛，感染)的缺點。骨水泥有排斥，感染，鬆脫及磨破皮膚缺點。而臨床使用之骨代替品：骨傳導基質 (Osteoconductive scaffold) 成份混合 60% 的 hydroxyapatite 及 40% Tricalcium phosphate，由於缺乏骨誘導能力 (Osteoinduction) 所以骨質新生之能力有限，僅限於 implant 之邊緣。

目前有關誘導骨質新生因子之研究由於來源管控不易，且來自異體的生長因子具有免疫方面的高風險性，日前由 FDA 所核准上市的骨生長因子，由於藥害通報已禁止臨床上使用，使得目前治療骨缺損，臨床已難以找到具有可應用於臨床上作為誘導骨質新生因子來源。長久以來，我們都知道當組織受傷後，血小板會聚集於血管受損之位置形成 platelet aggregate，發揮止血之功能，但近年來的研究發現血小板細胞質內之 α 顆粒，儲存有許多生長因子如 Platelet derived growth factor (PDGF)，Transforming growth factor (TGF)，Vascular endothelial growth factor(VEGF)以及 Epidermal growth factor (EGF)。而間葉幹細胞的細胞膜上有這些生長因子的接收體 (receptor) 當這些生長因子與細胞膜上的接受體結合後，會誘導間葉幹細胞成為骨先驅細胞(osteogenic precursor cell)產生類骨質(osteoid)。至於如何活化血小板釋出這些生長因子？當凝血酶 (thrombin) 與 platelet rich plasma (PRP) 混合，就會形成血小板膠，可提供血小板緩慢釋放生長因子的纖維蛋白基質(Fibrin-rich matrix)。

II. 主要內容

本研究小組經產學合作，與國內美瑞世生物科技公司及法國 Human plasma product services 合作研發製成可以製作凝血酶之 thrombin generation device (TGD) 此一 device 已經衛生署許可上市。(許可證字號：衛署醫器製字第 000988 號)。在 93 年及 94 年國科會的計劃中我們已經能成功的自製血小板膠，並使用於大白兔及臨床病患

修補顱骨缺損，結果証實骨質新生程度相當理想。人體實驗論文[Cranioplasty using osteoconductive scaffold and platelet glue] 已於 2008 年為 Journal of Trauma 接受刊登。95 年國科會計劃中，我們將此生物醫材應用於大白鼠眼眶底骨折之修補，結果証實生物適應性骨質新生程度相當理想。因此自 96 年開始，本研究小組向國科申請連續性三年之研究用於臨床眼眶底部粉碎性骨折病患之修復，臨床實驗已於 99 年 7 月結束。論文 Single donor allogeneic platelet fibrin glue and osteoconductive scaffold in orbital floor fracture reconstruction 已為 Annals of Plastic Surgery 接受刊登。

根據這幾年以骨傳導基質混合血小板膠重建，顱顏面骨缺損之經驗，我們發覺臨床上尋找可攜帶血小板膠，更為理想的基質(scaffold)作為治療骨缺損具有其重要性。而本計畫選用包含以感溫性單體 N-異丙基丙烯醯胺(N-isopropyl acrylamine, NIPAAm)、丙烯酸(Acrylic acid, AAC)以及交聯劑 N,N'-亞甲基雙丙烯醯胺(N,N-methylene bisacrylamide, NMBA)，並且配合放射線 γ -ray 照射製作而成之高強度及低摩擦性水膠結合近來被廣泛臨床應用的血小板膠，合成有效促進骨缺損癒合之高值化醫療奈米複合骨材。此支架具備良好的孔洞聯結性，利於細胞營養物之流通；含水率 85%，利於搭載生長因子；壓縮強度高達 42 MPa，細胞在培養的過程中，仍可維持支架結構的完整性，因此非常適合做為培養骨細胞及攜帶血小板膠之支架。100 年本研究團隊結合原能所、三總、國立台北科大等先進研究能量，業已完成材料本身臨床動物實驗應用相關研究，初步獲得良好的結果。由大鼠顱骨缺損動物實驗模型上觀察，混和血小板膠與奈米複合骨材的骨傳導性以及骨誘導性臨床效果良好，適合較大規模的骨缺損修復。

為完整高值化醫療奈米複合骨材臨床前試驗評估，協助國內臨床醫療應用技術發展，本期研究希望透過臨床應用導向活體動物試驗設計，以較大動物模型，紐西蘭大白兔，驗證奈米複合水膠與血小板膠於顱骨缺損修復的情形，並且與市售品共同試驗，評估高單價醫用奈米複合骨材植入動物實驗情形，配合顯微放設攝影機造影及組織切片等技術，進行生醫成品新生骨形成面積、礦物質沉積狀況…等骨組織型態評估。

III. 結果與討論

一、含血小板膠填補骨材製備，本計畫採取紐西蘭大白兔血液，透過採血、分離、混和以及進行血小板濃度測量等步驟成功製備血小板膠(Fig. 1)。

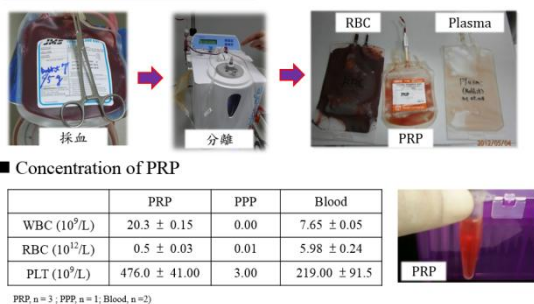


Figure 1 含血小板膠填補骨材製備

二、建立顱骨大缺陷手術技術，本計畫對紐西來大白

兔顱骨建立 15mm 直徑的顱骨缺損，並且比較填補骨材與控制組骨缺損復原差異(Fig.2 and Fig.3)。

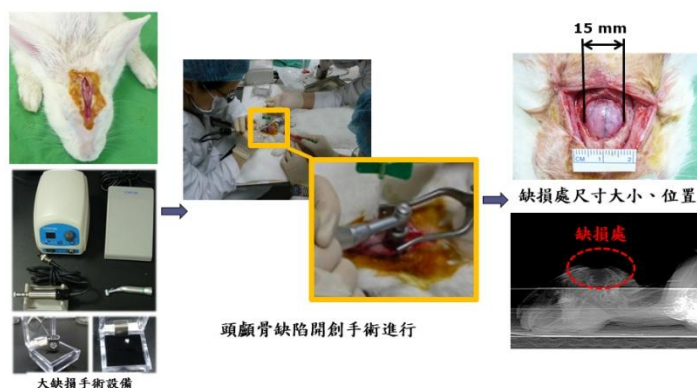


Figure 2 建立顱骨大缺陷手術技術



Figure 3 各組材料於大缺陷處填補狀況

三、分析骨癒合的狀況，並且進行組織切片染色，對於骨填補材料進入動物體內相容性以及填補缺損恢復笑過進行評估。

IV. 結論

本研究嘗試建立顱骨大缺陷部位手術模式，新型手術模式能縮短手術時間、較少破壞周邊骨組織與降低動物術後發炎與死亡率，由於大缺陷部位尺寸大小控制一致，故於後續分析能減少個體差異，增加實驗數據判斷之準確度。

本研究試著將兩種材料填入顱骨大缺陷部位，分別為 PAA-NIPAAm-NM 水膠粉末、市售磷酸鈣粉末，將其與血小板膠混合，作為大型骨缺陷骨填補材；水膠粉末混合血小板膠後可做為骨誘導試劑(osteoinductive agent):由術後組織切片結果檢查顯示 PRP 具有有效增強骨新生之能力，組織切片顯示有 osteon 形成；與未添加 PRP 之水膠相比，有較佳之骨新生。

本研究成功建立紐西蘭大白兔顱骨大型骨缺陷動物手術模式，並輔以血小板膠奈米複合骨材進行修復，成功完成骨再生評估試驗

參考文獻

- [1] Urban RM, Turner TM, Hall DG, Inoue N, Gilelis S. Increase bone formation using a calcium sulfate and calcium phosphate composite graft. Clin. Orthoped

Relat .Res 2007;459:110-7

- [2] Sailer HF, Kolb E. Application of purified bone morphogenetic protein (BMP) preparation in cranio-maxillo-facial surgery .BMP in compromised surgical reconstructions using titanium implants. J Craniomaxfac Surg. 1994;22:2-11.
- [3] Sailer HF, Kolb E. Application of purified bone morphogenetic protein (BMP) preparation in cranio-maxillo-facial surgery. Reconstruction in craniofacial malformations and post-traumatic or operative defects of the skull with lyophilized cartilage and BMP. J Craniomaxfac Surg.1994;22:191-199.

應用輻射科技進行醫療用奈米複合生長因子之骨材生物性試驗評估

Application study and pre-clinical biological testing of radiation technology for composite orthopedic biomaterials with growth factors

計畫編號：102-NU-E-027-002-NU

計畫類別：☐個別型計畫 ☒整合型計畫

計畫主持人：方旭偉

e-mail：hwfang@ntut.edu.tw

計畫參與人員：沈立漢、伍德馨、張光偉

執行單位：國立台北科技大學化學工程與生物科技系

摘要

近年來國內天然、人為造成之工安事故等意外益增，常造成傷患嚴重骨缺陷、骨折、斷裂或骨髓炎造成鄰近關節攣縮和急性骨髓炎等傷害。目前自體骨常為外科手術應用之填補材料，但由於臨床應用上自體骨有不可預期之吸收，供應區產生併發症等問題而造成病情的複雜化。本計畫將選用具有良好生物相容性材料混合加工製程之複合骨材，配合近來被廣泛臨床應用的血小板膠，合成有效促進骨缺損癒合之高值化醫療奈米複合骨材，同時作其生物體外適應性測試及活體相關試驗，探討複合骨材應用其標準動物實驗模式及活體內之藥理反應等。結合血小板膠與本研究團隊開發之 PAA-NIPA-Si 水膠支架應用於重建骨缺損材料上。但醫療用骨材上市前，需要以符合法規的檢測方法進行臨床前試驗，以實驗數據來降低未來實際臨床應用開發材料之風險。本研究希望透過含血小板之醫用複合水膠骨材之熱原測試建立，消除材料合成中可能造成熱原污染之因素，降低材料污染機率，並增加含血小板之醫用複合水膠骨材臨床適用性。本研究預計完成之工作項目包含，建立含血小板膠之醫用複合水膠骨材體外檢測平台，建立水膠骨材及水膠-血小板膠骨材體外降解行為實驗評估模式以及配合團隊合作醫院進行臨床前動物植入含血小板膠之醫用複合水膠骨材實驗與骨缺損組織修復型態評估。透過符合醫療器材管理風險評估 ISO-14971 精神規範，建立合宜的新型醫療用骨材材料開發上市流程。

關鍵詞：醫療用複合骨材、細胞毒性、生物安全性測試。

Abstract

With the increasing need of biomedical implants for orthopedic diseases, the orthopedic biomaterials become the focused items in biotechnology industry. Currently, autogenous bone graft is the most commonly used material for surgical operation. However, autogenous bone has un-predictable resorption and may result in donor site complications. We have used biocompatible osteoconductive scaffold mixed with platelet glue to perform the biocompatibility tests for a composite bone graft material made of PAA-NIPA-Si and be applied for bone re-construction. The pyrogen tests will be performed to evaluate the safety and applicability of this composite bone graft material pre-marking. The aim of this project contains three tasks, one for establishment of medical composite bone graft with platelet glue in vitro detection platform, two of establishment of the new composite materials in vitro

degradation behavior assessment model experiments, and the other for the efforts will be made to assist the development of animal testing model with the collaborative hospital. By applying the ISO-14971 based risk assessment procedures, it is expected to develop an appropriate testing procedure for new developed orthopedic biomaterials.

Keywords: orthopedic biomaterials、cell cytotoxicity、Biological safety.

I. 前言

骨填補材料的研發由於其植入人體的風險性高，驗證期程長，研發費用龐大等特點使得國內廠商對於投入人體植入醫療器材的開發腳步緩慢，國外相關骨填補材料產品則大量應用於國內醫療院所，為外商創造龐大的商業利益。目前為外科醫師所廣泛使用的骨填補材料以 hydroxylapatite(HAp)或是 collagen 材料為主，目前已由相關文獻證明此一材料具有良好的骨傳導性 (Osteoconductive scaffold)，而且具備良好的生物相容性。但是此類材料由於缺乏骨誘導能力 (Osteoinduction) 所以骨質新生之能力有限，僅限於植入物的之邊緣，對於受損面積較大的骨缺損區域，幫助有限。結合生長因子等具有骨誘導性質的材料與具有骨傳導能力的基材互相結合的複合醫材開發已成為目前骨植入物材料發展的主要方向。但是目前受限於實驗數據以及相關管理法規制定未盡完善，讓此類結合基材與生長因子的複合醫材常常成為新型的醫材植入物，延長商品上市流程，造成阻礙縮短國內廠商開發上市期程的主要因素之一。

II. 主要內容

本研究計畫基於以往的研究成果，研發出具有良好生物相容性之材料混合富有血小板濃厚液 (Platelet Rich Plasma, PRP) 的複合醫材，並且於老鼠的顱骨缺損動物實驗中獲得初步良好的骨缺損彌補療效。本研究材料之來源包含以感溫性單體 N-異丙基丙烯醯胺 (N-isopropyl acrylamine, NIPAAm)、丙烯酸 (Acrylic acid, AAC) 以及交聯劑 N,N'-亞甲基雙丙烯醯胺 (N,N-methylene bisacrylamide, NMBA)，並且配合放射線 γ -ray 照射製作而成之高強度及低摩擦水膠結合近來被廣泛臨床應用的血小板膠，合成有效促進骨缺損癒合之高值化醫療奈米複合骨材。

為完整高值化醫療奈米複合骨材臨床前試驗評估與設計快速上市流程，協助國內生技醫療產業研究發展。本期研究希望透過臨床需求導向與快速上市規畫流程，

進行相關實驗設計，並完成此複合骨填補材料上市前的療效統計資料，以加速材料上市期程。所採用實驗方法為將已合成之富含血小板膠之醫療用複合骨材進行體外生物相容性測試，並且進行與市售商品的實質性體外試驗評估。並且於研究團隊進行合作結合動物臨床實驗結果共同建立此醫療用骨材之標準植入較大型動物實驗模式，逐次評估生物體內之安全性。透過符合醫療器材管理風險評估 ISO-14971 精神規範，建立合宜且迅速的新型醫療用骨材材料開發上市流程。

III. 結果與討論

一、含血小板膠填補骨材製備，本計畫由核能所提供 Acrylic acid 以及 N,N-methylene bisacrylamide (NMBA) 透過 γ -ray 聚合交聯合成水膠材料(Fig.1)。

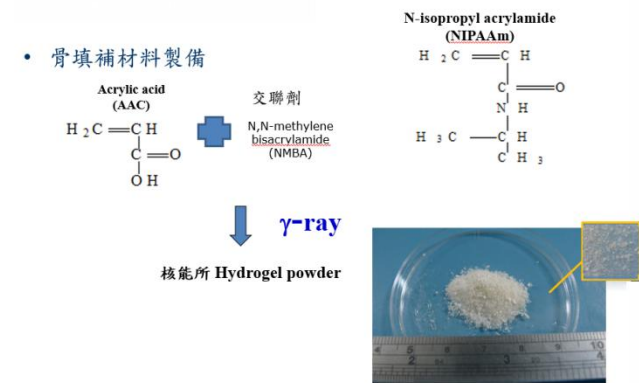


Figure 4 含血小板膠填補骨材製備

二、建立醫療用骨材生物相容性測試-細胞毒性測試

由於本研究開發的生醫材料屬中長期(植入體內逾 30 天)植入式醫療器材，上市前應符合 ISO 10993, USP 與 ASTM 等規範。雖然 ISO/FDA 對於醫療器材執行生物相容性評估之建議執行試驗項目，並非需全部強制執行試驗，為求本研究之含血小板之醫用複合水膠骨材能夠縮短研發與驗證期程，本研究希望建立結合輻射標定的體外檢測技術進行如熱原試驗、細胞毒性等生物安全性評估 (biosafety assessment) 與醫療功效性評估技術平台並且與市售品進行等效性比較。

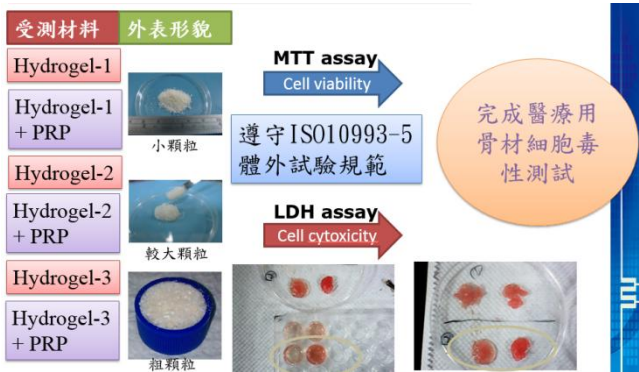


Figure 5 建立醫療用骨材生物相容性測試-細胞毒性測試

三、實驗結果顯示，骨填補材料與血小板膠混和隻生物

相容性良好，具有低毒性以及促進細胞增生的功效。

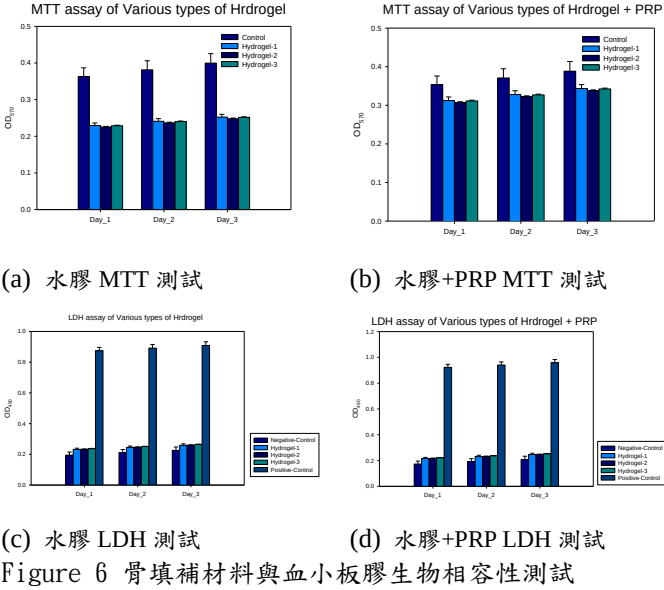


Figure 6 骨填補材料與血小板膠生物相容性測試

四、材料熱源測試，本計畫進行動物熱源測試結果顯示受試動物無體溫上的變化，材料的生物相容性良好。

Table 1. Body Temperature Records (After Administration)

	Body temperature (°C)					
Animal number	1 st	2 nd	3 rd	4 th	5 th	Average
121008-PY-01	38.7	38.5	38.7	38.5	38.7	38.6
121008-PY-02	38.5	38.0	38.2	38.3	38.4	38.3
121008-PY-03	38.5	38.4	38.4	38.4	38.5	38.4

Table 2. Temperature Elevation

Animal number	Elevation (body temperature after administration)
121008-PY-01	<0
121008-PY-02	<0
121008-PY-03	<0

IV. 結論

本研究針對自行研發之水膠與 PRP 混合之醫用骨材進行生物相容性與體外降解性檢測。由實驗結果得知，在水膠材料與水膠材料混合 PRP 進行體外試驗部分，以 MTT assay 量測水膠材料對於細胞存活率的影響，實驗結果發現水膠的生物相容性良好，細胞存活率皆在 85% 以上。以 LDH assay 量測水膠材料與水膠材料混合 PRP 對於細胞毒性的影響，實驗結果發現水膠材料的細胞毒性低，混和 PRP 之後對材料毒性無顯著影響，顯示其生物相容性良好。體外降解實驗部分，經過半年多的觀察，材料於 PBS 中的降解情形約 6.7%。動物熱源測試結果顯示受試動物熱原測試合乎要求，故本材料的生物相容性良好。

本研究成功完成新型醫療用複合骨材製作並且符合 ISO 檢測標準與生物相容性與功能性測試。

參考文獻

[1] Chia-Chun Chen, Cheng-Hao Liao, Yao-Hong Wang, Yuan-Ming Hsu, Shih-Hong Huang, Chih-Hung Chang, Hsu-Wei Fang*, "Cartilage fragments from

- osteoarthritic knee promote chondrogenesis of mesenchymal stem cells without exogenous growth factor induction” , Journal of Orthopaedic Research, 30(3), pp.393-400, 2012.
- [2] Chih-Hung Chang, Tzong-Fu Kuo, Feng-Huei Lin, Jyh-Horng Wang, Yuan-Ming Hsu, Huei-Ting Huang, Shiao-Tung Loo, Hsu-Wei Fang, Hwa-Chang Liu, Wen-Chih Wang, “Tissue engineering-based cartilage repair with mesenchymal stem cells in a porcine model ” , Journal of Orthopaedic Research, Journal of Orthopaedic Research, 29(12), pp.1874-80, 2011.
- [3] Chih-Hung Chang, Tai-Chieh Liao, Yuan-Ming Hsu, Hsu-Wei Fang, Chia-Chun Chen, Feng-Huei Lin*, “A poly(propylene furmate) – Calcium phosphate based angiogenic injectable bone cement for femoral head osteonecrosis” , Biomaterials, 31, pp. 4048-4055, 2010.

利用擬真數位乳房假體與蒙地卡羅技術評估核醫乳房攝影之乳腺吸收劑量

Scintimammographic dosimetry using anthropomorphic breast phantoms and Monte Carlo simulation

計畫編號：NSC 102-2623-E-039-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：吳杰

e-mail：jwu@mail.cmu.edu.tw

計畫參與人員：施政廷、洪世彥、葉昱濤、張孜睿

執行單位：中國醫藥大學生物醫學影像暨放射科學學系

摘要

根據國民健康局的統計，乳癌佔所有女性癌症發生率的第一位。目前對於乳癌的篩檢雖主要以乳房 X 光攝影為主，但由於核醫乳房攝影對於癌細胞具有高敏感度與專一性，且可以進行乳癌分期，也被視為具有潛力的乳癌篩檢方式之一。然而，乳腺組織具有較高的輻射敏感度，放射診療所造成的額外輻射劑量亦將提高致死癌症發生的風險。目前核醫乳房攝影常使用 Medical Internal Radiation Dose (MIRD) 模式計算乳房劑量，其無法考慮乳房的密度與大小、乳腺的比例與分布情況，勢必造成乳腺劑量評估的誤差。本研究的目的即為製作擬真數位乳房假體，並利用蒙地卡羅模擬提升核醫乳房攝影中乳腺劑量評估的準確性。首先，利用區域增長法模擬不同的乳房體積與腺體比例，並以二維樹與分支矩陣的概念隨機產生乳管模型，以製作擬真數位乳房假體。接著，利用直線衰減投影法將乳房假體投影為乳房影像，並以碎形維度與直方圖偏度作為相似度的驗證指標，以評估擬真乳房假體與真實乳房二維投影影像之差異。最後，利用蒙地卡羅技術與擬真數位乳房假體評估核醫藥物^{99m}Tc-MIBI 與 ¹⁸F-FDG 的乳腺與乳管 S 值，並與 OLINDA/EXM 程式比對，以建立核醫乳房攝影體內劑量評估系統。

關鍵詞：核醫乳房攝影、蒙地卡羅模擬、乳腺劑量評估。

Abstract

According to the Bureau of Health Promotion, the occurrence rate of the breast cancer is the number one in all female cancers. Nowadays, X-ray mammography is the primary modality for screening of breast cancer. Scintimammography using SPECT and PET has high sensitivity and specificity to the breast cancer cells and has the potential to be the breast screening modality. However, glandular tissue is sensitive to radiation. Additional radiation dosage can raise the risk of cancer incidence. For the scintimammography, the MIRD schema is generally applied to calculate the breast dose. It cannot consider the condition of non-uniform mixture of glandular tissue and fatty tissue. Since the real distribution of glandular is not taken into account, the absorbed dose cannot reflect personal differences. The purpose of this study is to create an anthropomorphic digital breast phantom to elevate the accuracy of glandular dose estimation for scintimammography. The region growing method was used to build various glandular ratios, and the binary tree and

ramification matrix concepts were applied to generate random glandular ducts. 3D breast models were created and projected into 2D breast images using the linear attenuation projection method. The fractal dimension and histogram skewness were used as a similarity index. Finally, the anthropomorphic breast phantom and Monte Carlo technique were used to evaluate the glandular dose for radiopharmaceutical of ^{99m}Tc-MIBI and ¹⁸F-FDG. The results are also compared to that of the OLINDA/EXM. Through this study, we can increase the accuracy and practicability of the internal dose evaluation system for mammography and scintimammography. The results could also provide a reference for patients and physicians to select a suitable screening tool for breast cancers.

Keywords: Scintimammography, Monte Carlo simulation, Glandular dose evaluation.

I. 前言

目前臨床上乳癌篩檢主要以乳房 X 光攝影為主，超音波、磁共振造影 (Magnetic Resonance Imaging, MRI) 與核子醫學造影 (Nuclear Medicine Imaging) 為輔。乳房 X 光攝影於診斷上靈敏度可達 86.1%、特异性可達 88.0%，可有效鑑別微鈣化點與腫塊，缺點是在照射的過程中須以超過 23 磅的壓力壓迫乳房，所產生的疼痛讓許多婦女怯步；除此之外，若發生遠端轉移，傳統乳房 X 光攝影無法進行乳癌分期與轉移部位的造影。近年來，隨著核醫藥物的開發，核醫乳房攝影 (Scintimammography) 結合單光子電腦斷層儀 (Single Photon Emission Computed Tomography, SPECT) 或正子電腦斷層掃描儀 (Positron Emission Tomography, PET)，也開始應用於乳房癌症的偵測[2]，其對於癌細胞轉移的檢驗具有較高的敏感度與專一性[3]，且核醫乳房攝影不須進行壓迫，可有效降低病人的排斥與恐懼，已被視為具有潛力的乳癌篩檢方式之一，而能進一步提升乳癌篩檢的普及率。

乳腺組織具有較高的輻射敏感度，所有種類的乳癌中 90% 的組織型態與乳腺有關，包括：浸潤性管道癌、浸潤性小葉癌與黏液性腺癌。因此，國際輻射防護委員會 (International Commission on Radiological Protection, ICRP) 於 103 號報告中[4]，將乳腺的組織加權因數由原本的 0.05 提升至 0.12，代表輻射劑量造成乳房相關致死癌症發生的風險大幅上升。乳房攝影的診療劑量對於誘發晚期乳癌的機率風險一直是相關研究的關注焦點[5]，美國放射學會 (American College of Radiology, ACR) 建

議乳房 X 光攝影所造成之平均乳腺吸收劑量限值為 3 mGy [6]，然而在相關的臨床調查研究中卻發現平均乳腺吸收劑量的範圍介於 0.23 到 7.46 mGy 之間[7]。有鑑於此，行政院原子能委員會著手推動乳房攝影醫療曝露品質保證，以期藉由品質保證的測試與執行，在最適化的劑量下獲得高診斷價值的乳房攝影影像。

II. 主要內容

本計劃的研究步驟主要分為三個部份，第一部份為擬真數位乳房假體之建立、第二部份為擬真乳房假體的二維影像驗證、第三部份為核醫乳房攝影劑量評估。在第一部份，我們透過數學公式成功擬合出三種不同大小乳房輪廓，可分別成形皮膚層 (skin layer)、乳頭 (nipple) 及胸壁 (chest wall) 之區域，程式會依據使用者之設定，輸出大 (1000 cm^3)、中 (750 cm^3)、小 (500 cm^3) 體積之數位乳房輪廓，接下來透過二元樹模型整合與分支矩陣之整合，程式能模擬出真實解剖結構中乳管隨機分支的型態，並依據乳管生長位置進行分支角度、乳管半徑、乳管長度之修正。我們以區域增長演算法完成了腺體與脂肪的隨機生長，在疊代運算過程中，會確認脂肪或腺體的生長是否超過假體邊緣，並不斷疊代直到使用者設定腺體/脂肪比例。

在第二部份的執行現況，模擬了乳房攝影所用鉬靶的 K 層特性輻射，以 30 keV 進行直線衰減投影法，利用該能量下對應腺體與脂肪組織之衰減係數 (0.456 cm^{-1} 與 0.802 cm^{-1})，並分別考慮影屏修正因子、壓迫板及柵極的衰減修正因子，完成了擬真乳房假體之二維投影，接著以碎型維度評估與臨床乳房 X 光影像之差異。

第三部份我們進行了核醫乳房攝影劑量評估，利用第一部份建立的擬真數位乳房假體，將三種腺體比例 (25%、50%、75%) 與三種大小 (500 、 750 、 1000 cm^3) 的數值矩陣輸出至蒙地卡羅軟體中，並以重複結構法 (repeated structure) 製作幾何輸入檔。在模擬的射源項使用了臨床常見的 ^{18}F 與 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ，並分別計算電子與光子以取得體內劑量的 S 值，包括有 $S_{\text{breast} \leftarrow \text{breast}}$ 、 $S_{\text{gland} \leftarrow \text{breast}}$ 、 $S_{\text{duct} \leftarrow \text{breast}}$ 、 $S_{\text{gland} \leftarrow \text{gland}}$ 、 $S_{\text{duct} \leftarrow \text{duct}}$ 、 $S_{\text{breast} \leftarrow \text{gland}}$ 與 $S_{\text{breast} \leftarrow \text{duct}}$ ，最後與 ORNL 提出乳房自吸收結果進行評估。

III. 結果與討論

為了使得在擬合不同乳房體積的過程中更趨真實，將生長輪廓的範圍給以數學公式產生，該程式會隨機對擬真乳房的寬度與長度進行生長，以逐漸生長體積範圍，達成使用者設定條件，因此，使用者可以自由設定生長的體積大小，產生包括皮膚、乳頭及胸壁之組織。完成輪廓的生長後，接著我們先於輪廓內區分脂肪與腺體區域，在生長點分布的部份，則是以乳頭至胸壁間建構一虛擬拋物線，並於拋物線上隨機分布生長點，以產生不同腺體比例的結果。生長的過程中，若超出腺體區域則不予計算，並持續疊代直到使用者所設定的生長比例。

我們產生標準擬真乳房假體 25%、50%、75% 腺體比例於 750 毫升乳房體積中，並以二維投影模擬乳房攝影影像，結果顯示當腺體的比例上升時，生長的範圍會往胸壁處擴展，特別是在 75% 腺體比例，主要原因是當腺

體與脂肪的比例未達到平衡，程式會自動往胸壁區域擴展，因此會使得分布過於集中。

在碎形維度的分析結果中，我們使用 750 毫升的擬真乳房於 50% 腺體比例進行分析，在腺體區域中進行圈選 (Region Of Interest, ROI)，大小為 100×100 像素，並將計算結果以線性回歸擬合雙對數座標，其中該曲線的斜率即為影像的碎形維度，並與臨床影像及其他擬真乳房進行比較，結果顯示本研究建立的擬真乳房假體之碎形維度為 2.49 ± 0.23 ，數值落在真實乳房與擬真乳房的結果之間，與其它文獻的差異皆小於 6% [8]，造成差異的主要原因有二，(一) 其他文獻中使用的腺體比例範圍在 50%~70%，然而，真實乳房影像的腺體比例為 30%~45%；(二) 腺體生長範圍不同，也會使得腺體區域的密度與紋理的差異。

在 S 值的評估中，我們採用 500 毫升與 50% 腺體比例的擬真假體，以計算腺體、乳管及乳房對腺體、乳管與乳房之 S 值，透過 MCNP 的重覆性結構，可以描述射源分布於每一個體素之中，並可計算每一個體素的能量沉積，我們亦使用了網狀記錄 (Mesh tally) 取得每一剖面下的能量沉積分布，其中 OLINDA/EXM 計算 ^{18}F 與 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 之乳房自吸收 S 值分別為 $1.43\text{E-}04$ 與 $1.11\text{E-}05$ ，與擬真乳房的差異為 13.04% ($1.64\text{E-}04$) 與 9.02% ($1.22\text{E-}05$)，此差異造成的主要因為 OLINDA 的脂肪/腺體為均勻分佈，且脂肪、腺體、皮膚與胸壁組織元素組成皆不盡相同，此外，OLINDA/EXM 與 MCNP 模擬條件的設定差異亦為產生誤差之原因。

在本研究中，我們建置了擬真數位乳房假體，此假體引入了隨機概念與真實解剖資訊，使用者需要設定乳房大小及腺體比例，即可擬合出各式類型的數位乳房假體，然而該程式是以 Matlab 進行撰寫，未來可藉由圖形使用者界面 (Graphical User Interface, GUI) 的改寫，可以改善使用者對於修正程式碼的負擔，讓程式能配合個人的乳房比例與大小。除此之外，乳管、腺體及脂肪的生長是在一特定機率與規則下執行，過程中有大量的疊代運算，進而使得記憶體存取隨之上升，為了改善程式運作效率與簡化記憶體使用，未來我們可藉由多核心電腦的分散處理增加執行速度，並應用稀疏矩陣 (sparse matrix) 進行資料存取，可有效利用電腦運算資源，並改善記憶體使用率，即使是一般個人電腦也可順利執行，以推廣至臨床使用。

IV. 結論

近年來，乳房專用的正子攝影儀快速發展，使得核醫乳房攝影劑量評估逐漸受到重視，因此，如何準確取得病人吸收劑量是當前的重要課題，本研究考量了病人乳房大小、腺體比例、檢查射源等參數，可以應用於臨床檢查的個人化劑量。未來將透過本計劃的成果與臨床檢查的整合，可以作為評估核醫乳房攝影的劑量範圍與誤差之指標，同時可提供核醫乳房攝影與核醫藥物開發之參考依據。

參考文獻

- [1] 國民健康局. 民國 100 年死因結果摘要表. 中華民國行政院衛生署國民健康局, 2012.
- [2] Prasad SN, Houserková D. The role of various modalities in breast imaging. Biomed Pap Med Fac Univ Palacky Olomouc Czech Repub. 2007;151:209-18.
- [3] Horne T, Pappo I, Cohen-Pour M, Baumer M, Orda R. ⁹⁹Tc(m)-tetrofosmin scintimammography for detecting breast cancer: a comparative study with ⁹⁹Tc(m)-MIBI. Nucl Med Commun. 2001;22:807-11.
- [4] ICRP. The 2007 recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Annals of the ICRP, 2007.
- [5] Bailar JC. Screening for early breast cancer. Pros and Cons Cancer. 1977;39:2783-95.
- [6] ACR. Quality assurance in mammography. ACR committee Medical Physicist' s Section, 1999.
- [7] Khoury HJ, Barros VS, Lopes C. Evaluation of patient dose for mammography in Pernambuco. Brazil Radiation Protection Dosimetry. 2005;115:337-9.
- [8] Mahr DM, Bhargava R, Insana MF. Three-Dimensional in silico breast phantoms for multimodal image simulations. IEEE Trans Med Imaging. 2012;3:689-97.

應用影像導引自動化回饋技術於錐狀電腦斷層影像品質校準計畫

Image-guided automatic feedback control technique for CBCT image quality calibration project

計畫編號：NSC 102-2623-E-010-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：陳志成

e-mail：jcchen@ym.edu.tw

計畫參與人員：楊尚修、黃湘玲、金仕淳

執行單位：國立陽明大學生物醫學影像暨放射科學系

摘要

錐狀射束微型電腦斷層掃描儀 (Cone-beam micro-computed tomography; CBCT) 是一部具有許多特點的儀器，它可以提供極高的空間解析度，高影像對比度，以及較少雜訊的斷層影像，而且經過一次完整的照射即可直接透過三維影像重組來獲得體積的資訊，在小樣品與小動物的非侵入性檢查上相當具有優勢。近年來，微型電腦斷層掃描儀在研究及產業界皆有廣泛性的應用。無論在生物與基因體方面或是工業與電子業方面，都可顯示出微型電腦斷層儀所帶來的貢獻。

Noo F. 於 2000 年發表了一個基於橢圓參數的分析方法用以校準影像以獲得最佳的電腦斷層影像品質，該篇使用射源至物體旋轉中心距離 (Source-to-object distance; SOD)、物體至影像偵檢器距離 (Object-to-image distance; OID)、上下傾斜角 (Tilt angle)、左右傾斜角 (Slant angle)、偵檢器側旋角 (Skew angle)、投影中心位置等等幾何參數，來當成校準電腦斷層的基礎。本實驗室已根據上述理論用以校準本實驗室所開發之 CBCT 來實現影像的校準並搭配使用圖形化程式語言 LabVIEW 開發出一套自動化影像回饋技術，來校準出精確地影像。另外，本實驗室也引進單激發雙靶的穿透式 X 光球管；並搭配雙能量物質分解法 (Dual energy material decomposition methods)，目的是能有效地分離出想要的物質，更能進一步獲得實際成分的資訊。

關鍵詞：錐狀射束微型電腦斷層掃描儀，雙能量物質分解法，自動化影像回饋技術。

Abstract

Cone-beam micro-computed tomography (Cone-beam micro-CT; CBCT) is an instrument with many features such as very high spatial resolution, better image contrast and low noise tomographic imaging. It can directly collect 3-D volume information in just one complete scan process and it is also good for the small specimens or small animals scanning due to its non-invasive characteristics. Recently, CBCT plays an important role and contributions in the applications in biology, genome science, industry and electronics. In order to align the CBCT axis at the center-of-rotation, this study based on the identification of ellipse parameters that was published by Noo F. et al. in 2000. Seven parameters, denoted by R , D , θ , ϕ , η , μ_0 , and ν_0 , describe CBCT geometry. According to the theorem, a program will be applied to the system using a graphical programming language, LabVIEW, to develop a technique

of auto-imaging feedback and control which will also help align the imaging instrumentation accurately. Moreover, we prefer to use a transmission type X-ray tube in this study, which has a dual-complex-material target. We combine with dual energy material decomposition methods to decompose the materials that we are interested in and also can obtain quantitative results.

Keywords: cone-beam micro-computed tomography, dual energy material decomposition, auto-imaging feedback and control technique.

I. 前言

由於 CBCT 為近年來熱門的研究項目，快速增值發展的結果，導致對 CBCT 的需求與日俱增。CBCT 在小動物及小樣本的分析已越來越普遍。近期高解析度的儀器與電腦技術已能克服大部分 CBCT 的問題。但是隨著儀器越來越精密，我們所需要的影像品質要求也越來越高，對控制的精準度要求也越來越高。因此本實驗室欲開發一套可透過自動影像回饋控制的定量型 CBCT，並針對其效能與影像品質進行測試與提升。

II. 主要內容

一、精密且準確的全自動化電子儀控

目前現有的微型電腦斷層儀在電子儀控方面已提升至步進馬達驅動旋轉平台可自動化控制與半自動化載物平台位置的調整，此不僅費時，用人眼觀察來調整載物平台旋轉位置也已不敷使用。因此，新的系統我們已考慮這些因素，以設計一部完全自動化儀控的電腦斷層掃描儀。使其透過投影影像校正，提供最佳化的電子儀控技術，減低人為因素所造成之誤差。

二、LabVIEW 控制介面

為了符合使用者操作需求，須簡化其操作介面，降低多重工具交錯使用時所產生的複雜性。另外，由於本儀器自動控制的部分主要是 LabVIEW，因此本計畫欲建立 LabVIEW 的簡易操作介面來達成。透過 LabVIEW 介面整合旋轉平台、載物平台、X 光源與偵檢器四個部分。

三、利用效能參數評估儀器改進的程度

一般來說，被討論的效能參數分別有：1. 雜訊 (noise) 2. 對比度 (contrast)；3. 線性度 (linearity)；4. 空間解析度 (spatial resolution)；這些參數並不是相互獨立且各有其定義及計算方式，而這些表示微型電腦斷層掃描儀效能規格之特別參數是由影像處理分析取得的。

四、結合全新雙能量物質分解技術的應用

臨床上用雙能 X 光機進行造影早已普遍應用在胸部 X 光檢查、骨質密度分析，至於心臟 CT、腫瘤成分分析等等技術也已有五年左右了。其透過組織在不同能量下的衰減特性差異作物質分解(material decomposition)而得到不同密度的資訊以分辨不同的組織成分，所以對 CT 值相似但密度卻不同的物質能做正確的判斷。在本計畫中，我們欲引進國內廠商的穿透式雙材質的靶材來進行造影，得到兩筆不同能量資訊之後搭配物質分解技術，目的是能有效地分離出想要的物質，更能進一步獲得實際成分比例的資訊。

III. 結果與討論

本計畫主要以第二代效能假體(圖 1(a))來評估雜訊與線性度，並以 50 μm 直徑的鎢絲假體(圖 1(b))評估空間解析度；本研究所使用的偵檢器為 CCD，像素為 1392x 1040，像素大小為 0.052 mm，而以下呈現結果皆由 LabVIEW 軟體計算出並設計與撰寫使用者介面以方便分析。

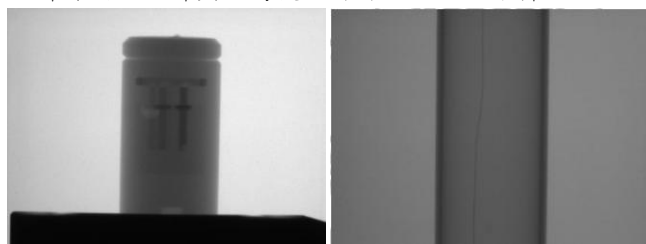


圖 1、(a)第二代效能假體經 X 光投影之影像;(b) 50 μm 鎢絲假體經 X 光投影之影像。

針對底軸滑軌傾斜角度校準，經過實驗之後，計算出此系統底軸滑軌的傾角為 -3.39°；將置於底軸滑軌上的測物平台依 50、75 與 100 mm 的距離，由最初靠近偵檢器向 X 光源方向移動，並比較使用傾角校準前後的實驗結果，示於表 1。可發現經過底軸滑軌傾角校準後，確實有將滑軌的偏移問題修正。

表 1、底軸滑軌傾角修正前後比較，單位 mm

修正前後/前移距離	50 mm	75 mm	100 mm
修正前	3.02	4.1	5.72
修正後	0.17	0.27	0.32

對於轉盤中心對應至影像中心校準，經計算後發現原本測物平台中軸偏移了 +6 pixel，並使用影像評估假體比較校準前後的重建影像(圖 2 至 4)，並將雜訊、線性度、點擴散函數與調制轉換函數的分析結果列於表 2 至表 4 與圖 5。

另外，在橢圓參數校準部分，使用不同的校準假體旋轉角度來分析(N=6、12、30 分別代表每 60、30、12° 收一張影像)，示於表三，由此表可發現收的張數越多(角度越小)其參數精確度越高；其中 D(SID)、R(SOD)與 v_0 為硬體設備所獲得的參數，關係到重建影像的放大率，而對影像品質並無直接關係；主要影響影像品質的參數為 η 、 u_0 與 φ ，此處使用「轉盤中心對應至影像中心校準」所獲得的值代替 u_0 ；圖 2 至 4 表示出使用橢圓參數校準後的重建影像，並將雜訊、線性度、點擴散函數與調制轉換函數的分析結果列於表 2 至表 4 與圖 5。

表 2、橢圓參數計算結果

N	η (deg.)	D (mm)	v_0 (pixel)	φ (deg.)	R (mm)
6	-0.95	464.787	544.31	0.173	406.25
12	-0.98	465.329	540.912	0.14	405.846
30	-0.97	465.353	541.807	0.15	405.773

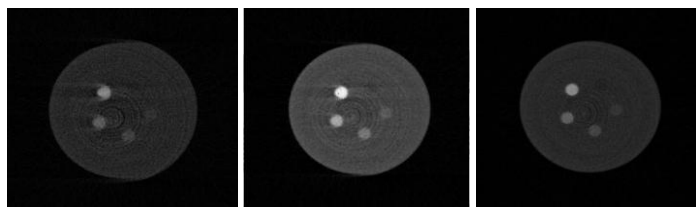


圖 2、線性度評估，(左)校準前、(中)影像中心校準、(右)橢圓參數校準

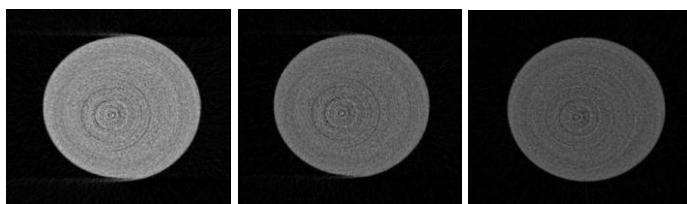


圖 3、雜訊評估，(左)校準前、(中)影像中心校準、(右)橢圓參數校準

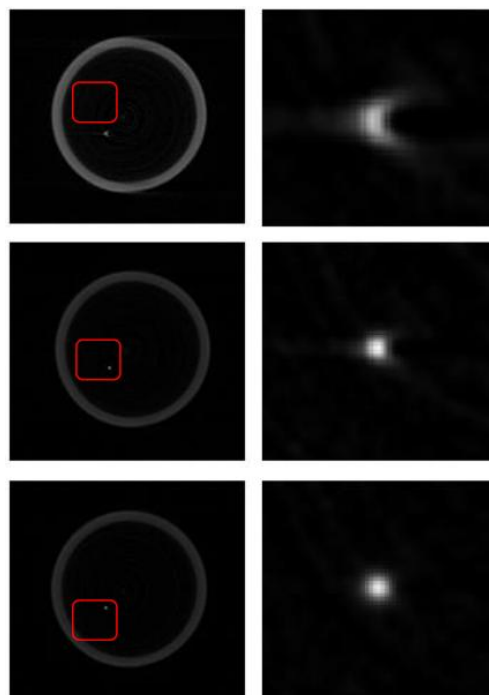


圖 4、空間解析度評估，左側為整體影像，右側為局部放大影像；(上)校準前、(中)影像中心校準、(下)七參數校準

表3、雜訊評估：分別圈選切面上假體的中、上、下、左、右半部來作評估

	未校準	影像中心校準	橢圓參數校準
CV	0.1959	0.1134	0.1045
SNR	5.241	9.154	9.7906

表4、線性度評估：分別圈選切面上假體不同密度的位置(由暗到亮)來作評估

	皮爾森相關係數(R)
未校準	0.99613
影像中心校準	0.99821
橢圓參數校準	0.99959

由表3可發現在未校準時CV值最高(也就代表SNR最低)；經過影像中心校準與進一步的橢圓參數校準，其CV明顯的降低(SNR提升)，代表影像上的雜訊有明顯減少。另外，表4也列出了校準前後的線性度比較，可發現在經過橢圓參數校準後R值非常接近1，代表其影像強度與密度幾乎呈現完全正相關，也就代表影像品質較好。

表5、點擴散函數(PSF)評估

	點擴散函數 (PSF)
未校準	246.07 μ m
影像中心校準	242.14 μ m
橢圓參數校準	239.02 μ m

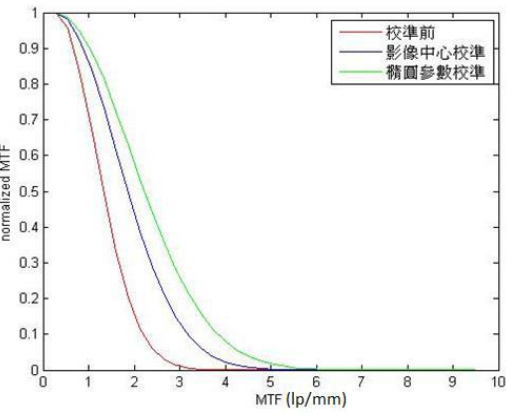


圖 5、MTF 曲線

表5呈現出PSF評估結果，可發現經影像中心校準與橢圓參數校準過後其PSF確實有明顯下降，也就代表著空間解析度越來越好；由PSF利用傅立葉轉換獲得MTF(圖5)，可發現校準過後的MTF曲線較校準前曲線來的更平緩，由此也可獲得校準後的重建影像確實更為清晰。

另外，將此精密系統校準用於雙能量球管系統，來分析此系統的誤差並修正。首先使用”轉盤中心對應至影像中心校準”來獲得待測物平台中軸位置，再進一步使用橢圓參數校準來獲得其餘校準參數，經”轉盤中心對應至影像中心校準”計算後發現原本測物平台中軸偏移了+4.5 pixel；接著再經由”橢圓參數校準”分析其餘參數，將結果列於表6。

表6、精密系統校準計算結果，其中u0為使用”轉盤中心對應至影像中心校準”所獲得的參數

N	η (deg.)	D (mm)	u0 (pixel)	v0 (pixel)	ϕ (deg.)	R (mm)
30	1.42	565.72	703.5	582.4	0.21	504.82

由於該雙能量球管雖為最新技術，但相較之下產生的光子數較少，導致對比度較遜於傳統單能量球管(圖6)，因此也會影響重建後的對比度；使用實驗室自製的第二代效能假體來評估重建後影像雜訊的差別，圖7為校準前後的重建影像，可發現校準後的影像確實較校準前清晰。

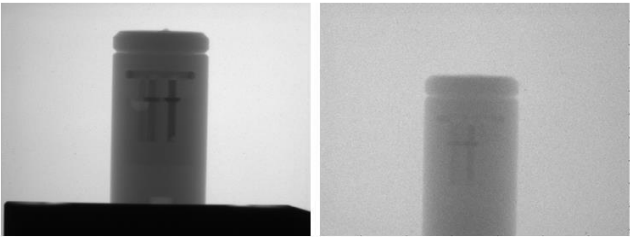


圖6、第二代校能假體投影之影像，(左)原先單能量球管影像、(右)雙能量球管影像

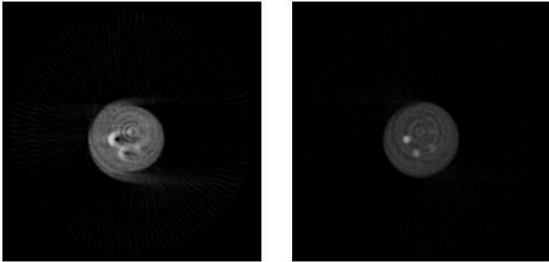


圖7、使用第二代校能假體的校準前後重建影像；(左)校準前、(右)校準後

另外，搭配雙能量物質分解方法，首先以簡單兩物質假體：水和含碘對比劑，分別進行加權減贅法(weighting subtraction)和獨立成分分析法(FastICA)進行物質分解，以80和110kV能量組合進行造影(圖8)。另外更進一步造影同時含有三材質的物體：以壓克力為主體的圓柱狀假體，分別填入水、油及類似蛋白質特性的聚甲醛(POM)，並根據CT重建後的影像(post-reconstruction image)來量測不同物質的濃度。假設欲分離水、油和聚甲醛(POM)此三種物質，在低能(L)和高能(H)量測到的CT資訊(圖9)可以三個物質的衰減係數和體積比率乘積的線性組合(linear combination)表示，此以80和110kV作為造影能量組合，並假設一個體素(voxel)以包含了此三個物質，所以三個物質的體積比率總和必須為1，以上三個方程式解出未知的各別三個物質的量化值：體積比率，並和理論值100%作比較，相對誤差分別為(表7)。

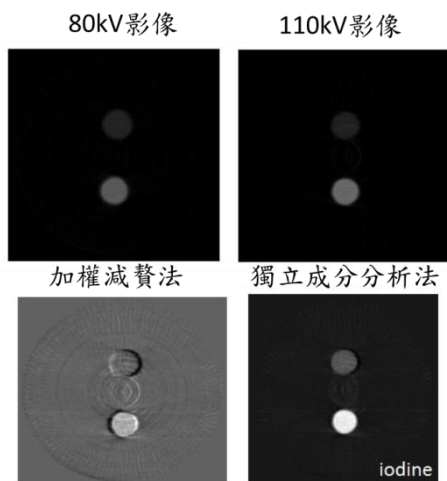


圖8、兩材質假體影像和分析結果

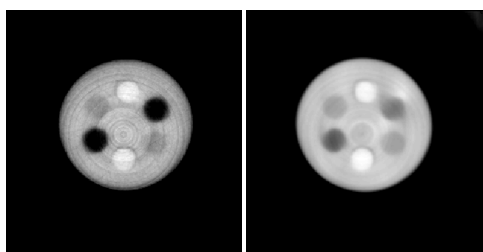


圖 9、三材質假體 80kV 影像(左)及 110V 影像

表7、理論值和量測值比較

物質	理論值	量測值	相對誤差
水	1.00	0.86	14%
油	1.00	0.99	1%
聚甲醛	1.00	0.99	1%

透過圈選ROI(Region of interest)來得到量測值，根據表7結果，由於假體主體為壓克力材質，與水的特性較接近，另外也因為影像的些許假影的干擾進而影響物質分解結果而造成較大的相對誤差，其他的兩者物質則相對誤差不大，只有1%。

IV. 結論

綜合以上的結果分析與討論，對於 micro-CT 系統，使用開發的硬體與自動化軟體校準方法，確實可大大改善重建影像品質，獲得較清晰的斷層影像。

在軟體校準的部分，使用自動化底軸滑軌傾角校準確實計算出底軸滑軌的偏移角度並自動修正之。另外，結合”轉盤中心對應至影像中心校準”與”橢圓參數校準”可獲得精確的校準參數：SOD、SID、 μ_0 、 ν_0 (二者分別為偵檢器的 x、y 方向的中心位置)、 ϕ (偵檢器的左右傾角)與 η (偵檢器的側旋角)，但限制條件是需要先確定系統的 θ (偵檢器的前後傾角)為0時才可使用此方式校準；並且，在使用橢圓參數校準時，經實驗證實至少要先藉由校準假體每 12° 收取一張影像(共獲得 30 張影像)，才可獲得較

精確的分析結果。

另外，在雙能量系統下，使用雙能量物質分解方法能有效地分離物質成份並且能得到良好的定量分析結果。

參考文獻

- [1] F.Noo, R. Clackdoyle, C.Mennessier. Analytic method based on identification of ellipse parameters for scanner calibration in cone-beam tomography. Medical Physics Biol. 2000; 45: 3489-3508
- [2] Zhanli Hu, Jianbao Gui, Jing Zou, Junyan Rong, Qiya Grant T. Gullberg, Benjamin M.W.Tsui, Carl R.Crawford, J. Glen Ballard and John T.Hagius. Estimation of geometrical parameters and collimator evaluation for cone beam tomography. Medical Physics. 1990; 17(2): 264-272
- [3] Granton, P.V., et al., Implementation of dual- and triple-energy cone-beam micro-CT for postreconstruction material decomposition. Medical Physics, 2008. 35(11): p. 5030.
- [4] Ding H, Ducote JL, Molloy S. Measurement of breast tissue composition with dual energy cone-beam computed tomography: a postmortem study. Medical physics. 2013;40(6):061902.

加速器引發物質活化與殘存活性的研究

A Study on Accelerator Induced Material Activation and Residual Activity

計畫編號：NSC 102-2623-E-007-006-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：許榮鈞

e-mail：rjsheu@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：許永政

執行單位：國立清華大學核子工程與科學研究所

摘要

國內加速器的應用日益多樣化，加速器的粒子能量與輸出電流也越來越高，因此加速器引發之物質活化現象及其相關輻射防護也相對越來越重要，必須於加速器建置前期就應提早注意並加以評估，因為此一問題與工作人員劑量或未來機器除役問題息息相關。配合國內質子癌症治療機的引進與台灣光子源電子同步加速器的興建，如何建立加速器引發物質活化問題的正确評估技術是一項越來越重要的輻射防護研究議題。本計畫詳細研究質子與電子加速器引發物質活化的機制與特性，探討可能影響殘存活性的重要設計與運轉參數，評估工作環境劑量分布和未來除役等問題。針對加速器引發之物質活化，本計畫的成果對於加速器設施運轉實務與主管機關輻射防護業務審查與執行可有相當的助益。

關鍵詞：加速器、活化、殘存活性、蒙地卡羅。

Abstract

Accelerator applications in Taiwan are becoming multiple and diversified in recent years. The particle energy and output power of these accelerators have been increased significantly to meet various design purposes. One of the consequences in radiation protection is the arising issue of accelerator induced material activation. Activation analysis is important for radiation safety in high-energy accelerators partly because it will cause radiation hazard to maintenance personnel and partly because it is directly related to the planning and cost of future facility decommissioning. With the introduction of the first proton therapy accelerator in Taiwan and the construction of Taiwan Photon Source, how to establish an accurate and reliable approach in analyzing material activation is an increasingly important topic in radiation protection. This study presents the technical basis for the state-of-the-art analyses on the material activation of various accelerators, including examining their respective activation mechanisms, general characteristics of activated products, dose distributions around activated components, and their time-dependent behaviors. Much effort has been devoted to associated benchmark calculations to ensure the quality of predictions. Neutron yields and material activation for various accelerators of interest in Taiwan were studied and compared. Experiences and lessons learned from this study will be beneficial to authority agencies on regulating relevant safety and environmental issues.

Keywords: Accelerator, Activation, Activity, Monte Carlo.

I. 前言

近年來國內陸續引進或計畫興建數個高能加速器設施，長庚醫院 250 MeV 的質子癌症治療機及國家同步輻射研究中心 3 GeV 的電子同步加速器即將進入試車階段；此外還有一些加速器設計規劃案亦正在進行中，例如重粒子治療用途的 400 MeV/A 碳離子加速器以及提供硼中子捕獲治療(BNCT)中子源的 30 MeV 高電流質子加速器。這些高能加速器運轉時不可避免的會伴隨物質活化的現象發生，而活化問題與工作人員劑量或未來設施除役問題息息相關，因此加速器引發之物質活化現象及其相關輻射防護議題不可忽視，應提早注意並透過有系統的分析來加以評估。

II. 加速器活化分析方法與設定

容易遭受活化影響的加速器組件是那些造成粒子損耗，並吸收輻射能量最多的元件，例如射束棄置接收器、射束準直器、射束引出或注射的磁鐵組件等。低能量的粒子損失可能造成加速器組件的活化，但對於即時輻射場的貢獻甚小；然而若有接近射束引出能量的粒子撞擊到射束引出裝置或周遭加速器組件等，則會造成更嚴重的活化問題與二次輻射場。為了模擬射束損失最壞情況下的中子產率與活化情形，本計畫假設四種加速器最高規格的輸出撞擊厚靶的情況。射束強度條件整理如表 1 所示，其中 30 MeV 質子束輸出 1 mA 為達到 IAEA 建議 BNCT 治療所需超熱中子束強度 1×10^9 [$\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$] 所需之質子束強度(Tanaka et al., 2009)；3 GeV 電子的射束損耗情形引用至台灣光子源輻射安全評估報告(NSRRC, 2010)；235 MeV 質子與 400 MeV/A 碳離子的射束強度可對水假體造成癌症治療所需劑量率 2 Gy/min。此外由於銅常被選為加速器準直儀或其它重要元件的材料，受照射靶的材料假定為銅。對於質子與碳離子等重帶電粒子，靶材厚度設定為粒子射程(Range)的 1.2 倍，半徑為厚度的 0.5 倍；而對於 3 GeV 電子則假設靶可涵蓋 95% 入射電子引發電磁串級的能量，不同材質所需的厚度與半徑則由文獻建議的公式估算(Bock and Vasilescu, 1998)。本計畫有系統的計算各種射束-靶體組合情況下的中子產率、活化核種種類、殘存活性、距靶一公尺外殘存劑量率與靶內豁免管制量分布情形，同時為了觀察照射時間對物質活化的影響，本研究假設兩種照射時間，16 小時與 1 年，分別代表短時間與長時間照射下的情形。

表 1 本研究有興趣之加速器射束輸出強度的規格

Particle Ttype	Beam Intensity [s^{-1}]
30 MeV Proton	6.24E+15
3 GeV Electron	6.24E+10
235 MeV Proton	4.75E+10
400 MeV/A Carbon	2.24E+09

當高能量的質子、電子或其它帶電粒子撞擊到物質時會開啟許多的核反應管道。粒子能量越高核反應種類與數量也越多，因此會造成大量不穩定核種的生成並殘留於受照材料內。由於不穩定核種的數量龐大，加上核種的半衰期範圍可以涵蓋好幾個數量級，因此較實際的問題不可能利用傳統解析方程式來計算加速器物質活化的效應。基於目前最新的多粒子全能量蒙地卡羅輻射作用與遷移程式(All-particle all energy Monte Carlo transport code)的基礎上，本研究可以追蹤並分析絕大部分加速器可能產生之核種產率及其後續各自衰變的情形。本研究使用 MCNPX 與 FLUKA 計算中子產率部分，由於 FLUKA 計算活化相關問題有其便利性，關於活化方面的計算使用 FLUKA 做為主要的工具。

III. 結果與討論

中子產率驗證計算

在中子射源項的驗證計算中，本計畫採用二個知名的多粒子全能量蒙地卡羅遷移程式來與實驗值相互驗證比對，分別是 FLUKA 與 MCNPX，由於二者分別基於不同的截面資料庫與核反應物理模型，計算結果的比較將有利於最後設計與分析品質的驗證。對於實驗端，選擇文獻上加速器能量較接近的實驗結果作為參考值，分別為 30 MeV 質子撞擊銅靶(Nakamura et al., 1983)、2 GeV 電子撞擊銅靶(Lee et al., 2005)、256 MeV 質子撞擊鐵靶(Meier et al., 1990)及 400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶(Satoh et al., 2007)。在模擬計算中，FLUKA 計算選用 PRECISION 模式，盡可能仔細模擬粒子與物質的作用；MCNPX 的部分則盡可能採用可得的評估後截面資料庫，缺少截面資料庫的狀況下則使用核子模型估計。圖 1 為四種射束撞擊靶材後中子產率的計算結果，對於 30 MeV 質子撞擊銅靶的狀況下，FLUKA 計算出的結果趨勢與實驗端雖大致相同，但整體而言仍低估中子產率；另一方面基於評估過後的截面資料庫計算的 MCNPX 結果則與實驗值相當吻合。2 GeV 電子撞擊銅靶的計算中，FLUKA 與 MCNPX 計算結果相當一致，而趨勢與實驗值亦大致相同，但計算值較實驗值為低，在低能量區間，角度越小時此現象更為明顯。在文獻中 Lee 等人利用 MCNPX2.5d 計算在低能量區間出現了相同趨勢(Lee et al., 2005)，因此推論此一差距可能來自實驗的誤差或者計算程式本身物理模型與截面的影響所致。至於 256 MeV 質子撞擊鐵靶的計算中，FLUKA 與 MCNPX 計算結果與實驗值皆相當吻合，顯示二者的結果是可信的。最後 400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶的狀況，計算結果與實驗值趨勢大致吻合，但是在約 20 MeV 到 400 MeV 的高能中子區間，FLUKA 與 MCNPX 計算結果均與實驗值有明顯差異，尤其是沿射束方向產生的中子能譜更為明顯，顯示核子模型還有改進空間。

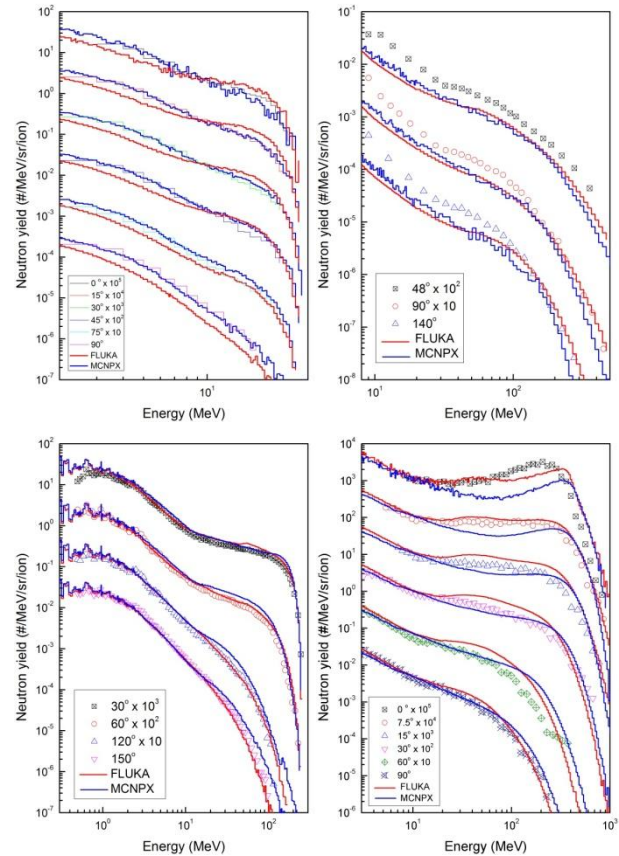


圖 17 射束撞擊不同靶材後各方向中子產率計算值與實驗值比較 (a) 30 MeV 質子撞擊銅靶(b) 2 GeV 電子撞擊銅靶(c) 256 MeV 質子撞擊鐵靶(d) 400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶

物質活化驗證計算

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指標，本計畫將 Mills 等人 30 MeV 質子撞擊銅靶的實驗結果作為參考值(Mills et al., 1992)；230 MeV 質子撞擊鐵靶與 400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶則引用 Yashima 等人的實驗結果(Yashima et al., 2004)；物質活化分析使用 FLUKA 做為計算工具，以 PRECISION 模式進行模擬。比較計算結果與實驗值後發現，除了少數核種產生如 400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶產生的 ^{65}Ni 、 ^{62}Zn 、 ^{63}Zn 及 ^{65}Zn 以外，其餘核種計算產率與實驗值差異接近 2 至 5 倍之間，由於活化問題的模擬分析相當不容易，2 至 5 倍的差異是屬於可容許的範圍，因此 FLUKA 計算活化相關問題的結果仍有高度參考的價值。另外，高能電子引發活化核種的產生主要來自於電磁串級效應中大量的光子與物質進行光核反應，因此高能量電子引發的活化核種飽和活度大致上正比於電子束功率(Swanson, 1979)。本計畫計算 3 GeV 電子撞擊不同靶材後的核種產率，再將單位轉換為飽和活度[Ci kW^{-1}]，與 IAEA 188 報告中數值一同列於表 3 利進行比較。大部分 FLUKA 計算值與 IAEA 188 報告內數值的差異仍落在 2 至 5 倍之間，由於 IAEA 188 報告內數值僅是粗略的估計，在不考慮材料的自我屏蔽以及材料內活化情形的分布情況下，此比較結果可以提高本計畫後續以 FLUKA 計算 3 GeV 高能電子活化的可信度。

表 2 30 MeV 質子與銅作用產物產生截面[mb]

Isotope	Mills <i>et al.</i>	FLUKA	Ratio (FLUKA/Exp)
⁶² Zn	29.3±2.4	32.57±0.14	1.11
⁶³ Zn	42.1±3.7	42.58±0.15	1.01
⁶⁵ Zn	8.19±0.66	8.88±0.08	1.08
⁶¹ Cu	110.2±9.3	138.93±0.27	1.26
⁶⁴ Cu	73.3±8.1	55.97±0.19	0.76
⁵⁷ Co	0.05±0.01	0.06±0.01	1.33
⁵⁸ Co	15.5±1.2	29.76±0.12	1.92
⁶⁰ Co	0.74±0.08	1.24±0.02	1.68

表 3 高能電子引發活化核種飽和活度

Nuclide	A _s (Ci/kW) FLUKA	A _s (Ci/kW) IAEA 188	Ratio FLUKA/IAEA
Iron target			
⁴⁶ Sc	0.015	0.2	0.08
⁴⁸ V	0.069	0.4	0.17
⁵¹ Cr	0.284	0.4	0.71
^{52/m} Mn	0.201	0.036	5.58
⁵⁴ Mn	0.998	0.59	1.69
⁵⁶ Mn	0.056	0.032	1.73
⁵² Fe	0.009	0.056	0.16
⁵³ Fe	0.520	0.74	0.70
⁵⁵ Fe	18.012	13.3	1.35
Copper target			
^{58/m} Co	0.450	0.66	0.68
⁶⁰ Co	0.077	0.65	0.12
⁶³ Ni	0.294	0.45	0.65
⁶¹ Cu	1.551	0.87	1.78
⁶² Cu	13.491	11.0	1.23
⁶⁴ Cu	7.055	5.0	1.41

各種加速器引發中子產率的比較

基於前述的驗證計算，本計畫利用 FLUKA 與 MCNPX 計算四種有興趣之加速粒子撞擊銅靶的中子角通率分布，表 4 則比較其總中子產率。雖然一個 30 MeV 質子僅能產生 0.013 個中子，但由於其輸出電流大，總中子產率是四者中最高的；雖然單個 400 MeV/A 碳離子的總能量遠大於其它粒子，其中子產率 7.61 亦是最高者，但若整體考量各自所需之射束強度，它反而是四種加速器中最低的。

表 4 30 MeV 質子、3 GeV 電子、235 MeV 質子、400 MeV/A 碳離子撞擊銅靶之中子產率比較

Beam	n/p (FLUKA)	n/p (MCNPX)	n/s (Avg.)
30 MeV proton	0.01±0.07%	0.01±0.13%	7.85×10 ¹³
3 GeV electron	0.63±0.09%	0.42±0.08%	3.27×10 ¹⁰
235 MeV proton	0.76±0.07%	0.92±0.08%	4.00×10 ¹⁰
400 MeV/A carbon	8.84±0.07%	6.38±0.08%	1.70×10 ¹⁰

各種加速器引發物質活化的特性

圖 2 是 FLUKA 計算在四種粒子照射下銅靶內各活化核種的產率。觀察圖形的分布可以發現，四者之中，

400 MeV/A 碳離子照射銅靶所產生的核種種類是最多的。但是整體而言，400 MeV/A 碳離子、250 MeV 質子以及 3 GeV 電子造成的活化核種類型十分類似，這是因為碳離子與質子的主導反應(p,np)與電子光子的(γ,n)反應產物一致。另外，30 MeV 質子的主導反應是(p,n)，核種圖形在原子序 Z=7 至 Z=23 的區間有段空缺，這是由於 30 MeV 質子能量不易產生原子核的散裂反應。

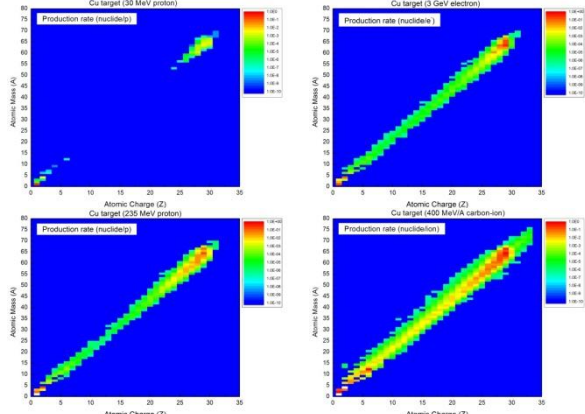


圖 18 30 MeV 質子、3 GeV 電子、235 MeV 質子、400 MeV/A 碳離子照射銅靶之放射性核種產率

比較 FLUKA 計算銅靶經過四種射束短時間照射(16 小時)後活度隨時間變化的情形，可以發現四者中有明顯不同的是 30 MeV 質子入射銅靶的案例，由於質子能量不足以開啟太多核反應通道，活化核種的種類也相對單純，短半衰期與長半衰期的主要貢獻者分別為 ⁶²Cu 及 ⁶⁵Zn，在停機時 ⁶²Cu 占了總活度的 57.70 %，在冷卻一個月與一年後則是 ⁶⁵Zn 占了 82.12 %及 97.54 %。3 GeV 電子照射銅靶後，冷卻的三個時期活度主要的貢獻者是 ⁶²Cu、⁵⁸Co、⁵⁷Co，所占比例分別是 69.04 %、69.59 %、31.07 %。235 MeV 質子與 400 MeV/A 碳離子引起的活化核種活度在三個時期的主要貢獻者亦是 ⁶²Cu、⁵⁸Co、⁵⁷Co，與 3 GeV 電子照射的結果相同，但 235 MeV 質子與 400 MeV/A 碳離子的活度變化趨勢更一致，核種的組成也更複雜，此外，兩者除了以上三種放射性核種外，其它核種的貢獻也佔了相當大的比例。

整體來說，235 MeV 質子與 400 MeV/A 碳離子引起銅靶活化的情形相當類似，這是因為在受重粒子照射的物質中，活化的貢獻主要來自於二次粒子而非入射粒子，因此能量相近的質子與重粒子[Energy per amu]引起的活化核種與入射粒子種類關係不大，而是與靶材有強烈的關係(Strasik et al., 2010)。此外二者在停機、冷卻一個月、冷卻一年的三個時間點下，活度主要的貢獻者也與 3 GeV 電子引起的相同，卻與 30 MeV 質子所引起的核種種類不同，原因是在低能量區域(<20 MeV)，質子與銅靶主要進行(p,n)反應，因此由 ⁶³Cu(p,n)⁶³Zn 及 ⁶⁵Cu(p, n)⁶⁵Zn 形成的 ⁶³Zn 與 ⁶⁵Zn 兩項產物在 30 MeV 質子引起的活化情形中扮演主要的角色；然而在高能量區域(>20 MeV)，質子入射銅靶主要引起的(p,p+n)反應與電子產生中子的主要機制 Giant Resonance 的(γ,n)反應，這兩種不同的過程恰巧使天然銅中占比 69.17 %的 ⁶³Cu 形成 ⁶²Cu，因此才會

讓看似不相關的 3 GeV 電子、235 MeV 質子、400 MeV/A 碳離子三者展現相似的趨勢。

受活化的物質在加速器停機後仍然會持續對維修人員造成劑量，為了避免人員受到過量的劑量暴露，停機後可能需要等待一段冷卻時間後才能接近，因此受活化組件周遭的劑量率與冷卻時間的關係相當重要，本計畫以 FLUKA 計算經過照射後距離銅靶一公尺外的平均光子劑量率隨時間的變化情形，根據法規對輻射工作人員的限制，將判斷劑量率的參考基準選定為 $10 \mu\text{Sv/h}$ 。

圖 3 及圖 4 分別是短時間與長時間照射組的計算結果，很明顯的因為 30 MeV 質子加速器的電流與其他三者差距過大，光子劑量率也差距數百至數萬倍。在短時間照射情況下，經過 30 MeV 質子照射的銅靶直到冷卻時間超過一年後才能降低到 $10 \mu\text{Sv/h}$ 以下，另一方面如同預期的，活化情形類似的 235 MeV 質子與 400 MeV/A 碳離子所造成的光子劑量率仍然呈現相同的趨勢，兩者間存在約 0.3 倍的關係，經 400 MeV/A 碳離子照射 16 小時造成的活化光子劑量率在冷卻 4 小時可以低於 $10 \mu\text{Sv/h}$ 以下；235 MeV 質子與 3 GeV 電子則需要冷卻一天。至於照射時間為一年的長時間照射組，235 MeV 質子、400 MeV/A 碳離子與 3 GeV 電子的曲線都在冷卻時間超過一年後才能降低至 $10 \mu\text{Sv/h}$ 以下，而被 30 MeV 質子照射一年的銅靶就算經過十年冷卻，一公尺外的活化光子劑量率仍然有 $121 \mu\text{Sv/h}$ 。

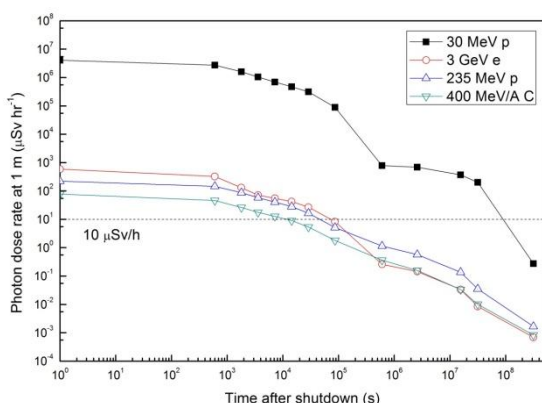


圖 19 四種射束照射銅靶 16 小時後，距銅靶一公尺外之活化光子劑量隨時間變化結果

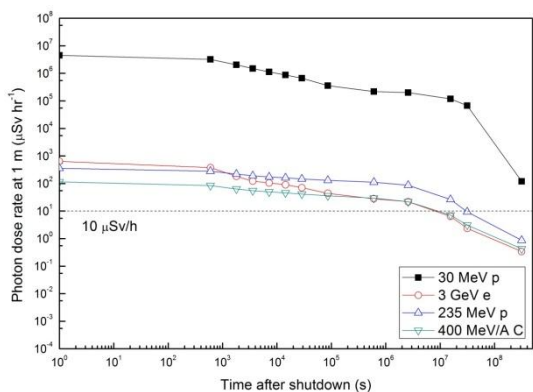


圖 20 四種射束照射銅靶 1 年後，距銅靶一公尺外之活化光子劑量隨時間變化結果

IV. 結論

近年來國內加速器的應用蓬勃發展，加速器的能量與規模越來越大，高能加速器運轉時不可避免的會產生物質活化及其相關輻射防護問題，因應國內越來越多的大型加速器應用，了解並建立正確的評估能力已是相當重要的議題，本計畫利用一系列有相對可靠實驗數據支持的活化案例，盡可能採用不同計算程式與不同理論模型，以有系統的方式驗證蒙地卡羅遷移程式用在計算中子產生與物質活化的模擬能力。在受評估截面資料庫可得的情況下，MCNPX 計算中子產生的結果相對於使用核子模型估計的 FLUKA 而言是較為可信的；而 FLUKA 則在計算活化相關問題方面則佔有較大優勢，因此本計畫主要使用 FLUKA 來計算物質活化情形，其分析的結果與實驗值的差異均在合理範圍內，更增加了本分析技術的信心。本計畫進一步使用驗證過的模型有系統地探討各種不同射束撞擊銅靶的結果，發現中子與活化核種的產生與核反應機制有相當大的關聯，核反應管道較少的 30 MeV 質子及 3 GeV 電子入射銅靶產生的活化核種比較單純，235 MeV 質子及 400 MeV/A 碳離子入射銅靶所產生的活化核種種類則相對複雜。此外雖然中子產生的機制並不相同，巧合的是 3 GeV 電子主要引起的 (γ, n) 反應與 235 MeV 質子引起的 (p, np) 反應對靶核內核子數的改變恰好相同，使得二者引起的活化核種種類亦相當類似。

本計畫已完成四種射束入射銅靶的相關計算，未來將擴展至其它可能的材質，例如不銹鋼或軟組織等，不銹鋼是加速器組件及管線的代表材料；而軟組織則可模擬人體被射束照射的情形。期望有系統地建立大量射束與靶體組合的活化數據庫，嘗試建立合理簡化的關係以連結加速器組件活化程度與眾多因子之間的影响程度，做為未來實用的參考。

參考文獻

1. Bock RK, Vasilescu A. The particle detector briefbook. Springer; 1998.
2. Lee HS, Ban S, Sanami T, Takahashi K, Sato T, Shin K, Chung C. RPD 116: 653-657; 2005.
3. Meier MM, Goulding CA, Morgan GL, Ullmann JL. NSE 104: 339-363; 1990.
4. Mills SJ, Steyn GF, Nortier FM. ARI 43: 1019-1030; 1992.
5. Nakamura T, Fujii M, Shin K. NSE 83: 444-458; 1983.
6. NSRRC. 台灣光子源 (TPS) 輻射安全分析報告. 2010.
7. Satoh D, Kurosawa T, Sato T, Endo A, Takada M, Iwase H, Nakamura T, Niita K. NIMA 583: 507-515; 2007.
8. Strasik I, Mustafin E, Seidl T, Pavlovic M. NIMB 268: 573-580; 2010.
9. Swanson WP. Radiological safety aspects of the operation of electron linear accelerators. IAEA Vienna; 1979.
10. Tanaka H, Sakurai Y, Suzuki M, Masunaga S, Kinashi Y, Kashino G, Liu Y, Mitsumoto T, Yajima S, Tsutsui H, Maruhashi A, Ono K. NIMB 267: 1970-1977; 2009.
11. Yashima H, Uwamino Y, Iwase H, Sugita H, Nakamura T, Ito S, Fukumura A. NIMB 226: 243-263; 2004.

我國輻防法規採納 ICRP 103 號報告之可行性研究

Feasibility study of ICRP report 103 adopted in domestic radiation protection regulations

計畫編號：NSC 102—NU—E—007—006—NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：許芳裕

e-mail：fyhsu@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：劉衣祺、陳立言

執行單位：國立清華大學原子科學技術發展中心

摘要

我國目前游離輻射防護相關法規是採行國際放射防護委員會(ICRP)於1991年提出之ICRP 60報告之建議書，依據游離輻射防護法(第五條)規定，主管機關應參考國際放射防護委員會(ICRP)最新標準訂定游離輻射防護安全標準，並應視實際需要訂定相關導則，規範輻射防護作業基準及人員劑量限度等游離輻射防護事項。ICRP於2007年提出了最新版的ICRP 103報告建議書，本研究針對ICRP 103及ICRP 60二份建議書持續進行深入之比較分析，精簡歸納出ICRP 103與ICRP 60之異同，並討論其可能影響。此外，本研究蒐集與研析核能先進國家採行ICRP 60報告之經驗及採用ICRP 103號報告之最新資訊，針對ICRP 103報告新建議的強化與補充部分進行深入研析，提出我國輻射防護相關法規採行ICRP 103號報告之可行性分析與建議。

關鍵詞：國際放射防護委員會、游離輻射防護法、ICRP 60報告、ICRP 103報告。

Abstract

Current domestic radiation protection regulations are based on the recommendations of the International Commission on Radiological Protection (ICRP) report no. 60, published in 1991. According to the Ionizing Radiation Protection Act (Article 5 Safety Standards), the Competent Authority shall refer to the latest standards of the International Commission on Radiological Protection to lay down the Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation, and if warranted, to formulate the relevant guides so as to regulate the levels of radiation protection practice and personal dose limits. ICRP published the newest ICRP recommendation report no.103 in 2007. This study focused on the comparison and analysis between ICRP 103 with ICRP 60 to propose the streamlined summarization and figure out the possible impact. In addition, this study collected and analyzed the adoption experiences of ICRP 60 and the newest information for adopting the ICRP 103 report to the radiation protection regulations for the other countries in the world. This study also conducted the research and analysis on the enhanced and complement part of the new ICRP 103 recommendations to propose the feasibility of ICRP 103 adopted in domestic radiation protection regulations of our country.

Keywords: ICRP, Ionizing Radiation Protection Act, ICRP 60 report, ICRP 103 report.

I. 前言

我國目前游離輻射防護相關法規是採行國際放射防護委員會(International Commission of Radiation Protection, 簡稱ICRP)於1990年提出之ICRP 60報告之建議書，而ICRP已於2007年提出ICRP 103號報告之建議書；依據游離輻射防護法規定(第五條)，為限制輻射源或輻射作業之輻射曝露，主管機關應參考國際放射防護委員會(ICRP)最新標準訂定游離輻射防護安全標準，並應視實際需要訂定相關導則，規範輻射防護作業基準及人員劑量限度等游離輻射防護事項。因此本研究計畫即比較最新ICRP 103與ICRP 60報告之差異，討論其可能影響，並蒐集核能先進國家採用ICRP 103號報告之最新資訊，研提我國輻射防護相關法規採行ICRP 103號報告之可行性。

II. 主要內容

我國游離輻射防護安全標準最早於民國五十九年(1970年)核定發布(考量ICRP 1, 6及9號報告之建議)，並於民國八十年(1991年)修正(考量ICRP於1977年提出之ICRP 26號報告建議)，再於民國九十二年(2003年)配合游離輻射防護法之實施修正(考量ICRP 60號報告之部分建議)，其後又於民國九十四年十二月三十日修正部分條文(修正部分自九十七年一月一日起施行)[9]，全面考量ICRP 60號報告之建議。鑒於我國目前游離輻射防護相關法規是採行ICRP於1991年提出之ICRP 60報告之建議書，而ICRP已於2007年提出ICRP 103號之新版建議書；依據游離輻射防護法規定(第五條)[10]，為限制輻射源或輻射作業之輻射曝露，主管機關應參考國際放射防護委員會(ICRP)最新標準訂定游離輻射防護安全標準，並應視實際需要訂定相關導則，規範輻射防護作業基準及人員劑量限度等游離輻射防護事項。綜觀而論，我國游離輻射防護安全標準於ICRP提出新的輻射防護建議書後，約11至14年(平均約13年)即會將ICRP之最新建議納入我國輻射防護安全標準及相關法規。本研究計畫之研究方法及步驟概述如下：

2.1 比較ICRP 103 (2007)與ICRP 60 (1990)之差異

ICRP 60報告之主要內容包括輻射防護使用的物理量及單位、輻射防護的生物觀點、輻射防護的觀念架構、輻射防護的防護體系、干預的防護體系及ICRP建議之執行等單元。ICRP 103報告之主要內容包括ICRP建議書的沿革、建議書的目的和範圍(排除與豁免)、輻射防護的生

物學觀點(胚胎與胎兒的輻射效應)、輻射防護使用的量、人的輻射防護體系、ICRP 建議之執行、醫療曝露(患者、護理人員及生物醫學研究實驗之自願參者)以及環境輻射防護等單元。

ICRP 103 建議書更新了輻射加權因數、組織加權因數及依據最新相關生物學與流行病學資料，更新了輻射危害係數。此外，ICRP 提出三種曝露狀況：計畫曝露(Planned exposure situation)、緊急曝露(Emergency exposure situation)、現存曝露(Existing exposure situation)。ICRP 103 新建議書中輻射防護的生物觀點考量包括：

- (1) 對於輻射防護體系的考量(基於科學的考量)
- (2) 輻射引起的確定效應
- (3) 輻射引起的機率效應(癌症危險度與其基礎)
- (4) 非癌效應與胎兒效應
- (5) 不確定性問題(日本受照者之數據是否適用於不同國家民族、線性無低限 LNT 模型之假設)

ICRP 26、ICRP 60 及 ICRP 103 報告建議之射質因數 Q (ICRP 26)及輻射加權因數 WR 對照表，示於表 2.1。圖 2.1 為 ICRP 103 建議之中子輻射加權因數 WR。ICRP 26、ICRP 60 及 ICRP 103 報告建議之組織加權因數 WT 對照圖，示於圖 2.2，其中 ICRP 60 報告建議之其餘組織指十個組織之總和，分別為腎上腺、腦、大腸上段、小腸、腎臟、肌肉、胰臟、脾臟、胸腺、子宮；ICRP 103 報告建議之其餘組織指十四個組織之總和，包括腎上腺、胸外區、膽囊、心臟、腎臟、淋巴節、肌肉、口腔黏膜、胰臟、前列腺(男性)、小腸、脾臟、胸腺、子宮。

表 2.1 ICRP 26、ICRP 60 及 ICRP 103 建議之射質因數 Q (ICRP 26)及輻射加權因數 WR

Quality and Radiation Weighting Factors for Various Radiations			
Radiation	ICRP-60		ICRP-103
	Q	W _R	W _R
X, gamma, beta	1	1	1
Neutrons			
Thermal	2	5	A continuous function of neutron energy (see Fig. 1 and Eq. 4.3)
0.01 MeV	2.5	10	
0.1 MeV	7.5	10	
0.5 MeV	11	20	
>0.1 MeV-2 MeV		20	
>2 MeV-20 MeV		5	
Unknown energy	10		
High-energy protons	10	5	2
Alpha particles, fission fragments, heavy nuclei	20	20	20

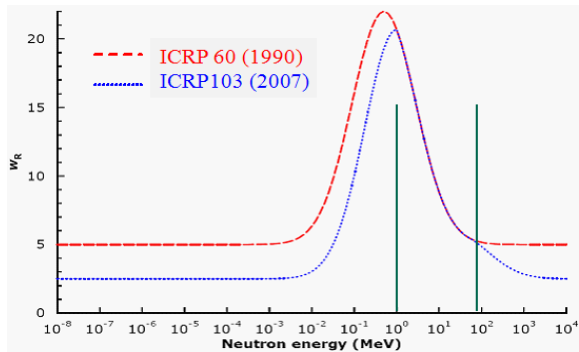


圖 2.1 ICRP 103 建議之中子輻射加權因數 WR

ICRP 103 建議之中子能量連續函數(ICRP 103 之 Eq. 4.3)：

$$W_R = \begin{cases} 2.5 + 18.2e^{-[\ln(E_n)]^2/6}, & E_n < 1 \text{ MeV} \\ 5.0 + 17.0e^{-[\ln(2E_n)]^2/6}, & 1 \text{ MeV} \leq E_n \leq 50 \text{ MeV} \\ 2.5 + 3.25e^{-[\ln(0.04E_n)]^2/6}, & E_n > 50 \text{ MeV} \end{cases}$$

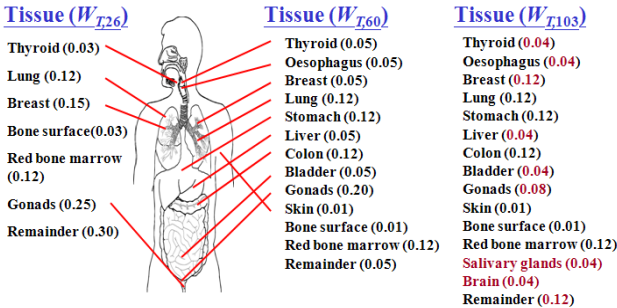


圖 2.2 ICRP 26、ICRP 60 及 ICRP 103 建議之組織加權因數 WT,26、WT,60 及 WT,103

本研究針對 ICRP 103 及 ICRP 60 二份建議書持續進行深入之比較分析，彙整現有對二份報告比較分析之國內外相關參考文獻，精簡歸納出 ICRP 103 與 ICRP 60 之異同，並討論其可能影響。

2.2 蒐集與研析核能先進國家採行 ICRP 60 報告之經驗及採用 ICRP 103 號報告之最新資訊

ICRP 於 1991 年發布了 ICRP 60 建議書，世界先進國家大部分均已採行 ICRP 60 之建議，應用於各國之輻射防護法規，本研究將透過搜尋網路資訊、政府機構資訊及相關國際組織(如 ICRP、IAEA、OECD...等)網站資訊，蒐集相關國際組織之報告，了解核能先進國家以獲得先進國家採行 ICRP 60 報告之經驗。世界經濟合作與發展組織 OECD 是一個由 34 個民主國家的政府參與的獨特組織，OECD 常出版與發布其收集的統計資訊及對全球化經濟，社會和環境問題的研究，並經常發布相關公約、指引導則、標準等。OECD 之核能機構 NEA 成立於 1958 年 2 月 1 日，OECD NEA 目前由 30 個 OECD 成員國參與，其涉及之執掌領域包括核子活動(Nuclear Activities)的安全與監管法規、放射性廢棄物管理、輻射防護，核子科學，核燃料循環之經濟和技術分析，核能法規和責任，及其他相關公共信息等。

OECD NEA 於 2010 年起即對其組織內之各國相關機構，包括輻防法規執掌機構及部分輻射作業實務機構進行問卷調查，蒐集各國法規及作業單位應用與採行 ICRP 60 報告之經驗及採行 ICRP 103 報告之規劃或具體作為情形。OECD NEA 之調查結果已於 2012 年 4 月提出初步報告，本研究計畫已蒐集 OECD NEA 提出之初步調查報告，深入研析此報告，並持續追蹤、更新、搜尋其它最新之資訊，以獲得並彙整先進國家採行 ICRP 60 報告之經驗及採用 ICRP 103 號報告之規劃的最新資訊。

2.3 研提我國輻射防護相關法規採行 ICRP 103 號報告之可行性

ICRP 103 新建議書是對先前 ICRP 60 報告建議的強化與補充，因此本研究考量現行輻防相關法規採行 ICRP 60 之情形，並依據本研究比較 ICRP 60 及 ICRP 103 報告內容後所歸納之差異，針對 ICRP 103 報告新建議的強化與補充部分進行深入研析，提出我國輻射防護相關法規

採行 ICRP 103 號報告之可行性分析與建議。

III. 結果與討論

3.1 ICRP 103 (2007)與 ICRP 60 (1990)之差異分析

ICRP 103 報告之主要內容包括 ICRP 建議書的沿革、建議書的目的和範圍(排除與豁免)、輻射防護的生物學觀點(胚胎與胎兒的輻射效應)、輻射防護使用的量、人的輻射防護體系、ICRP 建議之執行、醫療曝露(患者、護理人員及生物醫學研究實驗之自願參者)以及環境輻射防護等單元。ICRP 103 建議書更新了輻射加權因數、組織加權因數及依據最新相關生物學與流行病學資料，更新了輻射危害係數。此外，ICRP 提出三種曝露狀況：計畫曝露(Planned exposure situation)、緊急曝露(Emergency exposure situation)、現存曝露(Existing exposure situation)。ICRP 103 新建議書中輻射防護的生物學觀點考量包括對於輻射防護體系的考量(基於科學的考量)、輻射引起的確定效應、輻射引起的機率效應(癌症危險度與其基礎)、非癌效應與胎兒效應及不確定性問題如日本受照者之數據是否適用於不同國家民族、線性無低限 LNT 模型之假設適用性等。

ICRP 60 及 ICRP 103 報告建議之輻射加權因數 W_R 主要差異為 ICRP 103 質子與中子之 W_R 改變，及新增帶電 π 介子之 W_R 。ICRP 60 報告建議之其餘組織為腎上腺、腦、大腸上段、小腸、腎臟、肌肉、胰臟、脾臟、胸腺、子宮等 10 個組織之總和；ICRP 103 報告建議之其餘組織為腎上腺、胸外區、膽囊、心臟、腎臟、淋巴節、肌肉、口腔黏膜、胰臟、前列腺(男性)、小腸、脾臟、胸腺、子宮等 14 個組織之總和。

3.2 蒐集與研析核能先進國家採行 ICRP 60 報告之經驗及採用 ICRP 103 號報告之最新資訊

OECD NEA 於 2010 年起即對決定探查採行 ICRP 建議書所需要的資源，由 NEA 指派人員以問卷方式或是進行面談、或是寄出書面問卷進行意見調查，接受訪查並提供或回覆意見的有 11 個國家(澳洲、加拿大、捷克、冰島、南韓、挪威、斯洛伐克、斯洛伐尼亞、西班牙、瑞典、英國)，被訪查者有各國之主(監)管機構，核電廠營運單位、醫療機構以及非破壞檢測公司等單位或部門的人員。相關報告之彙整結果如下：

3.2.1 採行 ICRP 60 號報告的經驗

- (1) 回覆意見的所有國家政府都有輻射防護的相關立法、監管權力。
- (2) 所有回覆意見國家都針對 ICRP 60 號報告進行法律的修訂，對 ICRP 60 號報告之修法並無產生嚴重問題。
- (3) 相關導則主要由監管部門提供，少數國家由專業的協會提供。
- (4) 在 ICRP 60 號採行前，大部分國家採用 ICRP 26 號報告的劑量限值，有部分國家的限制為小於一年之劑量管制周期，韓國則採用 ICRP 9 號報告的限值。
- (5) 幾乎所有受訪者在採行 ICRP 60 號建議書後都改用 ICRP 60 號建議的劑量限值。加拿大對於懷孕女性員工的劑量限值為：有效劑量 4 毫西弗。
- (6) 各國由建議到立法的時間如表 2 (Table 2)，約在首次提

出建議後 2~10 年即陸續將 ICRP 60 之相關建議納入法規。

- (7) 各國監管機關(Regulators)與營運者(Operators)認為 ICRP 60 設定更低的劑量限值，在執行上並無明顯問題。
- (8) 多數國家在職業與公眾曝露使用劑量約束。捷克與西班牙僅對公眾實施劑量限制，加拿大則在職業與公眾曝露均不實施劑量約束。
- (9) 大多數國家都沒有正式的風險約束，英國與挪威的監管機關認為其有用。
- (10) 所有回應國家都要求雇主提供符合標準體外劑量評定業者的劑量佩章予輻射工作人員使用。

Table 2. Dates of legislation and lead-in times

Country	First proposal of new legislation	Legislation adopted	Time until being in force	Lead-in time
Australia	1991 (federal recommendation)	1993 to 2002 (different jurisdictions)	0-1 years	3 to 11 years
Canada	Early 1990s	2000	0 years (some requirements 5 years)	9 to 14 years
Czech Rep.	1994	1997	(?)	3 (+?) years
Rep. of Korea	1994	1998	0 years (some requirements 5 years)	4 to 9 years
Norway	(1994?)	2003	2 months (some requirements 3 years)	9 to 12 (?) years
Spain	(1994?)	2001	1 year	8 (?) years
Sweden	1990	1998	2 years	10 years
UK	~1994	1999	1 month (some requirements 5 months)	~6 years

3.2.2 採行 ICRP 103 號報告的考量與規劃

- (1) 大部分國家預期在採用 ICRP 103 後只會對法律稍作修訂。預期的修正著重於曝露情境、新的加權因數、劑量約束以及參考基準的使用。
- (2) 採行 ICRP 103 號建議書的衝擊，預期比 ICRP 60 號建議書來的有限。影響的部分主要在於新的加權因數與劑量約束。
- (3) ICRP 103 將懷孕婦女之劑量限制改為懷孕期間胎兒的等價劑量 1 毫西弗，ICRP 60 為下腹部等價劑量 2 毫西弗，歐盟 BSS 的指令為 1 毫西弗。加拿大的標準為有效劑量 4 毫西弗，不預期會有改變。
- (4) ICRP 103 強調劑量約束，預期對於很久沒使用或是未使用過劑量約束的加拿大與西班牙預期會有困難，對於英國的放射性廢棄物管理亦預期有困難。
- (5) 在 ICRP 60 號之後僅有挪威與英國提出風險約束的報告。ICRP 103 報告與 ICRP 76 號報告依然提及風險約束應納入國家決策，然而沒有其餘的國家預期採行 ICRP 103 後將其納入。
- (5) 沒有國家預期會因為使用新的加權因數而覺得有困難。

3.2.3 OECD NEA 調查報告之限制

(1)有回覆調查的國家大部分都是常參與國際事務的國家，所以有一些國家並未回覆調查。OECD NEA 在此份調查報告中指出其並非全面性的結果，但其訪查國家涵蓋了4大洲，與不同的政治體制、文化、經濟條件、所以此份報告仍能作出適合的結論。(2)大部分的回復為各國監管機關，各國僅由一個監管部門(通常是核能部門)回覆，但關於輻射防護通常是由多個部門負責，所以此份報告大多基於核電場考量的條件下的回覆。

3.3 我國輻防相關法規採行 ICRP 103 號報告之可行性評估

依據 OECD NEA 調查報告之研析與彙整可得下列結論：

- (1) 採用 ICRP 60 號的成本是可接受的。
- (2) 採行 ICRP 60 號的經驗顯示，須有足夠時間去解釋建議書，由討論到實行可能需要 10 年以上。
- (3) 因為基本的風險與劑量限值並未改變，在已採行 ICRP 60 的國家再轉變為採行 ICRP 103 時，預期成本會較當初採用 ICRP 60 時來的低。

ICRP-103 建議內容大部分沿用 ICRP-60 輻防系統，因此新建議對輻射防護法規與實務不須有重大變革，僅須針對 ICRP 103 建議書的部分改變與，新建議包括更新輻射加權因數 W_R 、組織加權因數 W_T 及依據最新相關生物學與流行病學資料，更新輻射危害係數，並提出三種曝露狀況：計畫曝露、緊急曝露、現存曝露，及劑量約束與參考水平在不同曝露狀況之適用性等。公眾劑量限度由射源關聯的概念修正為個人關聯。劑量約束與參考基準將成為輻射防護的主流。過去以輻射作業與干預為基礎的防護方法，演變為應用於所有可控制曝露狀況(計畫、緊急、既存等三種曝露狀況)之正當化與防護最適化基本原則的防護方法。

依據上述資料研析結果及核能先進國家採用 ICRP 103 號報告之最新資訊彙整，我國輻射防護相關法規(如游離輻射防護安全標準)欲採行 ICRP 103 號報告最新建議困難度不大，意即具有極高可行性。

IV. 結論

依據國內游離輻射防護法第五條規定，為限制輻射源或輻射作業之輻射曝露，主管機關應參考國際放射防護委員會(ICRP)最新標準訂定游離輻射防護安全標準，並應視實際需要訂定相關導則，規範輻射防護作業基準及人員劑量限度等游離輻射防護事項。因此本研究計畫即比較最新 ICRP 103 與 ICRP 60 報告之差異，而 ICRP-103 建議內容大部分沿用 ICRP-60 輻防系統，新建議包括更新輻射加權因數 W_R 、組織加權因數 W_T 及依據最新相關生物學與流行病學資料，更新輻射危害係數，並提出三種曝露狀況：計畫曝露、緊急曝露、現存曝露，及劑量約束與參考水平在不同曝露狀況之適用性等。因此納入新建議對輻射防護法規與實務不須有重大變革，僅須針對 ICRP 103 建議書的少部分改變修正即可。

ICRP-103 對我國現行輻防法規與實務的影響主要以游離輻射防護安全標準會受部分影響，影響所及諸如(1)ICRP 103 為了公眾輻射防護的目的，建議採用「代表人(Representative Person)」取代先前「關鍵群體」概念。

(2)中子和質子輻射加權因數的數值改變。(3)相關之組織加權因數的數值有更新。此外，在現行游離輻射防護安全標準附表三及附表四所列各核種之劑量轉換因數與管制限度之各參數乃依據或參考 ICRP 23, 30, 56, 65-69, 71-72 等報告，ICRP 103 仍沿用相關數據，目前不需修正。依據上述資料研析及核能先進國家採用 ICRP 103 號報告之最新資訊彙整，我國輻射防護相關法規(如游離輻射防護安全標準)欲採行 ICRP 103 號報告最新建議困難度不大，具有極高可行性。

參考文獻

- [1] ICRP, 1977. Recommendation of the International Commission on Radiological Protection (ICRP), ICRP Publication 26.
- [2] ICRP, 1991. Recommendation of the International Commission on Radiological Protection (ICRP), ICRP Publication 60.
- [3] ICRP, 2007. Recommendation of the International Commission on Radiological Protection (ICRP), ICRP Publication 103.
- [4] Organization for Economic Co-operation and Development (OECD), 2012. Resources needed to implement ICRP 60 recommendations at the national level and resources that may be needed to implement those of ICRP 103, OECD Nuclear Energy Agency (NEA), Committee on Radiation Protection and Public Health, NEA/CRPPH/R(2012)1/REV1.
- [5] Organization for Economic Co-operation and Development (OECD), 2011. Evolution of ICRP Recommendations 1977, 1990 and 2007: Vhanges in underlying science and protection policy and their impact on European and UK domestic Regulation. OECD NEA no. 6920.
- [6] 朱鐵吉，2004 年 8 月，國際放射防護委員會(ICRP)第 60 號建議書要點，元培科技大學放射系。
- [7] 魯經邦，2012 年 6 月，國際放射防護委員會(ICRP)第 103 號報告(2007 建議)解讀與評析，台電核能月刊。
- [8] 邱志宏，2008 年 9 月，ICRP 2005 建議(草案)之研究及相關對策之研擬，行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告。
- [9] 行政院原子能委員會，2005 年 12 月，游離輻射防護安全標準，行政院原子能委員會發布修正。
- [10] 行政院原子能委員會，2003 年 2 月，游離輻射防護法，行政院原子能委員會發布實施。

我國放射性物質安全運送規則之分析與更新建議

Analysis and Update Recommendations for the Regulation of Safe Transport of Radioactive Material

計畫編號：NSC 102-2623-E-214 -005 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：李境和

e-mail：chlee95@isu.edu.tw

計畫參與人員：俞旻君、鄭依文

執行單位：義守大學醫學影像暨放射科學系

摘要

我國現行放射性物質安全運送規則，係於 2000 年參考國際原子能總署(以下簡稱 IAEA)1996 年安全叢書第 6 號報告修訂，施行迄今已逾 10 年。行政院原子能委員會為健全我國放射性物質安全運送規則，認為有必要研究我國法規與 IAEA 最新報告之差異性，以更新我國的放射性物質安全運送規則。

本計畫依原規劃之執行方法、步驟、項目與時程，完成下列工作：(1)蒐集與研讀國內外有關放射性物質安全運送之資料、(2)進行 IAEA 放射性物質安全運送規則之中文化工作、(3)進行國內現行放射性物質安全運送規則與 IAEA 運送規則之差異分析、最後(4)提出我國放射性物質安全運送規則更新之建議。已完全達成本計畫之目標，將可幫助主管機關更新我國放射性物質安全運送規則，以便與國際接軌。

關鍵詞：放射性物質、運送、放射性物質安全運送規則

Abstract

The current Regulation for Safe Transport of Radioactive Material published in our country in 2000, which referred to the safety series report No. 6 issued by International Atomic Energy Agency (IAEA) in 1996. Our regulation implemented and already exceeded over 10 years. The Atomic Energy Council hopes to improve our Regulation for Safe Transport of Radioactive Material and recognizes that it is necessary to study the difference between our regulation and IAEA latest report and to upgrade our regulation.

According to the original executing methods, steps, items and schedules of the plan, we finished the following works: (1) Collecting and studying the international and domestic reports related to the safe transport of radioactive material, (2) Translating the Regulation for Safe Transport of Radioactive Material issued by IAEA into Chinese, (3) Analyzing the differences between our regulation and IAEA latest report on safe transport of radioactive material, finally (4) Providing the suggestion on our regulation upgrade on the safe transport of radioactive material. We have completely finished the goal of the plan, it can help the competent authority to upgrade our regulation and to consist with international standards.

Keywords: radioactive material, transport, the regulation of safe transport of radioactive material

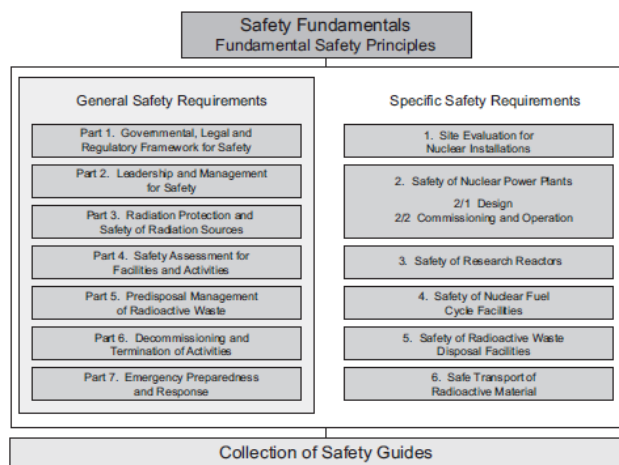
I. 前言

我國現行放射性物質安全運送規則，係於民國 89 年參考 IAEA 1996 年安全叢書第 6 號報告修訂，施行迄今已逾 10 年。這期間，IAEA 於 2000 年、2003 年、2005 年與 2009 年加以修訂，改編號為 TS-R-1；又於 2012 年出版新的運送規則「IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material SSR-6」報告。

由放射物質運送須通行於全世界，且 IAEA 約每 5 年就修訂一次；我國的法規除須考量國內法規體系外，管制的事項必須與國際接軌，有必要探討與研究 IAEA 所頒發放射物質運送的相關報告，分析國內現行放射性物質安全運送規則與 IAEA 最新 SSR-6 報告之差異性，並提出我國放射性物質安全運送規則的更新建議。

II. 主要內容

經研究發現，IAEA 發行的安全標準系列叢書(Safety Standards Series)可分為三層級：安全基礎(Safety Fundamentals)、安全要求(Safety Requirements)與安全導則(Safety Guides)。「安全要求」分為兩類「一般安全要求(General Safety Requirements)」與「特殊安全要求(Specific Safety Requirements)」，如圖一。「特殊安全要求」又分為六種；其中第六種為放射性物質安全運送(6. Safe Transport of Radioactive Material)。



圖一、IAEA 安全標準系列的架構

IAEA 所頒發放射物質運送的相關報告可分為「特殊安全要求」(Specific Safety Requirements, SSR)與「運

送安全導則」(Transport Safety Guide, TS-G)兩層。到目前為止，特殊安全要求報告有：Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, SSR-6, 2012。運送安全導則的報告有六種導則，分別為：(1) Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, TS-G-1.1, 2008；(2) Planning and Preparing for Emergency Response to Transport Accidents Involving Radioactive Material, TS-G-1.2, 2002；(3) Radiation Protection Programmes for the Transport of Radioactive Material, TS-G-1.3, 2007；(4) The Management System for the Safe Transport of Radioactive Material, TS-G-1.4, 2008；(5) Compliance Assurance for the Safe Transport of Radioactive Material, TS-G-1.5, 2009；(6) Schedules of Provisions of the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material (2005 Edition), TS-G-1.6, 2010 等報告。

IAEA 2012 年出版的 SSR-6 運送規則，主要內容有：(1)前言、(2)定義、(3)一般規定、(4)放射性活度限值與分類、(5)運送要求與管理、(6)對放射性物質及對包裝與包件的要求、(7)試驗程序、(8)核准與管理的要求。2008 年的 TS-G-1.1，係針對「運送規則」提出補充說明資料。2007 年的 TS-G-1.2，係針對「運送意外事件」提出緊急應變的有效與安全處理。2007 年的 TS-G-1.3，係針對「運送的輻射防護」提出符合所建立的輻射防護之要求並達到輻射防護的最佳化。2008 年的 TS-G-1.4，係針對「運送的管理系統」提出執行放射性物質運送所要求的管理系統、管理責任、執行流程、偵測評估與改善。2009 年的 TS-G-1.5，係為協助管制機關發展與維持「運送符合保證方案」，與協助申請者、領有執照者及組織與管制機關間的互動。2010 年 TS-G-1.6，係提供資訊以協助使用者去決定正確的包件種類、適當的操作與管理要求。

為分析比較我國現行放射性物質安全運送規則與 IAEA 最新版放射性物質安全運送規則(SSR-6, 2012)報告之差異性，並提出運送規則更新的建議，將採下列的研究方法：

- (1) 先蒐集與研讀國內外有關放射性物質安全運送之資料。
- (2) 對 IAEA 放射性物質安全運送規則，進行中文化工作並摘述其重點。
- (3) 進行我國與 IAEA 有關放射性物質安全運送規定之差異性分析。
- (4) 提出我國放射性物質安全運送規則更新的建議，供計畫需求單位參考。

我國與 IAEA 有關放射性物質安全運送規定之差異性的原因，可歸類如下：

- (1) 法規體例不同：係因表示方式的不同，不做修正的建議。
- (2) 我國運送規則條文較簡潔、明確或較詳細：意義相同，不做修正的建議。
- (3) 兩者條文相似：表達方式略有不同，意義相同，不做修正的建議。
- (4) 我國運送規則無對應條文，對管制事項無幫助者或約束主管機關者：不做修正的建議。
- (5) 我國運送規則相關條文缺了某些重要事項規定：建議修正此相關條文。

- (6) 我國運送規則與 IAEA 相關條文之意義略有不同者：建議修正此相關條文。

為考量需求單位修訂法規的作業方便性，將提出三欄式的修正條文建議案。

本計畫實際執行狀況，如原先規劃的執行進度與內容，如下表；並於今年 1 月中旬就完成整個報告，上傳國科會。

工作項目	年月	102 1	102 2	102 3	102 4	102 5	102 6	102 7	102 8	102 9	102 10	102 11	102 12
1.蒐集與研讀國內外有關放射性物質安全運送之資料													
2.進行中文化工作													
3.分析國內外之差異性													
4.提出更新的建議													
5.撰寫期末報告													

III. 結果與討論

經數月的研讀與翻譯，完成 IAEA 放射性物質安全運送規則之中文化工作。IAEA 放射性物質安全運送規則 SSR-6 報告共有八章，分別為第一章「前言」、第二章「定義」、第三章「一般規定」、第四章「放射性活度限值與分類」、第五章「運送要求與管理」、第六章「對放射性物質及對包裝與包件的要求」、第七章「試驗程序」、第八章「核准與管理的要求」；各章條文的分布，分別為第一章 101~111、第二章 201~249、第三章 301~315、第四章 401~434、第五章 501~588、第六章 601~686、第七章 701~737、第八章 801~840，共有 360 條條文。

已完成 IAEA 與我國運送規則之差異分析與建議(表一)。因 IAEA 放射性物質安全運送規則(SSR-6, 2012)為報告之形式與我國法規體例不一致，為確保 IAEA 運送規則的重要條文沒有遺漏，以 IAEA 運送規則的所有條文為基礎，將條文編號列於表一(僅列出一小部分)之第一欄；然後再從國內現行放射性物質安全運送規則，尋找相關的條文、附件、附表或附圖之條次與編號，列於表一之第二欄；比較國內現行放射性物質安全運送規則與 IAEA 運送規則之差異性，列於表一之第三欄；最後將國內運送規則修正的建議，列於表一之第四欄。建議修正、增列或刪除的條文，以劃底線的方式來顯示；對於建議刪除的條文或文字，以刪除線來顯示，列於表一之第四欄。

表一、總署(IAEA)放射性物質安全運送規則與我國現行運送規則之差異分析與建議

IAEA 條文	我國運送 規則對應 條文	差異分析	建議
第一章 前言			
背景			
101		1. 我國運送規則無對應條文。 2. IAEA 運送規則，係以安全基礎第 SF-1 號為基礎，建立一套安全標準。	可作為我國放射性物質安全運送規則修訂時撰寫總說明之參考。
102		1. 我國運送規則無對應條文。 2. 說明 IAEA 運送規則之補充報告。	可作為我國放射性物質安全運送規則修訂時撰寫總說明之參考。
103		1. 我國運送規則無對應條文。 2. IAEA 運送規則，只規範運送作業，不作責任指派，指派責任屬於各國政府。	可作為我國放射性物質安全運送規則修訂時撰寫總說明之參考。

經差異分析後，發現 IAEA 與我國運送規則之重要差異如下：

- (1) 我國運送規則第 8 條文，僅籠統規定「運送工作人員

應依其工作性質，接受適當之防護訓練」。IAEA 對運送工作人員之訓練，作了詳細的規定。為顧及國內法規體例，建議在我國運送規則中訂定一附件，以便規範運送工作人員的訓練。

- (2) IAEA 運送規則對已知質量的鈾與鈾可分裂物質包件，提供核臨界安全指數(CSI)的計算方式。我國運送規則係針對可分裂物質包件的完整性，提供最大允許包件數的決定，再計算其核臨界安全指數(CSI)。兩者計算方法不同，建議修正我國運送規則相關附件的內容。
- (3) IAEA 運送規則第 832 條~第 840 條，對主管機關核准證書的內容與項目，做了些規定。由於法規體例的不同，不宜對主管機關規範，但相關資料可供主管機關參考。

經差異分析後，也發現我國運送規則具有某些獨有的條文。為分析這些獨有的條文，將這些條文的編號列於表二(僅列出一小部分)之第一欄、為便於瞭解這些條文的意義，將條文內容列於表二之第二欄；分析這些條文的必要性與可能原因，列於表二之第三欄；依條文的必要性，提出「保留」或「刪除」的建議。

表二、我國放射性物質安全運送規則中獨有的條條

條款	條文內容	分析	建議
第 1 條	本規則依游離輻射防護法第六條規定訂定之。	法規結構問題。	保留。
第 38 條	以專用運送之託運物品，若其安排僅由託運人負責處理，且不違反其他規定時，可與其他貨物一同載運。	專用運送，須特別評估是否符合安全規定；若允許其他貨物一同載運，增加複雜性。	刪除。
第 41 條	不同種類及不同運送指數或核臨界安全指數之放射性物質包件，得混合裝載。但專案核定之運送包件，未經明確授權者，不得混合裝載。	IAEA 運送規則中沒有條文要求禁止。在第 540 條(c)內註明「混裝含不同放射性核種包件的外包裝或貨櫃，其整個包容物在一起，它們標誌上的這兩欄位可填寫“見交運文件”。」	保留。

已完成放射性物質安全運送規則修正條文(草案)，如表三(僅列出一小部分)。將建議修正的原條文列於第一欄、修正條文列於第二欄、修正的說明列於第三欄。

表三、放射性物質安全運送規則修正條文(草案)

原條文	修正條文	說明
第 5 條 有下列情形之一者，不適用本規則： 一、放射性物質小於附表七規定之活度濃度點免管制量或比運物品之活度濃度點免管制量。 二、經主管機關核准之放射性物質生產、使用或貯存場所範圍內之運送。 三、放射性物質屬運送之載具整體中之一部分者。 四、因醫療所需已植入或注入人體或動物體內之放射性物質。 五、符合法規規定之含放射性物質消費性產品之販售。 六、含有天然放射性核種之天然物質或礦物，其活度濃度在附表七規定活度濃度之十倍以下，且其處理目的並非使用其中之放射性核種。	第 5 條 有下列情形之一者，不適用本規則： 一、放射性物質小於附表七規定之活度濃度點免管制量或比運物品之活度濃度點免管制量。 二、經主管機關核准之放射性物質生產、使用或貯存場所範圍內之運送。 三、放射性物質屬運送之載具整體中之一部分者。 四、因醫療所需已植入或注入人體或動物體內之放射性物質。 五、符合法規規定之含放射性物質消費性產品之販售。 六、含有天然放射性核種之天然物質或礦物，其活度濃度在附表七規定活度濃度之十倍以下，且其處理目的並非使用其中之放射性核種。 七、表面污染物體之放射性物質污染不超過污染定義者。	IAEA 運送規則第 107 條有表面污染物體的點免規定。
第 6 條 一、放射性核種之比活度：指此核種單位質量之活度物質中放射性核種均勻分布時，其比活度為此物質單位質量之活度。	第 6 條 一、比活度：指此核種單位質量之活度。物質中放射性核種均勻分布時，其比活度為此物質單位質量之活度。	1. IAEA 運送規則的英文為 <i>Specific activity</i> ，譯為比活度較佳。 2. 條文缺一句點。

IV. 結論

經過(1)蒐集與研讀國內外有關放射性物質安全運送之資料、(2)進行 IAEA 放射性物質安全運送規則之文化工作、(3)進行國內現行放射性物質安全運送規則與 IAEA 運送規則之差異分析、最後(4)提出我國放射性物質安全運送規則更新之建議，已完全達成成本計畫之目標。這些中文化、差異分析、與更新建議之資料，將可幫助瞭解國內放射性物質安全運送規則與 IAEA 運送規則的內容、更新的原因，且可幫助更新我國放射性物質安全運送規則。

IAEA 運送規則之修訂非常頻繁，且其相關報告又相當複雜，國內需要有人來長期研讀與分析 IAEA 相關報告，並適時提出修正建議案，以便與國際接軌。

參考文獻

- [1] IAEA, ‘Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material,’ SSR-6, 2012.
- [2] IAEA, ‘Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material’ , TS-G-1.1, 2008.
- [3] IAEA, ‘Planning and Preparing for Emergency Response to Transport Accidents Involving Radioactive Material’ , TS-G-1.2, 2002.
- [4] IAEA, ‘Radiation Protection Programmes for the Transport of Radioactive Material’ , TS-G-1.3, 2007.
- [5] IAEA, ‘The Management System for the Safe Transport of Radioactive Material’ , TS-G-1.4, 2008.
- [6] IAEA, ‘Compliance Assurance for the Safe Transport of Radioactive Material’ , TS-G-1.5, 2009.
- [7] IAEA, ‘Schedules of Provisions of the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material (2005 Edition)’ , TS-G-1.6, 2010.
- [8] UN, ‘Recommendations on the Transport of Dangerous Goods’ , Model Regulation, Volume 1, 17th ed., 2011.
- [9] UN, ‘Recommendations on the Transport of Dangerous Goods’ , Model Regulation, Volume 2, 17th ed., 2011.
- [10] UN, ‘The Globally Harmonized System of Classification and Labelling of Chemicals (GHS)’ ,

大中華及國際核子醫學領域之應用與分析

Investigate and analysis the current status and the development of nuclear medicine in Greater China, and Asia Pacific Region

計畫編號：NSC 102-NU-E-006-004-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：李碧芳

e-mail：leelab0315@gmail.com

計畫參與人員：邱南津

執行單位：國立成功大學

摘要

近來核能研究所針對核子醫學(核醫)進行研發，頗具成效。再則，近來研究發現臺灣全民健保總額制度實施後，有核醫醫療需求民眾呈現增加趨勢。此外，目前大中華核醫醫療市場是非常熱絡；再則於2010年12月20日，財團法人海峽交流基金會董事長江丙坤和大陸海峽兩岸關係協會會長陳雲林，簽署《海峽兩岸醫藥衛生合作協議》。海峽兩岸雙方同意在醫藥品臨床試驗、非臨床檢測，以及上市前審查、生產管理、上市後審批等環節逐步採認對方執行結果。

此計畫採用全民健保資料庫分析臺灣核醫醫療服務現況，吾人於102-02-05，才獲得書面通知，縱然快馬加鞭進行計劃的執行；茲因本計劃為須申請與取得核子醫學相關健保資料庫，因此得以依照「國家衛生研究院全民健康保險研究資料庫資料加值服務申請原則」及成功大學行政流程進行科研採購。因在有限時間，目前初步完成之研究成果，乃針對腎臟掃描的醫療服務使用情形進行研究；這是因為台灣腎臟疾病盛行率很高，且大多數民眾有潛在腎臟疾病卻不自知，而導致後續病程加重。

可提供腎臟掃描醫療服務的醫院，以醫學中心為主，其次為區域醫院。使用腎臟掃描族群以19歲以下為主，且絕大多數就診科別為小兒科或泌尿科，可發現核醫腎臟掃描已逐漸普遍用於兒童與青少年泌尿道感染或腎臟相關疾病的診斷與治療。

關鍵詞：核子醫學、腎臟掃描、全民健康保險研究資料庫。

Abstract

Institute of Nuclear Energy Research (INER) has recently great success in research and development (R&D) for the need of nuclear medicine. Furthermore, recent studies found that there is an increasing demand for the medical care of nuclear medicine after the execution of the global budget payment system by the National Health Insurance (NHI) in Taiwan. Moreover, the medical market of nuclear medicine in Great China is in full swing. In addition, on 20 December 2010, the chairman of Straits Exchange Foundation, Chiang Pin-kung, and the president of Chinese mainland-based Association for Relations across the Taiwan Straits, Chen Yunlin, had signed the Across-Strait Agreement on Medical, Health Care Cooperation. Both sides of the strait agree to adopt the results of the opposite side gradually in pharmaceutical clinical trials, non-clinical

testing, as well as Pre-market review, production management, post-marketing examination and approval, etc. The aim of this grant is to analyze the status of nuclear medicine medical services in Taiwan by using the National Health Insurance Research Database. Because of the administrative process according to 「國家衛生研究院全民健康保險研究資料庫資料加值服務申請原則」and 成功大學行政流程進行科研採購。

Renal scan is a sensitive, early, non-invasive and accurate imaging to provide comprehensive renal function and detect serial temporal renal function change. The purpose of this study is to analysis the utilization of renal Scan in Taiwan by National Health Insurance (NHI) database.

Our results might serve as an international benchmark for estimating the utilization pattern for renal scan in countries around the world, though Taiwanese experience could not apply to all countries.

Keyword

Nuclear medicine, renal scan, national health insurance database

I. 前言

近來核能研究所針對核子醫學(核醫)需要不斷投資研發，頗具成效。再則，近來研究發現臺灣全民健保總額制度實施後，有核醫醫療需求民眾呈現增加趨勢。此外，目前大中華核醫醫療市場是非常熱絡；再則於2010年12月20日，財團法人海峽交流基金會董事長江丙坤和大陸海峽兩岸關係協會會長陳雲林，簽署《海峽兩岸醫藥衛生合作協議》。海峽兩岸雙方同意在醫藥品臨床試驗、非臨床檢測，以及上市前審查、生產管理、上市後審批等環節逐步採認對方執行結果。

因此吾人提出一年期研究，計畫利用全民健保資料庫分析臺灣核醫醫療服務及核醫醫療需求民眾現況。

II. 主要內容

於102-02-05，才獲得書面通知，縱然快馬加鞭進行計劃的執行；茲因本計劃為須申請與取得核子醫學相關健保資料庫，因此得以依照「國家衛生研究院全民健康保險研究資料庫資料加值服務申請原則」。吾人利用此經費補助申請倫理審查委員會(IRB)審查並獲得通過證明，接下來檢附研究計畫書乙份及倫理審查委員會(IRB)審查通過證明文件，申請「國家衛生研究院全民健康保險研究資

料庫資料加值服務」。吾人提出「一般申請」，即為申請四種制式光碟片加值資料檔，包括基本資料檔、系統抽樣檔、特定主題分檔、承保抽樣歸人檔。並針對專家諮詢意見進行回覆，獲得允許；另外，吾人亦提出「特殊需求申請」，根據研究計畫提出擷取條件，目前已獲得允許，之後透過成功大學行政流程進行科研採購，取得資料。

因在有限時間，目前初步完成之研究成果，乃針對腎臟掃描的醫療服務使用情形進行研究；這是因為台灣腎臟疾病盛行率很高，且大多數民眾有潛在腎臟疾病卻不自知，而導致後續病程加重。因此本研究採用國衛院所提供1997-2009年的100 萬人抽樣歸人檔 (LHID2005) 進行研究分析；主要分析內容包括腎臟掃描檢查申報次數、就醫科別、就醫病因、醫院分局別、醫院權屬別、醫院層級別之描述性統計。

III. 結果與討論

腎臟掃描檢查以門診申報次數較住院申報次數為多，且以 19 歲以下人口群最多。依就醫申報科別來看最多為小兒科。門診申報的就醫病因大多為其他類疾病，其中又以腎臟相關疾病為主 (包括原發性高血壓、慢性腎衰竭、急性腎小球腎炎、腎臟感染以及慢性腎小球腎炎等)，次之為腎水腫。住院申報的就醫病因大多為其他疾病 (包括腎臟及其他泌尿器官之惡性腫瘤、其他麻痺性徵候群、泌尿系統先天畸形、敗血症以及腎水腫等)，其次為其他尿道及泌尿道疾患。若以權屬別來看，門診及住院申報皆是以財團法人醫院居冠，次之為榮民醫院；若以全民健保局分局別來看，門診及住院皆是以台北分局申報居多；以醫院層級別來看，門診及住院皆是以醫學中心申報最多。

IV. 結論

至於可提供腎臟掃描醫療服務的醫院，以醫學中心為主，其次為區域醫院。使用腎臟掃描族群以 19 歲以下為主，且絕大多數就診科別為小兒科或泌尿科，可發現核醫腎臟掃描已逐漸普遍用於兒童與青少年泌尿道感染或腎臟相關疾病的診斷與治療。預計將此研究成果投稿於雜誌，以做為未來相關領域研究之參考。

參考文獻

1. Wen CP, Cheng TY, Tsai MK, Chang YC, Chan HT, Tsai SP, Chiang PH, Hsu CC, Sung PK, Hsu YH, Wen SF. All-cause mortality attributable to chronic kidney disease: a prospective cohort study based on 462,293 adults in Taiwan. *Lancet*. 2008;371:2173-2182.
2. Hung MC, Hsieh WA, Chang PW, and Hwang JJ. Utilization of nuclear medicine scintigraphy in Taiwan, 1997-2009. *Ann Nucl Med*. 2011;25:818-24.
3. Chan WP, Liao CH, Hsu CH and Yang CM. Assessing a population's need for scintigraphy: use under universal health insurance in Taiwan. *Nuclear Medicine Communications* 2010, 31:375-379.
4. Hart D and Wall BF. UK nuclear medicine survey 2003-2004. *Nuclear Medicine Communications* 2005; 26:937-946.
5. Kuwabara Y, Koizumi K, Ushijima Y, et al. Nuclear medicine practice in Japan: A report of the sixth nationwide

survey in 2007. *Annals of Nuclear Medicine* 2009;23:209-215.

6. BF Lee, YT Huang, NT Chiu, and TH Lu. Changing in geographic distribution of nuclear medicine specialists and hospitals in Taiwan. *Ann Nucl Med Sci*. 2011;23:181-188.

應用分子影像對比劑資料庫分析全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用

Application of the Molecular Imaging and Contrast Agent Database (MICAD) in Exploration of Potential Radiopharmaceuticals for Clinical Development

計畫編號：NSC 102-2623-E-040 -001 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：高潘福

e-mail：pfkao@yahoo.com.tw

計畫參與人員：高志浩、劉冠妙、趙啟民、廖美秀

執行單位：中山醫學大學

摘要

本計劃擬從 MICAD 資料庫的各項資料中，依照以下原則，進行有系統的整理與比較，包括(1)放射核種的生產(production of radionuclide)與取得難易度(radionuclide availability)，(2)放射核種的化學特性與放射標誌化學製程的合理性(radiolabeling practicality)，(3)藥品製程規範可符合性(compliant feasibility)，(4)放射藥物動力學與模式(pharmacokinetics and modeling)，(5)輻射劑量與防護(radiation dosimetry and protection)等，應用分子影像對比劑資料庫分析全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用。計畫擬透過定期開會，舉辦教育推廣與研討會，以及新藥初步合成，以確認了解放射藥物發展的可行性，並培育國內放射化學人才。

關鍵詞：分子影像對比劑資料庫，藥物開發，正子斷層攝影，單光子電腦斷層攝影。

Abstract

In this project, we will systemically review the information lists on the MICAD including (1) production of radionuclide and its availability, (2) chemical characteristics of radionuclide and radiolabeling practicality, (3) regulatory compliant feasibility, (4) pharmacokinetics and modeling, and (5) radiation dosimetry and protection. The purpose is to identify the potential radiopharmaceuticals for clinical use. Through seminar, education conference, and preliminary work on synthesis, we expect from this project that the selected radiopharmaceuticals will be suitable for future concentric development bringing together relevant radiopharmaceutical professionals and resources in Taiwan. Keywords: The Molecular Imaging and Contrast Agent Database, Drug development, positron emission tomography, single photon emission computed tomography.

I. 前言

本計劃擬應用 MICAD 資料庫，針對 PET、SPECT 與多重影像顯影劑的資料進行有系統的整理與比較，分析全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用，針對國人腫瘤、心臟與腦神經等各臨床領域醫療保健上的需求，選取若干合適國內發展的放射藥物，集中國內相關研究學術機構，共同集中人力物力創造出新的生技醫藥發展方向。本計劃預期能有助於核能研究所擇優創新發展對國家有經濟效益的生技產業，加速並提升國內相關研究與產業的競爭力，再造成功的 [Tc-99m]TRODA-1 經驗。

II. 主要內容

本計劃從兩方面著手整理國際上近二年來的核醫新藥物發展，統計。

(A) 從美國國家衛生院(National Institute of Health, NIH)下屬的分子影像對比劑資料庫(the molecular imaging and contrast agent database, MICAD)，依照臨床應用領域與標定核種分類整理。

(B) 透過查閱國外相關文獻，回顧近一年來的核醫界重要國際期刊，如 Journal of Nuclear Medicine (JNM) 和 European Journal of Nuclear Medicine and Molecular Imaging(EJNMMI)分析腫瘤心臟與腦神經等各臨床應用領域新藥。

(C) 整理資料並在國內相關期刊發表文獻回顧與評論。

III. 結果與討論

分析 PET、SPECT 和 multimodality tracers 核種分類與數目，應對美國 FDA 通過藥物種類，最後再經過 JNM 與 EJNMMI 在 2013 年刊登的文獻中，交叉比對與篩選，選擇國內可以取得的核種，發展合適臨床應用的藥物，尤其是歐盟藥典或美國藥典以及 FDA 通過核准可以臨床應用藥物，優先試行合成並進行品管測試，期望能立即應用造福國人。本計畫主持人與共同主持人歷次討論決定先以 [F-18]FLT 與 [F-18]choline 國內生產與制定品管作為完成的任務，成功各合成 6 次以上放射藥物，並與陽明大學、國家衛生研究院合作進行小鼠腫瘤造影試驗成功。其中與國家衛生研究院合作進行小鼠腦部腫瘤 [F-18]choline 造影，並已將結果投稿至歐洲核醫學 2014 年年會。

此外在推廣放射藥物發展方面，其中辦理兩場研討會，尤其在執行計畫期末聯合國內迴旋加速器學會、分子影像學會與核醫學學會，辦理兩天的繼續教育研討會，會議內容全程錄影，並取得同意後，將放上各學會學習平台，以供社會各界與學界自我學習參考。

IV. 結論

計畫參與之工作人員能從廣泛的 MICAD 資料中，透過討論與試驗合成等工作中，訓練文獻收集與統合資訊能力，了解放射藥物研發流程與相關技術，並獲得實際參與放射藥物合成的機會與能力，達到培育放射化學人才的成效。針對國人各種疾病診斷或治療的研究，提供開發分子影像放射製劑篩選的資訊以擇優發展，集中

有限的人力物力，推估未來五至十年全球核醫新藥物開發與潛在臨床應用的研發趨勢，以作為核能研究所及相關產業未來研發核醫藥物與新技術之參考。

參考文獻

- [1] Arvind Chopra, Liang Shan, W. C. Eckelman, Kam Leung and Martin Lattner, et al. Molecular Imaging and Contrast Agent Database (MICAD): Evolution and Progress. Mol Imaging Biol 2012;14(1): 4-13.
- [2] 高潘福，高志浩：簡介分子影像對比劑資料庫。台灣醫界 2009;52:414-418.

乳房專用正子攝影儀之醫療數位影像傳輸協定(DICOM)建立(II)

Development of Digital Imaging and Communication Medicine (DICOM) Protocol for Breast PET (II)

計畫編號：NSC 102-NU-E-033-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：蘇振隆

e-mail：jlsu@cycu.edu.tw

計畫參與人員：張嘉麟、陳冠文、楊士奇、張惠茹

執行單位：中原大學生物醫學工程學系

摘要

核能研究所已成功新式開發乳房用正子攝影儀，惟造影系統並不支援醫學數位影像及通信(DICOM)標準之影像物件格式輸出。為因應未來病檢影像在院際間及不同醫院進行跨院影像交換及判讀之需求，本計畫主要目的為建立支援乳房專用正子攝影儀用之DICOM標準格式輸出影像物件轉換介面，而讓原始Breast PET儀器輸出影像能透過轉換輸出為DICOM標準化之影像物件。本計畫依據DICOM 3.0要求選取符合Breast PET特性之必要欄位外，也加入用藥狀態、有無懷孕等病患資訊之自訂欄位，並邀集研發團隊等領域專家針對造影儀器之特性進行審查，已完成適於乳房專用攝影儀使用之輸出影像物件檔頭的制訂，並已完成轉換介面開發，以因應造影儀器各階段之開發需求，其功能包含開啟讀入原始影像檔及病患之造影資訊、手動設定影像長寬與張數及輸出影像DICOM檔等功能。本計畫並已導入醫療器材軟體驗證及確效程序及流程，並透過公佈於網路及相關資訊廠商提供試用之測試版軟體進行驗證，已確保封裝完成之DICOM影像物件，其資訊讀取正確率達100%。並針對Breast PET造影儀原始產出影像檔及封裝後之DICOM影像物件進行相減驗證，以確定原始影像物件在封裝及轉換過程中並未造成影像失真發生。

關鍵字：乳房專用正子攝影儀、醫學數位影像及通信、醫療器材軟體驗證及確效、電子病歷系統

Abstract

A new high-caliber breast positron emission tomography (PET) system, dubbed INER Breast PET, has developed by the Institute of Nuclear Energy Research (INER). However, this system does not provide the DICOM tag output which is necessary for picture archiving and communication system (PACS) in e-hospital environment. The purpose of this project is to develop a convert interface which can provide DICOM tag to this non-DICOM format Breast PET system. The works of this project including formulation the header of Breast PET images and development a conversion interface for this system. According to the characteristics of this developed PET system and the latest DICOM 3.0 standard, not only required fields for PET was selected, some information such as the medication and pregnancy status were also imported. After reviewed by expert, the suitable header for Breast PET system images had complete formulated. In the developed

conversion interface, functions include: 1.to open file for read into the original RAW data image and patients information; 2. Manually setting the size of image and the number of images, and 3. to output DICOM formatted image files, were provided. The concept of software verification and validation is implemented in this project. A popular free DICOM viewer obtained from the internet was used to compare DICOM tags information, then verified that the accuracy rate of information reading is 100%.Moreover, the original image is subtracted to the de-packaged image and verified that there is no difference between two images.

Keyword: Breast PET, DICOM, Soft Verification and Validation, Electronic Medical.

I. 前言

根據行政院衛生福利部國民健康署統計顯示 [1]，國內女性乳癌發生率排名為第1位；死亡率則為第6位。目前第1線乳癌篩檢以「乳房X光攝影」為主，但對於為緻密型乳房之東方女性而言，比起西方女性的多脂肪型乳房，更不易偵測到乳癌初期微小鈣化點，因而會延誤發現時機；若使用「乳房磁共振造影」又過於敏感，對於良惡性腫瘤之判斷力較差，而功能性造影於乳癌診斷上則不受上述限制，適於乳癌診斷與療效評估。

核能研究所累積 40 餘年的輻射相關研發能量，成功打造新世代之早期乳癌偵檢利器—乳房專用正子攝影儀(INER Breast PET)，其具備核醫分子影像優點及以下特色：(1)為讓乳房影像有更好呈現，採臥式檢測，亦可檢測受測者腋下淋巴部位。(2)特殊材質設計，解決床板厚度造成的檢測死角。(3)平面造影三維成像之影像重建法，提升乳癌偵測能力。(4)使用成本低之圓型光電倍增管降低造價成本。(5)偵測範圍大，且可以減少乳癌檢測的造影時間。此造影系統已由概念設計、雛型系統整合、安全檢驗通過，並已正式邁入人體試驗之階段，惟造影系統之輸出影像並不支援醫學數位影像及通信(DICOM)之標準化影像物件格式的輸出。

為因應未來病歷影像可在不同醫院進行跨院間之網路影像交換及判讀需求，制訂符合乳房用正子攝影儀之DICOM影像物件標準格式及建立輸出影像物件轉換介面，讓原始Breast PET輸出影像能轉換為符合DICOM標準化影像物件為「乳房專用正子攝影儀」開發過程之重要考量，因此本研究確有其進行之必要性[2]。

II. 主要內容

本計畫主要目的為建立可支援新式乳房專用正子攝

影儀之DICOM標準格式輸出影像物件轉換介面，而讓原始Breast PET輸出影像物件能轉換輸出為符合DICOM標準影像檔，圖1所示即為本計畫主要實施流程步驟，其工作項目：(a) 舉辦專家會議研訂乳房用正子攝影儀之DICOM 影像物件格式；(b) 建立與正子乳房攝影儀之實體系統參數連結的DICOM轉換系統開發及驗證；(c) 乳房攝影診斷操作介面（含基本影像處理輔助工具）之建立。以下就相關工作項目進行說明之：

1. 確認系統及需求架構：

承續上年度成果，進入DICOM影像物件格式制訂及系統程式開發，再次確認現階段開發需求及系統架構；本計畫所取得之測試影像物件為核能研究所開發完成之乳房專用正子攝影儀(INER Breast PET)輸出影像檔，其專為乳癌篩檢所設計且具備核醫分子影像優點。

2. INER Breast PET 輸出影像及系統參數分析：

本計畫使用核能研究所開發完成之乳房專用正子攝影儀產出影像物件，因此需要與核能研究所研發團隊確認由儀器輸出之影像資訊如影像解析度、影像強度等基本影像訊息，以供系統之設計；並需要討論模擬病人資料輸出的儲存傳輸方式，使其更貼近實務之應用。

3. DICOM 影像物件格式制訂：

乳房專用正子攝影儀為利用正子發射原理來作為乳房腫瘤偵測的新式造影設備，目前DICOM 標準尚未針對Breast PET造影儀器訂有相關標準輸出格式。為了完整展現影像物件，達成影像共享及病歷交換之目標，在Breast PET影像封裝為DICOM 影像物件過程中，首要即是制訂符合DICOM標準規範之影像物件輸出格式。

4. 系統設計及程式開發：

本計畫依據乳房專用正子攝影儀之輸出影像資訊（如儀器、影像重建變數、放射藥物及影像資料等），配合自訂檔頭，正確將資料填入DICOM影像物件檔頭，針對乳房用正子攝影儀使用者操作軟體，建立實體連結系統參數並能自動輸出DICOM格式影像檔。為利於臨床乳癌診斷，本計畫也提供簡易影像處理功能（如：假色外形及面積）工具，以提供後續應用。在假色影像處理部分，本計畫透過假色運算對照表(look up table)轉換得到虛擬彩色影像，並透過影像邊緣檢測(Edge Detection)及分割(Segmentation)技術，加總輪廓區域像素的總和，以推算Breast PET 所圈選區域之面積大小。

5. 系統整合：

本計畫為確保新發展的醫療儀器BreastPET 所輸出之影像不只能有效封裝為DICOM影像物件，且能通用於目前各大醫療院所及研究機構之檔案傳輸。

6. 醫療器材軟體驗證：

為考量本計畫所建立之轉換系統於未來乳房專用正子攝影儀之實體整合及其功效與安全性評估，本計畫也參考美國食品藥物管理局所制訂醫療器材軟體開發指引文件及ISO 62304等相關國際標準規範，進一步導入醫療器材軟體驗證及確效程序及步驟，以提供未來相關系統整合備錯及能力評估之報告及文件。

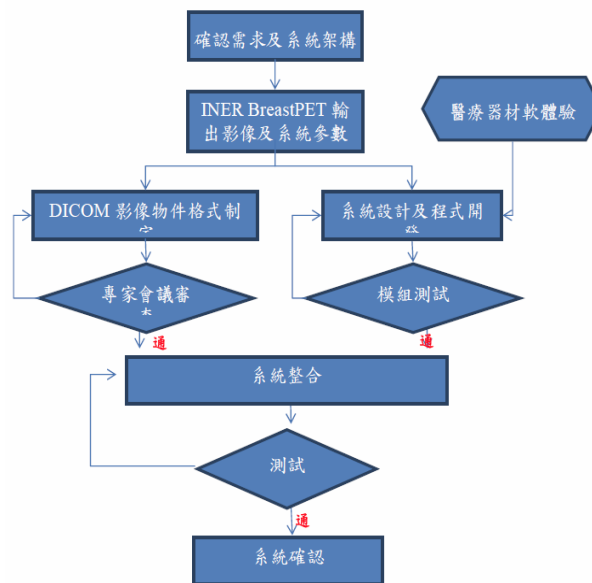


圖1、計畫主要執行流程及步驟

III. 結果與討論

核能研究所開發完成之乳房用正子攝影儀為具有分子診斷功能之新一代乳癌篩檢利器，本計畫承續以往成果，經由邀集專家多次開會討論及審查後，本計畫以同樣為以分子診斷特性之PET的DICOM資訊為基礎，並輔以乳房攝影資訊做為輔助參考。另參考流程建議加入妊娠狀態及上次月經時間等資訊提供醫師診斷。

第二，在程式設計上，本計畫使用Microsoft Excel 做為標準的資訊輸入，容易與各系統做銜接且能輕易的進行資訊確認。本程式更增加了可以修改影像長、寬及張數功能，可即時在程式介面上做調整。在封裝程式的操作上有經過流程的規劃，使得封裝過程中由使用者之操作產生錯誤之風險機率降至最低。而輸出之封裝後DICOM檔，經由相關DICOM Viewer進行測試及驗證，驗證封裝後之DICOM 檔案中之影像與原影像並無產生失真情形；且在DICOM 檔中之病人及儀器資訊經過驗證後也能確認，封裝後之檔案與Excel 中的資訊相同，準確率為100%，因此可證明本封裝轉換介面之有效性，可確保影像在院際傳輸上不會造成影像資訊錯誤。

第三，本程式包含基本影像處理功能，能對封裝後之影像做讀取顯示，並有『圈選面積』、『Window/Level』及『Pseudo-Color』等三個功能，可讓使用者有基本的調整，讓影像更易於觀看，並符合臨床診斷使用。

本計畫已完成「乳房用正子攝影儀之醫學影像數位傳輸協定(DICOM)建立」，其成果包括：適於乳房專用正子攝影儀使用之DICOM影像物件格式制訂、符合DICOM標準化轉換介面程式之開發，並已有初步成果及導入醫療器材軟體驗證及確效流程與經驗。本計畫除了以假體進行模擬測試外，並針對實際臨床試驗取得影像進行測試，現階段主要以單機操作，並以模擬方式建立與乳房專用正子攝影儀之實體連結，並使用核能研究所建立之資料庫，連結系統參數並擷取資訊進行輸入。

IV. 結論

本計畫係以完成「乳房專用正子攝影儀之醫學數位

影像傳輸協定(DICOM)建立」為目標,使原始Breast PET可輸出DICOM標準影像物件,以協助臨床醫師進行診斷或病灶影像判讀。研究已導入醫療器材軟體驗證確效之流程,其為每一項醫療器材軟體在上市前必須要經過的一個檢驗流程,以確保醫療器材的有效性,並能防範其不可預知及可預期之情形發生,做到正確處理及維護。

總括而論,本計畫所開發之系統已符合目前預期之目標,並與乳房專用正子攝影儀實體系統之參數連結,建立符合乳房專用正子攝影儀使用之DICOM檔頭,並能自動輸出符合DICOM 標準影像檔。透過本計畫執行,已成功開啟研究單位及學術機構之合作契機,有效整合雙方研發能量,加速相關醫療器材之開發動力。

參考文獻

[1] 台灣地區死因統計, 行政院衛生署, <http://www.doh.gov.tw>, 2011-08-12.。

[2] 倪子晴：正子乳房造影系統先期之開發研究, 清華大學原子科學系碩士論文, 新竹, 2003。

[3] Yasher Hirshaut, MD, FACP and Peter I. Pressman, MD, FACS, “Breast Cancer –The Complete Guide”, 5th ed. New York, 2008.

[4] Robert Lavayssiere, Anne-Elizabeth Cabee, and Jean-Emmanuel Filmont “Positron Emission Tomography (PET) and breast cancer in clinical practice” European Journal of Radiology, 69, 50-58, 2009.

[5] 蘇振隆：醫療資訊 DICOM 標準推動計畫(92), 行政院衛生署期末成果報告, 2003。

[6] ISO 12052, Health informatics - Digital imaging and communication in medicine (DICOM) including workflow and data management, 2006.

[7] [6] DICOM 3.0, Digital Imaging and Communications in Medicine, ACR-NEMA, 2011.

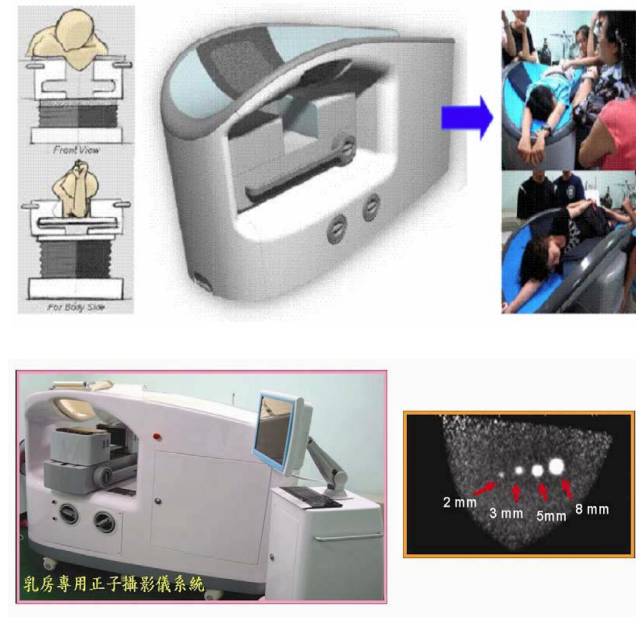


圖 2、INER Breast PET 檢測示意圖

DICOM PEM 檔頭資訊				
Tag	Name	VR	VM	Type
(0008,0005)	Specific Character Set	CS	1-n	1C
(0008,0008)	Image Type	CS	2-n	1
(0008,0016)	SOP Class UID	UI	1	1
(0008,0018)	SOP Instance UID	UI	1	1
(0008,0020)	Study Date	DA	1	2
(0008,0021)	Series Date	DA	1	3, 1
(0008,0022)	Acquisition Date	DA	1	3
(0008,0023)	Content Date	DA	1	2C
(0008,0030)	Study Time	TM	1	2
(0008,0031)	Series Time	TM	1	3, 1
(0008,0032)	Acquisition Time	TM	1	3
(0008,0033)	Content Time	TM	1	2C
(0008,0050)	Accession Number	SH	1	2
(0008,0060)	Modality	CS	1	1
(0008,0070)	Manufacturer	LO	1	1, 2, 3
(0008,0080)	Institution Name	LO	1	3
(0008,0090)	Referring Physician's Name	PN	1	2
(0008,010C)	Coding Scheme UID	UI	1	1C
(0008,0112)	Coding Scheme Registry	LO	1	1C
(0008,0114)	Coding Scheme External ID	ST	1	2C
(0008,1010)	Station Name	SH	1	3
(0008,1030)	Study Description	LO	1	3
(0008,1032)	Procedure Code Sequence	SQ	1	3
(0008,103E)	Series Description	LO	1	3
(0008,1040)	Institutional Department Name	LO	1	3
(0008,1048)	Physician(s) of Record	PN	1-n	3
(0008,1070)	Operators' Name	PN	1-n	3
(0008,1090)	Manufacturer's Model Name	LO	1	3
(0008,1110)	Referenced Study Sequence	SQ	1	3
(0008,1115)	Referenced Series Sequence	SQ	1	3
(0008,1120)	Referenced Patient Sequence	SQ	1	3

- Standard -

圖 3、乳房專用正子攝影儀之影像物件檔頭資訊

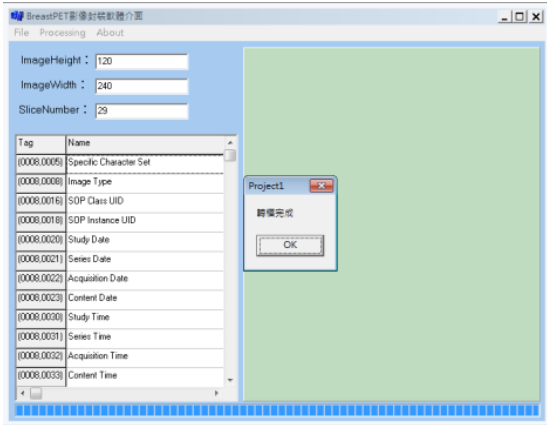


圖 4、轉換系統介面示意圖

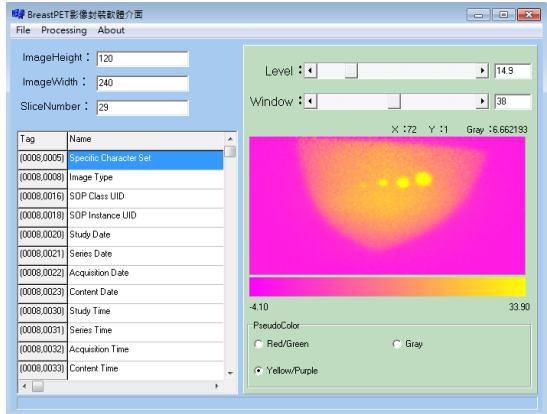


圖 5、轉換介面示意圖(含影像處理功能等)

給核醫成像應用之讀出晶片電路設計

Readout ASIC Design for Nuclear Medicine Imaging

計畫編號：NSC 102-NU-E-007-008-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：盧志文

e-mail：cwlu@mx.nthu.edu.tw

計畫參與人員：尹炳業、莊博智、郭亘倫、賴李沛毅、潘彥全

執行單位：國立清華大學工程與系統科學系

摘要

吾人在本計劃中提出了一個給正子斷層掃描(PET)應用之 256 通道前端讀出電路。此一讀出電路包含了四顆 8x8 電流偵測／分流陣列 IC，以及接在之後的兩顆具有 16 輸入與 2 輸出的權重加法器 IC。其中 8x8 電流偵測／分流陣列 IC 內有 64 個完全相同的電流分流電路，用以偵測來自每一個外部 SiPM 單元所產生的電流訊號。而具有 16 輸入與 2 輸出之權重加法器的功用，在於可以給予輸入電流有不同的權重放大，並將其相加後輸出，然後可被後端電路來偵測，並判讀其感測電流是從 SiPM 陣列的哪一個位置而來。除此之外，吾人還實現了一個 10 位元連續漸進式類比數位轉換器，其取樣速率為 5 MS/s，可完成 PET 前端讀取電路之後的資料轉換功能。關鍵詞：正子斷層掃描 (PET)、PET 前端電路、讀出電路、類比數位轉換器 (ADC)。

Abstract

In this project, we presented a 256-channel front-end readout circuit for positron emission tomography (PET) applications. This readout circuit includes four 8x8 current sensing/splitting array ICs which followed by two 16-input 2-output weighted summer ICs. The 8x8 current sensing/splitting array IC is with 64 identical current splitting circuits for sensing the input current signals from each outside SiPM (Silicon Photomultiplier) cell. The function of the 16-input 2-output weighted summer IC is to amplify the input current signals with different weighting and sums them together as the output signal, which can be detected by the following circuits to determine the position of the sensed current from the SiPM array. Besides, we also implemented a 10-bit successive approximation analog-to-digital converter (SAR ADC) IC with sampling rate of 5 MS/s, which can be used for the data conversion after the PET front-end readout circuit.

Keywords: Positron Emission Tomography (PET) system, PET front-end circuit, readout circuit, and analog-to-digital converter (ADC).

I. 前言

由於現代醫學的和儀器發展的進步，傳統以功能為主的核子影像醫學，已發展至與以解剖為主的放射診斷影像結合成一體。而正子電腦斷層掃描儀 PET (Positron emission tomography) 正是此一發展的結果，其臨床之應用作為疾病的診斷、監測、療效評估及預後等。根據世界衛生組織報告指出，近年來每年全球有超過八百萬人口因罹患癌症而死亡。在美國，每三個人中就有一個人

在有生之年會被診斷出癌症，而臺灣地區每 10 分鐘就有一人被診斷為癌症患者，新增的癌症病人數高達 51000 人，每年更有將近 40000 人死於癌症，國人每四人中，就有一人死於癌症。

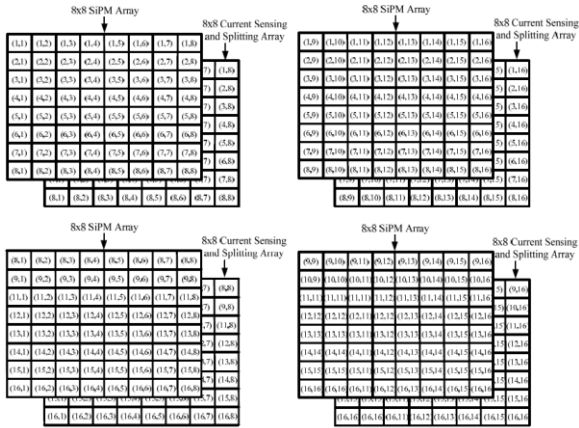
正子發射斷層掃描是具有高靈敏度與準確性的影像診斷高科技設備，是核子醫學領域最先進的臨床檢查影像技術。根據分子細胞學的原理，由於癌細胞增生迅速，需不斷吸收體內營養，新陳代謝較旺盛，攝取葡萄糖速率為正常細胞二至十倍，若將帶有正電子的特殊葡萄糖合成藥劑注入於受檢者的體內，這時可利用 PET 掃描儀作全身性的掃描，掃描的圖像上在癌症初期的部位則會出現可辨別的光點。這使得不必等到癌細胞附近的組織改變，即能於腫瘤發生的早期準確地判定出來，提供給醫師作為癌症診斷及治療的最佳依據，其診斷正確率約達 87-91%。所以綜觀來說，PET 技術具有無創傷性的優點，用解剖形態之方式進行功能、代謝和受體的顯像，是目前臨床上針對腫瘤之診斷和治療的最佳選擇。

臺灣的電機領域人員較少接觸核醫成像領域的研發，但是核醫成像在醫療方面是非常重要的，不僅 X 光的成像需數位化，癌症的早期偵測也需要精密的電子設備。本計畫所提出的核醫成像讀出電路是應用在正子斷層造影 PET (Positron emission tomography) 系統，而 PET 是非常昂貴的設備，目前我國沒有公司生產製造 PET，皆須付出龐大經費向外商購買。目前一般醫院所使用的 PET 系統其造價非常的高，若是能在 detector 的讀取設備部分以積體電路來整合，達到其電子系統微型化的目的，則可節省生產的成本，以降低市場價格和病患的檢查費用支出。

PET 系統需 Scintillator Elements 偵測光子，偵測光子後可由 multi-channel photomultiplier tubes (PMTs) 獲得所需要的空間解析度，或是由 SiPM (Silicon Photomultiplier) 來將光轉換成電流。本計畫的核醫成像讀出電路是要應用在 SiPM-based PET 系統中。目前在全世界學術研究單位中，法國的 Institute Pluridisciplinaire Hurbert Curien (IPHC) 及中國大陸華中科技大學有不錯的研究成果[1-4]。法國的 IPHC 有晶片設計能力，不過他們只設計讀出電路系統的前端電路而已。而中國大陸華中科技大學已完成完整的 animal PET 系統，也有執行過老鼠的成像測試，不過他們沒有晶片設計能力，需要買一些 IC 做系統組裝測試。本計畫的執行目的即是將

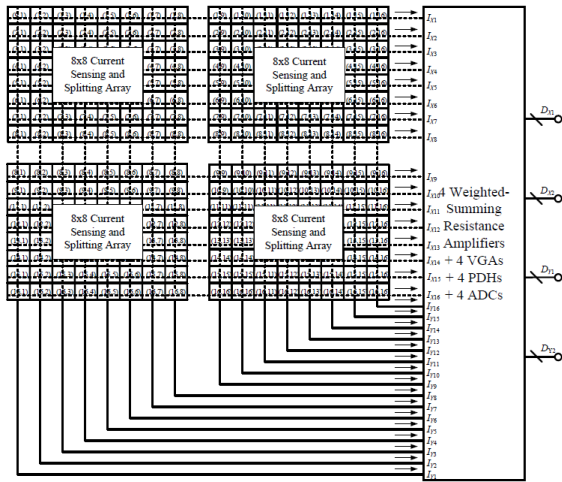
這些文獻所未完成的積體化 PET 讀出電路，以嶄新的電路架構，來設計 readout circuit 和 ADC 的晶片並實測。

II. 主要內容



圖(一)設計之 SiPM array 及對應的 current sensing array 切割成四個 8 x 8 array 區塊

本計畫設計出的核醫成像讀出晶片電路架構是符合核研所的系统需求，此架構是應用在 16x16 之 SiPM 陣列電流的讀出，每一個 SiPM cell 需要一個相對應的 current sensing cell 來感測出此 SiPM cell 的感應電流，16x16 SiPM array 就需要 256 個 current sensing cells，如果一顆讀出晶片包含 256 個 current sensing cells，此晶片就需要 256 個輸入接腳，也需要 256 個 pad 供打線至晶片包裝之接腳，如此晶片面積將會相當的大。為降低晶片成本，吾人擬將 SiPM array 及對應的 current sensing and splitting array 切割成如圖(一)所示之四個 8 x 8 array 區塊，每一個 current sensing and splitting array 晶片有 8 x 8 = 64 個輸入，如此可大幅降低晶片面積。



圖(二)、所提出之核醫成像讀出晶片電路系統架構圖

圖(二)為核醫成像讀出晶片電路系統架構圖，此系統需 4 個 8 x 8 current sensing and splitting array 晶片去感測一個 16x16 SiPM array 電流。Current sensing and splitting array 將感測到的電流平均分成 x 及 y 方向的電

流，x 方向的 16 個電流相加，產生 $I_{X1}, I_{X2}, I_{X3}, \dots, I_{X16}$ ，y 方向的 16 個電流相加， $I_{Y1}, I_{Y2}, I_{Y3}, \dots, I_{Y16}$ ，如圖(三)所示，此 32 個電流送到 Weighted-Summer Resistance amplifiers 以下列 4 個方程式做適當的權重相加產生 4 個電壓：

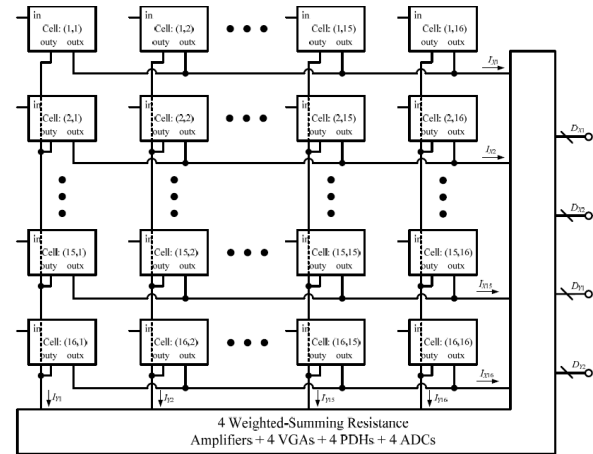
$$V_{X1} = R \cdot (I_{X1} + 2I_{X2} + 3I_{X3} + \dots + 15I_{X15} + 16I_{X16}) \quad (1)$$

$$V_{X2} = R \cdot (16I_{X1} + 15I_{X2} + 14I_{X3} + \dots + 2I_{X15} + I_{X16}) \quad (2)$$

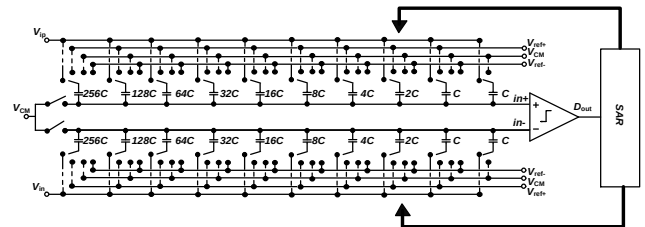
$$V_{Y1} = R \cdot (I_{Y1} + 2I_{Y2} + 3I_{Y3} + \dots + 15I_{Y15} + 16I_{Y16}) \quad (3)$$

$$V_{Y2} = R \cdot (16I_{Y1} + 15I_{Y2} + 14I_{Y3} + \dots + 2I_{Y15} + I_{Y16}) \quad (4)$$

為了能調整動態範圍，此 4 個電壓由 Variable Gain Amplifiers 做電壓調整。吾人所用的成象方法乃是感測此 4 個電壓的峰值就可確定 SiPM array 是那幾個 SiPM cells 有感應到電流，所以此 4 個電壓再送至 Peak Detect and Hold (PDH) 電路取出峰值電壓，之後由類比/數位轉換器(ADC)轉換成數位資料送到數位資料處理器或是電腦做影像處理。



圖(三)、current sensing and splitting array 將感測到的電流平均分成 x 及 y 方向的電流，送到 Weighted-Summer Resistance Amplifiers + 4 PDHs + 4 ADCs

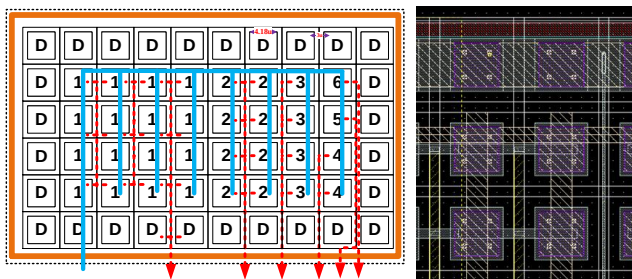


圖(四)、A 10-bit 10M S/s asynchronous SAR ADC 架構

本計畫同時也為此 PET 讀出系統設計了一個中解析度、中速的非同步連續漸進式類比數位轉換器(A 10-bit 10M S/s asynchronous SAR ADC)[5-8]。使用全合併電容開關式架構(Merged capacitor switching based SAR ADC)如圖(四)，達到低功耗且較高速的比較過程。在較複雜的數位控制設計中使用低轉態頻率的數位邏

輯架構，並提出一種適用於中速 SAR ADC 的低功耗 D 型動態暫存器(Modified Dynamic D Flip-Flop)，在數位邏輯方面的功耗降低有明顯的改善。以 TSMC018um 製程實現，為達中速使用 1.8 伏特的設計。此外，在奈奎氏取樣速度(Nyquist-rate)下模擬可達有效位元(ENOB)9.9 bit。

電容陣列的佈局考量上採取陣列式的畫法，並在 DAC 外圍加上假電容減少的削邊效應。以 16x32 個單位電容完成，雙端 DAC 排列完成後整體佈局可接近正方形。在以寄生電容為主要考量時，雖然走線電阻較大，但增加充放電開關驅動力即可克服；然而，以寄生電阻為考量時，雖然開關驅動力不受影響，但過多的寄生電容已經使 DAC 二進制的電容分壓失去線性度，因而惡化了其整體轉換效果。其排列方式如圖（五），可以減少許多因繞線而產生的寄生電容電阻效應，進而增快 DAC 的轉換速度。



圖（五）、以寄生電容減少為優先的 DAC 佈局

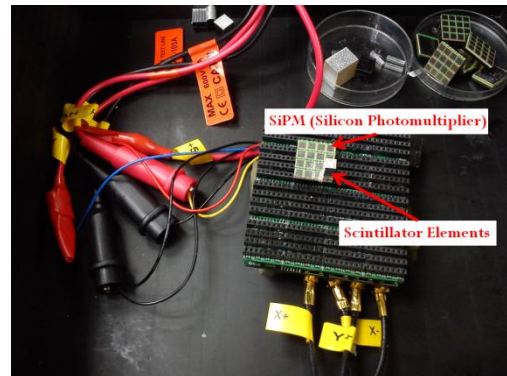
III. 結果與討論

PET 前端讀取電路含有 4 顆 8x8 的 sensor array 和 2 顆 weighted summer 電路。每顆 sensor array 內含 64 個 sensing cell (current splitting 電路)，每個 cell 有一顆電流偵測的輸入端，並把所注入的電流等分為二，透過兩個電晶體輸出。8 個在同一 x 軸或 8 個同一 y 軸的 cell，其輸出是結合在一起，所以整顆 sensor array IC 有 64 個輸入和 8 個 x 方向輸出和 8 個 y 方向輸出。至於 weighted summer 為 16 輸入和 2 輸出的電流權重比例分配電路。

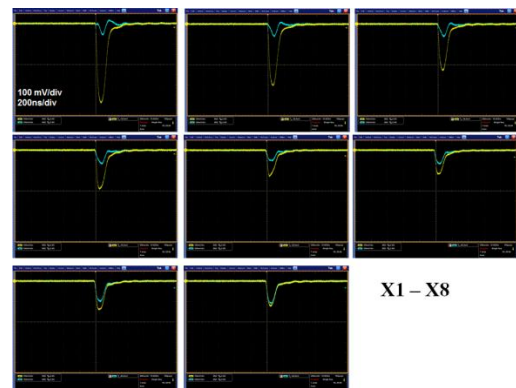
吾人設計了一個電路板來完成整個 PET 讀取電路系統的量測。整個系統包含了 4 顆 8x8 的 sensor array IC 和 2 顆 weighted summer IC。4 顆 sensor array IC 的 256 個 input 端由板子的另一面以 SMD 母座接出，可以和另一塊 SiPM 的板子做相連接，以提供 sensing 電流的輸入。每兩顆橫向 sensor array IC 的 8 個 x 方向輸出是接在一起，每兩顆縱向 sensor array IC 的 8 個 y 方向輸出是接在一起，所以 4 顆 sensor array IC 共有 16 個 x 方向輸出和 16 個 y 方向輸出。其中 16 個 x 方向輸出和 16 個 y 方向輸出分別接到兩顆有 16 輸入 2 輸出的 weighted summer IC，透過負載電阻轉電壓輸出，最後再經偏壓電阻和訊號耦合電容至一個 4 輸入 4 輸出的 output buffer 輸出至 50 的儀器作量測。

圖（六）是量測的架設圖，乃是將一塊可裝置 16x16

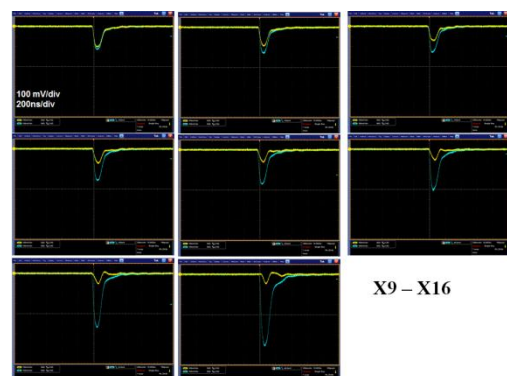
SiPM array 的板子接在具有 sensor array IC 的板子上，並放置在遮光箱中量測，以避免 SiPM 感測到室內光線產生過大電流而燒壞。量測時選取一個 SiPM cell 作為輸入，裝上閃爍晶體提供觸發訊號，另外給予 +5V, -5V, 70V 的電壓作為系統的 power supply，最後再由四條具有 90 度 SMB 接頭的訊號線連接到示波器作觀測。



圖（六）、PET 前端電路系統量測架設



圖（七）、選擇一縱列，逐一變換 SiPM 的輸入位置，觀測其兩個屬於 x 方向的輸出（X1~X8）

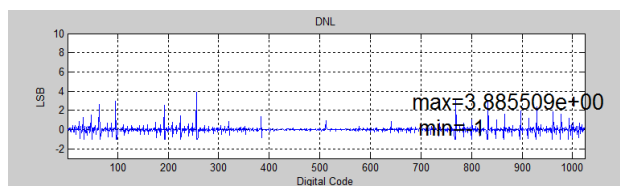


圖（八）、選擇一縱列，逐一變換 SiPM 的輸入位置，觀測其兩個屬於 x 方向的輸出（X9~X16）

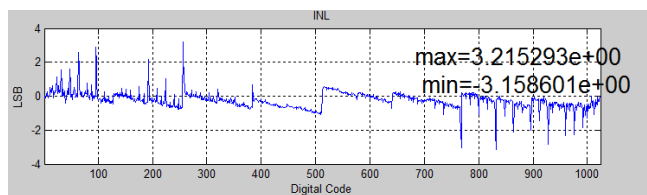
接下來的量測則是要判斷隨著輸入位置的改變，輸出的電壓波形是否能根據 weighted summer 所設計的權重比例。圖（七）~圖（八）是選擇同一縱列，逐一變換 SiPM 的輸入位置，觀測其兩個屬於 x 方向的輸出，可得到有 16 種的比例情形，從 16:1、15:2、14:3 逐漸變

化到 2:15、1:16。所以當此電壓波形經過數位類比轉換器轉成數位資料，再經過訊號處理之後，則可以正確的判斷 PET 系統所感測的訊號來源的位置，而達到醫學成像的功能，可應用在正子造影設備讀出電路之系統中。

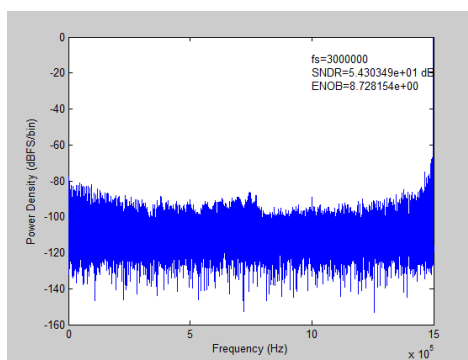
另外，所設計十位元中速之非同步時脈 SAR ADC，為達較高之有效位元數，其取樣率就設定在 5 MS/s。在靜態參數量測的方面，輸入工作週期(Duty Cycle)為 10% 的取樣訊號，輸入斜坡(RAMP)，並取 131072 個數位輸出進行靜態參數分析，可得微分非線性誤差(DNL)最大為 3.88 LSB，最低則為-1 LSB，如圖(九)，由此可知此 10 bit SAR ADC 晶片可能由於比較器非線性輸入電壓偏移，而在量測時發生了輸出碼遺失(missing code)的現象。積分非線性誤差(INL)的量測結果如圖(十)，其最大為 3.21 LSB，最低則為-3.15 LSB。



圖(九)、10bit SAR 微分非線性誤差 DNL 量測結果



圖(十)、10bit SAR 積分非線性誤差 INL 量測結果



圖(十一)、10 bit SAR Nyquist-rate 1.5MHz 輸入正弦波下之有效位元數

在動態參數量測方面，輸入工作週期為 10% 的取樣訊號，在 1.8V 的供應電壓下，輸入 $V_{pp}=3.4V$ 差動訊號正弦波(sinusoidal wave)，並取 131072 個數位輸出進行動態參數分析。在奈奎氏取樣率(Nyquist-rate)1.5MHz 輸入正弦波下，可量測其有效位元數(ENOB)達 8.73 bit，如圖(十一)。在功耗方面，在奈奎氏取樣率(Nyquist-rate)1.5MHz 輸入正弦波下，其類比功耗為 $16 \mu W$ ；數位為 $77.8 \mu W$ ；DAC 功耗則為 $18.9 \mu W$ ，總功耗為 $112.7 \mu W$ 。在製程影響的晶片可靠度方面，此次總計量測四

顆已封裝晶片，以奈奎氏取樣率(Nyquist-rate)1.5MHz 輸入正弦波，在同樣的量測環境下分別皆有 8.66 bit 以上的 ENOB，可知製程偏移對於晶片的影響並不大。

IV. 結論

本計畫執行的成果為設計並製作出一顆給正子電腦斷層掃描儀使用之前端 16x16 讀出電路晶片，而此讀出晶片之後的類比置數位轉換器，吾人亦以 IC 設計與製作之技術，實現出一顆十位元連續漸進式類比數位轉換器，可以將讀出電路所偵測到的類比訊號轉換成數位訊號，提供給後級的數位處理電路作分析，即可將掃描的圖像呈現出來。癌症的早期偵測是一項相當重要的醫療技術，然而往往需要使用精密且昂貴的電子設備，目前本計畫所設計之正子斷層造影讀出電路已成功地有初步的成果，相信對臺灣的學術研究、國家發展及醫療技術會有很大的貢獻。

參考文獻

- [1] W. Gao, D. Gao, C. Hu-Guo, and Y. Hu, "Design of a 12-Bit 2.5 MS/s Integrated Multi-Channel Single-Ramp Analog-to-Digital Converter for Imaging Detector Systems," IEEE Transactions On Instrumentation and Measurement. Vol. 60, NO. 6 pp.1942-1951, Apr. 2011.
- [2] N. Ollivier-Henry, W. Gao, N. A. Mbow, D. Brasse, B. Humbert, C. HuGuo, C. Colledani and Y. Hu, "Design and Characteristics of a Full-Custom Multichannel Front-End Readout ASIC Using Current-Mode CSA for Small Animal PET Imaging," IEEE Transactions On Biomedical Circuits and Systems. Vo1.5, No.1, pp.90-99, Feb. 2011.
- [3] C.-M. Kao and Q. Xie and Y. Dong and L. Wan and C.-T. Chen, "A High-Sensitivity Small-Animal PET Scanner: Development and Initial Performance Measurements," IEEE Transactions on Nuclear Science. Vol. 56, No. 5, pp. 2678-2688, Oct. 2009.
- [4] R. F. Muzic and J. A. Kolthammer, "Pet performance of the Gemini TF: A time-of-flight PET/CT scanner," in Proc. IEEE Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec. , Oct. 2006, vol. 3, pp. 1940 - 1944.
- [5] A. Agnes, E. Bonizzoni, P. Malcovati, and F. Maloberti, "A 9.4-ENOB 1V 3.8uW 100kS/s SAR ADC with Time-Domain Comparator," in Solid-State Circuits Conference, 2008. ISSCC 2008. Digest of Technical Papers. IEEE International, 2008, pp. 246-610.
- [6] H. Hao-Chiao and L. Guo-Ming, "A 65-fJ/Conversion-Step 0.9-V 200-kS/s Rail-to-Rail 8-bit Successive Approximation ADC," Solid-State Circuits, IEEE Journal of, vol. 42, pp. 2161-2168, 2007.
- [7] L. Seon-Kyoo, S.-J. Park, P. Hong-June, and S. Jae-Yoon, "A 21 fJ/Conversion-Step 100 kS/s 10-bit ADC With a Low-Noise Time-Domain Comparator for Low-Power Sensor Interface," Solid-State Circuits, IEEE Journal of, vol. 46, pp. 651-659, 2011.
- [8] V. Giannini, P. Nuzzo, V. Chironi, A. Baschiroto, G. Van der Plas, and J. Craninckx, "An 9b 40MS/s Noise-Tolerant Dynamic-SAR ADC in 90nm Digital CMOS," in Solid-State Circuits Conference, 2008. ISSCC 2008. Digest of Technical Papers. IEEE International, 2008, pp. 238-610.

以高速 ADC 與 FPGA 設計並實現應用於 PET 之高解析數位時間鑑別技術(II)

計畫編號：NSC 102-NU-E-019-001-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：吳宗達

e-mail: tdwu@mail.ntou.edu.tw

計畫參與人員：張愷哲、盧俊安、賴寶仁

執行單位：國立台灣海洋大學電機工程系

摘要

時間準確性是影響正子斷層造影儀的效能之關鍵因素。本計畫使用美商國家儀器公司(NI)的高速取樣 ADC 模組與 FPGA 晶片設計應用於正子斷層造影儀(Positron Emission Tomography, PET)的數位時間訊號處理電路,並且提出了兩種決定數位時間的演算法,數位定比時間鑑別法(Constant Fraction Discriminator, CFD)與數位匹配濾波器法(Matched Filter, MF),搭配二分法的內插技術,成功實現 1 對 1 的 PET 數位電路模組,兩種個別的演算法時間解析度可達到 89.4 ps 及 22.82 ps。

關鍵詞：正子斷層造影儀、現場可程式化邏輯閘陣列、定比鑑別技術、匹配濾波器技術。

Abstract

Timing accuracy is a key factor affecting the performance of the positron emission tomography (PET). The program uses National Instruments' high speed ADC module and FPGA chip to build digital timing processing circuit, and propose two methods—CFD and Matched Filter to point digital time. With the bisection interpolation method, we succeed to implement 1-to-1 PET digital circuit, and the time resolution is 89.4 ps and 22.82 ps, respectively.

Keywords: Positron Emission Tomography、FPGA、Constant Fraction Discriminator、Matched Filter.

I. 前言

PET, 是近年來高科技對於醫療上的新貢獻。相對於 X 光、電腦斷層掃描(Computed Tomography, CT)、磁共振造影(Magnetic Resonance Imaging, MRI)等掃描技術,正子斷層造影儀更利於偵測人體中病變細胞位置,使得癌症能夠提早被篩檢出,做到早期發現早期治療,提高病患的生存率。所以,倘若能提高 PET 的判斷準確率,無疑是對人類的一大福音。

影響 PET 準確率的系統因素,包括前端感測伽瑪射線(γ -ray)的感測晶體以及後端訊號處理的電子系統,在電子或電機的領域,我們所關心的是電子訊號的品質。如果能利用電路開發的技術或演算法的技巧,有效增加系統的訊號解析度,對於 PET 的影像重建,不止提高成像的品質,更能提供判斷細胞病變的準確率。

目前,國內外的 PET 研究團隊都朝向實現全數位化的 PET 系統發展。較小型的數位式 LabPET[1][2][3][4]首

先被提出,在他們的設計中使用的是管線式架構(Pipeline),偵檢器實時(Real Time)讀出訊號,並以自由運行(Free running)模式由 ADC 進行取樣,取樣率為 45MHz,可處理事件率(Count rate)10 萬筆/每秒(events/s),除了沒有 Dead time 外,時間解析度可達 5.6 奈秒(ns)。相較於類比式 PET 系統,數位式 PET 具備諸多優勢。譬如說:數位式電路具有快速驗證的優點,可避開基於特殊應用積體電路(Application-Specific Integrated Circuit, ASIC)必須下縣製程的開發時間,同時也可節省大量的驗證成本。

然而,數位式電路面臨了如何在數位電路上處理能量、位置和時間三項直接影響系統效能之關鍵資訊的問題。前兩者能量與位置資訊在數位處理系統上獲得相對容易,但如何獲得準確的時間資訊則是一項挑戰。

在數位時間資訊的處理方面,一般是利用時間標記(Time Stamp or Time Mark)的方式,來定義脈衝的時間,而取得時間標記的方式各有不同的方法,最常被提到的為數位定比鑑別技術(Digital Constant Fraction Discriminator, dCFD)搭配零交越點搜尋(Zero-crossing Detection)的方式得到時間標記[5][6],其他文獻也有提到以有限脈衝響應(Finite Impulse Response, FIR)濾波器的概念,搭配零交越點搜尋,如數位定時濾波器(Digital Timing Filter)方法[7][8];或是利用比較實際脈衝與參考脈衝的相關性方式得到時間標記,如匹配濾波器(Matched Filter, MF)技術[9],或是利用歸一化的脈衝時間來重建實際脈衝時間標記的方法[10],也有利用取樣事件脈衝資料點,取得斜率最大區間以線性擬合得到時間標記[11],或是利用非負矩陣分解法(Nonnegative Matrix Factorization, NMF)估計脈衝時間[12]。無論使用哪種方式取得脈衝時間後,有人提出可利用一些數位訊號演算法來增加時間標記的解析度,常見到有線性擬合(Linear Fitting)方法、線性內插(Linear interpolation),樣條插值法(Spline Interpolation)等技術[13][14][15][16],也有文獻提出使用類神經網路架構提升時間鑑別解析度[17]。

在本計畫裡,選擇適合在數位電路上實現的方法,數位定比鑑別技術(dCFD)[18]與匹配濾波器技術(MF)兩種時間萃取的演算法。dCFD 技術是擷取脈衝前沿固定比例位置的時間做為粗略的時間判定,再藉由線性擬合、線性內插演算法技術得到更精確的時間標記。而基本匹配濾波器(MF)技術則是將實時取樣脈衝與參考脈衝做相關性比對,取得兩者相關性最大位置的時間點當成粗略的時間判定,再藉由線性內插得到更精確的時間標記。本計畫即是以此兩種基本演算方式做改良,並在硬體平台上實現。

II. 主要內容

本研究中，為了使用高速 ADC 與 FPGA 實現數位 PET 系統，將整個正子訊號處理系統整合架構在 National Instrument Corporation 的高性能系統平台 PXI 上，透過此平台可以在實驗室研究初期，完整的呈現一對一數位 PET 時間鑑別系統。在系統架構上前端的偵檢器部分我們使用了任意波形產生器(Tektronix, Inc. AFG-3103)模擬互毀作用造成的事件脈衝訊號，然後透過 SMA 傳輸線與 PXI 平台聯結，平台架構如圖 1。

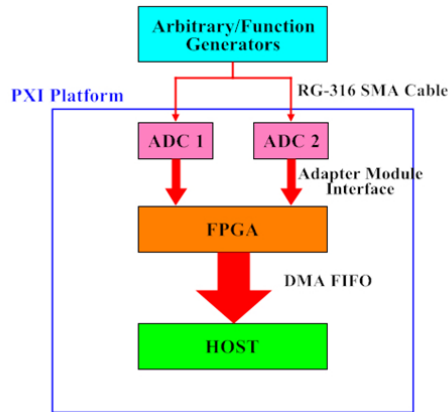


圖 1. 一對一 PET 硬體平台架構

在設計 PET 事件脈衝的時間萃取訊號處理技術上，必須根據事件脈衝的幾個特性來模擬事件脈衝。以本研究的負向脈衝波形來說，假設偵檢器偵測到能量大小不同的 γ -ray，轉換而來的脈衝振幅大小會有明顯不同，脈衝上升及下降時間相近，脈衝的前沿近似於線性，下降時間(Fall time)約 30~40ns，上升沿近似於自然指數(Natural Exponential, exp)函數，上升時間約 200~240ns。任意波形產生器即是根據實際脈衝資料來做波形調整模擬脈衝事件。

類比數位轉換器模組(PXIe-5761)，提供了 4 通道，交流/直流耦合，垂直解析度 14 位元，取樣速率達 250MHz，動態範圍 2Vpp 的類比數位轉換。FPGA(PXIe-7961R)模組，搭載 Xilinx Vertex-5 SX50T FPGA，具有 8160 個分割區(Slice)，以及 288 個 DSP 分割區，並提供了 594KB 的嵌入式 RAM，此模組還具有 16 個 DMA(Direct memory Access)通道，可進行速率超過 800MB/s 的高速數據讀寫。嵌入式控制器(PXI-8130)做為整個 PXI 系統平台的核心整合控制單元，主要功能為整合各模組為一系統，他提供了系統所需硬體，如 CPU、顯示晶片、硬碟、RAM 以及各類 IO，並搭載作業系統，使得整個 PXI 系統平台能夠獨自運行，而不需外接其他 PC 端控制介面。以上為硬體平台的各個部份介紹。接下來對系統設計作一概述。

本研究的一對一 PET 數位時間鑑別系統由各模組化單元組合而成：系統時脈單元(System CLK)、同步時間單元(Global Timer)、事件擷取單元(Pulse Acq)、(CFD/MF)時間標記產生單元(Time Stamp Gen)、資料組合單元(Data Formatter)、DMA 傳輸單元(DMA Transport)。系統架構圖如圖 2

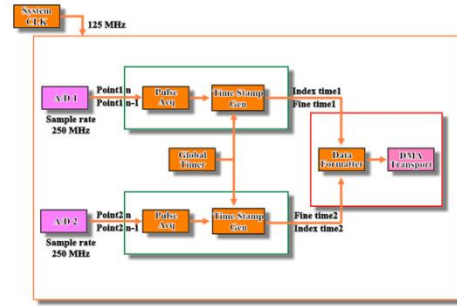


圖 2. 一對一 PET 系統架構設計圖

FPGA 時脈為 125MHz，而 ADC 的取樣率為 250MHz，ADC 取樣速度為 FPGA 工作時脈的兩倍，因此以 FPGA 工作時脈為基準，每個 FPGA 工作時脈週期可得到 ADC 的兩筆取樣資料，Point n-1 及 Point n。儘管 ADC 取樣速度大於 FPGA 工作速度，但是 FPGA 每個工作週期都固定能得到兩筆連續取樣的取樣值，因此整個訊號處理資料流程仍以管線式(Pipeline)方式運作。ADC 以自由運行模式(Free-running)取樣垂直解析度 14 位元資料進入事件擷取單元，由事件擷取單元即時偵測資料能量總和是否高於事件能量門檻值(Threshold)，做為判斷正子事件之依據，同時計算由環境因素造成的背景能量偏移量，若判斷正子事件發生則連續擷取完整的一段事件脈衝並且校正其背景雜訊，得到校正後的資料通知後級時間標記產生模組開始工作同時將資料往後送。

在本計畫中以兩種演算法為基礎，自定義及改良後完成時間標記產生模組，分別為 CFD 定比鑑別模組與 MF 匹配濾波器模組。若為定比鑑別法，架構如圖 3，在時間標記產生模組內得到前級的事件資料先進行尺度垂直放大，經過兩條不同的計算路徑後會產生一過零點波形資料，我們即可透過此過零點波形與系統同步時間(Global Time)得到時間標記，在此論文中稱為粗略時間(Index-Time)，接著透過線性內插法得到精確的時間標記，稱為精細時間(Fine-Time)。

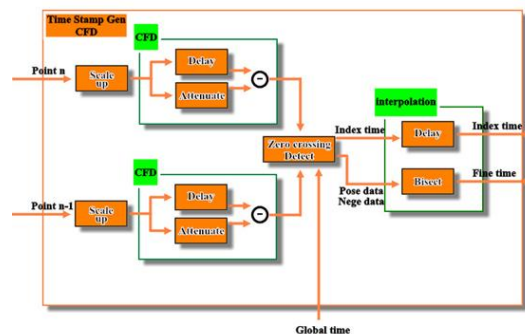


圖 3. Time Stamp Gen - CFD 設計架構

若為匹配濾波器法，架構如圖 4，則前級送來的事件資料會先與事先設定的參考脈衝資料(Reference Data)進行一連串的摺積(Convolution)運算，同樣的會獲得一過零點波形，藉由零點交越點搜尋(Zero-crossing detect)及系統同步時間(Global Time)得到粗略時間標記(Index-Time)，並透過線性內插法得到精細時間標記

(Fine-Time)，獲得此二時間標記後即通知後級資料組合單元。當一對一模組兩側時間標記產生後，即將此兩組時間資料組合，再透過 DMA 傳輸單元將資料送至 Host 端等待後續資料處理。

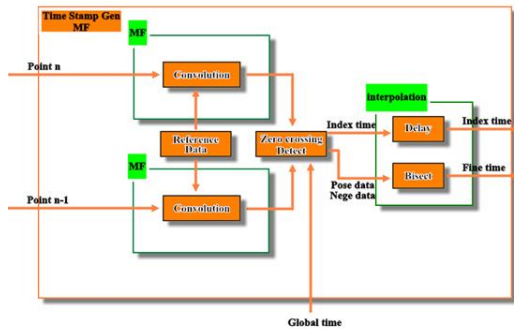


圖 4. Time Stamp Gen – MF 設計架構

本計畫將 PET 數位時間鑑別系統架構在 PXI 平台上，FPGA 數位電路以及 Host 資料擷取與後處理端部分皆使用 LabVIEW(Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench)圖控程式應用軟體設計。在 FPGA 端程式方塊圖設計完成後 LabVIEW 自動使用內建之 Xilinx XST 編譯器完成編譯並形成 Bitfile 對 FPGA 燒錄。

在演算法上，過去在數位電路中使用浮點數運算來減少除法計算上的誤差，由於使用浮點數是將數值轉為 32 位元單精度格式，我們的 ADC 取樣垂直解析度僅 14 位元，將數值轉換增加成 32 位元在數位電路中太占資源，因此本研究中，嘗試在 CFD 運算過程中使用簡單的尺度變換方法取代浮點數運算。在數位電路計算上，除法演算的部分都盡量設計成除以 2 或 2 的整數倍，因為可使用位元右移的方式取代，計算快速又不佔資源及電路空間。在本研究的數位 PET 時間鑑別系統中，CFD 部分的脈衝定比衰減及二分法內插取中間值兩演算過程皆會接觸到除法，因此在做此兩演算法前，先做尺度放大來避免計算上的誤差。

在匹配濾波器技術方面，觀察實時取樣到的脈衝與已知的參考脈衝(Reference Pulse)之間的相關性，取得兩訊號相關性最大的位置的時間當作粗略時間標記(Index_time)，但是，相關性曲線若要使用線性擬合內插得到更精細的時間標記，必須在先每一個相關性曲線的資料點間區間內做內插，再去尋找最大值的位置，在數位電路上並不適合這麼大量的計算，因此若能比照 CFD 法得到過零點波形，只要做零點搜尋找出零點區間，那麼僅需要對此區間內使用內插法即可，較適合在數位電路上完成。解決方法是將參考脈衝函數做一次導數，與實時取樣脈衝做摺積後即會得到一過零點波形，我們就可以尋找其零點位置當作時間標記。若使用真實取樣的數據當作參考脈衝可得到較佳的相關性，但是並沒有辦法描述成一個公式並計算出其一次導數函數，所以本研究使用截斷誤差(truncation errors)為 $O(h^4)$ 的中心有限差分法(Central Finite Difference Methods)來對此離散的變量以差分取代微分得到一次導數的資料點，公式如下：

$$f'(n) = \frac{-f(n+2h) + 8f(n+h) - 8f(n-h) + f(n-2h)}{12h} + O(h^4) \quad (1)$$

我們將取樣脈衝與一次導數曲線做摺積後可得到一過零點波形，在零區間位置的時間 t 即可做為時間標記，並可在其中加入數位內插法得到精細時間標記。

III. 結果與討論

本研究中，使用任意/函數產生器做為訊號源，直接與 PXI 平台的 ADC 模組連接來進行設計結果測試。一對一 PET 時間鑑別系統整合測試如下，平台設置架構如圖 5。

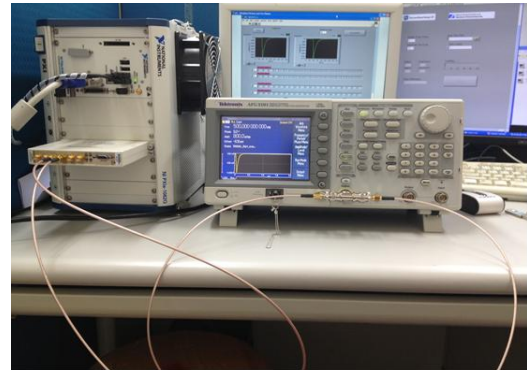


圖 5. PXI 平台測試架構圖

測試重點在於故意創造出週期發生並同時抵達兩 ADC 通道的正子事件脈衝，能由此一對一時間鑑別系統運算一段時間得到大量的時間標記資料儲存至 Host 端硬碟，經過資料後處理統計計算時間鑑別系統平均時間解析度。任意波形產生器輸出端連接 T 型 BNC 接頭一對二分連接兩條等長 BNC 轉 SMA 傳輸線進入 PXI 的 ADC 模組，任意波形產生器以 500kHz 事件率輸出事件脈衝開始進行數位時間資訊萃取功能。

將大量時間資料儲存至硬碟後使用 PSPad 軟體以 16 進制格式開啟 DATA 檔案檢視資料，資料檢視順序由左至右，由上至下，每 8 碼為一筆一對一時間標記資料，以下為 CFD 時間解析度 5 位元(圖 6)與 MF 時間解析度 5 位元(圖 7)的資料檢視頁面的截圖。

	0001	0203	0405	0607	0809	0A0B	0C0D	0E0F
00000	0000	4646	0000	C6C6	0000	4646	0000	C6C5
00010	0000	4646	0000	6B6B	0000	EDED	0000	6C6B
00020	0000	EBEB	0000	6B6B	0000	EAEB	0000	6B6B
00030	0000	EBEC	0000	6B6B	0000	ECEB	0000	6C6C
00040	0000	EBEB	0000	6B6B	0000	ECEC	0000	6C6C
00050	0000	ECEC	0000	6B6B	0000	EBEC	0000	6B6B
00060	0000	EBEB	0000	6D6C	0000	EBEC	0000	6C6C
00070	0000	EBEC	0000	6C6D	0000	EBEB	0000	6B6B

圖 6. CFD_5 位元解析度時間標記資料

	0001	0203	0405	0607	0809	0A0B	0C0D	0E0F
00000	0000	6E6E	0000	EEEE	0000	6E6E	0000	EEEE
00010	0000	6E6E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00020	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00030	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00040	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00050	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00060	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE
00070	0000	2E2E	0000	AEAE	0000	2E2E	0000	AEAE

圖 7. MF_5 位元解析度時間標記資料

最後對統計資料以 LabVIEW 做時間資料處理，並以

Microsoft Excel 做統計及繪圖，統計完成的時間差資料應呈現高斯分布，計算出時間差曲線的半高全寬(Full Width Half Maximum, FWHM)值即代表系統的時間解析度，半高寬的值越小即曲線越集中，代表同源一分二的脈衝經過此一對一系統後得到的時間誤差越小，時間鑑別效能較高。5 位元統計結果分別如下圖 8、圖 9

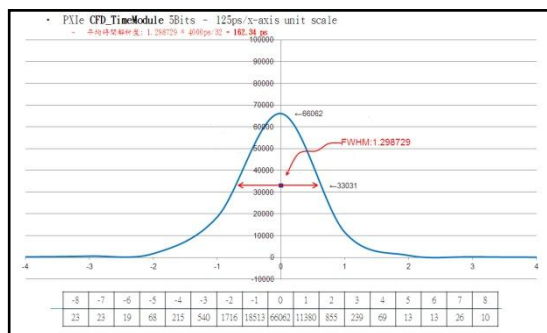


圖 8. CFD_5 位元時間差分布圖

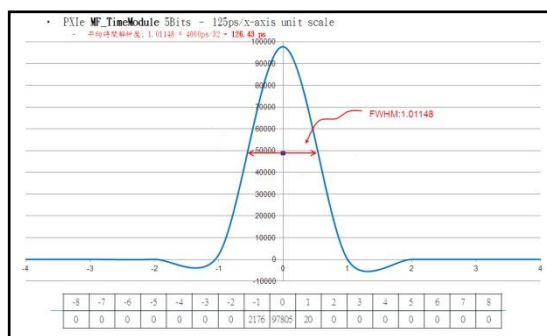


圖 9. MF_5 位元時間差分布圖

最後將不同內插法解析度的統計結果整理成下表 1

表 1. 各架構比較

Architecture	Speed	Time Resolution
CFD 5bit	14 CLK	162.34ps
CFD 6bit	15 CLK	121.83ps
CFD 7bit	16 CLK	98.97ps
CFD 8bit	17 CLK	89.40ps
MF 5bit	20 CLK	126.43ps
MF 6bit	21 CLK	63.97ps
MF 7bit	22 CLK	35.90ps
MF 8bit	23 CLK	22.82ps

IV. 結論

本研究成功的在數位硬體電路上分別實現兩種時間萃取演算法技術，並以高速 ADC 與 FPGA 硬體平台架構兩種時間演算的一對一 PET 高解析時間鑑別數位系統。在基本的定比鑑別法中，搭配數位內插法及尺度轉換；在匹配濾波器法中，改變擬合資料的匹配方式以及搭配數位內插法，使得 CFD 時間解析度提升達 89.4ps，MF 時間解析度提升達 22.82ps。

參考文獻

- [1] M.-A. Tétrault, et. al., "System Architecture of the LabPET Small Animal PET Scanner," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 55, no. 5, pp.2546-2550, 2008.
- [2] R. Fontaine, et. al., "The Hardware and Signal Processing Architecture of LabPET™, a Small Animal APD-Based Digital PET Scanner," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.56, no.1, pp.3-9, 2009.
- [3] M. Bergeron, et. al., "Performance Evaluation of the LabPET APD-Based Digital PET Scanner," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.56, no.1, pp.10-16, 2009.
- [4] Chao Wang, et. al., "A Real Time Coincidence System for High Count-Rate TOF or Non-TOF PET Cameras Using Hybrid Method Combining AND-Logic and Time-Mark Technology," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.57, no.2, pp.708-714, 2010.
- [5] Rejean Fontaine', et. al., "Timing Improvement by Low-Pass Filtering and Linear Interpolation for the LabPET Scanner," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.55, no.1, pp.34-39, 2008.
- [6] J.-D. Leroux, et. al., "Time determination of BGO-APD detectors by digital signal processing for positron emission tomography," 2003 IEEE Nucl. Sci., vol.3, pp. 1723-1727, 2003.
- [7] R. Abbiati, L. Bertossi, A. Geraci, E. Gatti, G. Ripamonti, "High-resolution digital online linear procedure for timing of detected events," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.53, no.3, pp. 1270-1274, 2006.
- [8] R. Abbiati, et. al., "Application of a Digital Technique for Timing of Events From Scintillation Detectors," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.53, no.6, pp. 3850-3854, 2006.
- [9] P. Guerra , J. E. Ortuo , G. Kontaxakis , M. J. Ledesma-Carbayo , J. J. Vaquero , M. Desco and A. Santo "Real-time digital timing in positron emission tomography", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 55, pp. 2531-2540, 2008.
- [10] A. Mann , et.al., "A sampling ADC data acquisition system for positron emission tomography," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.53, no.1, pp.297-300, 2006.
- [11] M. Streun, et. al., "Timemark correction for the ClearPET™ scanners," 2005 IEEE Nucl. Sci., vol.4, pp.2057-2060, 2005.
- [12] Bjarni Bodvarsson, Lars Kai Hansen, Claus Svarer, Gitte Knudsen, "NMF On Positron Emission Tomograohy," IEEE Trans. ICASSAP, vol.1, 2007
- [13] A. Bousselham, C. Bohm, "Sampling Pulses for Optimal Timing," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.1, pp.410-412, 2005.
- [14] R. Fontaine, et. al., "Real Time Digital Signal Processing Implementation for an APD-Based PET Scanner with Phoswich Detectors," IEEE-NPSS , Real Time Conference, 2005
- [15] Hicham Semmaoui, Marc-André Tétrault, Roger Lecomte, and Réjean Fontaine, "Signal Deconvolution Concept Combined With Cubic Spline Interpolation to Improve Timing With Phoswich PET Detectors," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.56, no.3, pp.581-587, 2009.

- [16] Nicholas Petrick, et. al., "A Fast Least-Squares Arrival Time Estimator for Scintillation Pulses," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.41, no.4, pp.758-761, 1994.
- [17] J.-D. Leroux, et. al., "Time Discrimination Techniques Using Artificial Neural Networks for Positron Emission Tomography," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.56, no.3, pp.588-595, 2009.
- [18] G. Hegyesi, et. al., "Ethernet Based Distributed Data Acquisition System for a Small Animal PET," IEEE Trans. Nucl. Sci., vol.53, no.4, pp.2112-2117, 2006.

核能發電知識之多媒體電子書開發

Develop a Multimedia E-Book of Nuclear Power Knowledge

計畫編號：NSC 102-2623-E-262 -002 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：陳彥均

e-mail：clive_chen@mail.lhu.edu.tw

計畫參與人員：陳日強、黃柏智、張宇德

執行單位：龍華科技大學多媒體與遊戲發展科學系

摘要

在現代的日常生活之中，原子能扮演了許多重要的角色。然而，由於社會大眾對於輻射線的恐懼，使得現今的原子能相關發展，主要是受限於民眾的反對，而非原子能科技的不足。本計畫的目的，就是要開發一款以核能發電為主題的互動式多媒體電子書。利用這款電子書，來宣傳正確的原子能知識，並且破除民眾舊有的錯誤觀念，以增加民眾對於原子能發展的支持度。

關鍵詞：核能發電、電子書、多媒體。

Abstract

Atomic energy plays important roles in modern living. However, the development of atomic energy technologies is stopped by the fear of explosion and radiation. Therefore, the bottleneck of atomic energy technologies is the support of the public, not the technologies themselves. The purpose of this project is to produce a multimedia interactive e-book about nuclear power. Using this e-book, correct knowledge will be propagated and the bias notion will be corrected. This will raise the support of the public and help the future development of the atomic energy technologies.

Keywords: Nuclear power, e-book, multimedia.

I. 前言

傳統的學校教育，是在課堂上利用教科書來傳遞科學知識。然而，由於教科書內容枯燥乏味，無法引起學生的興趣，因此，授課教師必須以考試等手段，強迫學生背誦課程內容。在這種方法中，多數學生並不會留下深刻的印象，往往在考試結束之後，就將課程內容遺忘。至於已經離開學校的社會人士，更不可能會主動地去吸收教科書的知識。基於此一原因，有必要改用一種能夠吸引學生與社會人士的非傳統教育方法，進行科學知識的傳播工作，讓大家能夠留下深刻的印象，達到比制式教育更好的效果。在課堂上，許多學生在上課 20 分鐘之後，就開始昏昏欲睡。然而，大部份的人卻可以在電影院中，精神奕奕地觀賞完 3 個小時的電影長片。由此可見，利用各種多媒體技術，透過寓教於樂的方式，可以引起學生與社會人士的興趣，有利於科學知識的傳播。

近年來，電子書相關科技快速地發展。利用目前已經成熟的互動多媒體技術，在電子書中，能夠呈現許多傳統實體書籍所缺乏的效果，例如影片與聲音等等。此外，電子書藉由網際網路的電子書市集販售，不需要依靠實體的銷售據點。民眾可以在家購買，並且即刻下載取得電子書，便利性遠超過傳統實體書籍的銷售方式。

基於上述的優點，在歐美等先進國家之中，電子書廣為消費者所接受，銷售量急速上升，有逐漸取代傳統書籍的趨勢。此一發展趨勢，也導致了傳統書籍的逐漸沒落，以及書店的經營困境。

一般民眾對於原子能相關科技，存在著許多既有的錯誤印象，例如：核電廠容易發生爆炸與輻射外洩，會造成大量民眾的傷亡。本計畫的目的，就是要開發一款以核能發電為主題的互動式電子書。利用電子書中的互動功能，來吸引民眾的閱讀。同時，宣傳正確的核能發電知識，並且破除民眾舊有的錯誤觀念。藉此，讓民眾了解原子能科技對於現代生活的幫助，並且增加民眾對於原子能發展的支持度。

II. 執行方法

電子書的閱讀平台，可以分成電子書閱讀器與平板電腦兩大系統。電子書閱讀器雖然比較便宜，但是該平台電子書的內容，和傳統實體書籍類似，只具有文字與圖片。無法播放影片與聲音等進階的多媒體內容，更不具有互動程式的功能。至於平板電腦，雖然售價略為昂貴，但是其功能與電腦類似，支援各種互動多媒體技術。因此，針對平板電腦所設計的電子書，可以具有更豐富的互動多媒體內容，比較能夠吸引民眾的閱讀使用。雖然電子書閱讀器比較便宜，但是由於在我國並不普及，所以無法發揮其優勢。因此，本計畫所開發的電子書，將會使用平板電腦做為平台系統。如此，不但可以使電子書的內容具有豐富的互動多媒體，以吸引民眾的閱讀。同時，也更符合我國的電子書硬體市場趨勢，能夠擁有更多的讀者。

由於本計畫是以平板電腦為對象，來開發電子書。因此，採用了一個跨平台的開發引擎 Unity，來做為電子書的開發程式。Unity 可以開發各平台的 App 程式，包含了 iPad、Android 平板、Windows 8 平板，乃至於 Windows 8 的筆記型電腦與桌上型電腦。採用此引擎之後，能夠讓本計畫所開發的電子書 App，能夠方便地移轉到其他平台，讓更多民眾能夠觀看。

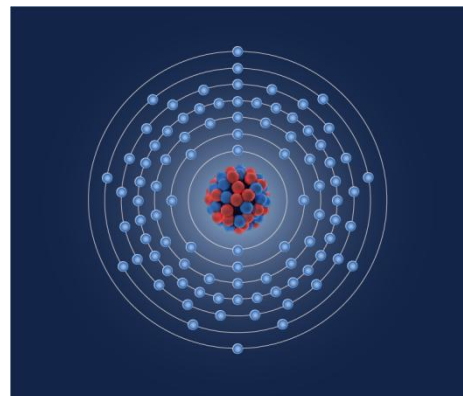
III. 電子書大綱

一般民眾對於核能發電的瞭解，頂多只有核分裂原理，以及核電廠本身。本計畫所製作的電子書，內容介紹了完整的核能發電生命週期，從鈾礦的開採，到核後端處理。如此，讓民眾能夠對整個核能發電的相關知識，有更全面性的認識。在電子書的內容方面，共有五章，23 小節。詳細內容為：

- A. 核分裂原理
 - a. 鈾元素
 - b. 核分裂過程
 - c. 連鎖反應
 - d. 核分裂反應速度控制
- B. 核燃料
 - a. 鈾礦開採
 - b. 濃縮鈾
 - c. 鈾燃料棒
- C. 核電廠架構
 - a. 核反應爐
 - b. 蒸氣渦輪發動機
 - c. 發電機
 - d. 循環冷卻水
- D. 核電廠之安全防護
 - a. 圍阻體
 - b. 負壓廠房
 - c. 抵抗地震
 - d. 抵抗海嘯
 - e. 防止斷電
 - f. 生水池
 - g. 中止劑
 - h. 最終斷然措施
- E. 核後端處理
 - a. 燃料棒之冷卻
 - b. 燃料棒之乾式貯存
 - c. 高階核廢料之最終處置
 - d. 核電廠之除役



圖 01：電子書之核電廠設備照片



IV. 電子書內容

本計畫所製作的電子書，畫面解析度設定在 1920*1080，這個解析度和 Full HD 高畫質影片吻合。由於大部分平板電腦均支援 Full HD 影片的播放，所以能夠支援這個解析度。

在電子書的說明圖片方面，本計畫拍攝了核二廠及其展示館的實際設備畫面，如圖 01 的發電機與礮砂倉庫等等。並且製作了靜態的美工圖示，說明核能相關原理，以及無法拍攝的核電廠設施。如圖 02 的鈾原子架構和核反應爐架構。至於需要動態展示的部分，由於動畫影片的檔案過大，會導致民眾不願意下載本電子書。因此，本計畫改採數個靜態圖片所組成的動態效果圖示，來做動態展示。例如圖 03 的核分裂過程。將電子書的文字、照片、靜態美工圖示和動態展示加以整合。再配上電子書的封面（圖 04）、可以互動展開的動態目錄（圖 05）、章節內容背景模板（圖 06）。就完成本計畫的多媒體互動電子書。

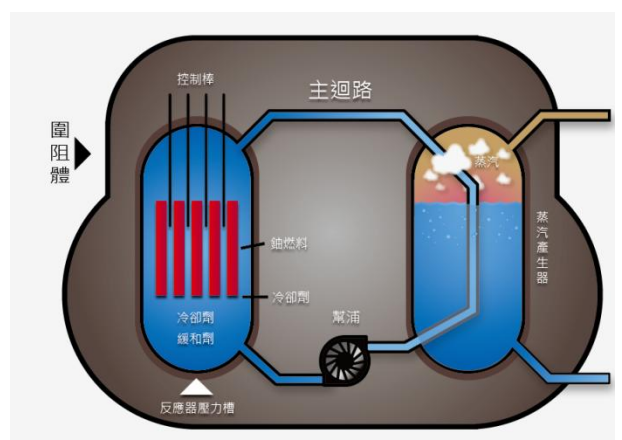


圖 02：電子書之靜態說明圖示

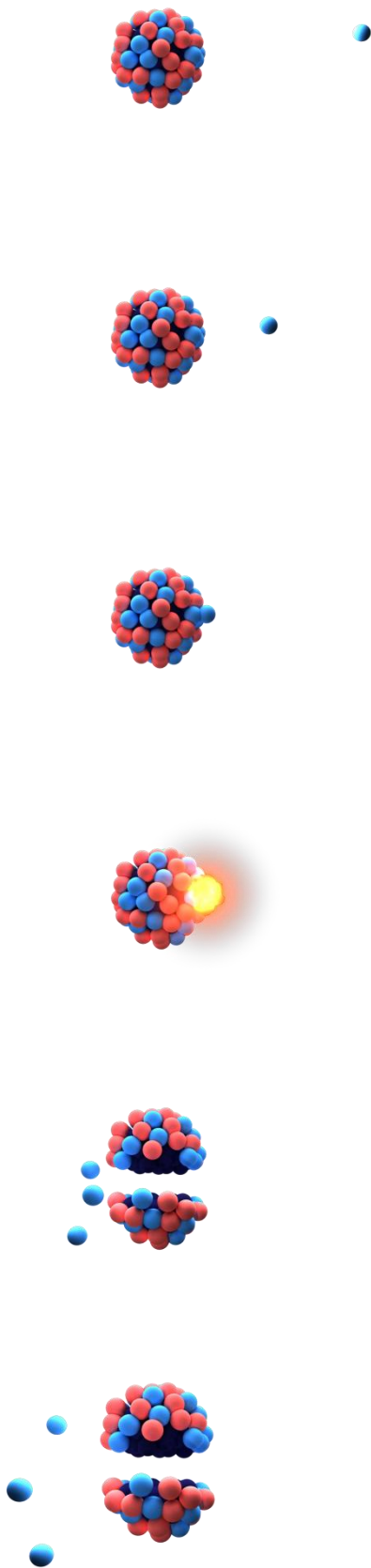


圖 03：電子書之動態說明動畫

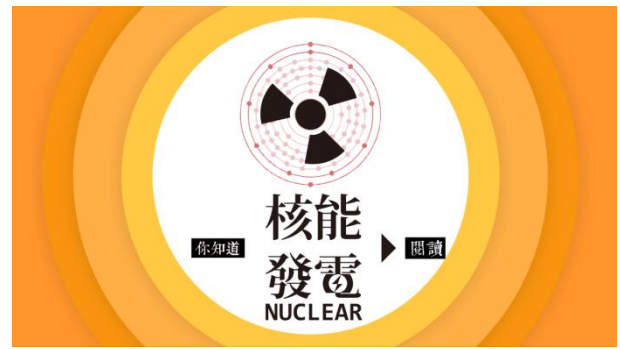


圖 04：電子書之封面

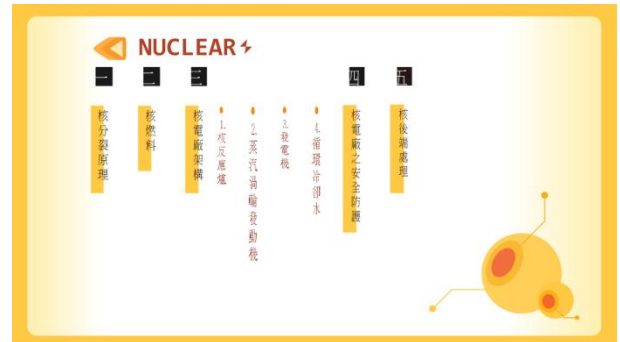


圖 05：電子書之動態目錄



圖 06：電子書之章節內容

V. 結論

本計畫以核能發電為主題，製作了一款具有多媒體和互動功能的電子書。在這款電子書之中，介紹了核分裂原理、核燃料、核電廠架構、核電廠之安全防護、核後端處理。目前，電子書已經初步完成，送交原子能委員會審查。待電子書內容的正確性，經過審查確認無誤之後，就可以發行，給全國民眾觀看。

核能安全與意外事故輻射防護之影音及電子書出版品編輯與研究

The research and edit of nuclear safety and radiation protection of the audio-visual and e-book publication

計畫編號：NSC 102-2623-E-003 -002 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：楊遵榮

e-mail：yang1@ntnu.edu.tw

計畫參與人員：楊易倫、陳心怡

執行單位：國立台灣師範大學物理系

摘要

關鍵詞：核能發電、核能安全、輻射防護、放射性廢料、電子書出版品。

核能在日常生活中的應用占相當重要地位，然而一般民眾對核能安全及意外事故的輻射防護，往往有相當的疑慮，常因為不了解，甚至於談『核』色變？且100年日本福島大地震引發核能發電廠輻射外洩，核能安全問題又成為反對核能的理由。本計畫藉由優質、感性的出版品加強及推廣與宣導這一方面的知識，以增進民眾對核能安全與意外事故輻射防護之相關知識與素養。並可藉由親和的人機界面幫助民眾充分了解核能與安全，核能意外事故緊急應變與防護。

本計畫把核能安全與輻射防護之教材製成「電子書」方式，如目前大眾廣為使用的PC、PAD、PDA或手機，等供智慧型科技手機等應用之方式編輯製作。本計畫藉由影音與電子書e化的出版品及親和性的介面，使民眾能有較充分的核能安全與意外事故及輻射防護認知與理解，減少在生活中之疑慮。

Abstract

Key word：Nuclear energy、Radiation protection、Radioactive waste、E-book

Nuclear energy accounted for a very important position in our daily life. However, the general publics are doubt the radiation protection of the nuclear safety. People are afraid of the "Nuclear energy disaster event". And also the April 2011 Fukushima earthquake triggered a radiation leaks from the Fukushima nuclear power plant that the nuclear safety issues cause public opposition to nuclear power. So, we urgently needed to promote, guidance and enhance the people to understand the nuclear safety and radiation protection by quality, and easy accessed publications.

This project make people understand the meaning and significance of nuclear safety and defense in depth, understand the nuclear energy accident emergency protection method, the characteristics of radioactive waste and the radiation protection by a series of nuclear related publications. These publications has been made to e-book and APP for the application. And also help people to understand nuclear safety and radiation protection by

e-book or Man-Machine Interface such as I-Pad and Android Pad.

I. 前言

能源的使用和經濟成長有直接的關聯。任何國家在追求經濟成長的同時，也一定要規畫能源的供需和安全性。然而，在地球暖化加速的年代，以化石燃料（如煤、天然氣、石油等）發電，會產生大量的二氧化碳，對地球產生莫大的負面影響；水力發電又受限於地形的限制，無法全面使用；而各項替代能源縱然已經如火如荼的積極發展中，但無論太陽能、風力、潮汐等發電方式，其效率均遠不及傳統的核能發電，數年內都難以取而代之。由於對於輻射的疑慮，核能的發展一直帶有許多爭議性，直到近幾年，極多、極大的大自然災害，才使得不排除二氧化碳的核能成為較為人們接受的替代能源選項之一。但100年日本福島大地震引發核能發電廠輻射外洩，核能安全問題又成為反對核能的理由。人類為了生存與永續發展，人們應該負責任的，在發展之餘並考慮對環境友善，核能的發展幾乎是不可避免的。因而確保核能安全是每一個核能發電廠必需負起的責任。

II. 主要內容

核能在日常生活中的應用占相當重要地位，然而一般民眾對核能安全及意外事故的輻射防護，往往有相當的疑慮，常因為不了解，甚至於談『核』色變？因為輻射與原子能的隱形能量看不見，摸不到，聞不到。目前一般民眾中對輻射與核能之了解與認知並不充分。企需藉由優質、感性的出版品加強及推廣與宣導這一方面的知識，以增進民眾對核能安全與意外事故輻射防護之相關知識與素養。本計畫發展e化的傳遞方式，藉由親和的人機界面（如目前大眾廣為使用的PC、PAD、PDA或手機），幫助民眾充分了解核能與安全，核能意外事故緊急應變與防護，游離輻射與核能意外事故輻射防護的方法及其法規與管制，射性廢棄物之來源與特性、放射性廢棄物之處理貯存與處置。

本計畫收集、整理民眾最關切之輻射物質安全事項，以「311 福島核電事件故事」出發，以貼近民眾的語言，用感性的方式，傳達核能安全與意外事故緊急應變與民眾輻射防護的認知與方法。並以簡單明瞭的方式說明事實，再對坊間以訛傳訛之謬誤加以闡明。本計劃針對核能做簡略的介紹，核能發電之原理說明，包括熱交

換、冷卻水、循環水等等，使大眾對核能發電有清楚的認識。教學內容分不同年齡層，採用較貼近目標之口語化方式加以解說。教學內容都製作成電子書之形式，方便民眾下載閱讀。本計劃納入核能發電廠可能產生的輻射物質，放射性廢料處理等，說明其對民眾的相關性。並加強編輯對於各種放射物質在醫療上的應用，例如癌症治療、顯影等等，以民眾熟悉且方便閱讀的電子平台，如 ios、andorid 手機，pad 或 PC，以文字、圖像及影音的形式呈現出版品，並供民眾方便的下載閱讀。

III. 結果與討論

本計畫除上述採用較貼近民眾生活，口語化，並以電子書之形式，方便民眾下載閱讀的不同介面及平台，納入核能發電廠可能產生的輻射物質，含放射性廢料處理等，說明其對民眾的相關性。並加強編輯對於各種放射物質在醫療上的應用，例如癌症治療、顯影等等，以民眾熟悉且方便閱讀的電子平台，如 ios、andorid 手機，pad 或 PC，以文字、圖像及影音的形式呈現出版品，供民眾方便的下載閱讀。本計畫並輔導新北市核安防護教育，新北市政府也以緊急應變區之學生及教師，以石門國中為中心學校，包含國小低、中、高年級、國中、高中等八所學校共同參與。

本計畫於四至八月輔導新北市核安防護教育共六次，每次自費來回石門國小單趟操過 100 公里以上，赴石門國小指導核能安全與輻射防護之教育之教案撰寫與實地示範教學，輔導新北市核安防護教育也讓緊急應變區之學生動起來，成效良好。計有包含國小低、中、高年級、國中、高中等各一組織完整核能安全與輻射防護之教育之教案，並實地試教。本教案以淺白、生動、有趣，可供民眾教育與師生直接應用在閱讀與教學上。

本計畫以切合核能安全與意外事故輻射防護之教育內容，以淺白、平易、減少意識形態、刻板印象，以教育的觀點提供學生及民眾和安教育，以親和性之介面，如可供下載之 PC 版之電子書、蘋果平板電腦(ios 操作系統)、一般平板電腦(android 操作系統)，手機板(韓iphone 及 android 系統手機，提供知識、圖像，以增加及教導核能安全與輻射防護之教育。

IV. 結論

本計畫並以後福島核能安全與輻射防護之教育，做一整體規劃，以緊急應變區之學生及教師對核能安全與輻射防護之教育，為具體觀察與實施之重要教育與探討之對象及實地試教教學，並把核能安全與輻射防護之教育之內涵分為十五項主題內容，並形成 60 個教學模組。

每一教學模組包含：

- 1.可由網站自由下載之教學用簡報檔及教學補充資料手冊，
- 2.可由網站自由下載之教學用 PC 版電子書，
- 3.陳列於電子書城之親和性，容易閱讀之蘋果平板電腦(ios 操作系統)、一般平板電腦(android 操作系統)的電子書，
- 4.陳列於電子書城之親和性，容易閱讀之手機板(iphone 及 android 系統手機)的電子書。

藉由上述學習模組，提供知識、圖像，以增加及教導核能安全與輻射防護之教育，應可達教育之效，減少民眾疑慮。對民眾之核能安全與意外事故輻射防護知識與素養應有正向助益。

參考文獻

1. 核能所:
http://www.iner.gov.tw/siteiner/wSite/np?ctNode=351&mp=INER&idPath=236_283_351
2. 原能會:
http://www.aec.gov.tw/www/info/index_11.php
3. 國家政策研究基金會:
<http://www.npf.org.tw/post/3/8964>
4. 核能學會:
<http://www.chns.org/s.php?id=4&id2=28>
5. 科學教育館:
<http://vm.nthu.edu.tw/science/shows/nuclear/safety/index7.html>
6. 台電:
<http://wapp4.taipower.com.tw/nsis/default.asp>

核電知識深耕推廣計畫(III)

Extensive Educational Project to Promote Nuclear Power Knowledge of High School (3/3)

計畫編號：NSC 102-NU-E-007-009-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：李敏¹

e-mail：mlee@ess.nthu.edu.tw

計畫參與人員：戴明鳳²、邱昶幃¹、王國至²、高珮宜²

執行單位：¹國立清華大學工程與系統科學系、²物理系

摘要

本計畫於 102 年度辦理了 36 場次核電知識深耕推廣研習活動，辦理時數達 345 小時，總計有 1,923 人次參與研習；其中有 13 場以是為期 2-4 天的科學研習營或親子營方式辦理。參與學員從國小學童至大學碩博班學生、K12 師培生、甚至社會人士都有。除以專題講座方式解說核能發電的工作原理、台灣的核電系統、輻射知識、輻射安全與防護和核子醫學等相關知識，並依活動時間安排台電核電廠或龍潭核能研究所實地參訪，甚至於安排各種發電方式的演示或體驗實驗，以及 DIY 實驗。普遍獲得肯定的迴響和教育推廣成效，甚至有不少單位預先約定了之後或次年度的講座或研習邀約。

關鍵詞：核能發電、能源科技

Abstract

In the fiscal year of 102, our program has conducted 36 lectures of "Understanding nuclear power". The total times of activities are over 345 hours, and reached 1,923 people. Within these lectures, 13 lectures were conducted as 2-4 days science camp involving students and sometimes with parents. The participants are from different groups including students of K12 schools, regular university students, students of normal universities and residents from local communities. Our lectures include the general knowledge of nuclear power and its applications, specifically in the areas of safe usage of the nuclear power in nuclear power plants and nuclear medicine. We also included visiting Nuclear Power Plant of TPC or Institute of Nuclear Energy Research, in some of lectures. Additionally, in some of lectures, we used the Do-It-Yourself approach to demonstrate the electrical power generating to gain hand-on experience. In general, the responds from the participants are very good. For most of participants, they found the lectures are interesting and useful. In many occasions, we also arranged the lectures for the coming years.

Keyword: Nuclear power, Energy Technology

I. 計畫背景

日本福島核災之後，因台日近鄰的地緣關係，民眾對於與日本地理環境類似的台灣是否也會引發類似福島事故高度關心，但由於國內外媒體大幅渲染的報導與談論，造成了一般民眾再度對核能輻射產生高度莫名的恐慌。在此同時，能源危機與溫室效應的影響，台灣是

否該繼續核電的開發或放棄，應該有更深入的專業評估與審慎的抉擇。在福島核災事件之後，具備正確的核能安全與輻射防護常識已成為一般民眾當務之急必需加強教育的課題。

為能深耕青年學子對核能與輻射知識的建立，並與對新近相關技術的國際發展能有更深入的瞭解與實質的體驗，本年度計畫將藉本校核能教育推廣團隊已積極經營多年的國高中師生互信暢通的聯絡網脈，持續至全國各地辦理核能與輻射相關知識的教育推廣活動與人才培育研習營。經由深入的核能安全與輻射防護的研習營或演講活動，與實地參訪國內核能與輻射相關設施，使學員在充分了解核能後，得以將習得的知識帶回自己的校園或家庭四周，以與親朋好友分享自己所獲取的知識和經驗，以期建立民眾對核能安全與輻射防護，正確之認知與充分深入的理解。

本計畫為三年期的核電知識深耕推廣計畫，102 年度為最後一年度。101 年 8 月 19-24 日遴選了 27 位來自國內各地 12 所高中學校優秀的高中師生，辦理日本三所村核電設施參訪活動，並與福島高校師生進行了一場熱絡交流。因此，102 年度 3 月份福島地區六所科學實驗高中 35 位師生聯合回訪。過去兩年的計畫執行，對於推廣青年學子與高中教師核能與輻射知識的建立，已有相當顯著的成效，並引起 K12 師生相當熱烈的迴響與對相關知識的高度需求。因此，本年度計畫持續進行深耕核電知識的推廣研習活動，經此使得 K12 師生對核能知識能有更高的探討興趣，並建立核能的基本知識，深入了解核能安全與輻射防護，以提升國人相關領域的科學內涵和素養。

II. 今年執行內容

過去一般基本與簡介性的知識推廣，當有核災事故發生時，仍無法安定民眾的心，仍舊會引發諸多不必要的恐慌。故有必要讓民眾對核能安全與輻射防護能夠有更充分且深入的理解，所以大眾核能知識的深耕教育仍有其高度的必要性。而對於科學知識具有高度吸收力的青年學子是最佳的受教者。因此，本計畫教育深耕的主要對象著眼在中學師生群。

本計畫之第三年考量過去兩年之執行狀況，雖有意持續組織核能與輻射參訪研習團隊，赴國外知名單位研習訪問，但囿於經費預算限制，此國外參訪活動於本年度暫不辦理。本年度延續深化過去兩年之執行項目，持續進行國內大眾核能科普知識與教育內涵之深耕

與推廣，以提升國人對相關領域的科學內涵和素養。具體的工作項目如下：

1. 培育核安與輻射防護種子深耕校園活動：
 - (a) 辦理中學教師研習營培育核安與輻射防護種子教師，經由研習、討論融入教學之教材與學習單等之製作。
 - (b) 或辦理學生認識核能安全及輻射防護之實驗課程，經由課程講授，示範演練等，並包括核子設施參訪之體驗研習，以建立核能與輻射的基本知識。
2. 國內核能機構參觀：安排清華原子爐、國內核能展示館與核能發電廠實地參觀學習。
3. 舉辦科普活動：舉辦專題演講、研習營等活動，探討核能與輻射安全議題，如探討輻射對日常生活的影響、瞭解輻射防護原則及核能利用、輻射安全與環境保護的得失等議題。並開發教學小短片與小教具兼做宣導紀念品，推廣核能安全、輻射防護及核子事故緊急應變知識。
4. 維護與更新核能安全應用與輻射防護知識教育推廣網頁，以提供社會大眾更多核能安全與緊急應變相關知識，並增加教師專區，提供其核能安全及輻射防護教學模組，達到教育推廣目的。



圖一 K12 學校營隊辦理花絮

(左上圖：許榮鈞教授講解輻射防護原則；右下圖：戴明鳳教授用汽機發電機組模型講解發電原理與效率。其餘為學員參觀火力電廠、核能研究所、核二廠等合影留念)

III. 推廣成果

如同上述，本計畫工作目標為深耕青年學子對核能與輻射知識的建立，並對新近相關技術的國際發展能有更深入的瞭解與實質的體驗，本計畫為第三年計畫，經前兩年的規劃與摸索，今年執行時並未遭遇重大困難，而經費也避免許多不必要之支出，因此在計畫到期前尚有余餘，又今年寒假也有幾間學校委託我們辦理核電深耕研習營隊，因此將計畫延至 3 月底。計畫執行概況如下所列：

1. 自 102 年 1 月 1 日至 103 年 3 月 31 日止(含延長期間)，共計辦理了 36 場次，累積辦理時數高達 345 小時，其中有 13 場活動為兩天期以上的能源科技深耕科學

研習營，參與活動人次累計達 1,823 人次。活動場次資料請見具體成果清單。

表一 參加場數及人次統計

研習天數	場數(場)	總時數(小時)	參加人次	國中小生	高中生	大學(含師培生)	教師	親子
深耕演講	19	47	935	78	448	403	6	0
一日研習	4	24	204	0	200	0	4	0
二天研習	7	106	337	21	97	95	3	102
三天以上	6	168	447	0	439	0	8	0
總計	36場	345小時	1,923人	99人	1,184人	498人	21人	102人

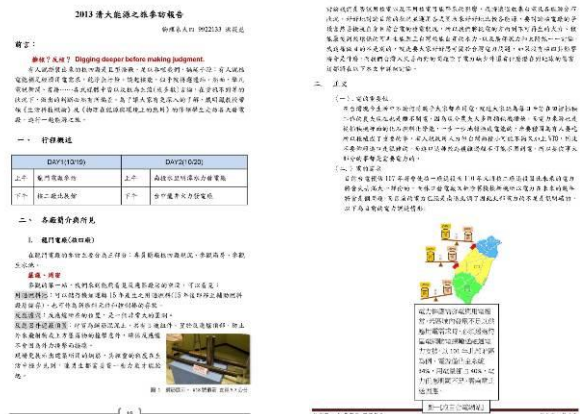
2. 完成活動宣導網站改善：以強化活動的宣導功能，並持續進行改善中，首頁網址如下：

<http://gensci.phys.nthu.edu.tw/NRsciences/>



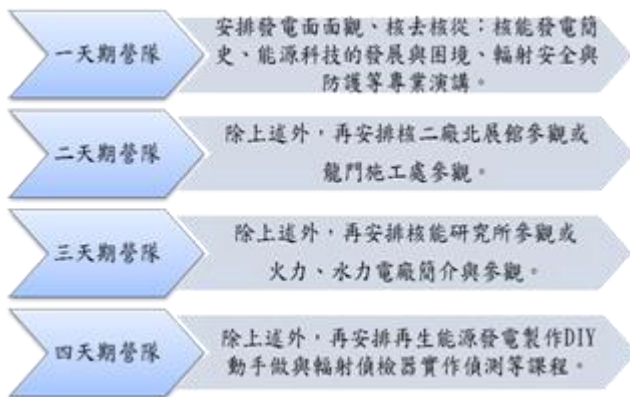
圖二 計劃活動網站首頁橫幅

3. 透過核能學會、WiN 核能學會婦女委員會與本校物理系科普團隊與各高中中國中學校等各種管道，持續宣傳本活動。
4. 為能持續推動核能深耕推廣活動，並且期望活動能切中核心破除大眾與學員對於核能的迷思，因此在多天期的研習營結束後，皆要求學員撰寫報告，並表達對於核能的看法，並且論述各種能源的利與弊。由各校教師回收報告後，經我們彙整與分析。我們發現在研習之前，學員普遍對於核能知識的概念不夠清楚，對於輻射也多有畏懼。對此，我們也依照學員給的報告回饋逐步改善研習的課程規劃。去年度研習報告共收集約 400 份，且已彙整成冊供未來政府對宣導核能之一項依據。



圖三 回收之學員報告

5. 研習課程改善部分，依照天數而有不同規劃，在過去兩天研習時間僅能講述核能發電原理、日本福島核災事故說明與輻射常識等基本知識的介紹，若再安排核電廠實地參觀，時間上非常緊湊，且易流於使參與學員認為本研習是為核能發電做強迫性宣導的活動。因此，在規劃上我們加入不同電廠參觀，新能源科技參觀，與動手實作等課程，去年度本計劃辦理之研習活動除介紹核能外另加入以下課程：
- (a) 龍潭核能研究所參訪
 - (b) 火力發電與各種發電方式的優劣比較講座與實地參訪
 - (c) 汽燃發電機組演示與效率比較
 - (d) 太陽能電池 DIY 與輻射偵測 DIY 體驗
 - (e) 實地參觀龍門電廠



圖四 營隊課程規劃

IV. 結論

本計畫於 102 年度總計辦理了 36 場次核電知識深耕推廣研習活動，辦理時數達 345 小時，總計有 1,923 人次參與研習；其中有 13 場以是為期 2-4 天的科學研習營或親子營方式辦理。參與學員從國小學童至大學碩博班學生、K12 師培生、甚至社會人士都有。除以專題講座方式解說核能發電的工作原理、台灣的核電系統、輻射知識、輻射安全與防護和核子醫學等相關知識，並依活動時間安排台電核電廠或龍潭核能研究所實地參訪，甚至於安排各種發電方式的演示或體驗實驗，以及 DIY 實驗。普遍獲得肯定的迴響和教育推廣成效，甚至有不少單位預先約定了之後或次年度的講座或研習邀約。



圖四 親子營辦理情形



圖四 師培生參觀各電廠剪影

東部地區民眾與中小學師生核能與輻射安全教育推廣

The Education of Nuclear and Radiation Safety for Citizens and Students in Eastern Area of Taiwan

計畫編號：NSC 102-2623-E-277-001-NU

計畫類別：☒個別型計畫 ☐整合型計畫

計畫主持人：葉善宏

e-mail：shyeh@tccn.edu.tw

執行單位：慈濟技術學院醫學影像暨放射科學系

摘要

近年來，東部地區民眾屢為低放射性廢棄物蘭嶼貯存場、台東縣達仁鄉被選為我國放射性廢棄物最終處置場之候選場址而抗爭。顯示東部地區民眾對核能與輻射安全議題之關心有逐漸增加的趨勢，原子能委員會有責任提供東部地區民眾正確的資訊與訓練。

慈濟技術學院醫學影像暨放射科學系教師中多人為輻射防護人員與醫事放射師，且為東部地區唯一之游離輻射防護訓練業者，由本系教師擔任講員，提供東部民眾輻射與核能安全相關資訊與訓練，為極好之構想。

本計劃共舉辦高、中、小學免費之輻射與核能安全之專題演講 16 場，舉辦 2 期民眾及學生輻射防護實驗課程。本系另製作及提供本校網頁作為東部地區輻射與核能安全資訊中心。東部民眾能藉本計畫舉辦之輻射相關訓練與實驗，正確認知核能與輻射安全。

關鍵詞：教育訓練、核能安全、輻射安全。

Abstract

In recent years, the citizens in eastern Taiwan resisted several times for the nuclear facility especially for the Lan-Yu low level radioactive storage site. This phenomenon reveals that the people in eastern Taiwan have concerned the issues of nuclear and radiation safety very much. The training and the nuclear knowledge provided by the Atomic Energy Council are necessary.

The professors of the Department of Medical Imaging and Radiological Sciences (DMIRS) of Tzu-Chi College of Technology (TCCT) possessed licenses of radiation protector or medical radiologist. It is an excellent idea to arrange the training program related to nuclear and radiation safety for eastern citizens by TCCT.

This program has arranged 16 free trainings for the teachers and students of middle schools and primary schools in eastern Taiwan. Two experimental classes were provided for students and citizens by using the radiation equipments of TCCT also. The DMIRS edited the nuclear safety information on the web. Network of this

department. Eastern citizens and students will accept the correct knowledge or information of nuclear and radiation safety on the carried out of this program.

Key words: education and training, nuclear safety, radiation safety

I. 前言

近年來，蘭嶼民眾經常因放射性廢棄物貯存場而抗爭，我國核四爭議在國內外環境保護及反核團體的支持下，持續造成社會的動盪，且爭議的程度未見減少。要減少民眾對核能安全與輻射應用的疑慮，提供相關的資訊與教育民眾為可行的解決方法之一。我國原子能委員會為我國核能與輻射安全的監督與維護機關，有責任與義務主動提供東部地區民眾相關的資訊與訓練。2011 年 3 月，日本福島核能電廠爆炸事件發生時，我國民眾與媒體的反應，充份顯示我國民眾極為缺乏核能與輻射相關資訊。當大多數民眾普遍了解輻射及核能的正確知識後，才有獨立思考的能力。本計畫針對東部地區民眾與高、中、小學生及教師提供輻射安全教育訓練的資訊，並免費提供講習、演講或訓練的機會。以往東部地區民眾比起西部地區民眾，接受核能與輻射安全知識與訓練的機會相對較少，政府應設法拉近城鄉差距，還東部地區民眾一個公道。

慈濟技術學院醫學影像暨放射科學系的專任教師中，多人擁有輻射防護師證書及醫事放射師證書。本系以培養醫事放射師與放射科學研究人才為主要目的，本系開設輻射安全及核能相關的課程共十門，本系教師教授上述放射與核能相關課程，皆有數年以上經驗。此外，本系為原子能委員會核可，且為東部地區唯一之“游離輻射安全訓練業者”，對民眾之輻射安全教育也極有經驗與績效。因此，由本系教師擔任講員，提供東部地區民眾輻射與核能安全相關資訊與訓練，為極好之構想。更重要的是，本系在民眾眼中立場較為中立，由本系辦理之訓練，理論上應更能獲得民眾之接納。

II. 主要內容

本計畫主動與花蓮縣、台東縣境內之高、中、小學聯繫，探詢免費獲得核能與輻射安全訓練的意願，對有意願的學校，免費提供輻射與核能安全之專題演講，本計畫共提供 16 場高中小學演講及輻射偵測設備展示。演

講時，利用多媒體教學，發給簡潔扼要的文字與圖表資料，演講後利用有獎徵答方式，發給 8G 容量之隨身碟做為獎品，以增進學習效果。本計畫以下列優先順序篩選演講學校：1. 以有意願接受訓練的學校為優先，2. 以高中職及國中優先、國小居次。3. 城市與鄉村的學校各半。4. 花蓮縣新城鄉(台電公司被懷疑鑽探地質的鄉鎮)、台東縣蘭嶼鄉(低階放射性廢棄物貯存場所在地)、台東縣達仁鄉(放射性廢棄物最終處置場候選場址之一所在地)等三鄉至少需有一所推廣學校。

利用本系擁有的輻射相關設備與設施，開設 2 期民眾或學生輻射防護實驗課程，以課程講授及示範、演練等方式，讓學員深入了解輻射與核能相關知識，利用實際實驗、操作輻射偵測儀器的機會，進而對天然輻射與人為輻射有具體的認識。

本系願協助原子能委員會，擔任東部輻射安全諮詢中心的角色，本計畫將製作及提供本校網頁作為東部地區輻射與核能安全資訊中心。該網頁提供有系統的核能與輻射安全資訊及最新的輻射防護消息，本系願作為東部地區民眾輻射防護與核能知識之諮詢中心，將由具有輻射防護師或輻射防護員證書的教師回答民眾的問題與疑慮，相信此舉對原子能委員會推行政務能提供些許助益。

III. 結果與討論

本計畫完成之工作項目：

- (1) 辦理花蓮、台東二縣高中職、國中與國小師生之核能與輻射安全教育訓練共 16 場。以地區劃分，花蓮縣辦理 9 場次，台東縣辦理 7 場次。以學校性質劃分，高中辦理 2 場、高職辦理 2 場、國中辦理 11 場、國小辦理 1 場。
- (2) 本計畫以容量為 8G 的隨身碟作為演講後有獎徵答的獎品，各校師生反應極為熱烈，搶答的熱烈場面令人感動。
- (3) 依據規劃，本計畫共實施二次民眾或學生的輻射防護實驗課程，該課程以課程講授及示範演練等方式，讓學員深入了解游離輻射之量測。102 年 7 月 2 日假本校輻射安全實驗室舉辦實驗課程，參加學員 22 人。102 年 12 月 23 日舉辦之實驗課程，參加學員計 24 人。
- (4) 本系依規劃利用本系網頁，提供核能與輻射安全資訊及最新的輻射防護消息，網頁中也說明花、東地區民眾如有與輻射安全輻射防護相關的疑問，可以電話與本系連絡，本系承諾未來繼續擔任東部輻射安全諮詢中心的角色，提供東部地區民眾電話與網路諮詢核能與輻射安全相關議題。

IV. 結論

本計畫依計畫申請書的規劃，舉辦花蓮縣與台東縣高中職、國中、小學輻射安全與核能議題教育推廣共 16 場，游離輻射防護實驗課程共 2 場。高中職學生聽講的態度普遍比國中學生好。過程中觀察到男、女學生對本教推內容的興趣及聽講認真程度沒有顯著差別，倒是教師對本議題幾乎都極感興趣。實施教推過程中，發

現東部地區教師與學生並沒有明顯的反核氛圍，大部分都呈現虛心學習、立場中立、理性探討的態度，此現象與媒體所呈現一面倒的反核比例並不相同。舉辦二場次游離輻射防護實驗課程，其結果顯示效果良好。

綜合觀察，本計畫的實施，確實能對東部地區師生了解輻射安全與核能相關議題，產生極為正面積極的助益。建議未來如果政府預算許可，可繼續實施類似計畫。政府主動提供更多機會給更多學校與民眾相關知識，提供資訊教育民眾與學生，為長遠永不止息的工作。由於大學屬性與立場較為中立，也較易獲得民眾的信賴。因此，委託大學實施教育推廣，或許比政府機關自行實施，效果更為顯著。

工程科系學生之「安全核能學程」課程推廣

Promotion of 「Nuclear Safety Program」 for Engineering Students

計畫編號：NSC 102-NU-E-151-001-NU

計畫類別：☒個別型計畫 ☐整合型計畫

計畫主持人：楊文都

e-mail：ywd@kuas.edu.tw

計畫參與人員：王柏彬博士生

執行單位：國立高雄應用科技大學化學工程與材料工程系

摘要

政府為促進原子能科技基礎研究，落實原子能科技上、中、下游研發之整合，乃由科技部和原能會編列經費設置『原子能科技學術合作研究計畫』之核工概論課程及相關學程推廣，將可擴大學生對核工的興趣及專業知能，培育核工人才，強化核電安全營運與管制，並增加畢業後投身核電就業市場之選擇與機會。

本次計畫擬規劃「安全核能學程」，本學程規劃兩年內完成開授四門專業課程，在計畫申請的第一年(102 年度)的課程，已開授「核工概論與能源科技」、「原子能與環境」等課程，且建立學生對核能之基礎理論與認知，期以提升相關課程之教學內容與品質。「安全核能學程」乃以大學工程科系之大學部三、四年級學生為對象，組成共同學習組織，透過學術資訊的交流，提升教學內容與品質；在實務實習方面，參觀核能發電廠之運轉並讓學生實際參與核能檢測之實習，加強核能發電原理之認知；核能應用方面，則以加強業界專業人士來校演講之策略，透過業界專業人士為學校與廠商的橋樑，並且使學生在修課與討論之餘，更能了解原子能在產業界上的應用，以達到原子能科技之整合。其最終目標為培養兼具專業技術與核能應用概念之工程人才，並建構學術雙方合作技術研發的學習聯盟。

本學程之計畫預計每門核心課程將有超過 50 位學生修習，該課程教材編訂將朝向多媒體方式編製，透過多媒體教材的結合讓學生更容易吸收上課內容，同時在校內資源共享概念之下將該科教材上傳至學程網站讓學生可隨時瀏覽。完成課程者將頒發證書並登錄人才資料庫供業界作擇才參考。課程最終目標提升學生在核電就業市場的競爭力。

關鍵詞：安全核能學程、核工概論與能源科技、原子能與環境。

Abstract

To encourage fundamental research on atomic energy, the government of Taiwan has integrated the lower, middle, and upper reaches of development in related fields of science and technology. Ministry of Science and Technology and the Atomic Energy Council established 『the Academic Cooperative Research Program for Atomic Energy Science and Technology』 to promote academic courses in nuclear engineering and other related subjects. The program is meant to increase student interest in nuclear engineering, expand their professional knowledge, cultivate talent in the field of

nuclear engineering, enhance the safe operations and control of nuclear power plants, and expand career options and opportunities in nuclear power.

This project was to develop a 「Nuclear Safety Program」 and initiate four professional courses within two years. In the first year (academic year of 2013) of the project, completed courses will include 「Overview of Nuclear Engineering and Energy Technology」 as well as 「Atomic Energy and the Environment」. The educational aims of these courses are to establish fundamental theories and concepts related to nuclear energy and enhance the teaching content and quality of related courses. 「Nuclear Safety Program」 is planning the formation of a co-learning group with university juniors and seniors majoring in engineering. Through an exchange of academic information, the content and quality of the courses can be improved. For practical lessons, students will visit nuclear power plants to observe operations and participate in testing at the facilities, to contribute to their understanding of the principles involved in nuclear power. To address the application of nuclear power, industrial experts will be invited for lectures, acting as a bridge between academia and industry. Through lessons and discussion, students will be able to comprehend the application of nuclear power in industry to achieve an integration of atomic energy science and technology. The ultimate objective of this project is to cultivate engineering talent, provide professional skills, develop an understanding of the concepts of nuclear application, and build an alliance between academia and industry in collaborative R&D.

A total of more than 50 students are expected to enroll in each course and teaching materials, will include multi-media to enable students to absorb the course content more easily. Under the concept of school resource sharing, the materials will be uploaded to a course website to enable students to browse them at will. Students that complete the courses will be provided certificates and registered in a database to provide industrial enterprises with reference for the selection of talent. Through this project, the competitiveness of students in the nuclear job market can be enhanced.

Keywords: Nuclear Safety Program, Overview of Nuclear Engineering and Energy Technology, Atomic Energy and the Environment.

I. 前言

台灣地狹人稠，天然資源缺乏，有 99%需依賴進口，自產能源卻不到 1%，但核能發電所佔比例相對較高，因為核能發電具有相對供應來源穩定、能量密度高、運輸

儲存便利、安全存量高等優點，經濟合作暨發展組織（Organisation for Economic Co-operation and Development，簡稱 OECD）在國家能源統計時已將核能發電視為準自產能源。又因為核能發電並不排放二氧化碳，間接排放量也與再生能源相當，是抑制二氧化碳排放及趨緩溫室效應的重要手段之一，更可以滿足京都議定書減量的目標，所以在未來減碳市場上，核能發電佔有一個非常重要的地位。故此，核能發電產業重新被重視，將可視為綠色環保的工業，一方面可保育台灣的環境，一方面更兼顧發展，如此方可永續我國的經濟繁榮[1-10]。

有鑑於 311 日本福島核災，台灣已積極的培育核電人才，以鞏固台灣核能發電的安全，並避免核災發生，馬英九總統也宣示核電人才的培育是相當重要且不能中斷。國內大學核工相關科系所培育的核工人才加上台電嚴謹的核能訓練制度，提供臺灣核能發電所需的人力，並讓台電運轉中的核能電廠安全可靠的營運，營運績效屢創新高。但由於大學核工相關科系提供的人才斷絕，台電必須花費數倍的時間及經費自行培訓，因此科技部和原能會編列經費設置『科技部／原能會「原子能科技學術合作研究計畫」』之核工概論課程及相關學程推廣，以提供臺灣核能發電所需人才[11-24]。

II. 主要內容

近四年來國立高雄應用科技大學獲『科技部／原能會科技學術合作研究計畫』經費補助，開設核能課程提供選修，對大學工程科系學生授予核工相關專業課程之訓練，學生反應十分良好，修課意願很高，對新知識深感興趣。第 1 年總修課人數高達近 90 人；第 2 年降至共約 60 人；第 3 年增加到 110 人；第 4 年（目前）增加超過 160 人，可見日本福島核災對學生選課的影響並不是負面的。學生上課的情形非常積極正面，且感興趣。依過去之經驗，核工相關課程之開設，單一課程的選修人數沒問題，但選修完整學程課程（四門課）的同學較少，乃因對學生來說，四門核工專業課程的負擔太重，同時會排擠到選修其他課程的機會。在課程的規劃上須審慎評估。綜合學生修習核工專業課程之經驗與現行對核能之有條件需求—安全核能。

本次核工人才培育計畫擬規劃「安全核能學程」之主軸與內容，預計兩年內完成開授四門專業課程，強化核能安全性之專業知識，並降低學程專業課程的數目（四選二）。在第一年（102 年度）計畫中預定開授「核工概論與能源科技」和「原子能與環境」等課程，在第二年（103 年度）計畫中預定開授「核能與輻射安全」和「原子能民生應用」等課程，並結合核能議題之非學分課程講座，期以提高計畫之執行廣度與層面。以及建立學生對核能之基礎理論、原子能工程的基本認知及核能之使用限制與法律規範，並以邀請業界人士演講、實習與核能工廠參觀，提升學生學習興趣。

III. 結果與討論

在 102 年原子能科技學術合作研究計畫中已完成開授「核工概論與能源科技」（101 學年度第 2 學期）和「原子能與環境」（102 學年度第 1 學期）兩門課程。

在 101 學年度第 2 學期的「核工概論與能源科技」

這門課程中邀請了行政院原子能委員會輻射偵測中心副主任洪明崎先生（演講題目有【核能與能源】、【核工基礎理論（上）】、【核工基礎理論（下）】、【核能發電原理與安全設計】、【輻射防護概念】、【輻射與環境】）和前行行政院原子能委員會主任委員蘇獻章先生（演講題目有【歷史上三大核電廠事故評析】、【日本福島核災後的輻射防護】）和行政院原子能委員會核能研究所助理研究員林忠永先生（演講題目為【放射性廢液處理技術發展與應用現況】）和前行行政院原子能委員會核能研究所研究員邱志宏先生（演講題目為【核能何能—從工程的觀點看問題】）和行政院原子能委員會核能研究所簡任副研究員施清芳先生（演講題目為【用過核子燃料深層地質處置概論】）和台灣核能級產業發展協會顧問謝牧謙先生（演講題目為【核子化學工程～鈾濃縮程序】）進行生動的演講，學生們上課相當認真。

在 102 學年度第 1 學期的「原子能與環境」這門課程中邀請了義守大學醫學影像暨放射科學系助理教授李境和先生（演講題目有【核反應基本原理】、【輻射與物質的作用】、【輻射的應用】、【核能的安全設計與其他能源】、【放射性廢料的管理】、【輻射安全防護】、【核能對環境的影響】）和前行行政院原子能委員會核能研究所副所長黃慶村先生（演講題目有【（一）核燃料循環、放射性廢棄物的產生與管理；（二）放射性廢棄物的處理；（三）台灣放射性廢棄物的最小化處理與經驗】、【（一）低放射性廢棄物的最終處置；（二）高放射性廢棄物的最終處置；（三）台灣放射性廢棄物最終處置問題探討】）和前行行政院原子能委員會核能研究所簡任副研究員郭茂穗先生（演講題目為【氣固反應與核廢棄物處理技術】）和行政院原子能委員會核能研究所同位素應用組研究員兼組長林武智先生（演講題目為【同位素之研製與醫學應用】）和行政院原子能委員會核能研究所簡任副研究員張福麟先生（演講題目為【核種在處置設施的遷移與評估】）和前行行政院原子能委員會核能研究所簡任副研究員潘本立先生（演講題目有【核能廢棄物之管理——發電運轉階段】、【核能廢棄物之管理——電廠除役及拆除階段】）進行專業的演講，並完成了一次「輻射安全講習」，在「輻射安全講習」中邀請了國立高雄醫學大學醫學影像暨放射科學系副教授張寶樹先生進行活潑的演講，學生們發問程度非常地踴躍。以及每門課程都安排一次行政院原子能委員會輻射偵測中心講座和參訪與實習，學生們都很專心聽行政院原子能委員會輻射偵測中心的工作同仁講解且互動非常良好。也建置了國立高雄應用科技大學核工概論課程推廣網站（網站名稱：工程科系學生之「安全核能學程」課程推廣）。

IV. 結論

在 102 年原子能科技學術合作研究計畫中已開授了「核工概論與能源科技」及「原子能與環境」兩門課程，每門課程約有超過 50 位學生修課，且舉辦了一次「輻射安全講習」，而且每門課程都安排一次行政院原子能委員會輻射偵測中心講座和參訪與實習。並完成了工程科系學生之「安全核能學程」課程推廣網站之建置。經由 102 年原子能科技學術合作研究計畫執行的結果希望對國內推廣核工課程及核能專業素養之培育可盡微薄之力。在 102 年原子能科技學術合作研究計畫執行期間結合計畫

主持人（國立高雄應用科技大學化學工程與材料工程系楊文都教授）和計畫協同主持人（行政院原子能委員會綜合計畫處編輯訓練科杜若婷科長）與參與課程的所有老師之專長及行政院原子能委員會輻射偵測中心相關同仁的協助，才能勝任本計畫，並感謝『科技部／原能會「原子能科技學術合作研究計畫」』提供經費支持（計畫編號為 NSC 102-NU-E-151-001-NU），僅此致謝。

參考文獻

- [1] 羅斯·格爾布斯潘（2001），炎熱的地球：氣候危機，掩蓋真相還是尋求對策，上海譯文出版社。
- [2] 白寶實（2008），全球暖化下的核能發展，核能環保人月刊。
- [3] 劉雅章（2007），全球暖化問題的科學認識，二十一世紀雙月刊。
- [4] 馬克·林納斯（2010），改變世界的 6°C，天下雜誌。
- [5] 政府間氣候變遷委員會（IPCC）網站，網頁：<http://www.ipcc.ch/>。
- [6] 台灣環境資訊中心網站，網頁：<http://e-info.org.tw/>。
- [7] 台灣環境保護聯盟網站，網頁：<http://www.tepu.org.tw/>。
- [8] 國立臺灣大學全球變遷研究中心網站，網頁：<http://www.gcc.ntu.edu.tw/Chinese/Home/Home.asp>。
- [9] 行政院環境保護署網站，網頁：<http://www.epa.gov.tw/>。
- [10] 2009 年全國能源會議分組報告（核心議題：能源科技與產業發展，主辦單位：行政院國家科學委員會）。
- [11] 方明、劉茵、韓美新（2011），核電大危機，明鏡出版社。
- [12] 錢伯章（2010），氫能和核能技術與應用，科學出版社。
- [13] 楊昭義、尹學禮（2009），核子工程概論，水牛出版社。
- [14] 楊昭義、歐陽敏盛（1997），核能發電工程學，水牛出版社。
- [15] 楊昭義、陳勝朗、尹學禮（2010），核能工程技術導論，水牛出版社。
- [16] 馬栩泉、張勝雄、陳聖鐘、潘恆堯、駱文傑（2009），核能開發與應用，新文京開發出版股份有限公司。
- [17] 鄧光新（1990），核能發電，科技圖書。
- [18] 行政院原子能委員會輻射偵測中心網站，網頁：<http://www.trmc.aec.gov.tw/>。
- [19] 行政院原子能委員會核能研究所網站，網頁：<http://www.iner.gov.tw/>。
- [20] 台灣電力公司網站，網頁：<http://www.taipower.com.tw/>。
- [21] 中華民國核能學會網站，網頁：<http://www.chns.org/>。
- [22] 李敏（2006），核能發電發展與人力培育，科學月刊。
- [23] 李敏（2011），合理、實際的做法—核能，不能輕言放棄的選擇，科學月刊。
- [24] 王德義（2004），怕它不如了解它—核能發電淺談，台電核能月刊。

核能安全議題之性別溝通策略研究計畫

Study of Gender and Nuclear Security Issues

計畫編號：NSC 102-2623-E-128-001-NU

計畫類別：☒個別型計畫 ☐整合型計畫

計畫主持人：梁世武

e-mail：steveliang@cc.shu.edu.tw

計畫參與人員：彭志煒、杜若婷

執行單位：世新大學公共關係暨廣告學系

摘要

國內目前現有三座核能發電廠，龍門發電廠也正在興建中，而核能發電目前佔我國總發電量近 20%，就能源供給與安全而言，是相當重要的一種發電方式。研究團隊過去針對全國民眾與電廠所在地民眾進行調查，希望觀測民眾在核能安全議題上的認知與態度，並進一步探究民眾在核能資訊需求與接收的情況，以提出如何與民眾進行核能議題的溝通策略。研究結果發現，男性比女性表示較瞭解核能相關議題，也較傾向認為核電安全，進而較傾向支持使用核能發電，提供本研究重要啟發。

在研究方法上，採取問卷調查的方式，將於下半年進行一次電話訪問調查，調查主題包括：人口變項、核能資訊需求與接收行為、核能風險認知、核能發電態度、核能議題溝通方式等。調查對象為全國民眾，預計將完成 1068 份有效樣本。在調查前將進行不同性別民眾焦點座談會以及問卷討論會，調查後則將進行專家座談會，將就調查結果進行討論，擬具核能安全相關議題性別溝通政策建議作為原能會施政之參考，而研究成果也將與國外調查進行比較，並於未來進行長期調查，以追蹤民意趨向。

關鍵字：核能安全、民意調查、資訊行為、性別溝通

Abstract

There are three existing nuclear power plants in our country, Longmen power plants still under construction. Nuclear power generation now accounts for nearly 20 percent of Taiwan's total generating capacity, is a very important power generation. Research group has surveyed residents of the surrounding across the country, wished to observe the awareness and attitudes of the public on nuclear safety issues, and further explore the situation of people in the nuclear energy information needs and receive, to propose the public communication strategy with nuclear energy issues. The study found that more men than women said that a better understanding of nuclear-related issues, are more inclined to think that the safety of nuclear power, and thus more inclined to support the use of nuclear power generation to provide this research important inspire.

In research methods, we take a questionnaire way, a telephone interview survey will be carried out in the second half of the year. This survey topics will be include: demographic variables, nuclear energy, information needs and receive behavior, risk perception of nuclear energy, nuclear power attitude, means of communication nuclear

issues, etc.. This survey of people across the country, is expected to complete the 1068 valid samples. Focus groups of different gender people, and questionnaires seminar will be conducted prior to the survey, after the survey conducted, a forum of experts will be held, to discuss with nuclear safety issues related to gender communication and policy recommendations as the Atomic Energy Council policy reference research with foreign research to compare long-term investigation, and in the future to track public opinion trends.

Key words: nuclear safety, public opinion survey, information behavior, gender communication.

I. 前言

1997 年通過京都議定書後(Kyoto Protocol to the United Nations Framework Convention on Climate Change, 1997)，全球暖化的議題日受重視，2005 年 2 月該條約正式生效，更代表著全球控制溫室氣體的決心，其中能源議題即為控制溫室氣體的核心議題之一，因此各國政府紛紛開始重新檢視能源相關的政策。而近年石化燃料價格飆升，以石化燃料進行發電的成本大為提高，更促使各國政府檢討其能源與電力供應政策。在這樣的情況下，核能的選項再次受到重視。

國內目前現有三座核能發電廠，龍門發電廠也正在興建中，而核能發電目前佔我國總發電量近 20%，是相當重要的一種發電方式。不過核能安全的問題，仍然在民眾的心中造成許多的疑慮，包括 1979 年的三哩島事件、1986 年的車諾比事件以及 2011 年日本福島核災事件，以上種種核安事故，讓民眾充滿憂慮與恐慌。而核電廠對環境的污染與核廢料的處置，更受到民眾與環保團體的質疑，因此讓核能議題伴隨著許多的爭議性。

為緩解民眾的憂慮與恐慌，也化解環保團體對使用核能的質疑，政府便需要做充分地溝通。至於溝通，指的是兩人或以上的互動，彼此傳遞資訊、交換意見，建立共識的一個過程。

然核能議題較為專業，民眾較不易深入理解也缺乏主動接觸相關資訊的誘因，要促使民眾接觸到核能相關資訊實有其困難存在。因此掌握民眾願意接觸核能安全資訊的需求與接收行為便是溝通的基礎，媒體力量在危機事件處理過程中佔有相當重要的影響力，亦不容忽視。若能透過新聞媒體向民眾傳達正確資訊的報導，澄清錯誤的觀念，讓社會大眾瞭解事實真相，對安定民眾心理有正面積極的功用。

然而，民眾並非一個均質的整體，往往會因為不同特性而在溝通過程上產生差異。因此，本研究希望透過

不同調查方法，瞭解不同性別民眾資訊接收行為與資訊需求情形，並以民眾對資訊的瞭解及認同溝通訊息的程度來衡量溝通的效果，最後則提出「核能安全議題之性別溝通策略」。

因此，研究團隊預期透過研究了解以下問題，並協助政府提出解決策略：

1. 民眾對核能發電的支持度？不同性別間是否有顯著差異？

2. 民眾了解重要核安議題(例如：核二廠的維運安全問題、核四廠的運轉安全問題、核廢料處置的安全問題等等)的程度？不同性別間是否有顯著差異？

3. 核能訊息接收者(民眾或利害關係人)的特質是什麼？希望獲得哪些訊息？可透過哪些管道傳遞資訊？原能會與訊息接收者如何建立雙向溝通機制？

II. 主要內容

以下說明本研究之研究流程，

1. 文獻蒐集：蒐集近年(重大事件)風險溝通相關文獻資料，以瞭解國內外重要議題之風險溝通研究概況(如政府面對重大事件之危機處理情形，媒體傳播何種訊息，以及民眾相關反映等資訊)，俾利提出溝通管道與方法之參考。

2. 質化研究：以焦點座談方式進行，區分男性與女性各舉辦一場民眾焦點座談，了解各性別對核能安全議題知識、態度的差異，以及對核能議題溝通方式與內容的意見。

3. 量化研究：以問卷調查方式進行，延續過去研究跨國比較題組，再設計與核安議題(如核四廠興建支持度、核廢料處置方式等)有關之問卷題目，以及與溝通方法、內容相關之題組。問卷設計後邀請專家學者進行問卷討論會，以確保問卷效度，並經前測確定信度後執行調查。

4. 資料分析：調查結束後，先進行基本的統計分析，也將著重於歷年調查資料與跨國研究的比較分析，以及性別差異的比較分析。量化分析結果將與質化座談結果彙整後撰寫研究成果。

5. 專家座談會：初步研究成果完成後，將舉辦一場專家座談會，邀請核安議題與性別研究的學者專家及原能會相關人員，針對質化與量化的研究成果進行討論，提供核安議題溝通策略之建議。

III. 結果與討論

電話調查小結

(一)、核能發電態度部份

1. 反對核能態度再攀高，多數贊成公投解決核四爭議。

本次調查民眾反核態度達到四年來新高點(59.5%)，接近七成民眾支持使用公投來解決核四爭議(67.2%)。

2. 對核能的態度未直接反應在行為面上。

本次調查多數民眾雖然反對使用核能，但願意參加反核活動的比例不到三成(29.8%)，參觀核電廠的意願也不到四成(39.6%)。

(二)、資訊接收與溝通部份

1. 認為核安資訊非常不足，最想知道核能事故緊急應變措施

本次調查將近九成民眾認為政府提供的核能安全資

訊不足(87.1%)，超過九成民眾希望政府提供核能安全事故緊急應變措施(93.5%)。

2. 最想透過電視獲得資訊，最信任的是國際核能機構

本次調查超過半數民眾希望透過電視新聞獲得核能安全資訊(55.0%)，最信任的核能安全資訊來源是國際性的官方核能組織(83.4%)，其次依序為國際性的核能研究機構、國際性的環保團體。

質性研究成果

(一)、核電印象

1. 反對使用核能的民眾：幅射傷害、浪費、斷層帶、拼裝車、危險

對核電的印象可依重大事件歸納出三種類型：自始就反對使用核能的民眾強調核能幅射的傷害性、認為核能是浪費而且是可被取代的能源；核四議題後才反對使用核能的民眾則從臺灣地處斷層帶、缺乏緊急事故應變措施、核廢料的處理、核四的拼裝特性描述其核電印象；福島核災後才開始反對核能的民眾則從擔心下一代、核電的危險與浪費角度描述其對核電的印象。

2. 不反對使用核能的民眾：可能的替代方案、安全紀錄

則傾向從核電廠的存廢描述其對核電的印象，有的主張核四本身雖有反對者所提到的問題，但核能或許是在沒有其他替代方案下的可能選擇。不反對使用核能的民眾也有人從過去核一到三廠所累積的安全印象出發，認為核電未必就比其他的發電方式來得不安全。

(二)、發電方式優先排序

1. 反對使用核能的民眾：太陽能優先、其次為火力或平均發展。

多數以太陽能為第一優先，所持理由是基於認為太陽能發電較為環保、幾乎沒有傷害、台灣日照時間長適宜發展、目前技術已成熟可帶動台灣產業發展。少數主張火力發電，所持理由是基於火力發電目前佔比最高，且短期內發展影響最少。也有人主張因為沒有最佳的發電方式，應該平均發展較好。

2. 不反對使用核能的民眾：

將核能發電或太陽能列為第一優先各擁有近半數支持比例，也有民眾提到使用水力發電優先。支持核能發電優先的民眾所持理由主要是其他發電方式存在難以克服的優點，例如：火力發電碳排放高，水力、風力、太陽能發電供電不穩定等；支持太陽能發電優先的民眾所持理由主要是台灣具有日照時間長的優點，以及核能發電終究存在核廢料難以處理的疑慮。

IV. 結論

(一)、推出不同風險溝通措施，提高核能資訊透明程度

研究團隊在蒐集相關資料後，參考國內地方政府消防局的地震體驗車作法，建議主管單位推出巡迴的核能安全行動體驗車。從調查結果來看，不僅有5成9民眾對此項建議做法感到興趣，且女性以及教育程度較高的民眾感興趣的比例偏高，恰與本年度調查結果中，對核能安全較有疑慮的族群吻合。

另一方面，研究團隊亦參考第二場焦點座談會議紀錄，建議主管單位嘗試結合社區大學推出核能安全課程。從調查結果顯示，不僅有近半數民眾對社區大學的核能

安全課程感興趣，並且女性、學歷為國中以下和研究所以上的受訪者感興趣比例偏高，也與本年度調查結果中，對核能安全較有疑慮的族群吻合。

為增加資訊透明，並有效緩解民眾對核能安全之疑慮，故建議主管單位審慎評估這兩項風險溝通作法之可行性。

(二)、建議擴大辦理全民核能安全溝通與教育宣導

從調查結果顯示，雖目前原能會僅在核電廠周邊地區進行逐里宣導，但中南部非核電廠周圍民眾，對於參與逐里宣導措施感興趣比例亦偏高。建議考慮擴大辦理全民的核能安全溝通與教育宣導。

若考量到專業性，建議可由國內的清華大學核工所等學術單位共同協助組織、研擬、推動相關的整合型計畫。

(三)、嘗試簡化核能安全知識內容，並透過大眾媒體宣導

近年來的調查顯示，民眾自認瞭解核能安全相關知識的比例逐年下降，今年更有 8 成 1 民眾自認不瞭解核能相關議題、8 成 9 民眾不知道有哪些緊急應變措施、6 成 2 民眾不曉得能和誰討論核能安全議題。從調查結果推測，對民眾而言核能安全議題距離自身太過遙遠，在長期缺乏與他人討論經驗的情況下，容易覺得不瞭解相關議題。

另一方面，7 成 4 民眾希望能直接透過電視新聞獲得核能安全的相關資訊，2 成 6 民眾更是直接將新聞選擇為最信任的核能安全資訊管道，約 4 成 8 民眾希望政府提供核能事故的緊急應變措施。有鑑於此，政府主管單位應考慮將這部份資訊簡化，並多嘗試結合電視新聞報導的方式傳遞給民眾瞭解。

(四)、風險溝通活動可多邀國內外核能學者參與，增進民眾信任感

從過去的調查結果顯示，國際性的核能機構、國際性的核能官方組織長期是民眾最信任的核能安全資訊管道。若詢問民眾希望能和誰討論核能相關議題時，亦有 19% 選擇國內外核能學者專家，比原能會、台電的業務主管高。從調查結果顯示，民眾現階段仍缺乏對主管單位的信心，若主管單位在進行風險溝通活動時，能考慮多邀請較具知名度的國內外核能安全學者專家共同參與，對提高民眾的信任感或許能有所幫助。

參考文獻

- [1] 年度原子能科技學術研討暨成果發表會精簡報告範例格式，年度原子能科技學術研。
- [2] 丘昌泰(1999)。公害社區風險溝通之問題與對策，《法商學報》，第 34 期，頁 17-48。
- [3] 李姣姿(2000)。核能風險認知研究：核電廠附近民眾與台電公司員工之比較。國立陽明大學公共衛生研究所碩士論文。
- [4] 汪明生、朱斌好(1999)。衝突管理。台北：五南。
- [5] 周桂田(2004)，獨大的科學理性與隱沒(默)的社會理性之「對話」—在地公眾、科學專家與國家的風險文化探討。《台灣社會研究季刊》第 56 期，頁 1-63。
- [6] 周桂田(2007)，新興風險治理典範之芻議。《政治與社會哲學評論》，22：179-233。
- [7] 洪鴻智(2005)。科技鄰避設施風險知覺之形成與投影：

核二廠。人文社會科學集刊，17(3)，33-70。

- [8] 徐佳士(1987)。大眾傳播理論，台北：正中書局。
- [9] 吳雨潔(2010)。溝通媒介與溝通效能關係之研究——以學校人員與教育行政機關之溝通為例，市立臺北教育大學教育行政與評鑑研究所碩士論文。
- [10] 張世賢(2002)。電子化政府的政策行銷。http://old.npf.org.tw/PUBLICATION/IA/091/IA-R-091-059.htm
- [11] 張正揚(2006)。行政溝通媒介與教師教育政策知覺研究——以七項教育政策為例，國立臺北教育大學教育政策與管理研究所碩士論文。
- [12] 曹美玲(2002)。醫療風險溝通與知覺風險間關係之研究，國立高雄第一科技大學風險管理與保險研究所碩士論文。
- [13] 陳光璞(2008)。媒體報導的風險議題與風險溝通——以全球暖化議題為例。世新大學公共關係暨廣告學研究所(含碩專班)碩士論文。
- [14] 陳均龍(2006)。從核四建廠風險認知觀點探討貢寮地區漁業經營對漁村經濟之影響。國立海洋大學海洋資源管理研究所碩士論文。
- [15] 陳志行(2005)。臺灣地區台北縣市民對核能電廠風險認知之研究。國立台北大學資源管理研究所碩士論文。
- [16] 黃禎財(2002)。學者專家對低放射性廢棄物最終處置風險知覺之研究。
- [17] 黃懿慧(1994)。科技風險與環保抗爭——台灣風險認知個案研究。台北：五南。
- [18] 楊禮豪、周桂田(2008)。第十七章：衝突的導火線。台北：教育部教科書。
- [19] 蔡鶯鶯(2004)。建構政府緊急風險溝通(ERC)機制研究：以台灣嚴重急性呼吸道症候群(SARS)流行事件為例，台北：行政院衛生署九十三年度科技研究計畫，頁 11-24。
- [20] Accenture (2008). Attitudes Towards Nuclear Power in the United Kingdom-Survey Analysis. Retrieved from http://www.accenture.com/Countries/UK/Services/NuclearSurvey.htm
- [21] Bouazza, Abdelmajid (1986). Use of Information Sources by Physical Scientists, Social Scientists, and Humanities Scholars at Carnegie-Mellon University.
- [22] Chung, J. B., & Kim, H. K. (2009). Competition, economic benefits, trust, and risk perception in siting a potentially hazardous facility. Landscape and Urban Planning, 91(1), 8-16.
- [23] Costa-Font, J., Rudisill, C., & Mossialos, E. (2008). Attitudes as an expression of knowledge and "political anchoring": The case of nuclear power in the United Kingdom. Risk Analysis, 28(5), 1273-1287.
- [24] Covello, V.T. vonWinterfeldt, D. and Slovic, P. 1986. Risk Communication: A review of the literature, Risk Abstract. 3(4): 171-182.
- [25] Daggett, C.J. 1989. The Role of Risk Communication in Environmental Gridlock.
- [26] Dervin, Brenda, (1992). From the mind's eye of the user: The sense-making qualitative methodology. in Qualitative research in information management, 61-84.
- [27] Doble, J. (1995). Public opinion about issues characterized by technological complexity and scientific uncertainty. Public Understand. 4, 95-118.

- [28] Douglas, Mary. (1992). *Risk and Blame: Essays In Cultural Theory*. London:Routledge.
- [29] Eurobarometer (2007). *Europeans and Nuclear Safety*.
- [30] Eurobarometer (2008). *Attitudes towards radioactive waste*.
- [31] Eurobarometer (2010). *Europeans and Nuclear Safety*.
- [32] Fischhoff, Baruch. (1995). Risk Perception and Communication Unplugged: Twenty Years of Process. *Risk Analysis*, 15(2): 137-145.
- [33] Fischhoff, B., Slovic, P., Lichtenstein, S., Read, S., & Combs, B. (1978). How safe is safe enough? A psychometric study of attitudes towards technological risks and benefits. *Policy Sciences*, 9, 127-152.
- [34] GlobeScan (2005). *Global Public Opinion on Nuclear Issues and the IAEA*. Retrieved from http://www.iaea.org/Publications/Reports/gponi_report2005.pdf
- [35] Holmberg (2008). *Swedish Opinion on Nuclear Power 2007*. Retrieved from http://www.som.gu.se/rapporter/nuclear/NuclearPower_2007.pdf
- [36] In V.T. Covello, D.B.McCallum, & M.T.Pavlova(Eds). *Effective Risk*.
- [37] Jones, J. M. (2009). *Support for Nuclear Energy Inches Up to New High*. Retrieved from <http://www.gallup.com/poll/117025/Support-Nuclear-Energy-Inches-New-High.aspx>
- [38] *Kyoto Protocol to the United Nations Framework Convention on Climate Change* (1997). Retrieved from <http://unfccc.int/resource/docs/convkp/kpeng.html>
- [39] Lundgren, Regina E., Andera H. McMakin. (1998 - 2004 - 2009). *Risk communication : a handbook for communicating environmental, safety, and health risks*. Columbus, Ohio: Battle Press.
- [40] Morgan, M.G., Fischhoff B., Bostrom A. & Atman C. J.,(2002). *A Mental Models Approach*. U.K.: Cambridge University Press.
- [41] National Research Council (1989). *Everybody counts: A report to the nation on the future of mathematics education*. Washington, DC: National Academy Press.
- [42] National Research council. (1989). *Improving Risk Communication*. Washington, D. C:National Academy Press.
- [43] Nuclear Energy Institution. (2010). *Perspective on Public Opinion*. Retrieved from <http://www.nei.org/resourcesandstats/publicationsandmedia/newslettersandreports/perspectivesonpublicopinion>
- [44] Plough, Alonzo, and Sheldon Krinsky. (1998). *Environmental Hazards: Communicating Risksas a Social Process*. Dover. MA: AuburnHouse.
- [45] Poortinga W., Pidgeon, N.F. and Lorenzoni, I. (2006) *Public Perceptions of Nuclear Power, Climate Change and Energy Options in Britain: Summary Findings of a Survey Conducted during October and November 2005*. Technical Report (Understanding Risk Working Paper 06-02). Norwich: Centre for Environmental Risk.
- [46] Sjoerg, L. (2003). Attitudes and Risk Perceptions of Stakeholders in a Nuclear Waste Siting Issue. *Risk Analysis*, 23(4), 739-749.
- [47] Slovic, P., & Weber, E. U. (2002). *Perception of Risk Posed by Extreme Events*. This paper presented at the meeting Risk Management Strategies in an Uncertain World, Palisades, New York.
- [48] Slovic, P., Fischhoff, B., & Lichtenstein, S. (1986). The psychometric study of risk perception. In: V. T. Covello, J. Menkes, & J. Mumpower (Eds.), *Risk Evaluation and Management*. New York: Plenum Publishing Corporation.
- [49] Slovic, Paul. (2000). *Trust, Emotion, Sex, Politics and Science: Surveying theRisk-assessment Battlefield*, in *The perception of Risk*, Earthscan Publications.Ltd, London and Sterling, VA.
- [50] United States Nuclear Regulatory Commission (2004). *Effective Risk Communication, The Nuclear Regulatory Commission's Guideline for External Risk Communication*. Washington DC.
- [51] Viklund, M. J. (2003). Trust and risk perception in Western Europe: A cross-national study. *Risk Analysis*, 23(4), 727-738.

低放射性廢棄物處置關鍵群體之核廢料認知與風險溝通

Nuclear Waste Perception and risk communication of Key Groups on low-level radioactivewaste disposal

計畫編號：102-NU -E-004 -001 -NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：黃東益

e-mail：tyhuang@nccu.edu.tw

計畫參與人員：陳穎峰、高淑芬

執行單位：國立政治大學公共行政學系

摘要

2010年9月台電選定金門縣烏坵鄉及台東縣達仁鄉為潛在場址，並積極於當地進行溝通並規畫公投事宜。然而，黃東益等(2009)研究指出當地民眾認為場址選取事宜欠缺一良好的溝通機制。本研究希冀在核廢場址所在縣市公投之前，探討民眾所需之議題知識，並舉辦世界咖啡館(World Café)的審議活動，建立關鍵群體的溝通平台。試圖瞭解關鍵群體對於低放核廢處置需要哪些資訊作為知情審議的基礎？在資訊相對充分的情況下，關鍵群體經過審議，對於低放核廢議題有哪些共識及分歧的意見？其理由為何？關鍵群體在經過審議與對話，對於核廢處置的意見有何改變？透過回答以上問題，本研究發現不同地區的關鍵群體對於低放核廢的認識、態度以及對核能議題的焦點有差異。此外，透過跨地域關鍵群體的交流得以提升對低放核廢的認識以及凸顯各地關心的焦點。

關鍵詞：低放射性廢棄物、關鍵群體、審議民主、世界咖啡館、選址、風險溝通

Abstract

The Taiwan Power Company has chosen Daren (Taidong) and Wuchiu (Jinman) as potential dumping sites for low-level radioactive nuclear waste in 2010. However, according to Huang and his colleague's research (Huang et al 2009), the residents in both places still believed that the decision-making process was in lack of more delicate communication. To enhance communication among stakeholders, this research aims to explore the knowledge needed by local residents regarding this issue by following the timetables of the referendums in both sites. This research also plans to launch deliberative activities such as "World Café" to build a platform of communication for key stakeholders. To understand what kind of information is required for key stakeholders to achieve "well-informed" deliberation on the issue of low-level radioactive nuclear waste disposal? What are the rationales behind the common grounds or disagreements of these groups given the condition that information was relatively sufficient? Whether or not would their opinions change after deliberative dialogues? This study found that the key groups' awareness and attitudes to low-level radioactive nuclear waste and the main concerns in the nuclear issue are different between regions. In addition, after

the exchanges of cross-regional opinions, the key groups enhance the understanding of the low-level nuclear waste, as well as highlighted the focus of the region concerned.

Keywords: Low-level radioactive nuclear waste, key group, deliberative democracy, world café, siting, risk communication.

I. 前言

2010年9月台電重新公告建議低放射性廢棄物處置候選場址之階段，選定台東縣達仁鄉、金門縣烏坵鄉為潛在場址後，現已被經濟部核定為建議候選場址，後續將進行公民投票，經公民投票同意後，將列為候選場址。目前建議候選場址地方居民表示政府現有溝通方式有待改善，期盼有更多機會理解並表達低放射性廢棄物處置議題資訊及對政策之態度(黃東益等，2009)

在專業議題的溝通上，Ash(2011)發現即便都是對核能議題相當熟悉的專家、教授與利害關係者(stakeholders)，都難以在常見的團體討論會議中取得共識，甚至產生衝突，往往容易因為對風險的認知有落差而使討論擱置於價值觀或意識形態，因此認為需要有一套新的討論模式引入核能議題的探討，而Ash所提新的討論模式，便是將審議途徑(Deliberative Approach)導入議題討論。而政府政策制定與民眾溝通途徑，在歐洲1990始開始推動審議式民主(Deliberative Democracy)的政治理論，丹麥運用該方法讓民眾參與國內科技政策的制定，希望在政策制定過程中，政府能夠先瞭解民眾的態度方進行決策。其理念乃是公民在知情、理性且互惠的前提下，進行公共政策的規劃、執行與評估，其主張一個由大眾組成的政府，這個政府將促成公民在知情、理性及互惠的前提下，對於政策進行討論。由此觀之，此模式似乎有助於改善低放射性廢棄選址作業受到的挑戰，且低放射性廢棄物關鍵群體之態度將影響後續政府辦理公投之結果。

本研究主要研究目的為：透過深度訪談瞭解不同關鍵群體對於低放射性廢棄物之風險認知及其所需的基礎資訊，並透過世界咖啡館(World Café)的模式進行審議活動，將公民參與融入選址作業程序。最後，透過前述之研究基礎，分析關鍵群體間對於議題的資訊需求、對於議題的初步共識與歧異，並探討其意見經審議後是否改變。據此，本研究試圖回答以下幾點研究問題，期能完成上述目的：

1. 關鍵群體對於低放核廢處置需要哪些資訊，作為

知情審議的基礎？

2. 在資訊相對充分的情況下，關鍵群體經過審議，對於低放核廢議題有哪些共識及分歧的意見？其理由為何？
3. 經過審議與對話，關鍵群體對於核廢處置的意見有何改變？

更具體而言，本研究計畫構想為配合「低放射性廢棄物最終處置設施場址設置條例」選址程序，界定該議題之關鍵群體，並透過質化之研究方法，探詢不同關鍵群體對於低放射性廢棄物之風險認知。

其次，為使民眾對於該議題有更多的認識，能在「知情」的前提下，進行充分溝通並做出政策決定，本研究預計配合選址作業程序辦理全國或地方型審議活動，希冀於政策制定前，引入審議民主(deliberative democracy)相關模式之進行，使民眾(尤其是利害關係人)瞭解低放射性廢棄物處置的正確資訊，同時能夠針對民眾對低放射性廢棄物管理安全的疑慮進行瞭解、釐清爭點，作為政府未來進行風險溝通之基礎。

II. 主要內容

本研究透過深入訪談彙集關鍵群體對於低放射性廢棄物之認知與意見，並舉辦世界咖啡館建立平台創造各地區關鍵群體交流機會。

1. 村里長訪談：

研究團隊分組至新北市萬里區、金山區、石門區及屏東縣恆春鎮等核一、核二、核三場址，訪談當地村里長對於低放射性廢棄物處置議題的相關意見與態度。共訪談十位村里長與自救會代表。

主要針對(一)村里長對於低放射性廢棄物的認知及其主要資訊管道；(二)低放射性廢棄物的風險認知；(三)低放射性廢棄物選址議題、資訊管道及對此議題的態度。訪談過程發現，四個地區之村里長與自救會對於核電廠與低放射性廢棄物之認知與態度有地域上的差異，而四個地區均有其當地獨特脈絡性的因素，可能影響著認知與態度差異。

2. 世界咖啡館—跨域利害關係人溝通平台：

立法院已於2006年三讀通過「低放射性廢棄物最終處置設施場址設置條例」作為選址與處置的法源基礎，然而資訊公開程度不足與公民參與機制並未落實的問題依舊懸而未決，促使研究團隊期望藉由本次討論會的舉辦，邀請本議題之關鍵群體，共同討論低放射性廢棄物處置的相關議題。除了深入瞭解最接近核能設施、低放射性廢棄物貯存設施及正受選址壓力的關鍵群體，需要哪些資訊作為知情審議的基礎外，亦期望藉關鍵群體間的激盪交流，聚焦出本議題的核心問題，以供權責機關作為未來決策之參考。

據此，國立政治大學公共行政學系審議民主研究團隊接受國科會委託研究案於2013年12月14日假集思台大會議中心洛克廳舉辦「“核”你到永遠」討論會。會前籌備邀請新北市萬里區、金山區、石門區；屏東縣恆春鎮；台東縣達仁鄉、蘭嶼鄉；金門縣烏坵鄉等地之所

有村里長、民意代表、當地指標性自救會以及一般民眾等人士與會。會議當日除金門縣烏坵鄉代表不克參與外，其餘六地區共邀集25位代表出席與會，使得會議達到不同地區關鍵群體跨地域交流之目的。討論議題為：

- (1) 決定場址的原則應為何？
- (2) 如何決定場址？
- (3) 場址決定後應該還需要關注、處理哪些事情？怎麼解決上述應處理的事項？
- (4) 認為符合上述條件的地點(附帶條件)有哪些？

討論會除邀請地方鄉親與會外，研究團隊在討論會進行之前亦撰寫一份適合當地鄉親閱讀之議題報紙，先行寄給與會者閱讀，使與會者在閱讀資料之基礎上得以在討論會當天與不同地區的與會者進行意見交換。會議原擬邀請台電代表、原能會代表、環境團體代表及立法委員於會議最後階段聆聽討論會之成果，並做意見交流。然而，除立法委員因年終公務繁忙不克出席與會為遺憾外，意見交流階段各代表與與會者之對話交流，亦達到意見交換與民意陳述之效果。

III. 結果與討論

依據「“核”你到永遠」討論會與會成員討論內容，可以得知綜合各地關鍵群體交流後所關心的議題如下述四個方面：

1. 選址原則：應重視環境條件、資訊公開、安全等議題：

若由自然條件的觀點出發，場址並不適合設於有地震斷層帶經過之區域，也應該以對環境破壞最小為原則，故若真有適合之處，該場址周遭地區未來不得再開發；而低放射性廢棄物處置也應秉持安全、自願、資訊公開、公平正義、環境保護等原則，甚至考慮使用者負責、自產垃圾就地處理等原則。然而，就目前政府之處理程序與態度而言，短時間內應無法與整個民間凝聚共識；因此，在找到最終場址前，比照最終處置設施的規格來加強現有暫存場之設備，以確保現有核廢料貯存場週遭居民之安全，應是政府當務之急。環境因素：

2. 選址程序：應該公開選址依據、廣納各方觀點以及必須確認委員會的正當性：

選址過程應清楚說明選址依據，並廣納高階官員、第三部門、環保團體與地方代表等多元利害關係人之觀點。此過程最好能由第三公正團體評估，並輔以有相關經驗之國際團體進行檢核；此外，在選址委員部分，也要注意其正當性與代表性，以確保選址地點獲得當地居民之認同。此部分小組討論分述如下：

3. 場址決定後的應注意回饋金的應用、處置場的資訊應公開並且強化防災的教育。

回饋金機制的完善建置最為與會者所重視，從回饋金的發放範圍、發放方式到實際運用，皆應充分回應被回饋者之需求。另外，加強防災演習與防災教育、定期公布輻射劑量檢測報告等加強安全及資訊公開的議題，都是與會者相當強調的事項。

4. 場址選擇建議現役核電廠區、無人島嶼及監督資源充裕的地區

與會者多認為，在得到當地居民認同並確定無地震斷層帶風險的前提下，除役後核電廠址是最好的選擇，但必須重新進行設備結構的設計，以確保存放設施的安全性。其他意見則包括：以自願性原則做為考量因素、台電等監督資源較多處、無人島，但也有部分參與者認為因其本身並無專業知識，故無法對此提出建議。而

IV. 結論

依據會前會後訪談以及世界咖啡館會議討論成果，本研究提出暫時的初步觀察結果：

1. 會議前不同核電廠區對於低放射性廢棄物的認知有落差，暫時發現核三廠比核一二廠區的里長認識較少。
2. 各場址對低放議題興趣程度有落差，若摒除開會地點因素，核一、二廠周圍三區，對於低放議題的興趣有明顯的差異。
3. 對於核能議題，目前核一、二廠與核三廠關注的議題不一，核一廠關注乾式貯存、核二廠關注核災疏散的交通問題，核三廠關注核災應變議題。
4. 各地區仍舊以反對接受低放射性廢棄物為主要訴求，但核一、二廠周圍少數村里長逐漸出現宿命論的世界觀，悲觀地接受低放射性廢棄物現廠儲放，但要求安全與回饋照顧。
5. 對於資訊需求方面，各地代表不一而同地指出低放射性廢棄物處置場址選址依據與程序的資訊、核安演習、低放基礎知識等資訊，必須透過更有效率的方式進行推廣。
6. 透過世界咖啡館的活動，有助於不同地區的代表互惠意見，並凸顯出各地區所關注的特殊議題差異，未來將有助於政策溝通。

參考文獻

- [1] Ash, John S. (2011). Radiation or Riots: Risk Perception in Nuclear Power Decision Making and Deliberative Approaches to Resolving Stakeholder Conflict. *Politics & Policy*, 39(3): 317-344.
- [2] Benford, R., Helen A. Moore, and J. Allen Williams, Jr. (1993). In Whose Backyard?: Concern About Siting a Nuclear Waste Facility, *Sociological Inquiry*, 63(1):30-48.
- [3] Berg, Bruce L., & Howard Lune (2011). *Qualitative Research Methods for the Social Sciences*. (8th ed.). Boston, MA: Pearson.
- [4] DeLeon, Peter & Danielle M. & Vogenbeck (2007). The Policy Science at the Crossroads, in Frank Fischer, et al. (eds). *Handbook of Public Policy Analysis*, (Ch.1). FL,CRC.Ch.1
- [5] Drevenšek, M. (2005). Negotiation as the driving force of environmental citizenship. In A. Dobson and A. V. Sáiz (eds). *Citizenship, Environment, Economy*. Routledge: London.
- [6] Fan, M.-F. (2006). Environmental Justice and Nuclear Waste Conflicts in Taiwan. *Environmental Politics*, 15(3): 417- 434.
- [7] Fischer, Frank (2003). *Reframing Public Policy*. New York: Oxford University Press.
- [8] Hank C. Jenkins-Smith, Carol L. Silva, Matthew C. Nowlin, and Grant deLozier, (2011). Reversing Nuclear Opposition: Evolving Public Acceptance of a Permanent Nuclear Waste Disposal Facility. *Risk Analysis*, 31(4): pp.629-644.
- [9] Heinelt, Hubert (2007). Do Policies Determine Politics? In Frank Fischer, et al. (eds). *Handbook of Public Policy Analysis* (Ch.8). FL,CRC.
- [10] Huang, H.C. and Wang T.W. (2011) Determinants and mapping of collective perceptions of technological risk: the case of the second nuclear power plant in Taiwan. *Risk Analysis*, 31(4):668-83.
- [11] Katz, Steven and Carolyn Miller (1996). The Low-Level Radioactive Waste Siting Controversy in North Carolina- Toward a Rhetorical Model of Risk Communication. In C. Herndell and S. Brown., eds. *Green Culture: Environmental Rhetoric in Contemporary America*. Madison: University of Wisconsin Press.
- [12] Lasswell, H. D. (1970). The Emerging Conception of The Policy Sciences. *Policy Sciences*, 1(1): 3-14.
- [13] Lasswell, H. D. (1971). *A pre-View of Policy Sciences*. New York: American Elsevier.
- [14] Reich, Robert B. (1990). *The Power of Public Ideas*. Cambridge. Mass: Havard University Press.
- [15] Rein, M., & White S. H. (1977). Policy Research: Belief and doubt. *Policy Analysis*, 3(2): 239-71.
- [16] Slovic, P. (1999). Perceived Risk, Trust, and Democracy. In G. Cvetkovich and R.Löfstedt ., eds. *Social Trust and the Management of Risk*. London: Earthscan.
- [17] 杜文苓、張國偉、吳嘉純 (2009)。審議民主在空間議題上的新實驗：以「中港河廊通學步道願景工作坊」為例。公共行政學報，第 32 期，69-104。
- [18] 杜文苓、陳致中 (2007)。民眾參與公共政策的反思——以竹科宜蘭基地設置為例。台灣民主季刊，第 4 卷第 3 期，33-62。
- [19] 林子倫、陳亮宇 (2009)。重返民主的政策科學——審議式政策分析概念意涵與途徑之探討。台灣民主季刊，第 6 卷第 4 期，1-47。
- [20] 林國明、陳東升 (2003)。公民會議與審議式民主：全民健保的公民參與經驗。台灣社會學，第 6 期，頁 61-118。
- [21] 林國明、陳東升 (2005)。審議民主、科技與公民討

- 論：台灣的實作經驗。科技、醫療與社會，第3期，頁1-49。
- [22] 高子梅(譯)(2007)。世界咖啡館(Brown, J. and D. Isacs 原著)。台北：臉譜出版社。
- [23] 陳向明(2002)。社會科學質的研究。台北：五南。
- [24] 陳東升(2006)。審議民主的限制—台灣公民會議的經驗。台灣民主季刊，第3卷第1期，77-104。
- [25] 湯京平、蔡瑄庭、范玫芳(2009)。低放射性廢棄物最終處置設施候選場址地方公投之研究。行政院原子能委員會委託研究計畫(編號:97FCMA010)，未出版。
- [26] 黃東益(2003)。民主商議與政策參與—審慎思辯民調的初探。台北：韋伯文化。
- [27] 黃東益、李翰林、施佳良(2007)。「搏感情」或「講道理」？：公共審議中參與者自我轉化機制之探討。東吳政治學報，第25卷第1期，頁39-71。
- [28] 黃東益、范玫芳、林子倫、杜文苓(2009)。低放射性廢棄物最終處置公民參與之研究。行政院國家科學委員會專題研究成果報告(編號:98-3114-E-004-001)，未出版。
- [29] 黃東益、陳敦源(2004)。電子化政府與商議式民主之實踐。臺灣民主季刊，第1卷第4期，頁1-34。
- [30] 蔡瑄庭(2011)。低放射性廢棄物最終處置設施場址設置條例適用疑義之簡析。台北大學法學論叢。第80期，頁81-117。
- [31] 蕭代基、黃德秀(2007)。補償對鄰避現象的影響—以烏坵低放射性核廢料場址為例。研討論文系列，97-2。

核能安全之風險溝通

Risk Communication of Nuclear Safety

計畫編號：102-NU-E-004-002-NU

計畫類別：■個別型計畫 □整合型計畫

計畫主持人：杜文苓

e-mail：wtu@nccu.edu.tw

協同主持人：高淑芬、陳穎峰

執行單位：國立政治大學公共行政系

摘要

日本福島核災後，台灣運轉中的核電廠是否安全，成為全國上下共同關切的重要議題，核安風險溝通議題可說是我國政府必須正視的重要課題。因此，本研究欲探究，在台灣當前核能爭議的脈絡下，科技官僚在核能安全之民眾風險溝通議題遭遇哪些瓶頸和困境？致使困境產生的原因為何？本研究透過國內核能相關會議資料的蒐集分析、各國核能風險溝通機制分析、以及辦理「與公眾溝通工作坊」中與執行核安溝通業務相關官員之互動討論，系統性地整理與歸納現行公部門的核能風險溝通模式在程序與內容面向上的問題；並從風險溝通與審議式民主的理論視角出發，探討當今核安風險溝通困境之所在，期待打破既有溝通框架的限制，為找尋解方創造新局提出不同典範性的思考。

關鍵詞：風險溝通、核能安全、公民參與、科技官僚。

Abstract

After Fukushima Daichi Nuclear Disaster, the safety of nuclear plant has become an important issue which concerned laypeople most in Taiwan. It pushed Taiwan nuclear technocrats to pay more attention on risk communication issue of nuclear safety. However, their hard work shows no positive effect so far. This essay discusses the reasons why the risk communications held by technocrats are ineffective. Through analysis of the meeting minutes of nuclear power related public hearings and EIA meetings, review of the risk communication process of the selected countries, and interactive discussions with the technocrats in the “public communication workshop,” the research demonstrates the limitation of the current communication and provides brand-new solutions.

Keywords: Risk communication, nuclear safety, public participation, technocrat.

I. 前言

臺灣自產能源不足，高度依賴進口能源，因此如何持續地供應穩定的能源，以降低工業生產成本，維持國家經濟成長，並同時兼顧環境保護與降低溫室氣體排放，是台灣國家發展與政策思考的重大課題。

日本福島核災發生後，台灣運轉中三座核能電廠的安全性受到來自民間的挑戰，同時，核廢料的處理方式亦懸而未決，核能安全已是台灣社會無法迴避的重要課題。因此，本計畫主要研究內容有三：

1. 整理與分析國內在核能相關議題上的風險溝通模式，如核廢政策環評中的公聽會、核二廠再運轉之聽證會、選址之台電地方說明會等。透過深度訪談、參與觀察與工作坊的進行，瞭解現有溝通模式在風險認定、評估與管理上的效果與侷限。
2. 進行國際間(例如：日本、美國、韓國 …等)核安議題的風險溝通案例的蒐集分析，剖析公部門於案例中所扮演的角色與職能，以及該案例成功或失敗之原因，提供國內此議題之溝通建議。
3. 辦理「如何與公眾溝通」工作坊。由上述研究成果出發，設計具有「審議民主」模式之討論流程，從溝通程序與溝通內容兩個面向，探討核能溝通過程中處理不同環節的課題，以協助公部門在執行相關業務時，能夠掌握風險溝通的本質，從而增進核能安全溝通之成效。

II. 主要內容

本研究主要內容可分成以下三點：

一、各國風險溝通機制現況分析

在整理國外的經驗之後，我們可以看出一些共同的趨勢：

- (一)即便在核能科技頗為先進的國家，之前也都曾經面臨民眾對核能管制的強烈質疑。這幾個國家在初期都試圖找核能專家與民眾進行溝通，但進展卻很有限。因為民眾所質疑的並非只是科學上的風險數字，他們在乎的可能是核能所帶來的社會、經濟、與倫理上的影響。純粹以「專家試圖說服民眾」的方式，並無法推動政策，政府需要積極尋找新的途徑與民眾溝通，才有機會解決問題。
- (二)這幾個國家後來尋求用更廣泛的對話或更嚴格的法規保障，以確保全民的意見可以被納入到決策範圍內。除了環保團體、地方政府、地方社區代表外，這些政府也試圖囊括更多的利害關係人進入溝通體系，例如：瑞典的核能會議邀請環境法院的代表參加，加拿大也邀請宗教團體一同參與討論。這些溝通過程都經過多年的努力，也需要在程序上進行創新的想像與細膩的設計，相關單位的權責與負責層級也因應國情，有明確的制度規範。
- (三)觀諸這些國家的作法，均有設立「公正主持與仲裁者」的思考。瑞典與加拿大由行政部門組成專門的委員會或組織來負責主導溝通活動的進行，而非讓原子能管制部門負責，活動過

程也由第三方來規劃籌辦；而英國的公民諮議更是把這些活動全部外包給獨立的專案顧問公司來負責執行，以確保溝通活動的中立性。

(四) 這些溝通活動，都是主辦機關「主動邀請」各利害相關當事人參加，「主動尋求」民眾對於核電的看法與建議，是以「積極」且「努力提供資源」的方式來尋求全民的看法與共識。這些民眾代表的背景很廣泛，包括了核電員工、包商、宗教團體、環保團體等。

二、現有核能安全溝通所面對程序面的問題

本研究分別以程序面和實質面，對我國現行之核能議題模式進行討論：

(一) 程序面

為了解國內目前核安溝通工作的概況，本團隊針對環保署和原能會所做過的核能安全溝通為標的之活動，做了全面性的盤點，共計 81 場，詳情如表一所示。

表一：核能安全相關之會議

環保署：共 38 場	原能會：共 43 場
核一廠專案監督會議：15 場	宣導活動：11 場
核四監督委員會：23 場	核能安全監督及溝通會議：4 場
	核四廠安全監督委員會：有 4 屆，共 28 場
共 81 場	

1. 管道逐漸開放，惟資訊完整透明度尚未完備。

在這些核安溝通活動中，民眾的參與已經越來越頻繁，媒體也能適度地加入扮演報導監督的角色，這是一個正面的現象；但較為可惜的是，在資訊的宣傳上，似乎仍有加強的空間，使有意多加瞭解的民眾得以以更平常的管道、得知這些活動的舉辦方式。

再者，研究團隊發現，除了核四安全監督委員會有較為完整的會議紀錄與錄影檔之外，許多溝通活動多半只有隻字片語的報導，甚至連會議列席人員、會議進行情形狀況描述都付之闕如。網路所能取得的會議紀錄，常是以摘錄重點的方式呈現，現場的討論有人為整理的鑿痕，難以真實反映發言者所欲表達的內容，亦會讓民眾擔心他們的發言是否被輕描淡寫地一筆帶過、甚至乾脆予以忽略。

2. 程序設計重宣導而輕平等互動式溝通。

目前關於核事故處理的溝通活動型態，大致是以「資訊宣導」搭配「問卷調查」的方式，亦即讓政府人員進行課程講授或書面報告，然後由民眾提問或直接由問卷調查的方式來評估活動成效，像民國 99 年間舉辦的「核子事故民眾防護行動金山鄉逐村宣導活動」和「核子事故民眾防護行動石門鄉芝鄉逐村宣導活動」，

在這些活動中，民眾比較是處於被動的地位，可說是政府「教育」的對象，而非政府「請益」的對象。這種「由上而下」的活動進行方式，難以產生正向互動的誘因。

在邀請人員參與方面，雖然許多活動名義上是「開放報名」，但在必須「事先向主辦機關報名」，而主辦機關又有人數審核權的狀況下，像「核能四廠安全監督委員會」，於第四屆第三次起開放民眾旁聽，但僅限十名且需事先報名。這般程序設計，很容易引起外界對於主事機關會議操控的質疑。

3. 發言與回應過於形式化

從大多數核安溝通活動的紀錄中，民眾發言的機會不是很多，發言人數也有限制。更重要的是，通常是活動進行到後半段，先讓專家與活動人員說完該說的話，才讓民眾來針對專家的說詞發言；以民國 101 年 9 月所舉辦的「核一廠用過核子燃料乾式貯存設施興建品質第 5 次民間參與訪查活動會議」為例，會議流程是先由政府人員進行簡報後，再留下時間予專家和與會之里長進行討論。雖然這些公聽會能即時針對民眾的意見與疑問作回應，但專家與活動人員在回應的過程中，似乎有過度強調數據與科學事實的問題，而這些科學數據有時並不是民眾真正關切的問題。民眾在有限的時間下，為了陳述他們的疑慮，被迫提出似乎不在會議議題議程內的問題，導致會議變得各說各話。

另外，從發言內容中亦可得知民眾的質疑似乎與政府專家的陳述並無太多交集，雙方可能因為立場分明，或是著眼點的方法不同，因此會有「選擇性不回應」對方的問題，或是「答非所問」的情形發生。

(二) 實質面

研究團隊將目前公開在網路上的核能安全相關會議會議紀錄¹仔細閱讀後，決定採用有完整逐字稿的會議紀錄進行風險溝通的內容分析。這些有逐字稿的會議紀錄包括：「放射性廢棄物管理政策評估說明書」公聽會、「核能安全公聽會」、「核二廠 1 號機反應爐支撐裙錨定螺栓斷裂事件」聽證會、「台灣電力股份有限公司核二廠用過核子燃料乾式貯存設施建造執照申請案」聽證會等。

本研究以 Renn (2003; 2005; 2008; 2010) 的風險爭議與風險溝通三種層次、溝通時必要的元素以及評估溝通是否成功的標準為編碼基礎，針對上述幾份會議紀錄內容反覆閱讀並進行初步編碼。

研究團隊有系統的分析幾份會議紀錄後，有以下幾點發現：

¹ 共計有「核能一廠環境影響評估相關計畫審查結論監督委員會」會議紀錄、「核能四廠環境保護監督委員會」會議紀錄、「核電廠緊急事故整備與應變」公聽會會議紀錄、物管局關於放射性廢棄物之公眾溝通的會議紀錄、「核能安全公聽會」、「核二廠 1 號機反應爐支撐裙錨定螺栓斷裂事件」聽證會、「台灣電力股份有限公司核二廠用過核子燃料乾式貯存設施建造執照申請案」聽證會等資料。

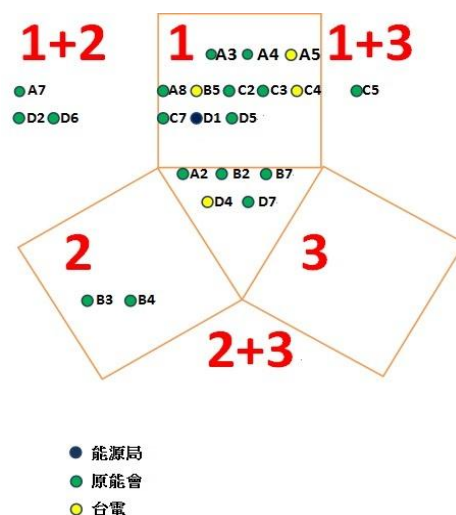
1. 在會議設計為統問統答的形式下，有很多提出的問題，在後來回答時沒有被回答到。
2. 公聽會沒有中立的第三方主持人的設計，常由主席擔任主持人。但主席的身分又通常是相關單位之主管，因此在會議進行時，會發生民眾質詢議題有關之單位主管，其身分同時是理當保持中立且維持會議進行的主席這樣的狀況。在沒有中立主持人的設計下，不僅易有爭點的整理，有時質詢與回應之間的緊張狀況，也無法被好好的處理，而導致主席陷入窘境。
3. 從不同的公聽會或聽證會會議記錄發現，許多內容與對話都在第一層次的衝突上，也就是焦點集中在「專業技術與科學事實證據」的面向。
4. 民間團體代表也要求在開會前不僅是將 PPT 簡報檔上網，更應該將整個技術分析報告上網，期待相關單位更透明地呈現完整的分析報告，公開供大眾查詢（第一層次：資訊公開）。
5. 在各會議中民間團體也針對事業單位與管制單位處理核能安全議題時，是否以被普遍同意的處理危機程序來處理。例如：問題診斷與分析過程並沒有透明地呈現整個分析過程所用的方法，可能間接導致無法信任簡報的內容或質疑管制單位監管的能力。
6. 在溝通對話過程中，與會的地方居民發言中雖有提及科學技術（第一層次）的部份，然而此非地方民眾的重點，其主要關注的是地方民眾對於核能政策的影響力有無（第三層次）、或是對管制單位監管能力及方式的質疑（第二層次）。然而，當人民對此做出反應，得到的回應多半是介紹現有的處理措施和技術（第一層次），以此作為人民安全的擔保，但第二層次或第三層次的回應卻鮮少被回應。因此，常會出現民眾的提問與質疑，與政府專家的陳述並無太多交集，或是只回答了前半段、後半段避而未答，各說各話的狀況也時有發生。

三、「如何與公眾溝通」工作坊之發見

為能更深入了解核能科技官僚在實務風險溝通中所處理的議題層次，本研究運用 Renn (2003; 2010) 的風險溝通三層次概念，設計出賓士型的象限，象限的三個區塊各自代表了風險溝通的三個層級。期待透過實際參與和與會者之間的互動討論、以及在象限中移動的情形，了解科技官僚面對不同的議題，所採取的溝通層次的變遷。

在風險溝通議題的探討，本研究共提出了四個問題，以下擬針對問題做個別的分析。

(一)個人與民眾溝通都在處理哪一類的問題？

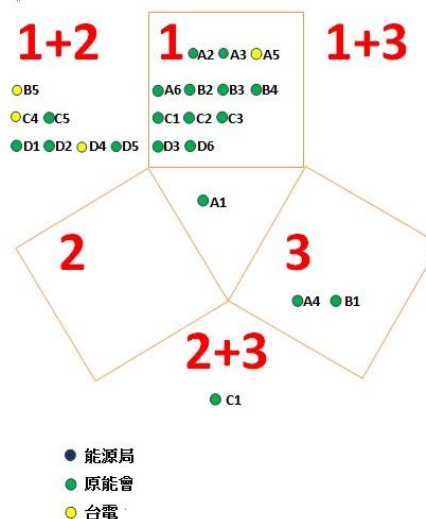


圖一

第一個問題：「個人與民眾溝通都在處理哪一類的問題？」象限圖分佈如圖一。

由圖一我們可以看出，有一半的參與者 (11/22) 認為個人和民眾在核安溝通是以「第一層次」的溝通為主，換言之，是聚焦於專業技術層面的溝通。其次，有 5 位參與者認為個人和民眾在核安溝通層次是在「三個層次」都有 (見圖一中間倒三角部分)。在第二層次「管制經驗與是否信任管制單位」的部分，亦有 5 位的個人溝通經驗是在這個層次 (包含 2 位在第二象限，與三位選第一和第二象限)。我們看到，在第三層次「價值與世界觀」部分，在參與者個人與民眾溝通時較少是處理這一層次的問題。另外，3/4 的來自台電的參與者認為個人和民眾在核安溝通是在「第一層次」的溝通。

(二)過去到現在，原能會與民眾溝通都在處理哪一類的問題？



圖二

工作坊參與者在第二問題：「過去到現在，原能會與民眾溝通都在處理哪一類的問題？」象限圖分佈如圖二。

由圖二，我們可以看出，有超過一半的工作坊參與者 (12/23) 認為原能會與民眾的溝

通是在「第一層次」的溝通為主，換言之，是聚焦於專業技術層面的溝通。其次，有 7 位參與者（約三分之一弱的比例）認為原能會和民眾在核安溝通層次是在「第一與第二層次都有」（見圖一中 1+2 部分），亦即同時有專業技術層面的（第一層此）與第二層次「管制經驗與是否信任管制單位」的部分。

一個有趣的對比是：圖二在「象限 2」與「象限 2+3」的部分有 3 位，比較圖一，在問到個人經驗時，沒有任何參與者認為與民眾的溝通經驗是在「象限 2」與「象限 2+3」的部分。這 3 位中僅有一位（原能會的 A4），兩個問題都回答了，並在第二題的問題中認為原能會是處理第二與第三層次的問題。B1 和 C1 因沒有參與第一題的討論，故無法看出有何變化。

(三) 過去到現在，台電（經濟部）與民眾溝通都在處理哪一類的問題？

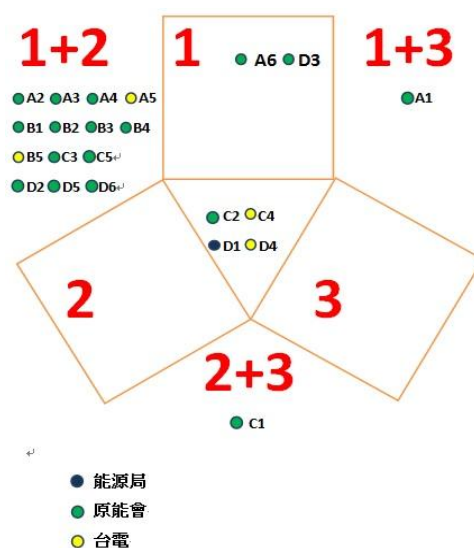


圖三

在第三問題：「過去到現在，台電（經濟部）與民眾溝通都在處理哪一類的問題？」象限圖分佈如圖三。

由圖三我們可以看出，整體而言有超過一半的工作坊參與者（14/22）認為台電（經濟部）與民眾的溝通是同時在「第一與第二個層次」的溝通為主，換言之，是同時要處理專業技術層面的溝通以及管制/管理經驗是否能被公眾信任的問題。這和圖一多數聚焦在技術層面的現象相較，可以反映出工作坊參與者看到結構層面與所處組織所面臨核安溝通的挑戰。

(四) 過去到現在，行政院與民眾溝通都在處理哪一類的問題？



圖四

第四問題：「過去到現在，行政院與民眾溝通都在處理哪一類的問題？」象限圖分佈如圖四。

由圖四我們可以看出，參與人數在這個問題討論減少了幾位，只有 19 位回應。整體而言，多數參與者（12/19）認為行政院與民眾溝通多集中於第二與第三層次的溝通。另外也相當多人認為行政院與人民溝通是在「三個層次」上都有（見圖五中間倒三角部分）。也許因為來自台電的參與者必須在第一線上和民眾在技術面上溝通，3 位自台電的參與者（A5, C4, D4）都指出第一層面的技術的溝通部分，相對來說，原能會的參與者在這題的看法上較少人會覺得行政院有技術面上溝通的考量，或者不認為過去到現在行政院與民眾溝通有碰觸技術面的問題。

III. 結果與討論

綜合以上分析結果，我們整理以下研究發現，分成風險溝通之程序面和實質面詳述之：

一、程序面向

(一) 資訊公開透明仍顯不足

目前政府已經在溝通管道多元化有所著力，然而，本研究發現，在溝通資訊的揭露與宣傳上，政府仍有若干缺失需要補足，應再投注更多努力，使民眾可以透過更平常親民的管道，得到活動資訊。

此外，研究團隊發現，許多溝通活動/會議缺乏完整的會議紀錄，民眾因而難以透過資訊公開的過程，瞭解會議討論內容與政策走向的影響。這樣的資訊揭露過程，不僅在公開透明上有所不足，也無助於拓展與民眾之間互信基礎，以及深化公眾討論目的。

(二) 現有溝通機制缺乏平等互動的參與程序，難以形塑實質對話

本研究發現，目前關於核事故處理的溝通活動型態，大致是以「資訊宣導」以及「問卷調查」的方式，這樣的活動方式，偏向「知識教育」的溝通方式；也就是說，在這些溝通活

動中，民眾多是處於被動的地位，且訊息的流動方向是單一的「由上而下」方式，導致難以出現平等互動的可能性。同時，因為溝通機制中欠缺民眾參與的機制，難以將民眾意見反饋到政策制定過程。

另外，因為溝通方式偏向知識宣導的教育性質，常會牽涉到大量的科學知識與術語，加深了溝通的門檻，讓一般民眾了解不易；再者，純以科學技術作為溝通的主要內容，無法回應民眾在其他價值層次的提問，降低實質對話的可能性。

(三) 被定型的角色與傳統溝通模式難以建立公眾信任

本研究發現，在制度設計上，原能會作為管制的角色，本應是扮演核能政策中的公正第三方；不過，台灣核電政策發展過程中的一些歷史因素，以及過去原能會呈現之管制經驗與監督透明度等公眾印象，並未贏得民眾的信心，因此無法以公正第三方的方式服眾。

再者，本研究在整理資料過程中發現，公部門在溝通過程中，言詞會出現過度保證的情形，反而會讓民眾質疑政府的誠信，或是予人一種政府過度傲慢、輕視風險的不佳觀感，而難以在民眾間建立起對政府的信任感。

(四) 政府內部在溝通協調與權責執掌上分配不佳

除了上述溝通機制的安排與設定需要加強，本研究亦發現，政府內部部門間有關核能安全風險溝通的協調與職務劃分，沒能有效重整，亦使溝通事倍功半。由於核能安全風險溝通牽涉的層面相當多元而廣泛，除了原能會與台電分別執掌監督與營運外，也事涉勞動部、衛福部、經濟部轄下其他機關、環保署、內政部、原民會、地方政府等相關部門，機關間應積極協調分工。民眾不一定能清楚政府間的執掌分工，把現行的核安溝通，全部歸責於原能會及台電公司，所能涵蓋的議題相當有限，難以增強風險溝通層次內涵與回應。

二、實質面向

(一) 許多溝通的內容與對話都在第一層次的衝突上，但許多民眾關心的焦點（第二、三層次的問題）未被有效回應。

本研究發現，在溝通對話過程中，與會的地方居民雖會提及科學技術（第一層次）的部份，但其主要關注的更是地方民眾對於核能政策的影響力有無，或是核廢料處置的世代正義問題（第三層次）、或是對管制單位監管能力及方式的質疑、或是核能政策中不公平的風險與利益分配（第二層次）。然而，這類問題得到的回應，卻多半是介紹現有的處理措施和技術（第一層次），以此作為人民安全的擔保。略過了第二層次或第三層次的回應，帶出了民眾的提問與質疑，與政府專家的陳述並無太多交集的窘境。

(二) 第一線的溝通者層級不高授權不夠，使得應答內容侷限在第一層次。

透過工作坊、實務觀察和訪談，本研究發現，第一線的溝通者會因為他們的職務層級不夠高，當民眾提及較敏感的、涉及第二、三層次的問題（如核電廠到底安不安全、爆炸了我們老百姓要怎麼辦），在未被上級長官充分授權下，只能改以「實事求是」的方式，採用科學證據或實務現況（第一層次）等不會出錯的「事實」論述來回答民眾問題。因而形成了「失焦」和「答非所問」的情形。

(三) 負責核能安全溝通之科技官僚將溝通當成政策宣導的場域。

本研究發現，主導核安溝通的科技官僚似乎將「溝通」和「政策宣傳」混為一談。科技官僚認為，「溝通」是如何更有效的傳達政府資訊、政策和核能知識，以及如何克服外在環境因素的干擾、給予民眾正確的概念，將溝通視為「教育」或政策宣導。如同幾個國外案例所指出，這種由上而下的溝通模式，是將「說服」及「影響」作為目的，與溝通中重要的「相互理解」元素有所悖離，一些先進國家更已經改變了這種傳統的溝通思考，朝向納入更多利害相關人的互動式討論，使政策制訂可以納入更多價值與人民權益的思考。

IV. 結論

本研究針對結論所列舉之困境與肇因，分別從程序面向及實質面向，提出改善風險溝通的建議如下：

一、程序面向之改善—實踐公眾溝通與公民參與

- (一) 建立有來有往的對話模式，在進行持續性溝通時，應思考每次溝通會議有無回應到前次會議中民眾所提出的想法。
- (二) 鼓勵新觀點的產出，並隨時接受新觀點的加入，遇到僵局時也願意提出新的整合性論點。
- (三) 開放溝通管道，除了實踐資訊公開透明外，亦應給予公眾更多的政策參與管道、及建立更多元的溝通場合。
- (四) 建立有實質意義的公民參與，讓各方利害關係人都能平等且充分地參與公眾討論，政府代表和一般民眾的討論地位亦需力求平等，而非上對下的不對等討論。同時，對於較為弱勢的利害相關人，應提供足夠的資源，協助他們能和其他強勢團體並駕齊驅地進行論述。
- (五) 以集體產出決策成果為目標，會後的結論應該達到一定的整體性，盡量融入各方的想法與考量，並嘗試歸納出集體之共識，而非強迫接受特定目標。再者，風險溝通推動者，應致力將會議所得到的共同結論化為具體成果，同時，每次開會時都應該把上次會議結論的執行成效檢視一遍，避免淪為空談而影響各方參與的意願。
- (六) 由於互信在初期頗為薄弱，因此，本研究建議，可邀請形象較為中立、有社會名望的第三人，擔任會議的仲裁者或主持者，如知名學者、中立媒體或是立場較無爭議之社會賢達，有助於凝聚民間信任。

(七)強化民眾對政府的信任，風險溝通推動者應避免造假扭曲資料、或僅提供單一角度、片面的資訊，同時，也不應過份承諾或自誇，誠心地講述自己理解的事實。

二、實質內涵的再思考－強化風險溝通的實質意涵與治理效能

風險溝通的最終目標，並非是說服公眾風險不存在或不足以為懼，更非藉機宣傳政府能妥善管理風險；而是以協助利害關係人和公眾了解在風險基礎上決策的理由為主要目的，期待能在溝通過程中，達到一個具平衡判斷、能反映出不同利害關係人之利益和價值觀的社會共識。

為使風險溝通有效，本研究團隊認為，不僅需要認識到風險爭議的不同層次，更需了解社會中各種不同文化類型群體的風險知覺。因此，風險溝通過程與內容必須考量社會中不同文化類型社會群體的利益和關切來設計。如果溝通者沒有進一步地思考對方提問背後所代表的意涵，僅從表面的文辭敷衍了事，或從科學事實上進行冗長論述，都會造成無法與關心的公民所關切的提問對焦，進而引起民眾的反感與不信任，反而出現風險溝通功敗垂成之窘境。因此，風險溝通推動者，必須增進風險溝通的實質內涵，促使風險溝通效能的最大化。

參考文獻

- [1] BERR. (2008). The Future of Nuclear Power: Analysis of Consultation Responses. Retrieved June 29, 2013, from <http://webarchive.nationalarchives.gov.uk/20100512151554/nuclearpower2007.direct.gov.uk/>
- [2] Baum, Andrew., Gatchel, Robert. J. and Schaeffer Marco. A. (1983). Emotional, behavioral, and psychological effects of chronic stress at Three Miles Island. *Journal of Consulting and Psychology*, 51(4), 565-572.
- [3] Chess, Caron., Dietz, Thomas. and Shannon, Margaret. (1998). Who should deliberate when? *Human Ecology Review*, 5(1), 60-68.
- [4] Covello, Vincent. T., Slovic, Paul. and von Winterfeldt, Detlof. (1986). Risk communication: A review of the literature. *Risk Abstracts*, 3(4), 172-182.
- [5] Douglas, Mary. and Wildavsky, Aaron. (1982). *Risk and Culture*. Berkeley: University of California Press.
- [6] Elam, Mark., Sonervd, Linda. and Sundqvist, Goran. (2013). Demonstrating safety – validating new build: the enduring template of Swedish nuclear waste management. *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 7(3), 197-210.
- [7] Elam, Mark., Lidberg, Maria., Soneryd, Linda. and Sundqvist, Goran. (2009). *Demonstration and Dialogue: Mediation in Swedish Nuclear Waste Management*. Score Working Paper. Stockholm: Stockholm Center for Organizational Research.
- [8] Elam, Mark. and Sundqvist, Goran. (2009). *The Swedish KBS Project: A Last Word in Nuclear Fuel Safety Prepares to Conquer the World?* *Journal of Risk Research*, 12(7-8), 969-988.
- [9] Elster Jon. (1997). *The Market and the Forum: Three Varieties of Political Theory Contemporary Political Philosophy: An Anthology*(pp. 128-142). Oxford: Blackwell.
- [10] Hanberger Anders., (2012). Dialogue as Nuclear Waste Management Policy: Can a Swedish transparency Programme Legitimise a Final Decision on Spent Nuclear Fuel? *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 9(3), 181-196.
- [11] Johnson Genevieve. J., (2009). Deliberative Democratic Practices in Canada: An Analysis of Institutional Empowerment in Three Cases. *Canadian Journal of Political Science*, 42(3), 679-703.
- [12] Johnson Genevieve. J., (2007). The Discourse of Democracy in Canadian Nuclear Waste Management Policy. *Policy Sciences*, 40(2), 79-99.
- [13] Morgan, M. Granger., Fishhoff, Barich., Bostrom, Ann., and Atmann, Cynthia. J. (2002). *Risk Communication. A Mental Model Approach*. Cambridge: Cambridge University Press.
- [14] NWMO. (2005). *Choosing a Way Forward: The Future Management of Canada's Used Nuclear Fuel-Final Study*. Retrieved May 31, 2013, from http://www.nwmo.ca/uploads_managed/MediaFiles/341_NWMO_Final_Study_Nov_2005_E.pdf
- [15] National Research Council (1989). *Improving risk communication*. Washington, D.C.: National Academy Press.
- [16] OECD (2002). *Guidance Document on Risk Communication for Chemical Risk Management*. Paris: OECD.
- [17] Parkinson John, Bavister-Gould Alex. (2009). Judging Macro-Deliberative Quality. Paper presented to the Democracy and the Deliberative Society Conference. The King's Manor, University of York.
- [18] Rayner, Steve. (1990). *Risk in Cultural Perspective: Acting Under Uncertainty*. Dordrecht: Kluwer.
- [19] Renn, Ortwin. and Levine, Debra. (1991). Trust and Credibility in Risk Communication. in: R. Kasperson and P. J. Stallen (eds.), *Communicating risk to the public*. Dordrecht: Kluwer, pp. 175-218.
- [20] Renn, Ortwin. (2003). Hormesis and risk communication. *Human & Environmental Toxicology*, 22, 3-24.
- [21] Renn, Ortwin. (2005). Risk perception and communication: Lessons for the Food and Food Packaging Industry. Food additives and contaminants,

- 22(10), 1061-1071.
- [22] Renn, Ortwin. (2008) Risk Governance: Coping with Uncertainty in a Complex World. Earthscan.
 - [23] Renn, Ortwin. (2010). Risk communication: Insights and Requirements for Designing Successful Communication Programs on Health and Environmental Hazards. in: R. L. Heath and H. D. O'Hair (eds.). Handbook of risk and crisis communication, New York: Routledge, pp. 80-98.
 - [24] Schwarz, Michiel. and Thompson, Michael. (1990). Divided We Stand: Redefining Politics, Technology, and Social Choice. Philadelphia: University of Pennsylvania Press.
 - [25] Strauss, Hannah. (2010). Involving the Finnish public in nuclear facility licensing: participatory democracy and industrial bias. *Journal of Integrative Environmental Sciences*, 7(3), 211-228.
 - [26] Thompson, Michael., Ellis, Richard., and Wildavsky, Aaron. (1990). *Cultural Theory*. Boulder, CO: Westview.
 - [27] Williams, Melissa. (2000). The Uneasy Alliance of Group Representation and Deliberative Democracy. In Will. Kymlicka & Wayne. Norman (Eds.), *Citizenship in diverse societies* (pp. 124–152). Oxford: Oxford University Press.
 - [28] Wildavsky, Aaron., and Dake, Karl. (1990). Theories of risk perception: Who fears what and why? *Daedalus*, 119, 41-60.
 - [29] Yang Kaifeng. (2006). Trust and Citizen Involvement Decisions: Trust in Citizens, Trust in Institutions, and Propensity to Trust. *Administration & Society*. 38(5), 573-595.