行政院原子能委員會

委託研究報告

「110年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全 評估及相關特性分析」

受委託單位:國立清華大學

計畫主持人:許文勝

報告日期:中華民國 110年11月

行政院原子能委員會

委託研究計畫期末報告

計畫名稱:

110 年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全 評估及相關特性分析

子項計畫一:

核電廠除役期間除污策略和技術彙整

案號: AEC110030006L

執行單位: 國立清華大學

- 計畫主持人: 許文勝
- 共同主持人: 歐陽汎怡、林明緯、王本誠、 李進得

報告日期:中華民國 110年11月

摘要

除役核電廠在進行廠房、系統及設備的拆除作業前,通常規劃先進行除污,將其受 污染表層及下方的污染物予以移除並隔離,以降低或消除公眾與作業人員的輻射曝露。 本年度計畫以除污組件類型分類,蒐集研讀除役過程之封閉系統與開放系統的典型除污 工作項目所採取之除污技術,以及相關的廢棄物的處理考量,另亦持續蒐集國外核電廠 除役及除污的最新案例與進度,以提供管制單位有關除污技術相關建議與決策參考,並 強化管制能量。由於雷射除污技術具有產生少量二次廢棄物、易於控制除污面積與搭配 自動化操作等優點,被視為是極具潛力的新一代除污技術。因此本計劃研討整理當今核 電廠雷射除污技術的運作原理、操作特性、除污成效與系統規格等重要特性,使彙整成 果作為管制雷射除污技術的參考。再者,本計畫進行電化學方法應用於沸水式反應器環 境下金屬表面的除污技術之開發研究,提昇國內的除役技術研究能量,並培養未來電廠

Abstract

Subproject-1 : Decontamination strategy and technical integration during decommissioning of nuclear power plant

The structures, systems and components of nuclear power plant under decommission, in general, need to be decontaminated before dismantling, which is to remove the radioactive material from them. The purpose of decontamination is to reduce the dose exposure of workers during the decommission process. In order to better understand the applicability of various decontamination processes and technologies, one object of this project is to collect and integrate the typical decontamination work items employing in the closed systems and open systems of the decommissioning process, as well as the considerations of waste managetment. The latest cases and progress of decontamination of foreign nuclear power plants are summerized to provide relevant recommendations and decision-making references for decontamination technologies. In addition, laser decontamination techniques exhibit high positional for achieving the next-generation nuclear decontamination with low generation of secondary waste, ease of controlling the cleaning area, and the capacity of automation. Therefore, the first task of this project is to investigate the fundamentals, operating characteristics, performances, and specifications of laser decontamination systems under the goal of contributing to the associated regulation in Taiwan. Moreover, this project carries out the development and research of electrochemical methods applied to the decontamination technology of metal surface in the environment of boiling water reactor, enhancing the research capability of domestic decommissioning technology, and cultivating the talents in the decommissioning technology related to nuclear power plants in the future. The results of research are to provide recommendations and regulatory decisions related to decontamination technology for AEC.

| 摘要 | i |
|----------------------------------|-------|
| 目錄 | iii |
| 圖目錄 | ix |
| 表目錄 | xxiv |
| 一、探究於金屬與混凝土表面進行雷射除污之技術應用及其限制,和各國 | 除役核電廠 |
| 之相關應用實例 | 1 |
| (一) 前言 | 1 |
| (二) 高功率雷射系統與射束基本參數 | 1 |
| (三)雷射除污原理 | 9 |
| 3.1 雷射材料汽化與剝蝕原理 | 9 |
| 3.2 金屬表面除污操作 [9] | 16 |
| 3.3 混凝土表面除污操作[10] | 23 |
| (四)雷射除污放射性金屬表面與混凝土表面之成效 | 24 |
| 4.1 金屬除污實驗結果 | 24 |
| 4.1.1 雷射金屬除污實驗結果 | 24 |
| 4.1.2 雷射金屬除污下產生顆粒及碎片之特性與集塵處理 | 46 |
| 4.1.3 雷射金屬除污操作限制 | 55 |
| 4.2 雷射除污放射性混凝土表面之成效 | 57 |
| 4.2.1 雷射混凝土除污實驗結果 | 60 |
| 4.2.2 雷射混凝土除污產生的粉塵顆粒特性與集成處理 | 83 |
| 4.2.3 雷射混凝土除污操作限制 | 85 |
| (五)雷射安全規範[35] | |
| 5.1.1 眼睛損傷及安全規範 | 86 |
| 5.1.2 皮膚損傷及安全規範 | |

| 5.1.3 雷射操作要求90 |
|--|
| 5.1.4 安全保護91 |
| (六)各國發展現況摘要 |
| 6.1 日本雷射除污技術發展95 |
| 6.1.1 應用於福島第一核電廠法蘭型儲水塔之雷射除污技術與粉塵抑制方法96 |
| 6.1.2 應用於核電廠除污之新型雷射除污技術與遠端操控除污機器人的開發102 |
| 6.1.3 CoolLaser 之雷射對金屬表面放射性物質的除污與粉塵處理技術107 |
| 6.2 德國雷射除污技術發展109 |
| 6.3 韓國雷射除污技術發展112 |
| 6.4 法國雷射除污技術發展113 |
| 6.5 美國雷射除污技術發展115 |
| 6.6 英國雷射除污技術發展117 |
| 6.7 中國雷射除污技術發展118 |
| 6.8 台灣雷射除污技術發展120 |
| (七)現有除污系統122 |
| 7.1 日本除污系統—LDD 公司 (株式会社 LDD)122 |
| 7.2 德國 cleanLASER 之雷射除污系統介紹124 |
| (八)結語 |
| 參考文獻 |
| 二、評析除役技術之典型除污工作項目(封閉式系統與開放式系統)所採取之除污技術 |
| 和廢棄物管理之考量,研析各國除役核電廠之相關應用實例132 |
| (一) 前言[1]132 |
| (二) 執行方法及研究步驟[1]132 |
| (三) 典型除污工作項目(封閉式系統與開放式系統)所採取之除污技術133 |
| 3.1 封閉式系統與開放式系統定義[3]134 |

| | 3.2 金屬除污技術分類 | 136 |
|-----|------------------------------------|-----|
| | 3.2.1 封閉式系統與開放式系統的除污技術彙整 | 137 |
| | 3.2.2 選擇適當的全系統除污指引[3] | 140 |
| 2 | 3.3 化學技術 | 142 |
| | 3.3.1 多步驟技術 | 142 |
| | 3.3.2 單一步驟技術 | 142 |
| | 3.4 電化學技術 | 146 |
| | 3.4.1 電解抛光(Electrolytic polishing) | 146 |
| | 3.4.2 磷酸技術(phosphoric acid) | 146 |
| | 3.4.3 硝酸技術(nitric acid) | 147 |
| | 3.4.4 在 HNO3 環境中的滾筒式陽極溶解技術 | 147 |
| | 3.4.5 硫酸技術(sulfuric acid) | 148 |
| | 3.4.6 硫酸鈉技術(sodium sulfate) | 148 |
| | 3.4.7 ELDECON 技術 | 149 |
| | 3.5 其它化學技術 | 149 |
| | 3.5.1 泡沫除污 | 149 |
| | 3.5.2 化學凝膠 | 150 |
| | 3.5.3 除污膏 | 150 |
| | 3.6 物理技術 | 150 |
| | 3.6.1 在超音波槽內清洗 | 150 |
| | 3.6.2 CO2 乾冰噴砂 | 151 |
| | 3.6.3 噴冰(Ice blasting) | 151 |
| | 3.6.4 磨料除污 | 151 |
| | 3.7 實施除污技術所獲取的經驗 | 152 |
| (四) | 廢棄物管理考量[8、9] | 153 |

| 4.1 國際放射性廢棄物分類簡介 | 153 |
|--------------------------------------|-----|
| 4.2 廢棄物管理策略 | 155 |
| 4.3 廢棄物管理安排[8] | 156 |
| 4.4 廢棄物的分類及其處理方式 | 157 |
| 4.4.1 液體廢棄物的處理與調節 | 157 |
| 4.4.2 固體廢棄物的處理及調節 | 158 |
| 4.4.3 氣體廢棄物的處理及調節 | 158 |
| 4.5 二次廢棄物的處理注意事項 | 158 |
| 4.6 减少二次廢棄物的產生 | 158 |
| (五) 國外電廠除污案例 | 160 |
| 5.1 德國 Stade(PWR)核電廠的全系統除污經驗-1[8] | 160 |
| 5.1.1 前言 | 160 |
| 5.1.2 為何要在除役前使用 CORD 系列的除污概念進行 FSD? | 160 |
| 5.1.3 Framatome FSD 在 Stade 核電廠的應用概念 | 160 |
| 5.1.4 HP /CORD®UV 概念 | 161 |
| 5.1.5 使用 HP / CORD UV 對系統進行全系統除污的參考 | 161 |
| 5.1.6 結果 | 162 |
| 5.1.7 結論 | 164 |
| 5.2 德國 Stade(PWR)核電廠的全系統除污經驗-2[12] | 165 |
| 5.2.1 簡介 | 165 |
| 5.2.2 CORD 系列概念 | 165 |
| 5.2.3 HP/CORD [®] UV 概念 | 166 |
| 5.2.4 FSD 的應用參考 | 167 |
| 5.2.5 Stade 核電廠的 FSD 經驗 | 168 |
| 5.2.6 結論 | 172 |

| | 5.3 德國 Obrigheim(PWR)核電廠的全系統除污經驗[13] | 173 |
|----|---|-----|
| | 5.3.1 簡介 | 173 |
| | 5.3.2 HP/CORD® UV 概念 | 173 |
| | 5.3.3 採用 HP/CORD UV 搭配 AMDA 技術的 FSD 參考資料 | 174 |
| | 5.3.4 德國 Obrigheim 壓水式反應器的 FSD | 175 |
| | 5.3.5 成果 | 177 |
| | 5.3.6 結論 | 179 |
| | 5.4 德國 ISAR 1 (KKI1)核電廠 1 號機除役前的全系統除污經驗[14] | 179 |
| | 5.5 韓國 Kori 1 號機(PWR)核電廠的全系統除污經驗[16] | 186 |
| | 5.5.1 前言 | 186 |
| | 5.5.2 國外案例分析 | 187 |
| | 5.5.3 Kori 1 號機全系統除污實施策略 | 189 |
| | 5.5.4 結論與建議 | 191 |
| | 5.6 日本 JPDR (Japan Power Demonstration Reactor, 日本動力展示反應器)[7] | 192 |
| | 5.7 濱岡核電廠1號機及2號機的系統除污案例(Hamaoka Nuclear Power | |
| | Station)[7 、 17] | 193 |
| | 5.7.1 第一階段主要工作(拆除作業準備期間) | 194 |
| | 5.7.2 第二階段主要工作(反應器區外圍設備拆除並移除期間) | 194 |
| | 5.7.3 第三階段主要工作(反應器區拆除並移除期間) | 195 |
| | 5.7.4 第四階段主要工作(拆除並移除廠房期間) | 195 |
| | 5.7.5 總結 | 197 |
| | 5.8 AREVA 除污技術應用實例[14] | 197 |
| (ナ | 5) 研究成果及管制相關建議 | 201 |
| | 6.1 除污技術方面 | 201 |
| | 6.2 廢棄物管理方面 | 201 |

| 6.3 國外電廠經驗回饋方面 | 202 |
|---|-------|
| 参考文獻 | 203 |
| 三、電化學技術應用於沸水式反應器(Boiling Water Reactor, BWR)環境下 | 不銹鋼表面 |
| 的除污研究開發。 | 205 |
| (一) 前言 | 205 |
| (二) 研究方法 | 206 |
| 2.1 試片 | 206 |
| 2.2 試片熱處理 | 207 |
| 2.3 預長氧化層 | 207 |
| 2.3.1 高溫氧化層 | 207 |
| 2.3.2 電鍍氧化層 | 207 |
| 2.4 電化學除污槽設置 | 208 |
| 2.5 試片表面分析 | 209 |
| 2.6 重量與厚度分析 | 209 |
| (三) 實驗結果與討論 | 211 |
| 3.1 試片氧化層表面分析 | 211 |
| 3.1.1 氧化層結構 | 211 |
| 3.1.2 氧化層厚度分析 | 217 |
| 3.2 電解測試 | 221 |
| 3.2.1 磷酸水溶液濃度對除污效率之影響 | 221 |
| 3.2.2 不同溫度對除污效率之影響 | 225 |
| 3.2.3 磷酸水溶液濃度對碳鋼除污效率之影響 | 229 |
| (四) 結論 | 231 |
| 参考文獻 | 233 |

圖目錄

圖 1.1.1 (a) 雷射共振腔內部結構。(b) 光子藉受激發射增加之示意圖[4]......2 圖 1.1.2 (a)連續波(CW)與脈衝(pulsed)雷射波形比較。(b) Q 開關雷射運作示意圖[6]。3 圖 1.1.3 (a)快速軸流式二氧化碳雷射之架構示意圖。(b)準分子雷射之架構示意圖。[4]4 圖 1.1.4 (a) Q 開關 Nd:YAG 雷射架構[4]。(b)光纖雷射與雙包層光纖示意圖[6]。.......5 圖 1.1.5 (a) 主振盪器功率放大器架構的 Q 開關 Nd: YAG 雷射示意圖。(b) 藉由多條光纖 組合多個雷射光源成為高功率/能量光束之示意圖。[4]......6 圖 1.1.6 (a)以高斯光束之 TEM00 模態自共振腔輸出之雷射光束與其橫向強度分佈。(b) 圖 1.1.7 (a)透鏡或(b)凹面球面鏡成像或聚焦光束之示意圖[4]。(c)光束聚焦參數[4]。(d) 使用圓柱透鏡整形雷射光束為線聚焦於物體表面之示意圖[7]。...... 圖 1.1.8 (a)透鏡組準直儀結構圖(b)光纖耦合示意圖與單模階變折射係數光纖結構。[4]9 圖 1.1.9 (a)常用金屬材料之反射率隨光波長變化圖 (b)常用金屬材料對 1.06 微米雷射光 之反射率隨溫度光變化圖 (c)不鏽鋼對 1.06 微米雷射光之反射率隨入射角變化圖。[4] 圖 1.1.10 (a) 雷射光加熱材料之模型示意圖[4]。(b)以不同頗面分佈之雷射光照射材料之 温度分佈差異比較[4]。(c)以 2kW 雷射光照射 En8 鋼材之温度隨時間變化模擬結果 [4]。(d)數發雷射脈衝照射材料之表面溫度隨時變模擬結果[7]。(e)使用時間波型為方波 (實線)、高斯波形(點虛線)與三角波(虛線)之雷射脈衝照射材料之表面溫度隨時變模擬 結果比較[7]。.....12 圖 1.1.11 (a) 隨雷射功率增加而使材料熔化、沸騰至產生電漿之示意圖。(b) 雷射使材料 圖 1.1.12 (a) 雷射光加熱材料表面而於汽化區間之溫度分佈示意圖, KL 代表克努森 層,基材與克努森層間的汽化邊界之溫度為Ts,克努森層邊界之溫度為Tv。(b)圖(a)中

汽化邊界溫度 Ts 與克努森層邊界擴展速度 V 隨時間之變化。(c)參照圖(b)而材料於雷射 照射下汽化邊界溫度 Ts 達到穩態值 Tst之時間 tv 與克努森層邊界之擴展達到穩態值 Vst 之時間 tst 與穩態溫度 Tst 之關係圖。[7].....14 圖 1.1.13 (a)以雷射照射覆有薄膜層之基材時相應的結構與溫度示意圖[7]。選擇性表面 汽化操作等溫示意圖:(b.1)膜層汽化溫度 T_1 吸收率 $\beta=0.8$ 與基材熔化溫度 T_2 吸收率 $\beta=0.2$, (b.2) 膜層汽化温度 T₃ 吸收率 $\beta=0.5$ 與基材熔化温度 T₄ 吸收率 $\beta=0.4$, (b.3) 膜層 汽化温度 T₅ 吸收率 β=0.6 與基材熔化温度 T₆ 吸收率 β=0.8 [4]。......15 圖 1.1.14 (a)使用高能脈衝雷射產生強震波使材料表面散裂之雷射剝蝕示意圖[4]。(b)以 脈衝雷射照射鋼材時可被清除的鋼材厚度與雷射強度之實驗結果比較[8]。......16 圖 1.1.15 愛達荷國家實驗室試驗雷射除污金屬試片所設計使用的集塵腔與雷射光束、 透鏡、試片及高效濾網入口之示意圖。[9]......17 圖 1.1.16 愛達荷國家實驗室使用實際放射性污染試片 REALCON 2 由氟化氪準分子雷 射除污之貝他與加馬活度隨照時間變化之結果。[9]......22 圖 1.1.18 日本 JAERI (a)應用於混凝土除污之 Nd:YAG 雷射系統與相關遙控和粉塵收集 裝置示意圖。(b)使用 600 瓦雷射功率以玻璃化機制執行混凝土除污之結果。[10]......24 圖 1.1.19 法國 CEA 測試雷射除污不繡鋼試片成效所準備的(a)含銪污染氧化層試片輝 圖 1.1.20 法國 CEA 對含銷氧化層試片執行雷射除污後的輝光放電質譜結果:(a)能量 密度 5.0 J/cm²,掃描速度每秒 488 毫米。(b)能量密度 12.4 J/cm²,掃描速度每秒 488 毫 圖 1.1.21 法國 CEA 觀察不同能量密度下單個雷射脈衝後的剝蝕孔徑(a) 能量密度 3.30 圖 1.1.22 法國 CEA 對鈷污染試片執行雷射除污後的輝光放電光譜儀結果。[11].......27 圖 1.1.23 法國 CEA 團隊在 2020 年發表雷射除污測試使用光纖雷射裝置示意圖。[12]

圖 1.1.24 CEA 在 2020 年執行雷射除污使用金屬試片之氧化層元素隨深度分佈圖輝光 圖 1.1.25 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片之除污效率隨試片每單位面積累積能量的 圖 1.1.26 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片之氧化層元素隨深度分佈曲線(a)能量密度 為 5 J/cm², 掃描速度為每秒 976 毫米。(b)能量密度為 5 J/cm², 掃描速度為每秒 488 毫米。(c)能量密度為 12.4 J/cm², 掃描速度為每秒 488 毫米。(d)能量密度為 12.4 J/cm²,掃描速度為每秒 244 毫米。[12]......29 圖 1.1.27 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片設定處理 2 和處理 3 的參數所收集的粒子 圖 1.1.28 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片之 Nd:YAG 雷射裝置示意圖。[13]......31 圖 1.1.29 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片實驗(a)能量密度對剩餘污染物比例的影響示意圖。(b)雷射發數對剩餘污染物 圖 1.1.30 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子污染的 304 不鏽鋼試片之 Nd:YAG 雷射 圖 1.1.31 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子污染的 304 不鏽鋼試片實驗(a)使用不同 能量密度的雷射發數與剩餘銫離子比例示意圖。(b)使用不同能量密度的雷射發數與剝 蝕深度示意圖。(c) CsCl+KCl、CsCl+KNO3與CsCl 試片的雷射發數與剩餘銫離子比 圖 1.1.32 中國核動力研究設計院除污金屬試片實驗(a) 雷射功率影響剝蝕深度示意圖。 (b)脈衝時寬影響剝蝕深度示意圖。(c)掃描速度影響剝蝕深度示意圖。(d) 焦點位移影 圖 1.1.33 中國核動力研究設計院使用光纖雷射在核電廠進行除污試驗(a)除污前的樣品

| 照片。(b)除污後的樣品照片。[15]3 | 6 |
|--|---|
| 圖 1.1.34 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片之 Nd:YAG 雷射 | |
| 裝置示意圖。[16] | 8 |
| 圖 1.1.35 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片實驗(a)銫離子剩 | |
| 餘比例隨雷射發數變化示意圖。(b)鈷離子剩餘比例隨雷射發數變化示意圖。[16]3 | 9 |
| 圖 1.1.36 德勒斯登工業大學試驗雷射除污金屬試片所設計使用的雷射剝蝕測試裝置之 | |
| 示意圖。[17]4 | 0 |
| 圖 1.1.37 德勒斯登工業大學使用 105 奈秒的脈衝時寬試驗雷射能量密度和單位面積累 | |
| 積能量之雷射剝蝕深度結果。[17]4 | 1 |
| 圖 1.1.38 德勒斯登工業大學觀察雷射處理鐵素體鋼試片後表面晶粒結構變化之橫截面 | |
| 圖(a)單位面積累積能量 5152 J/cm ² ,脈衝時寬 105 奈秒。(b) 單位面積累積能量 5675 | |
| J/cm ² ,脈衝時寬 230 奈秒。[17]4 | 1 |
| 圖 1.1.39 金屬表面、塗層與污染物分佈示意圖(a)污染物沉積於金屬表層上。(b)污染物 | 1 |
| 沉積於塗層之上。(c)污染物同時位於塗層上與金屬表層上。[17]4 | 2 |
| 圖 1.1.40 德勒斯登工業大學觀察塗漆碳鋼(左)和雷射處理金屬表面後(右)之橫截面圖。 | |
| [17]4 | 2 |
| 圖 1.1.41 德勒斯登工業大學試驗雷射處理後的金屬試片表面。[17]4 | 3 |
| 圖 1.1.42 德勒斯登工業大學試驗在 105 奈秒、160 奈秒及 230 奈秒脈衝時寬下對金屬 | |
| 試片塗層的剝蝕深度結果。[17]4 | 3 |
| 圖 1.1.43 維吉尼亞大學試驗雷射剝蝕清除塗層之掃描電子顯微照片(a)四次掃描。(b)十 | |
| 次掃描。[18]4 | 4 |
| 圖 1.1.44 維吉尼亞大學試驗在固定掃描速度為每秒 6.4 毫米下雷射剝蝕噴砂板後的掃 | |
| 描電子顯微照片(a)一次掃描。(b)二次掃描。(c)三次掃描。(d)四次掃描。[18]4 | 5 |
| 圖 1.1.45 維吉尼亞大學試驗雷射除污試片後熔化區域深度之橫截面掃描電子顯微照 | |
| 片。[18] | 5 |

圖 1.1.46 日本 JAEA 使用 雷射功率為 0.9、1.8 和 2.7 千瓦照射不鏽鋼試片的光學顯微 鏡圖像(a) 0.9 千瓦。(b)對應 0.9 千瓦之試片橫截面圖。(c) 1.8 千瓦。(d)對應 1.8 千瓦之 試片橫截面圖。(e) 2.7 千瓦。(f)對應 2.7 千瓦之試片橫截面圖。(g) 2.7 千瓦。(h)對應 2.7 千瓦之試片橫截面圖。[19]......47 圖 1.1.47 日本 JAEA 使用高速相機觀察陰影圖和自發射圖像之實驗裝置示意圖。[19] 圖 1.1.48 日本 JAEA 使用雷射照射不繡鋼後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒和碎片 圖 1.1.49 日本 JAEA 試驗雷射照射不鏽鋼試片之陰影圖及自發射圖像(a)雷射開始照射 後1毫秒之陰影圖。(b)雷射開始照射後5毫秒之陰影圖。(c)雷射開始照射後10毫秒 之陰影圖。(d)雷射開始照射後 11 毫秒之陰影圖。(e) 雷射開始照射後 1 毫秒之自發射 影像。(f)雷射開始照射後5毫秒之自發射影像。(g)雷射開始照射後10毫秒之自發射 圖 1.1.50 日本 JAEA 使用雷射照射氧化鋁後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒和碎片 圖 1.1.51 日本 JAEA 試驗雷射照射氧化鋁試片之陰影圖及自發射圖像(a)雷射開始照射 後1毫秒之陰影圖。(b)雷射開始照射後5毫秒之陰影圖。(c)雷射開始照射後10毫秒 之陰影圖。(d)雷射開始照射後 11 毫秒之陰影圖。(e) 雷射開始照射後 1 毫秒之自發射 影像。(f)雷射開始照射後5毫秒之自發射影像。(g)雷射開始照射後10毫秒之自發射 圖 1.1.52 日本 JAEA 使用電子顯微鏡觀察不鏽鋼試片產生之細顆粒影像。[19]........50 圖 1.1.53 日本 JAEA 使用電子顯微鏡 TM4000 plus 觀察氧化鋁試片的顆粒照片(a)各種 類型的噴射粒子。(b)單個細顆粒。[19]......50 圖 1.1.55 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不

鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析使用之雷射剝蝕顆粒收集實驗裝置示意圖。[20] 圖 1.1.56 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析實驗之剝蝕後在玻璃纖維高效率粒子空氣濾器中 收集的顆粒掃描電子顯微鏡圖像(a)顯示碎形結構中的團聚物。(b)顯示附著在過濾纖維 圖 1.1 57 韓國 KAERI 對不同放射性核種污染的 304 不鏽鋼試片進行雷射剝蝕除污過程 中產生的粒子尺寸分佈的測量結果(a)剝蝕純 304 不鏽鋼試片與鈷、銫、銪及鈰污染 304 不鏽鋼試片之粒子尺寸分佈圖。(b)剝蝕鈷和銫污染 304 不鏽鋼試片產生的粒子尺 寸分佈與雷射能量密度的關係示意圖。(c)剝蝕銪和鈰污染 304 不鏽鋼試片產生的粒子 尺寸分佈與雷射能量密度的關係示意圖。(d)剝蝕含有鉀鹽的絕污染試片產生的粒子尺 圖 1.1.58 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片實驗,使用高效微粒空氣過濾器去除雷射剝蝕過程中產生的顆粒結果(a)高效 微粒空氣過濾器對雷射剝蝕產生的顆粒與測試用的 NaCl 顆粒的收集效率。(b) 高效微 粒空氣過濾器對純 304 不鏽鋼試片、水溶性與非水溶性放射性核種污染的 304 不鏽鋼 試片進行雷射剝蝕產生的顆粒收集效率。[20]......55 圖 1.1.60 (a)-(d)應用於水下去除生物膜的雷射清潔系統示意圖與(e)-(f)除污結果[22, 23]。(g)比較於空氣下與於水下五公分深度使用脈衝光纖雷射清潔金屬試片上原油膜之 圖 1.1.61 英國雪菲爾大學團隊以 177 W/cm² 的光纖雷射除污(a)OPC (b)灰泥混凝土表面 圖 1.1.62 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污玄武岩混凝 上表面(a)除污過程中。(b)40 秒除污後。[30]......58

| 圖 1.1.63 德國 KTE 核電廠所使用的塗層。[31]59 |) |
|--|---|
| 圖 1.1.64 雷射除污於具高分子塗層的混凝土表面示意圖。[25] |) |
| 圖 1.1.65 德國德勒斯登工業大學團隊實驗中所使用的塗層厚度與每單位長度的能量輸 | |
| 入關係。[25] |) |
| 圖 1.1.66 英國雪菲爾大學團隊實驗中灰泥樣品雷射除污後 DTA/TGA 分析曲線。[27]61 | 1 |
| 圖 1.1.67 日本 JAEA 以不同強度的準連續波光纖雷射以掃描速度每秒 5 毫米、脈衝時 | |
| 寬10毫秒及重複頻率10赫茲照射混凝土表面所產生的剝落行為及溫度分布。[30]64 | 1 |
| 圖 1.1.68 日本 JAEA 實驗中以尖峰功率 1.6 千瓦、脈衝時寬 10 毫秒、重複頻率 10 赫 | |
| 茲及光束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土的熱成像儀圖片。[30] | 1 |
| 圖 1.1.69 德國德勒斯登工業大學以不同功率的光纖雷射對(a)塗有塗層(b)未塗塗層的混 | |
| 凝土試片除污後所得到的粒度分布。[31]65 | 5 |
| 圖 1.1.70 日本 JAEA 使用的實驗裝置示意圖(a)雷射向上裝置。(b)雷射向下裝置。[30] | |
| | 5 |
| 圖 1.1.71 日本 JAEA 以不同(a)雷射照射方向及(b)入射角度下,以脈衝時寬 10 毫秒、 | |
| 重複頻率 10 赫茲及光束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深 | |
| 度。[30] | 5 |
| 圖 1.1.72 日本 JAEA 在不同(a)尖峰功率及(b)重複頻率下,以脈衝時寬 10 毫秒及光束 | |
| 直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深度。[30] | 7 |
| 圖 1.1.73 日本 JAEA 在不同照射時長下,以脈衝時寬 10 毫秒、重複頻率 10 赫茲及光 | |
| 束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深度。[30]67 | 7 |
| 圖 1.1.74 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm ² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 | |
| 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 40 秒後的表面起伏變化。[27]7 | 1 |
| 圖 1.1.75 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm ² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 | |
| 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 40 秒後的試片表面變化。[27]7 | 1 |
| 圖 1.1.76 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm ² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 | |

圖 1.1.77 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 10 秒後的表面溫度變化。[27]..72 圖 1.1.78 英國雪菲爾大學團隊於實驗中所使用的(a)PFA+OPC (b)OPC 樣品其 XRD 分 圖 1.1.79 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對不同存放條件 下的灰泥試片除污 40 秒後的體積變化率。[28]......75 圖 1.1.80 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對不同水膠比及 圖 1.1.81 英國雪菲爾大學團隊不同水膠比及不同老化時間的飽和 OPC 經雷射能量強度 圖 1.1.82 英國雪菲爾大學團隊比較不同水膠比及不同老化時間的飽和 OPC(左)飽和 OPC+PFA(中)及飽和灰泥(右)經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的體積變化 圖 1.1.83 英國雪菲爾大學團隊研究中不同老化時間的飽和石灰岩混凝土(左)及飽和玄 武岩混凝土(右)經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的體積變化率及表面溫度 圖 1.1.84 英國雪菲爾大學團隊研究中歷經老化 30 個月後不同種類的乾燥及飽和混凝土 經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的表面溫度變化。[32]......80 圖 1.1.85 英國雪菲爾大學團隊研究中不同種類的混凝土其初始水分飽和度對於雷射除 圖 1.1.87 德國德勒斯登工業大學團隊研究中所使用的雷射除污遠端操作配有過濾系統 圖 1.1.88 德國德勒斯登工業大學團隊使用 6 千瓦光纖雷射對試片除污 4 秒的(a)溫度變

| 化 (b)粉塵顆粒濃度及尺寸 (c)粉塵顆粒數量變化。[31] | 83 |
|---|----------|
| 圖 1.1.89 日本 JAEA 於混凝土除污實驗時產生的(a)細粉塵顆粒與(b)粗粉塵顆粒 | 的電子 |
| 顯微鏡影像圖。[19] | 84 |
| 圖 1.1.90 美國阿岡國家實驗室以 Nd:YAG 雷射對混凝土除污後得到的粒徑分布 | ° [33] |
| | 85 |
| 圖 1.1.91 不同波長下光通過角膜、前房液和晶狀體的傳輸能力。[35] | 87 |
| 圖 1.1.92 主射束或直射光束的束內觀察之示意圖。[35] | 92 |
| 圖 1.1.93 觀察漫反射的擴展源之示意圖。[35] | 93 |
| 圖 1.1.94 一種市售雷射防護眼鏡隨波長的光密度變化。[35] | 95 |
| 圖 1.1.95 福島第一核電廠法蘭型儲水塔與熔接行儲水塔。[36] | 96 |
| 圖 1.1.96 福島第一核電廠法蘭型儲水塔拆除作業步驟。[37] | 97 |
| 圖 1.1.97 東京電力公司使用之傳統塗裝法與雷射除污方法示意圖。[37] | 97 |
| 圖 1.1.98 福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污裝置示意圖。[37] | 98 |
| 圖 1.1.99 福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污照射方向示意圖。[37] | 99 |
| 圖 1.1.100 (a) 雷射除污裝置對水槽內部除污情況 (b)(c)從遠端可監視與控制的系 | 、統 (d) |
| 除污前後的效果,水槽內表面劑量約減少7成,在後續進行解體時工作人員輻 | 射劑量 |
| 可減少約3成。[36] | 99 |
| 圖 1.1.101 福島第一核電廠 E 區 A5 法蘭型儲水塔。[37] | 100 |
| 圖 1.1.102 福島第一核電廠法蘭型儲水塔未進行雷射除污時,換氣後5天內放身 | 寸性物質 |
| 濃度變化。[37] | 100 |
| 圖 1.1.103 福島第一核電廠法蘭型儲水塔進行雷射除污後,換氣後 10 天內放射 | 性物質 |
| 濃度變化。[37] | 101 |
| 圖 1.1.104 福島第一核電廠法蘭型儲水塔外部粉塵濃度偵測示意與現場照。[37] | 102 |
| 圖 1.1.105 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司研發之新型雷射除污方法說明圖。 | [38].103 |
| 圖 1.1.106 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司研發之新型雷射除污機系統結構。 | [39].104 |

| 圖 1.1.107 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司新型雷射除污機之除污步驟。[39]105 |
|---|
| 圖 1.1.108 機器手臂與雷射除染機分別在三維度上的驅動範圍,加裝機器手臂後, 雷射 |
| 移動範圍可從 10 公分×10 公分×2 公分增加至 2 公尺×2 公尺×1 公尺。[38]105 |
| 圖 1.1.109 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司共同研發之遠端操控雷射除污機器人(a)實 |
| 體圖 (b)結構說明圖。[41]106 |
| 圖 1.1.110 新型雷射除污機對一次冷卻水系統之不鏽鋼切片除污效果。[40]106 |
| 圖 1.1.111 新型雷射除污機進行除污後,利用鍺偵檢器測量雷射除污前後之鈷-60 能 |
| 譜。[42]107 |
| 圖 1.1.112 CoolLaser 雷射除污機之圓形螺旋狀雷射射束示意圖。[44]108 |
| 圖 1.1.113 CoolLaser 雷射除污系統(a)除污作業時儀器與工作人員配置圖[44] (b)雷射共 |
| 振腔 (c)雷射照射頭。[45]108 |
| 圖 1.1.114(a)粉塵吸引設備與粉塵處理裝置架設圖 (b)粉塵吸引設備 (c)粉塵處理裝置。 |
| [45]109 |
| 圖 1.1.115 CoolLaser (a) 雷射除污測試對象與(b)除污次數與污染物測定值之變化。[45] |
| |
| 圖 1.1.116 德國德勒斯登工業大學使用的雷射除污系統 VORATOR。[30]110 |
| 圖 1.1.117 德國德勒斯登工業大學在使用不同雷射使用參數下對含有塗層混凝土的除污 |
| 狀況。[25]111 |
| 圖 1.1.118 德國德勒斯登工業大學(a)雷射除污系統之操縱器(b)雷射除污系統的操縱器 |
| 與雷射裝置。[47]112 |
| 圖 1.1.119 法國 CEA 的 Aspilaser 應用在 Cadarache 的濃縮鈾處理製造廠中除污混凝土 |
| 牆上的塗層。[49]114 |
| 圖 1.1.120 法國 CEA 的 Aspilaser 應用於 CÉLIMÈNE 設施除污鋼表面塗層。[49]115 |
| 圖 1.1.121 美國阿岡國家實驗室使用的(a)除污裝置示意圖及實驗中(b)除污後混凝土表 |
| 面的電子顯微鏡影像。[50]116 |

圖 1.1.122 美國雷射學會雷射除污混凝土後的剝蝕效率與線性除污重疊率的關係。[12] 圖 1.1.123 (a)中國核動力研究設計院所發展的雷射除污測試實驗站。(b)控制雷射光束 掃描除污表面示意圖。(c)使用顯微鏡量測除污後材料表面深度變化示意圖。[15]....119 圖 1.1.124 (a)中國核動力研究設計院所發展的自動化雷射除污設備。(b)設備除污效率 與除污深度關係圖。(c)設備除污電能消耗與除污深度關係圖。[15]120 圖 1.1.125 (a)國立清華大學原子科學技術發展中心主導發展的小型化雷射除污系統。 (b)雷射線聚焦光線於除污腔內照射金屬試片示意圖。(c)手持式雷射除污設備示意圖。 圖 1.1.126 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統於實驗所準備的放 射性不鏽鋼、黃銅、鐵與鋁金屬試片。[51]......122 圖 1.1.127 德國 cleanLASER 公司之 CL300 雷射與相關雷射除污系統設計。124 圖 1.2.5 蒸汽產生器 SGs 1-4 的除污因子......163 圖 1.2.6 SG 4 除污後的接觸劑量率163 圖 1.2.7 除污後在有管板的 SG 通道表面164 圖 1.2.8 除污前後的環境劑量率(無屏蔽測量)......164 圖 1.2.9 HP/CORD UV 應用邏輯167 圖 1.2.10 Stade 核電廠 FSD 的流徑圖170 圖 1.2.11 除污後帶有管板的蒸汽產生器水道蓋......171 圖 1.2.12 帶有環狀線的蒸汽產生器水道蓋......172

| 圖 | 1.2.13 HP/CORD UV 和 NP 技術之廢棄物比較 | 172 |
|---|--|-----|
| 圖 | 1.2. 14 HP/CORD UV - HP/CORD D UV 的原理 | 174 |
| 圖 | 1.2. 15 Obrigheim 核電廠 FSD 的除污流徑 | 176 |
| 圖 | 1.2.16 SG 除污前後的空間劑量率比較 | 178 |
| 圖 | 1.2.17 SG 通道頭除污前後的劑量率 | 178 |
| 圖 | 1.2. 18 CORD 系列移除污染層的主要差異 | 180 |
| 圖 | 1.2.19 ISAR 1 號機除污系統示意圖 | 181 |
| 圖 | 1.2. 20 ISAR 1 號機除污系統表面積與體積 | 181 |
| 圖 | 1.2. 21 ISAR 1 號機蒸汽乾燥器(除污前) | 182 |
| 圖 | 1.2.22 蒸汽乾燥器除污前/後的劑量率比較 | 182 |
| 圖 | 1.2.23 ISAR 1 號機汽水分離器(除污前) | 183 |
| 圖 | 1.2. 24 ISAR 1 號機汽水分離器(除污後) | 183 |
| 圖 | 1.2.25 除污前/後的金屬表面 | 185 |
| 圖 | 1.2.26 ISAR 1 號機爐水淨化系統冷卻器內部(除污前/後) | 186 |
| 圖 | 1.2. 27 Maine Yankee 蜘蛛狀噴嘴組件(Nozzle Dam Spider Assembly) | 188 |
| 圖 | 1.2.28 金屬及放射性移除量 | 189 |
| 圖 | 1.2. 29 Kori 1 號機全系統除污的最佳淨化率 | 191 |
| 圖 | 1.2. 30 JPDR 全系統除污及其除污因子示意圖 | 192 |
| 圖 | 1.2.31 濱岡核電廠除役計畫時程 | 193 |
| 圖 | 1.2.32 濱岡核電廠除役第一階段系統除污範圍 | 194 |
| 圖 | 1.2.33 濱岡核電廠除役第二階段拆除範圍(1/2) | 195 |
| 圖 | 1.2.34 濱岡核電廠除役第二階段拆除範圍(2/2) | 195 |
| 圖 | 1.2.35 濱岡核電廠第一及第二階段除污系統示意圖 | 196 |
| 圖 | 1.2.36 再循環系統的一次側主迴路系統除污範例 | 197 |
| 圖 | 1.2.37 第一階段系統除污成效 | 197 |

| 圖 1.3.1 異材銲件製備示意圖 | |
|---|-----------|
| 圖 1.3.2 高溫爐管裝置示意圖 | 207 |
| 圖 1.3.3 電鍍配置圖 | 208 |
| 圖 1.3.4 電化學除污槽配置圖 | 209 |
| 圖 1.3.5 厚度計規格 | 210 |
| 圖 1.3.6 厚度測量位置(a)304 不銹鋼/碳鋼 (b)異材銲件 | 210 |
| 圖 1.3.7 高溫氧化 304 不銹鋼表面形貌 (a)大範圍區域(低倍率);(b)局部顆 | 粒區域(高倍 |
| 率);(c)局部平坦區域(高倍率);(a1~c3)各成分分佈情形 | 212 |
| 圖 1.3.8 電鍍氧化層 304 不銹鋼之表面形貌(a)大範圍區域(低倍率);(b)局音 | 『顆粒區域(高 |
| 倍率);(b1 與 b2)氧與鐵元素分佈情形 | 213 |
| 圖 1.3.9 複合氧化層 304 不銹鋼之表面形貌 (a)大範圍區域(低倍率);(b)小 | 範圍區域(高 |
| 倍率);(b1 與 b2)氧與鐵元素分佈情形 | 213 |
| 圖 1.3. 10 304 不銹鋼拉曼分析結果 | 214 |
| 圖 1.3. 11 304 不銹鋼 XRD 分析結果 | 214 |
| 圖 1.3.12 高溫氧化異材銲件之 82 合金區域表面形貌 (a)大範圍區域(低倍 | ·率);(b)局部 |
| 顆粒區域(高倍率);(b1~b5)各元素分佈情形 | 215 |
| 圖 1.3.13 82 合金拉曼分析結果 | 216 |
| 圖 1.3. 14 82 合金 XRD 分析結果 | 216 |
| 圖 1.3.15 碳鋼高溫氧化層拉曼分析結果 | 216 |
| 圖 1.3.16 碳鋼的電鍍氧化層拉曼分析結果 | 216 |
| 圖 1.3.17 高溫氧化 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度 | 表示(c~f)各 |
| 元素分佈情形 | 217 |
| 圖 1.3.18 電鍍氧化層 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚 | 度表示(c~f) |
| 各元素分佈情形 | 218 |
| 圖 1.3.19 複合氧化層 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚 | 度表示(c~f) |

| 各元素分佈情形 |
|--|
| 圖 1.3.20 高溫氧化異材銲件(模擬基材本身腐蝕的氧化層)之橫截面(a)SEM 影像(b) |
| SEM 影像含厚度表示(c~f)各元素分佈情形 |
| 圖 1.3.21 電鍍氧化層異材銲件 (模擬沉積氧化層)之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像 |
| 含厚度表示(c~f)各元素分佈情形220 |
| 圖 1.3.22 複合氧化層異材銲件之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f)各 |
| 元素分佈情形 |
| 圖 1.3.23 碳鋼高溫氧化層之橫截面 SEM 影像 |
| 圖 1.3. 24 碳鋼電鍍氧化層之橫截面 SEM 影像 |
| 圖 1.3. 25 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解 304 不銹鋼基材之重量變化 |
| 圖 1.3. 26 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解電鍍氧化層 304 不銹鋼之重量變化222 |
| 圖 1.3. 27 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化 304 不銹鋼之重量變化 |
| 圖 1.3. 28 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層結構 304 不銹鋼之重量變化.223 |
| 圖 1.3. 29 電解後之表面形貌(a) 40wt%磷酸水溶液/304 不銹鋼基材 (b) 60wt%磷酸水溶 |
| 液/304 不銹鋼基材(c) 40wt%磷酸水溶液/高溫氧化 304 不銹鋼(d) 60wt%磷酸水溶液/高 |
| 溫氧化 304 不銹鋼(e) 40wt%磷酸水溶液電解/電鍍氧化層 304 不銹鋼 (f) 60wt%磷酸水 |
| 溶液/電鍍氧化層之 304 不銹鋼 (g) 40wt%磷酸水溶液/複合氧化層結構 304 不銹鋼(h) |
| 60wt%磷酸水溶液/複合氧化層結構 304 不銹鋼 |
| 圖 1.3.30 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件基材之厚度變化226 |
| 圖 1.3.31 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解電鍍氧化層異材銲件之厚度變化 |
| |
| 圖 1.3.32 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化異材銲件之厚度變化227 |
| 圖 1.3.33 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層異材銲件之厚度變化 |
| |
| 圖 1.3.34 溫度 60 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件基材之厚度變化228 |

| 圖 | 1.3. | 35 | 溫度 60 | ℃下, | 40 wt | %磷酸7 | 水溶液 | 電解 | 複合氧 | 氧化層 | 異材銲 | 件之厚 | 度變化. | .228 |
|---|------|------|---------|-------|-------|------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-------|------|
| 圖 | 1.3. | 36 | 40 wt%與 | 60 wt | %磷酸 | 水溶液 | 電解码 | 炭鋼之 | 重量 | 變化 | | | | .229 |
| 圖 | 1.3. | 37 | 40 wt%與 | 60 wt | %磷酸 | 水溶液 | 電解電 | 電鍍氧 | 化層 | 碳鋼之 | 重量變 | 化 | ••••• | .230 |
| 圖 | 1.3. | 38 - | 40 wt%與 | 60 wt | %磷酸 | 水溶液 | 電解高 | 高溫氧 | 化碳 | 鋼之重 | 量變化 | | ••••• | .230 |
| 圖 | 1.3. | 39 | 40 wt%與 | 60 wt | %磷酸 | 水溶液 | 電解着 | 复合氧 | 化層 | 結構碳 | 鋼之重 | 量變化 | īī | .230 |

表目錄

| 表 1.1.1 適用於雷射除污的高功率雷射所用之活性介質與相應泵浦源 | 3 |
|---|---|
| 表 1.1.2 適用於除污操作的高功率雷射系統之光束與脈衝參數[4] | 6 |
| 表 1.1.3 主要金屬材料之折射係數n與吸收係數k [4]10 | 0 |
| 表 1.1.4 愛達荷國家實驗室執行雷射除污金屬試片時所使用的雷射系統重要參數比較 | |
| 與相關聚焦於試片時之光強度參數[9]1 | 7 |
| 表 1.1.5 愛達荷國家實驗室執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[9]1 | 8 |
| 表 1.1.6 愛達荷國家實驗室使用二氧化碳雷射除污兩個 SIMCON 1 模擬試片之 X 射線 | |
| 螢光分析結果[9]12 | 8 |
| 表 1.1.7 愛達荷國家實驗室使用 Q 開闢 Nd:YAG 雷射脈衝與氟化氪準分子雷射脈衝照 | |
| 射下量測之重量逸失[9]1 | 9 |
| 表 1.1.8 愛達荷國家實驗室使用 Q 開闢 Nd:YAG 雷射除污 SIMCON 1 與 SIMCON 2 模 | |
| 擬試片的 X 射線螢光分析結果[9]20 | 0 |
| 表 1.1.9 愛達荷國家實驗室使用使用氟化氪準分子脈衝雷射除污 SIMCON 1 與 | |
| SIMCON 2 模擬試片的 X 射線螢光分析結果[9]2 | 1 |
| 表 1.1.10 愛達荷國家實驗室使用準分子雷射與 Nd:YAG 雷射對面積為 4 平方公尺(m ²) | |
| 的水箱表面進行除污的時間估算[9]22 | 2 |
| 表 1.1.11 法國 CEA 執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[11]2 | 5 |
| 表 1.1.12 法國 CEA 在 2020 年執行雷射除污金屬試片所使用的雷射系統重要參數[12] | |
| | 7 |
| 表 1.1.13 法國 CEA 在 2020 年執行雷射除污使用 304L 不鏽鋼試片之化學成分組成[12] | |
| | 8 |
| 表 1.1.14 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片設定四組具不同能量密度、掃描速度、空 | |
| 間重疊、總雷射能量之參數與其相對的除污效率[12]29 | 9 |
| 表 1.1.15 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片透過感應耦合電漿光發射光譜儀得到雷射 | |

| 剝蝕顆粒的組成分析[12] |
|---|
| 表 1.1.16 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 |
| 鏽鋼試片時所使用的雷射系統重要參數[13]31 |
| 表 1.1.17 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 |
| 鏽鋼試片之化學成分組成[13] |
| 表 1.1.18 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子污染的 304 不鏽鋼試片時所使用的雷射 |
| 系統重要參數[14] |
| 表 1.1.19 韓國 KAERI 執行雷射除污銫離子污染的 304 不鏽鋼試片之化學成分組成[14] |
| |
| 表 1.1.20 中國核動力研究設計院執行雷射除污金屬試片使用的雷射系統重要參數[15] |
| |
| 表 1.1.21 中國核動力研究設計院使用光纖雷射在核電廠進行除污試驗之結果[15]36 |
| 表 1.1.22 雷射應用於不鏽鋼表面除污成效統整表 |
| 表 1.1.23 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片時所使用的雷射 |
| 系統重要參數[16] |
| 表 1.1.24 韓國 KAERI 執行雷射除污銫離子和鈷離子污染的鋁試片之化學成分組成[16] |
| |
| 表 1.1.25 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片於優化條件下的除 |
| 污性能[16] |
| 表 1.1.26 雷射應用於鋁表面除污成效統整表 |
| 表 1.1.27 德勒斯登工業大學執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[17]39 |
| 表 1.1.28 德勒斯登工業大學試驗鐵磁體鋼、奧氏體鋼及鋅之剝蝕閾值[17]41 |
| 表 1.1.29 德勒斯登工業大學試驗金屬試片於除污前後的濃度與除污因子[17]43 |
| 表 1.1.30 維吉尼亞大學執行雷射剝蝕清除塗層時所使用的基本參數[18]44 |
| 表 1.1.31 統整雷射除污後表面結構與微觀變化之探討46 |

| 表 1.1.32 日本 JAEA 試驗雷射除污金屬試片後產生顆粒及碎片特性所使用的 | 试片基本 |
|--|---------|
| 參數[19] | 47 |
| 表 1.1.33 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染 | 的 304 不 |
| 鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析所使用的雷射系統重要參數[20] | |
| 表 1.1.34 英國雪菲爾大學團隊在不同混凝土材料升溫後溫度、質量變化及熱及 | 反應[27] |
| | 61 |
| 表 1.1.35 日本 JAEA 實驗中所使用的準連續光纖雷射參數[30] | 63 |
| 表 1.1.36 日本 JAEA 實驗中所使用的混凝土主要成分[30] | 63 |
| 表 1.1.37 英國雪菲爾大學所使用的雷射重要參數[27,28,32] | 68 |
| 表 1.1.38 英國雪菲爾大學 2015 年實驗中不同種類的混凝土混製成分[27] | 68 |
| 表 1.1.39 英國雪菲爾大學 2015 年實驗中各混凝土試片的保存條件[27] | 69 |
| 表 1.1.40 英國雪菲爾大學中不同混凝土的材料性質[27] | 73 |
| 表 1.1.41 英國雪菲爾大學於實驗中不同存放條件下的灰泥試片[28] | 74 |
| 表 1.1.42 英國雪菲爾大學實驗中不同水膠比及細骨材含量的灰泥試片成分[28] |]76 |
| 表 1.1.43 英國雪菲爾大學團隊於不同水膠比及細骨材含量的灰泥試片的材料性 | 生質[28] |
| | 77 |
| 表 1.1.44 德國德勒斯登工業大學所使用的重要雷射參數[31] | 81 |
| 表 1.1.45 DIN 1045 規格的石英岩混凝土成分比例[31] | 81 |
| 表 1.1.46 日本 JAEA 使用的重混凝土樣品性質[19] | 84 |
| 表 1.1.47 連續波、一般脈衝及 Q 開關脈衝雷射之視網膜損傷閾值[35] | 87 |
| 表 1.1.48 直接眼睛曝露的最大許可曝露量[35] | |
| 表 1.1.49 成年白人前臂屈肌表面之最小反應量[35] | 89 |
| 表 1.1.50 針對雷射的皮膚最大許可曝露量[35] | 89 |
| 表 1.1.51 不同連續波雷射器下眼睛與皮膚的最大許可曝露量統整表[35] | 89 |
| 表 1.1.52 雷射類別之危險潛力[35] | 90 |

| 表1 | .1.53 | 不同雷射類別的工程規範和標示規範[35] |)1 |
|-----|-------|--|-----|
| 表1 | .1.54 | 反射材料及反射係數[35]9 |)2 |
| 表1 | .1.55 | 在雷射射束下進行擴展源之眼部的最大許可曝露量(曝露時間大於 0.7 秒)[35] |] |
| | ••••• | ç |)4 |
| 表1 | .1.56 | 福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污裝置之規格與雷射參數。[37] |)8 |
| 表1 | .1.57 | 遠端操控雷射除污機器人對金屬與混凝土之除污效率[41]10 |)6 |
| 表1 | .1.58 | 摘要德國文獻中除污相關結果 [25,47,48]11 | 2 |
| 表 1 | .1.59 | 美國阿岡實驗室研究團隊所使用之雷射參數[50]11 | .6 |
| 表 1 | .1.60 | 美國阿岡國家實驗室使用雷射除污混凝土之除污效率比較。11 | .6 |
| 表 1 | .1.61 | 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統於不同多邊形鏡轉 | 計 |
| 速下 | ,線 | 聚脈衝掃描片之參數變化[51]12 | 21 |
| 表 1 | .1.62 | 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統對不鏽鋼、黃銅、 | |
| 鐵與 | 鋁金 | 屬試片的除污成果比較[51]12 | 2 |
| 表 1 | .1.63 | LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之雷射參數與製造商12 | 23 |
| 表 1 | .1.64 | LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之掃描振鏡(Galvano scanner) | |
| 製造 | 商 | | 23 |
| 表 1 | .1.65 | LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之機器人系統部件製造商12 | 23 |
| 表 1 | .1.66 | LDD 公司開發之新型雷射除污技術對 SUS 鋼材與混凝土之除污效率12 | 23 |
| 表 1 | .1.67 | 德國 cleanLASER 公司之 CL300 雷射系統概略規格12 | 24 |
| 表 1 | .1.68 | 現有主要應用於核電廠除污技術之比較[39]12 | 27 |
| 表 1 | .2. 1 | 除污技術選取細部考量因素13 | \$4 |
| 表 1 | .2. 2 | 除污技術應用於金屬組件的系統分類[4]13 | ;7 |
| 表 1 | .2. 3 | 適用於封閉式系統的除污技術13 | 8 |
| 表 1 | .2. 4 | 國外核電廠應用 FSD 技術產生的二次廢棄物數量14 | 1 |
| 表 1 | .2. 5 | Woergassen 電廠的 CORD 除污效果14 | 1 |

| 表 | 1.2. | 6 | 最常採用的多步驟技術 | .142 |
|---|------|----|------------------------------|-------|
| 表 | 1.2. | 7 | 氟化物技術 | .144 |
| 表 | 1.2. | 8 | 氟硝酸(fluoronitric)溶液的處理技術 | .145 |
| 表 | 1.2. | 9 | 放射性廢棄物分類 | .154 |
| 表 | 1.2. | 10 | 除役前的全系統除污 | .161 |
| 表 | 1.2. | 11 | Stade 核電廠的 FSD 結果 | .162 |
| 表 | 1.2. | 12 | CORD 系列最重要的除污應用彙整 | .166 |
| 表 | 1.2. | 13 | Framatome 應用在運轉中核電廠的全系統除污案例 | .167 |
| 表 | 1.2. | 14 | Framatome 應用在核電廠除役前的全系統除污案例 | .168 |
| 表 | 1.2. | 15 | Stade 核電廠應用 FSD 的作業範圍劃分 | .169 |
| 表 | 1.2. | 16 | 除污流徑的材料及表面特性 | .170 |
| 表 | 1.2. | 17 | Stade 核電廠的 FSD 結果 | .171 |
| 表 | 1.2. | 18 | 電廠拆除前應用 AREVA NPs 的 FSD 參考資料 | .174 |
| 表 | 1.2. | 19 | 除污流徑的材料及表面特性 | .176 |
| 表 | 1.2. | 20 | Obrigheim 核電廠的 FSD 結果 | .177 |
| 表 | 1.2. | 21 | 汽水分離器除污前、後之接觸劑量率比較表 | .184 |
| 表 | 1.2. | 22 | KKI1核電廠全系統除污成果 | .184 |
| 表 | 1.2. | 23 | CORD P 應用前/後的塗抹試驗數據比對 | .185 |
| 表 | 1.2. | 24 | 國際全系統除污摘要 | .187 |
| 表 | 1.2. | 25 | 操作 RHR 泵浦的流率及雷諾數 | .190 |
| 表 | 1.2. | 26 | 除污技術的系統比較 | . 190 |
| 表 | 1.2. | 27 | JPDR 全系統除污成效 | . 192 |
| 表 | 1.2. | 28 | AREVA 的化學除污技術應用範圍 | .197 |
| 表 | 1.2. | 29 | AREVA 的化學除污技術應用實蹟[15] | . 198 |
| 表 | 1.2. | 30 | KKU 及 GKN1 核電廠 FSD 基本資料說明 | . 199 |

| 表 | 1.2.3 | 1 KKU 及 GKN1 核電廠的 FDS 應用成果 | 200 |
|---|--------|----------------------------------|-----|
| 表 | 1.3. 1 | 304 不銹鋼平板試片的組成成分 | 206 |
| 表 | 1.3. 2 | 2 異材銲件之母材 304 不銹鋼的組成成分 | 206 |
| 表 | 1.3.3 | · 異材銲件之銲材 82 鎳基合金的組成成分 | 206 |
| 表 | 1.3. 4 | 碳鋼平板試片的組成成分 | 206 |
| 表 | 1.3. 5 | 5304 不銹鋼平板試片重量變化結果總整理(單位:mg/sec) | 223 |
| 表 | 1.3.6 | 5304 不銹鋼平板試片厚度變化結果總整理(單位:µm/sec) | 224 |
| 表 | 1.3. 7 | '在30 ℃下異材銲件厚度變化結果總整理(單位:μm/sec) | 228 |
| 表 | 1.3.8 | 3 碳鋼平板試片重量變化結果總整理(單位:mg/sec) | 231 |
| 表 | 1.3.9 |) 碳鋼平板試片厚度變化結果總整理(單位:μm/sec) | 231 |

一、探究於金屬與混凝土表面進行雷射除污之技術應用及其限制,和各國 除役核電廠之相關應用實例

(一) 前言

為有效降低輻射曝露以保護除役工作人員、減少放射性廢棄物之總量或再利用除役 後之設備材料資源,核電廠的除役作業中必然需謹慎執行除污作業並有效減少除污後物 件之放射性活度。在核能工業中,利用螯合劑與強氧化還原劑為主的化學除污技術已成 為用以除污反應器及相關循環管路內金屬表面氧化層的成熟方法[1]。然而化學除污會 必然產生液體廢棄物,增加二次廢棄物的處理成本。液體廢棄物也增加交互污染設備與 環境洩漏的顧慮,增加對操作人員的專業知識要求以確保操作安全與執行廢棄物管理。 廠房混凝土多孔表面的除污則可使用噴砂、刨除或研磨等物理機制用以去除混凝土表層 達成除污[1]。物理除污技術雖不會產生大量液態廢棄物,然而此類技術大多不適於除污 具有複雜表面的物件,除污也可能因大量產生的粉塵對人員造成空氣微粒污染的風險, 抑或是因物理摩擦機制產生的震動與噪音危害,並破壞被除污物體的表面完整性。隨著 近年高能、高功率雷射技術的快速發展,利用光束照射待除污物體表而實現的雷射除污 技術已廣泛應用於工業界中以去除表面顆粒、薄膜、塗層與鏽蝕[2,3,4],並逐漸用以發 展為新式的核電廠除污技術[5]。與化學除污相較, 雷射除污可為乾式處理(dry process) 而不會產生液體廢棄物。而與傳統物理除污方式相比, 雷射除污的光束照數不受表面幾 何複雜度影響,也不會產生噪音與震動,並可避免過度破壞表面而有利於設備再利用。 雷射除污也可藉由改變光束尺寸準確控制除污區間面積,並可搭配光纖與遠程遙控裝置 减少工作人員的輻射曝露風險[5]。然而雷射光的照射較不利於除污藏於裂縫中的放射 性污染物質[5],除污操作的同時也需同時使用適當的集塵與空氣過濾系統避免空氣微 粒污染。因此,有鑒於雷射除污可發展為具有相對安全、低量廢棄物與遠程遙控操作等 特性的新穎技術並應用於未來的核電廠除污工作,本分項之重點即為對相關雷射除污技 術之成效與操作特性做整理與分析。在介紹相應的高功率雷射技術與雷射材料作用原理 後,即彙整此技術應用於金屬與混凝土表面之實驗成果與廢棄物粉塵特性,而後整理雷 射除污於技術先進國之發展近況與摘要代表性系統之規格,作為我國研究核電廠雷射除 污技術與制定相關管制決策時的參考。

(二) 高功率雷射系統與射束基本參數

雷射(Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation, LASER)為基於受激輻射 產生的光放大作用以產生高功率、高能量、高時間與空間相干性(coherence)的光束。如 圖 1.1.1 (a)所示,形成一個雷射光源的主要元件為放大介質(amplifying medium)、泵浦源 (pumping source)與由兩面反射鏡組成的共振腔(optical resonator)。放大介質內含有具適 當電子能階的分子或離子等活性介質(active medium)。當活性介質吸收泵浦源所注入之 能量即會由基態(如圖 1.1.1(b)所示之 1 能階)躍遷至有較高電子能態的 2 能態,並隨後 降至具有較長生命期(lifetime)之 3 能階。當空間中處於 3 能態的分子/離子數量大於處 於 4 能態之數量即達成居量反轉(population inversion),當入射的光

子能量符合3能態與4能態之能量差時,即可誘發受激發射(stimulated emission)而增加 光子數量。



圖 1.1.1 (a) 雷射共振腔內部結構。(b) 光子藉受激發射增加之示意圖[4]

光子能量*E*(單位為電子伏特 eV)與光波長λ的換算為:

 $E(eV) = 1.24/\lambda \,(\mu m)$, (1.1.1)

因此使用帶有不同分子/離子之放大介質時即會個別元素能階結構的差異產生不同 波長的雷射光束。在泵浦源使活性介質受激發並產生自發輻射(spontaneous emission)光 子後,部分光子即可持續於共振腔內來回震盪傳播並持續通過放大介質,當光子每次 來回經過放大介質所得之能量增益νω(單位距離之增幅)大於在共振腔內震盪之損耗 α(單位距離之降幅)時光子數目即可持續增。

$$\gamma_0 \ge \frac{1}{2L} \ln \frac{1}{R_1 R_2}$$
, (1.1.2)

在此L為共振腔長度,R1≈1可為全反射鏡之反射率而R2<1為部分穿透鏡(partially transmitting mirror)之反射率。由於增益 v0 將隨光子通量增加而逐漸下降並最終達到穩 定態 v0 =α,如此共振腔即以固定的功率由部分穿透鏡端輸出雷射光束。表 1.1.1 摘要 適用於雷射除污的高脈衝能量(達數焦耳)、高輸出功率(高於數百瓦)的雷射除污技術。 其中二氧化碳雷射(CO2 Laser)與準分子雷射(Excimer Laser)雷射之活性介質為氣體,並 以於電極施加高電壓產生氣體放電的模式做外部泵浦。掺釹釔鋁石榴石雷射(Nd:YAG Laser)則為固態晶體,並多以閃光燈產生強光以激發活性介質釹(Neodymium,Nd)離子。 而近年來快速發展的光纖雷射(fiber laser)則可以高功率二極體為光源泵浦光纖內摻雜 之鏡(Ytterbium,Yb)離子實現數千瓦等級的平均功率輸出,並廣泛應用於雷射材料處理 的研究中。

表 1.1.1 適用於雷射除污的高功率雷射所用之活性介質與相應泵浦源



圖 1.1.2 (a)連續波(CW)與脈衝(pulsed)雷射波形比較。(b) Q 開闢雷射運作示意圖[6]。

依光束之時間特性可主要分為連續波(continuous wave, CW)或脈衝(pulsed)式兩種 雷射運作模式如圖 1.1.2 (a)所示。連續波式雷射之光束輸出功率不隨時間變化,並可定 義單位為瓦(W)的平均輸出功率 P_L (average output power)。脈衝式雷射之光束由固週期 T (單位可為秒)產生之雷射脈衝(laser pulse)所組成,則 $1/T = f_{rep}$ 為脈衝輸出的重複頻率 (repetition rate)單位為赫茲(Hz)或每秒脈衝數目(pulses/s)。每一個雷射脈衝有固定的脈衝 能量 E_p (pulse energy)與脈衝時寬 τ_p (pulse duration),進而可估算脈衝的尖峰功率 P_0 (peak power)

$$P_0 = E_p / \tau_p$$
 f. (W) • (1.1.3)

而當雷射脈衝以固定的重複頻率 frep (repetition rate, pulse)產生時, 雷射光束的平均輸出功率即為

$$P_L = f_{rep} E_p \quad \text{E} \quad (W) \circ \quad (1.1.4)$$

現今的高能、高功率脈衝雷射系統多以 Q 開闢(Q-switch)的技術達成如圖 1.1.2 (b) 所示。其原理為在共振腔中加入一個光調變器(modulator)使大量光子於損耗小於增益的 短時間內輸出形成雷射脈衝,如此即可將原儲存於共振腔的能量及集中於短脈衝時寬中, 使單一雷射脈衝的尖峰功率P₀遠大於光束的平均功率 P_L。目前 Q 開闢雷射已廣泛用於 產生能量達數焦耳、時寬為數奈秒的雷射脈衝。以重複頻率 100 赫茲輸出能量為 1 焦耳 且時寬為 10 奈秒(10⁻⁸ s)的運作條件為例,雷射光束之平均功率為 100 瓦然而每一脈衝 的尖峰功率可達 10⁸ 瓦。實際 Q 開闢雷射所產生的雷射脈衝其時間波形大致符合高斯分 佈,此時可用半高寬(full width at half maximum, FWHM)描述脈衝時寬如圖 1.1.2 (a)之 τ_D 所示,並仍可以式(1.1.3)概算脈衝尖峰功率。在雷射除污的應用中,如此高脈衝尖峰功 率即可於數奈秒的時間範圍內快速加熱材料表層使其快速增溫而汽化(vaporization)或 因高溫度梯度形成的強機械應力與震波而破碎達成剝蝕(ablation) [4],相關雷射與材料 作用之物理機制可參閱第 3.1 節「雷射材料汽化與剝蝕原理」。

圖 1.1.3 摘要高功率二氧化碳雷射與準分子雷射之架構。此類氣體雷射多於電擊施 加交流或射頻(radio frequency, RF)高電壓使電極間的氣體游離為電漿進而激發作為活性 介質的氣體分子。平均功率達數千瓦(kW)等級的二氧化碳雷射已廣泛應用於工業界的 材料加工與材料處理的應用中。由於只有小於 20%的輸入電能可轉換至輸出的光能,千 瓦級二氧化碳雷射之運作需搭配相對的散熱循環系統。以圖 1.1.3 (a)之快速軸流式架構 為例,二氧化碳氣體以軸向流經氣體放電與共振腔區間後即藉由通過熱交換器散熱以維 持氣體工作溫度。使用的氣體多為氦(He)-氦(N)-二氧化碳的混合氣體,氣壓約 50 托(torr)。 氦氣比例可達約 80%以提高熱傳導性並因放電行程電漿以產生受激發的氦原子。氦氣 比例可約 10-20%,受激發的氦原子可與二氧化碳分子作用並激發分子至所需的 001 能 態以放出波長為 10.6 微米(μm)之雷射光。千瓦級二氧化碳雷射皆以輸出連續波之光束 為止,搭配 Q 開關以脈衝模式運作的二氧化碳雷射則較少,輸出功率也僅達數十瓦。因 此在材料處理上多以二氧化碳雷射輸出之高功率連續波光束執行切割、焊接與熱處理等 應用。



圖 1.1.3 (a)快速軸流式二氧化碳雷射之架構示意圖。(b)準分子雷射之架構示意圖。[4]

準分子雷射可由氟化氫(ArF)、氟化氪(KrF)或氯化氙(XeCl)等工作氣體產生波長分別 為 193 奈米(ns)、248 奈米或 308 奈米之紫外光光束。氫或氯等鹵素氣體之比例約 1-2% 而氫或氙等惰性氣體之比例可達 99%,總氣壓可高至 4 大氣壓。準分子雷射之架構如圖 1.1.3 (b)所示,其特點為額外設有的電極以產生預電離(preionisation spark)以提升主放電 的空間均勻性。而由於氫、氪或氙對應紫外光受激輻射之能態階僅有 5-15 奈秒的短生 命期,使得產出的紫外光無法與共振腔完成多次震盪致使輸出光束之空間均勻性較差。 現今準分子雷射已成為產生能量達焦耳等級,重複頻率至 100 赫茲與時寬小於 100 奈 秒之紫外光雷射脈衝的成熟技術。準分子雷射因波長短,因而可以有更好的光學解析度 提升雷射加工與成像精確度,因此廣泛應用於眼科手術或半導體製程光罩曝光中。在與 材料作用上,紫外光的高光子能量也有助於在加工時快速汽化剝離材料,避免如使用二 氧化碳雷射時因熱效應造成的材料表面損傷。然而鹵素氣體器體有腐蝕性並會逐漸降解 產生細微顆粒,因此除須濾除氣體中的顆粒外,約於產生百萬發雷射脈衝後重新填充工 作氣體,增加可能的設備與維護成本。

相比於氣體雷射,使用固態放大介質的雷射系統即可避免氣體洩漏之問題或需定期 更換氣體之負擔,因此固態雷射技術已成目前高功率、高能雷射之主流技術。使用摻雜 濃度約 1%釹(Nd)的釔鋁石榴石(YAG) 晶體而成的 Q 開闢 Nd:YAG 雷射即多用以產生 波長為 1.06 微米、能量至數焦耳、重複頻率為 1-100 赫茲、時寬小於 10 奈秒的雷射脈 衝用於各樣科學研究與工業應用中。圖 1.1.4 (a)即為常見 Q 開闢 Nd:YAG 雷射振盪器之 架構。除兩面反射鏡所組成的共振腔外,勃克爾盒(Pockels cell)極為調變共振腔損耗之 裝置如圖 1.1.2 (b)所示。此類雷射常使用閃光燈管作為泵浦光源,然而燈管壽命發數為 10⁶-10⁷,成為限制此種雷射輸出脈衝重複頻率(多為 10 赫茲)與操作成本的

主要原因之一。此種雷射也多於出口端安裝倍頻晶體模組以產生波長為 532 奈米、355 奈米至 266 奈米的綠光至紫外光雷射脈衝,然而因倍頻晶體的轉換效率限制,產生之 266 奈米雷射脈衝之能量效率僅約 15%而使光強度大幅下降。為提高運作效率,近來已 有發展出可以雷射二極體作為泵浦源的新式 Nd:YAG 雷射系統,且因雷射二極體之長 操作壽命(可至 10⁹發數)而大幅提升系統耐用性與穩定度。然而在相同規格下,二極體 泵浦 Nd:YAG 雷射之售價卻也較傳統使用閃光燈泵浦源之 Nd:YAG 雷射為高。



圖 1.1.4 (a) Q 開關 Nd:YAG 雷射架構[4]。(b)光纖雷射與雙包層光纖示意圖[6]。

隨著高功率光纖技術的進步,近年來快速發展的光纖雷射技術可以較小的設備空間 與大於 10%高光電轉換效率(wall plug efficiency)產生平均功率達數千瓦的雷射光束。圖 1.1.4(b)摘要光纖雷射震盪器之主要結構。不同於傳統雷射使用反射鏡組成振盪器,光纖 雷射使用兩個光纖布拉格光柵(Fiber Bragg Gratings, FBG)反射光子從而形成振盪器結構。 由於活性介質的鏡(Yb)離子已摻雜進光纖中,將作為泵浦源之雷射二極體光源耦合 (coupling)入光纖即可以在光纖中實現光子的放大過程。光纖雷射的振盪器與放大器都 由雙包層光纖(double cladding fiber)組成,泵浦源之光在外包層(outer cladding)震盪傳遞 因而可以激發內包層(inner cladding)所摻雜之活性介質離子。光線雷射之特性在於可藉 由在振盪器後進一步疊加數級光纖放大器與泵浦雷射二極體光源而持續增高輸出雷射 脈衝的能量與光束平均功率。以可用以金屬除鏽與雷射除污/清潔的 1000 瓦級摻鏡光纖 雷射為例(參考 Raycus 之產品資料),輸出之雷射脈衝其波長為 1.06 微米、能量 20-50 毫 焦耳(mJ)、重複頻率 20-50 千赫茲(kHz)、時寬約為 150 奈秒。

自雷射振盪器所產生的低能量雷射光可經由通過多級雷射放大器(laser amplifier)後 達到高能量與高功率的輸出需求。現今的高能/高功率雷射系統多採用主振盪器功率放 大器(Master Oscillator-Power Amplifier, MOPA)如圖 1.1.5 (a)所示可輸出焦耳級雷射脈衝
之 Q 開關 Nd:YAG 雷射架構。如此由振盪器輸出之數毫焦耳能量的脈衝在通過放大器 後即可使其能量增加至焦耳等級。而隨者現今高功率光纖技術的進步,在材料處理 等不需光束空間同調性的應用中也可藉由耦合數個雷射光源至多條光纖後再將光纖輸 出端聚集組合成一個高功率/能量光束的方法如圖 1.1.5(b)所示。此種藉由組合多條光 纖光源之方法也多用於光纖雷射技術以達成高能量與功率的需求。表 1.1.2 即摘要適用 於除污操作的高功率雷射系統之光束與脈衝參數,以雷射輸出的平均功率為限制,當 雷射以高重複頻率運作時,單一脈衝能量即相應下降。



圖 1.1.5 (a)主振盪器功率放大器架構的 Q 開關 Nd:YAG 雷射示意圖。(b)藉由多條光纖 組合多個雷射光源成為高功率/能量光束之示意圖。[4]

| | 二氧化碳雷射 | 準分子雷射 | Q 開闢 Nd:YAG 雷 射 | 掺鏡光纖雷射 |
|------------|-------------------|--|--------------------|----------------------|
| 波長 | 10.6 µm | 193 nm (ArF); 248 nm (KrF); 308 nm (XeCl) | 1.064 µm | 1.03-1.1 μm |
| 平均輸出 功率 | 50 - 5000 W CW | 0.3 - 150 W | 0.04 - 400 W | 0.01 - 20,000 W |
| 脈衝能量 | | 0.2 - 5,000 mJ | 10 – 10,000 mJ | $1-100 \mathrm{~mJ}$ |
| 重複頻率 | | 1-1,000 Hz | 0.05-300 Hz | 20,000 - 50,000 Hz |
| 脈衝時寬 | | 1.2-80 ns | 5-20 ns | 90 – 160 ns |

表 1.1.2 適用於除污操作的高功率雷射系統之光束與脈衝參數[4]

由共振腔輸出的雷射光束其橫向強度分佈隨傳播距離不斷變化。當以球面鏡組成 共振腔時,較高品質的雷射系統多可產生符合單模態(TEM00)特性的高斯光束 (Gaussian beam)如圖 1.1.6 (a)所示,其強度分佈 *I*(ρ, z)隨傳播距離 z 之變化為

$$I(\rho, z) = I_0 \left[\frac{W_0}{W(z)} \right]^2 exp \left[-\frac{2\rho^2}{W^2(z)} \right] \quad , \quad (1.1.5)$$

在此ρ為圓柱座標下的徑向位置, W_0 為位於 z=0 處之光腰的束腰半徑(waist radius) 如 圖 1.1.6 (b)所示, I_0 為在光腰處的尖峰強度(常用單位為 W/cm^2), 而W(z)為束寬半徑

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + (\frac{z}{z_0})^2}$$
, (1.1.6)

在此z₀為瑞利範圍(Rayleigh range)

$$z_0 = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \qquad (1.1.7)$$

標示光束半徑增加為 $\sqrt{2}W_0$ 時距離光腰之距離,此時光強度降為 $I_0/2$,因此 $2z_0$ 的範圍 也被定義為焦點深度(depth of focus, DOF),代表光束強度不至於大幅下降的縱向範 圍。而由式(1.1.6)之敘述可知由共振腔輸出之雷射光束其橫截面寬度將隨傳播距離增 加而增寬,因此可定義光束的發散角 θ_0 (divergence angle)

$$\theta_0 = \frac{W_0}{z_0} = \frac{\lambda}{\pi W_0} \circ (1.1.8)$$

如此,以如圖 1.1.6(c)所示在光腰處具有高斯分佈的雷射強度分佈為例,光束的尖峰 強度 I_0 (peak intensity)為

$$I_0 = \frac{2}{\pi} \frac{P_0}{W_0^2} \quad (\frac{W}{cm^2}) \quad , \quad (1.1.9)$$

而在束腰半徑 W_0 的徑向位置雷射強度降為 I_0e^{-2} 。文獻也常用半高寬直徑 $W_D = \sqrt{2\ln 2}W_0$ 表示雷射橫向尺寸。在雷射材料處理與除污的應用上,除了估算光束照射面的尖峰強度 I_0 外,還常用能量密度(fluence) 估算光束於每單位面積中的照射能量。



$$F_0 = \frac{2}{\pi} \frac{E_p}{W_0^2} \left(\frac{J}{cm^2}\right) , \quad (1.1.10)$$

圖 1.1.6 (a)以高斯光束之 TEM00 模態自共振腔輸出之雷射光束與其橫向強度分佈。(b) 高斯光束之傳播與(c)橫截面強度分佈之重要空間參數。[7]

圖 1.1.7 摘要常用於雷射材料處理與除污之光束成形架設。最主要的光學架設為使用球面透鏡(spherical lens)或凹面球面鏡(spherical mirror)成像或聚焦雷射光束於材料表面如圖 1.1.7(a)與 1.1.7(b)所示。在使用焦距為 f 的透鏡或凹面鏡時,成像定理為

$$\frac{1}{u} + \frac{1}{v} = \frac{1}{f}$$
; $m = \frac{h_2}{h_1} = -\frac{v}{u}$ (1.1.11)

在此u為物距(object distance), v為像距(image distance)而m為成像率(magnification)。使用透鏡或凹面鏡的重要功能是聚焦雷射光束如圖 1.1.7(c)所示,如此可在焦點(即光腰

處)使雷射達到最高的強度 I_0 與能量密度 F_0 以符合材料處理或除污之需求。光束聚焦的 重要參數為焦比(fnumber) F = f/D,即透鏡焦距f與光束通過透鏡時的直徑 D = 2W之比值F = 2W。如此光束聚焦後在焦點的光斑(focal spot)直徑大小可為

$$d_{min} = 2W_0 = 2.44 \frac{f}{D} \lambda = 2.44F\lambda \quad \circ \quad (1.1.12)$$

因此焦比F越小,即使用短焦距之透鏡或增大光束聚焦前的直徑即可實現越小的光斑 尺寸。而式1.1.12 也顯示使用短波長的雷射光可進一步縮小光斑,如此即解釋使用準 分子紫外光雷射於精細加工之優點。另一方面,以越小的焦比F聚焦光斑至更小的尺 寸將使焦點深度 DOF 縮短,其關係為

$$DOF = 2z_0 \sim 5.12F^2 \lambda \circ (1.1.13)$$

以 Nd:YAG 雷射產生的 1.06 微米雷射光為例,若其為理想 TEM00 模態之高斯光束,使用焦比 F = 5 聚焦之光斑直徑為 13 微米而焦點深度為 50 微米。相同條件用於聚焦二氧化碳雷射之 10.6 微米光束則光斑直徑為 130 微米而焦點深度為 500 微米。



圖 1.1.7 (a)透鏡或(b)凹面球面鏡成像或聚焦光束之示意圖[4]。(c)光束聚焦參數[4]。(d) 使用圓柱透鏡整形雷射光束為線聚焦於物體表面之示意圖[7]。

如式(1.1.6)所述,由共振將輸出的雷射光束其半徑(即橫向尺寸)將隨著傳播距離增加而持續變大,因此可使用透鏡組縮小(或擴大)雷射光束尺寸並調整光束的準直性(collimation)以利光束傳播一段距離至材料處理或除污的工作區間。常用的透鏡組準直儀(collimator)架設如圖 1.1.8 (a)所示,其原則為放置凹透鏡(lens 1)與凸透鏡(lens 2)時兩透鏡間距為彼此焦距之差值,如此即可減小出口端光束之發散角並改變光束尺寸。長距離的光束傳輸也可藉由將雷射光耦合入光纖達成。圖 1.1.8 (b)所示即簡介一個單模階變折射係數光纖(single mode step index fiber)之結構與光耦合示意圖。光纖主要由纖核(core)、 包層 (cladding) 與被覆層 (coating)所組成。纖核層的折射係數(refractive index) n_{core}大於包層的折射係數n_{clad},如此光束即可在具有夠小入射角θ_{in}的況下於纖核與包層介面達到全反射因而可持續於光纖內傳播。藉此,光纖的數值孔徑(numerical

aperture, NA)可定義為

$$NA = \left[n_{core}^2 - n_{clad}^2\right]^{1/2} \circ (1.1.14)$$

在實際操作上,即可將雷射光束以透鏡聚焦於光纖入口端並使光斑尺寸d_{in}咬於纖核直 徑d_{core},此外光束的入射角θ_{in}與光纖之數值孔徑滿足下列關係

$\sin(\theta_{in}/2) < NA \circ \qquad (1.1.15)$

在傳輸高功率雷射光束於材料處理或除污的應用上,會遠用纖核直徑增大至數百 微米的多模光纖(multimode fiber),以使光束於光纖內的強度低於光纖的損壞閥值 (damage threshold)。以纖核為高純度二氧化矽材料(SiO₂, silica)為例,對連續波雷射之 閥值可至 250 kW/cm²,而對 10 奈秒脈衝的閥值為 1 GW/cm² (參考 Thorlabs Inc.之產品 資料)。如此在使用 400 微米纖核直徑的多模光纖下,即可用於穩定傳輸由光纖雷射輸 出之 1000 光束,並由如圖 1.1.5 (b)所示,將雷射光束傳輸至操作區間執行材料處理或 除污應用。



圖 1.1.8 (a)透鏡組準直儀結構圖(b)光纖耦合示意圖與單模階變折射係數光纖結構。[4]

(三)雷射除污原理

3.1 雷射材料汽化與剝蝕原理

雷射材料處理與除污的基礎為材料吸收雷射光束的能量後因溫度快速增加造成熔 化(melting)、汽化(vaporization)或剝蝕的結果。由於金屬和混凝土對除污用雷射光為不 透明(opaque)材料,當雷射光照射表面時光束的反射率(reflectivity)與吸收率 (absorptivity)在遵循能量守恆的關係下為

Reflectivity + absorptivity = 1 。(1.1.16) 當一個雷射光於空氣面以強度 I_0 正向入射材料表面,此電磁波於材料表面之反射率R為 R = $[(1-n)^2 + k^2]/[(1+n)^2 + k^2],$ (1.1.17)

在此n為光波於材料中傳播所帶有之折射係數而k為吸收係數,如此相應的吸收率為 $\beta = 4n/[(1+n)^2 + k^2]$ 。 (1.1.18)

如此吸收入材料的光束強度 $I_{t0} = \beta I_0$,而光強度 I_t 於材料內隨深度d下降之關係則可由 比爾一朗伯定律(Beer-Lambert law)描述

$$I_t = I_{t0} \exp(-4\pi k d/\lambda) \circ \qquad (1.1.19)$$

以鐵(Fe)為例,對波長為 1.06 微米的 Nd:YAG 雷射光吸收係數k = 4.49,則以式 1.1.19 估算可知在鐵材料內雷射光強度將於 $d_s=0.038$ 微米的深度降至 $I_{t0}e^{-2} = 0.13I_{t0}$ 。此特 徵深度又稱為集膚深度(skin depth)用以定量電磁波可透入材料之深度,在上例中也代 表 87%傳遞入鐵材料的雷射光能可在 0.038 微米的深度內被材料吸收。而對 10.6 微米 的二氧化碳雷射光k = 32.2,則集膚深度 $d_s=0.052$ 微米。折射係數n與吸收係數k為隨 材料與光波長變化之數值,表 1.1.3 即摘要主要金屬材料對 1.06 微米與 10.6 微米雷射 光之折射係數n與吸收係數k。

| 材料 | 波長(µm) | 折射係數 n | 吸收係數 k | 反射率R |
|-------|--------|--------|--------|-------|
| 鐵(Fe) | 1.06 | 3.81 | 4.49 | 0.64 |
| 鐵(Fe) | 10.6 | 5.97 | 32.3 | 0.98 |
| 鋁(Al) | 1.06 | 1.75 | 8.5 | 0.91 |
| 鎐(Al) | 10.6 | 0.108 | 34.2 | 1 |
| 銅(Cu) | 1.06 | 0.15 | 6.93 | 0.988 |
| 鎳(Ni) | 1.06 | 2.62 | 5.26 | 0.74 |
| 鉛(Pb) | 1.06 | 1.41 | 5.4 | 0.84 |
| 鈦(Ti) | 1.06 | 3.8 | 4 | 0.63 |

表 1.1.3 主要金屬材料之折射係數n與吸收係數k [4]



圖 1.1.9 (a)常用金屬材料之反射率隨光波長變化圖 (b)常用金屬材料對 1.06 微米雷射光 之反射率隨溫度光變化圖 (c)不鏽鋼對 1.06 微米雷射光之反射率隨入射角變化圖。[4]

圖 1.1.9 (a)摘要常用金屬材料之反射率隨光波長變化並顯示金屬對波長較短的雷射 光有較高的吸收率(即如圖示較低的反射率)。對多數金屬材料,光的吸收率也隨著材料 溫度增加而增高如圖 1.1.9 (b)所示。此為溫度升高時使材料中有更多的聲子(phonon)與 電子作用,如此在電子因雷射光電場受力震盪時,即有更多機會與聲子作用而將光束之 能量傳遞至材料中。材料對雷射光的吸收率(與反射率)也隨著入射角(angle of incidence) 與光的極化方向(polarization)變化如圖 1.1.9 (c)所示。當光波的電場方向與入射面(plane of incidence)垂直時定義為 S 波(S ray),此時反射率在正向入射(入射角為 0)時最低並隨 著入射角增加而增加。當光波電場與與入射面平行則定義為 P 波(P ray),則使用 P 波之 1.06 微米雷射照射鋼材時可在如圖 1.1.9 (c)所示的約 75 度入射角有最低的反射率。此 特定之角度稱為布魯斯特角(Brewster angle),因此在實際操作上可將線性極化之雷射光 以布魯斯特角傾斜照射材料表面以提高材料對雷射光能的吸收率。

材料吸收雷射光之能量後即可視為對表面加熱而使溫度提高,此時於塊材內的溫度三維空間(x,y,z)分佈可由解析無熱對流與內部熱產生下的熱傳方程式

$$\left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2}\right) = \frac{1}{\alpha} \frac{\partial T}{\partial t} \circ (1.1.20)$$

在此熱擴散係數 $\alpha = k/\rho C_p$, $k(\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1})$ 為熱導率(thermal conductivity), $\rho(\text{kgm}^{-3})$ 為密度而 $C_p(\text{Jkg}^{-1}\text{K}^{-1})$ 為熱容。由於雷射光於材料內的集膚深度 d_s 遠小於塊材厚度,因此在雷射光照射於塊材 z=0 之邊界條件下,表面功率密度 F_0 與溫度之關係為

$$F_0 = \left(\frac{P_{tot}(1-r_f)}{A}\right) = -k\left[\frac{\partial T}{\partial z}\right]_{surf} \circ (1.1.21)$$

在此 P_{tot} 為雷射光功率, R 為式(1.1.17)所述之反射率而A為光束照射面積。當帶有能量 $E_s = Q\rho C_p$ 之瞬時點熱源(instantaneous point source)於位置(x', y', z')照射材料使單位體 積升高之溫度為Q時,式 1.1.20 所求解的溫度分佈為

$$T = \frac{Q}{8(\pi\alpha t)^{2/3}} \exp\{-[(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2]/4\alpha t\} \circ (1.1.22)$$

當點熱源以功率 $P_s = \varphi(t)\rho C_p$ 照射材料時,結果可將式(1.1.22)中體積升溫量Q代換體積升溫率 $\varphi(t)$ 後為隨時間積分而得

$$T(x, y, z, t) = \frac{1}{(8\pi\alpha)^{3/2}} \int_0^t \varphi(t') \exp\left[\frac{-r^2}{4\alpha(t-t')}\right] \frac{dt'}{(t-t')^{3/2}} \quad , \quad (1.1.23)$$

在此r為在塊材內距離照射中心且 $r^2 = (x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2$ 。如以連續波點 光源照射下 $\varphi(t) = q$ 為定值,則式(1.1.23)的時間積分結果為

$$T = \frac{q}{4(\pi\alpha)^{3/2}} \int_{1/\sqrt{t}}^{\infty} \exp\left(\frac{-r^2\tau^2}{4\alpha}\right) d\tau = \frac{q}{4\pi\alpha r} \operatorname{erfc}\left\{\frac{r}{\sqrt{4\alpha t}}\right\} \quad , \quad (1.1.24)$$

在此變數 $\tau = (t - t')^{-1/2}$ 為時間t相對開始照射時間t'之變量,erfc為高斯函數積分下的 互補誤差函數(complementary error function)。因此當持續不斷加熱材料時 $(t \to \infty)$,塊 材溫度趨近於穩定值 $T_s = q/4\pi\alpha r$ 。當連續波入射光的剖面強度為高斯分佈如圖 1.1.6 (a)所示時,則原理上可將式(1.1.23)與式(1.1.24)的結果以該光束之空間分佈疊加,並獲 得下式於照射中心(x' = y' = 0)的表面溫度

$$T_{\text{Gau}}(0,0,t) = \frac{2P(1-R)D}{\pi D^2 k \sqrt{T}} \tan^{-1} \left[\frac{2(\sqrt{\alpha t})}{D}\right] \quad \circ \qquad (1.1.25)$$

在此D為光束之直徑。當 $t \rightarrow \infty$ 時,可求解穩定溫度 T_{sq}

$$T_{\text{Gau}}(0,0,\infty) = \frac{2P(1-R)D}{D^2 k \sqrt{\pi}}$$
, $\frac{T_{sg}\pi k D}{P(1-R)} = \sqrt{\pi} = 1.77$ (1.1.26)

式(1.1.26)之結果即為在給定連續光雷射功率P,光束直徑D,材料對光波的反射率R與 材料熱導率k等參數下可概略估算材料表面溫度之解析公式。

較精確的雷射光加熱材料之結果與塊材內溫度隨時間與空間之變化可藉由發展更 完整的數值模型做評估計算。如圖 1.1.10(a)所示,此類數值除定義雷射光與材料之參數 外,尚可模擬光束照射區隨時間移動之現象,以符合實際執行材料處理或除污時雷射光

須移動以完整照射材料表面之操作需求。圖 1.1.10 (b)為數值模擬下比較 3kW、光束直 徑 10 公分的連續波雷射光在剖面強度為均勻、高斯與環形分佈的情況下照射反射率 R=0.2 之材料所造成的表面溫度分佈差異。結果顯示以高斯剖面分佈照射時,中心區域 之温度會遠大於半徑大於3公分之外圍區間,即使以均匀分佈之光束照射,材料表面溫 度也僅有半徑小於 2 公分之區間有較均勻之溫度分佈。在光束以每秒 22.5 毫米與每秒 42.5 毫米之速度移動情況下,圖 1.1.10 (c)之模擬結果比較 2kW、光束半徑 3 公分的連 續波雷射光在反射率 R=0.2 的情況下照射 En8 不鏽鋼而於不同深度的最高溫度差別。 在移動速度為每秒 22.5 毫米時,可於 0.6 毫米的深度內使鋼材溫度上升至超過 1000 K, 而材料溫度則因熱傳機制使其在光束移開後開始下降,整個升溫至降溫回室溫的時間尺 度約1秒鐘。當移動速度增為每秒42.5毫米時,在0.6毫米深度之溫度即低於1000K, 因此在材料處理與除污操作上,光束掃描物體表面之速度為一重要影響材料昇溫結果之 參數。圖 1.1.10(d)之結果為模擬使用脈衝雷射對材料表面加溫之效果。在雷射脈衝之時 間波型為方波的情況下,材料溫度將於脈衝時寬ℓ,的時間尺度內持續增加,而後溫度在 大於τ,的時間下降。因此若雷射脈衝的重複頻率夠高,亦即兩脈衝間隔時間內材料仍未 完全降溫,則後續脈衝可進一步提高加熱材料所達的最高溫度。圖 1.1.10(e)也比較雷射 脈衝之時間波型為方波(實線)、高斯波形(點虛線)與三角波

(虛線)之材料溫度變化曲線。對高斯波形之脈衝而言,材料溫度約在半高寬脈衝時寬的 照射時間達到最高,然而高斯波形加熱可達之溫度僅約理想方波作用可達溫度之 67%。 由於一般Q開關脈衝雷射所產生之雷射脈衝較近似於高斯波形,因此應以該圖之點虛線 結果較為實用。



圖 1.1.10 (a) 雷射光加熱材料之模型示意圖[4]。(b)以不同頗面分佈之雷射光照射材料之

温度分佈差異比較[4]。(c)以 2kW 雷射光照射 En8 鋼材之溫度隨時間變化模擬結果[4]。 (d)數發雷射脈衝照射材料之表面溫度隨時變模擬結果[7]。(e)使用時間波型為方波(實線)、 高斯波形(點虛線)與三角波(虛線)之雷射脈衝照射材料之表面溫度隨時變模擬結果比較 [7]。

由式(1.1.26)之結果可知施用的雷射功率為決定材料表面可被加熱到達之最高溫度的重要參數。而在已知雷射功率的加熱操作條件下,圖 1.1.11 (a)即摘要可使材料溶解、 沸騰與汽化(vaporization)直至產生電漿的雷射強度概略數值。因此以使用一個 10 千瓦 (kW)之連續波二氧化碳雷射為例,將其雷射光束於材料表面聚焦至 1 平方毫米(mm²)之 面積時可得 10⁴ W/mm² 之強度使材料熔化,反之若此光束之照射面積過大則無法是材 料達到熔化溫度。而使用諸如 Q 開闢 Nd:YAG 雷射產生之焦耳級奈秒脈衝時,當脈衝 強度達 10⁵ W/mm²(亦即 10⁹ W/cm²)時即可於單一脈衝的加熱下使材料沸騰與汽化,相 應之基材熔化區、氟化區、克努森層(Knudsen layer)與蒸氣/電漿區之空間分佈摘要如圖 1.1.11 (b)所示。在此克努森層(Knudsen layer)為材料汽化後形成之蒸氣(vapor)層並以近 音速之速度膨脹之區間。汽化後的材料原子於對外擴散時可持續吸收雷射能量使空間溫 度提高並形成電漿區。空間中氣體原子的游離度與溫度T(K)之關係可由薩哈方程式 (Saha equation)估算[4]

$$\ln\left(\frac{N_1}{N_0}\right)^2 = -5040 \left(\frac{V_1}{T}\right) + 1.5\ln(T + 15.385) \quad , \quad (1.1.27)$$

在此N₀為原子密度,N₁為離子密度而V₁為由游離電位(ionization potential, eV)。由於每個元素的游離電皆不相同,圖1.1.11 (c)即摘要銘與鐵之游離度與溫度之關係。而隨著原子蒸氣/電漿持續向外擴展,電漿區之溫度逐漸向外遞減並使奈米尺度的材料粒子在向外傳播的過程中逐漸冷卻凝結而增加尺寸。



圖 1.1.11 (a)隨雷射功率增加而使材料熔化、沸騰至產生電漿之示意圖。(b)雷射使材料 汽化與剝蝕之示意圖。(c)鋁與鐵蒸氣於不同溫度下的游離率。[4]

圖 1.1.12 (a)摘要材料表面汽化區間的溫度分佈, Ts 為基材與克努森層間的汽化邊 界之溫度,克努森層與蒸氣/電漿區邊界之溫度為 Tv 並以速度 v 擴展。由於克努森層的 氣體原子以近音速移動,因此無法明確定義溫度使其成為一個溫度不連續區間。而由 圖 1.1.12 (b)所示,在時寬為 τ_{ℓ} 的雷射脈衝照射下,表面溫度 Ts 因材料由液態汽化的過 程使其在 tv 時間達到穩定(stationary)值 Tst。而克努森層擴展速度 v 則於 tst 的時間達到 穩定值 vst。由圖 1.1.12 (c)之結果即可推估在 10⁸ W/cm² 的雷射強度照射下,鋼材(如紅 點所對應數據)之汽化邊界溫度可於數十奈秒的 tv 時間到達穩定溫度 Tst 約 4700 K 的, 而克努森蒸氣層之擴展速度 v 到達穩定值之時間 tst 也為數十奈秒之數量級。

由式(1.1.26)推導之結果可知材料表面之溫度正比於此材料對雷射光的吸收率 β 與雷射光強度 I_0 ,亦即

 $T \propto (1-R)P/D^2 \propto \beta I_0 \quad \circ \quad (1.1.28)$

因此在雷射除污/清潔基材上薄膜層的操作上,即可在考量基材與薄膜層不同的汽化與 熔化溫度,以及對雷射光吸收率的差異,達成選擇性汽化表面膜層(或塗層)的目標。



圖 1.1.12 (a) 雷射光加熱材料表面而於汽化區間之溫度分佈示意圖,KL 代表克努森 層,基材與克努森層間的汽化邊界之溫度為 T_s,克努森層邊界之溫度為 T_v。(b)圖(a)中 汽化邊界溫度 T_s與克努森層邊界擴展速度 v 隨時間之變化。(c)參照圖(b)而材料於雷射 照射下汽化邊界溫度 T_s達到穩態值 T_{st}之時間 t_v與克努森層邊界之擴展達到穩態值 v_{st} 之時間 t_{st} 與穩態溫度 T_{st}之關係圖。[7]

圖 1.1.13 (a)摘要雷射光照射時膜層與基材溫度隨深度之變化。而基材與膜層隨雷 射功率與吸收率之等溫圖則舉例於圖 1.1.13 (b.1-b.3)。在圖 1.1.13 (b.1)所示之條件下, 膜層汽化溫度 T₁ 高於基材熔化溫度 T₂ 且膜層吸收率 β=0.8 也大於基材吸收率 β=0.2。 因此,選用I₀(1)的雷射功率即可使膜層達到汽化溫度 T₁,而基材因吸收率 β=0.2 較低, 因此溫度在此雷射功率時即小於熔化溫度 T₂,如此即達成選擇性汽化膜層而不至使基 材熔化之目標。而圖 1.1.13 (b.2)所示之條件為膜層汽化溫度 T₃ 高於基材熔化溫度 T₄, 然而膜層吸收率 β=0.5 與基材吸收率 β=0.4 相近。在此情況下,選用I₀(3)的雷射功率雖 可使膜層達到汽化溫度 T₃,然而基材之溫度也將高於 T₄ 並熔化損壞,因此成為一個不 理想的操作結果。選用I₀(4)的雷射功率雖可避免基材熔化,然而膜層溫度將低於汽化溫 度 T_3 因而無法達成清潔或除污的目的。圖 1.1.13 (b.2)所示之條件為膜層汽化溫度 T_5 低於基材熔化溫度 T_6 ,且膜層吸收率 β =0.6 也低於基材吸收率 β =0.8。此情況則可選用 $I_0(5)$ 的雷射功率使膜層達到汽化溫度 T_5 而基材之溫度也低熔化溫度 T_6 。由圖 1.1.13 (b.1-b.3)的結果比較可知,選擇性汽化表面膜層的適當操作條件為膜層有數倍於基材的雷射光吸收率如圖 1.1.13 (b.1),或是膜層之汽化溫度遠低基材的熔化溫度如圖 1.1.13 (b.3)。膜層之汽化溫度與基材的熔化溫度相近並且兩者也有相近的雷射光吸收率即為不理想之操作條件如圖 1.1.13 (b.2)。



圖 1.1.13 (a)以雷射照射覆有薄膜層之基材時相應的結構與溫度示意圖[7]。選擇性表面 汽化操作等溫示意圖: (b.1)膜層汽化溫度 T_1 吸收率 $\beta=0.8$ 與基材熔化溫度 T_2 吸收率 $\beta=0.2$, (b.2)膜層汽化溫度 T_3 吸收率 $\beta=0.5$ 與基材熔化溫度 T_4 吸收率 $\beta=0.4$, (b.3)膜層 汽化溫度 T_5 吸收率 $\beta=0.6$ 與基材熔化溫度 T_6 吸收率 $\beta=0.8$ [4]。

相比於基於材料汽化的雷射清潔與除污操作有熔化基材的風險,使用諸如由Q開 關 Nd:YAG 雷射產生的焦耳級奈秒(5-20 ns)雷射脈衝則可達成基於散裂(spallation)的雷 射剝蝕機制來達成清潔與除污如圖 1.1.14 (a)所示。此時雷射的強度達到 10⁷-10¹⁰ 瓦/平 方公分,可有效使材料表面汽化並使蒸氣達到 10⁴-10⁵ K 的溫度造成原子游離,形成部 分游離電漿區。大部分的雷射能量轉而由此電漿/高溫蒸氣區所吸收,因而繼續提高電 漿/蒸氣之溫度並產生壓力達 1-100 kbar 的震波(shock wave)壓縮材料表面。雷射照射停 止後,材料表面承受的壓力因電漿擴散而下降,伴隨的應力鬆弛(relaxation)可使 1-100 µm 的表層因散裂而被移除。雷射脈衝造成的材料表面快速加熱與冷卻過程也可形成強 熱彈性應力(thermoelastic stress)與震波進而使表面下一定深度的材料碎裂而後可被清除。 圖 1.1.14 (b)即摘要利用Q開關 Nd:YAG 雷射照射鋼材以清除表面腐蝕層(corrosion layer) 之實驗結果。在此例中腐蝕層的厚度為 15 微米,而實驗顯示當雷射強度達 10⁸ 瓦/平方 公分時可在單一脈衝照射下完全去除腐蝕層。於 6×10⁷ 瓦/平方公分的雷射強度則約可 以去除 10 微米厚的腐蝕層,但理論上可藉由持續多發雷射脈衝照射下達到完全去除腐 蝕層的目的。而當雷射強度超過 1.8×10⁸ 瓦/平方公分時會因為去除材料的深度超過 15 微米而開始損傷基材,如以即可藉由降低雷射脈衝能量或增加雷射照射面積來降低光束 作用時的強度以符合清潔/除污之目的卻仍可適當保存基材。



圖 1.1.14 (a)使用高能脈衝雷射產生強震波使材料表面散裂之雷射剝蝕示意圖[4]。(b)以 脈衝雷射照射鋼材時可被清除的鋼材厚度與雷射強度之實驗結果比較[8]。

3.2 金屬表面除污操作 [9]

美國愛達荷國家實驗室(Idaho National Laboratory)之研究團隊在 1994 年即出版研究 報告比較連續波二氧化碳雷射、Q 開闢 Nd:YAG 雷射與氟化氪準分子雷射應用於除污 放射性金屬鋼材之成效[9]。該報告也介紹其對雷射除污操作所設計使用的集塵腔 (collection cell)如圖 1.1.15 所示。此集塵腔之長與寬皆為 2 英寸而高度為 2.1 英寸並逐 漸向下縮面積。集塵腔底部開口部距離金屬試片 2 毫米高,並使空氣可以每分鐘 10-20 立方英尺(cube feet per minute, cfm)的流速流入集塵腔以使除污時噴濺出來的微粒可被 排氣鼓風機(exhaust blower)抽出並由高效率粒子空氣濾器(High-Efficiency Particulate Air filter, HEPA filter)收集。使用之高效濾網對 0.3 微米粒子的過濾為 99.99%(符合 HEPA H13 之規格)。集塵腔頂部裝有一個石英玻璃窗(quartz window)使雷射光可以通入集塵腔 並防止粉塵逸出,此石英玻璃與集塵腔壁也開有孔隙使少部分空氣可以從頂部流入腔內 以協助避免粉塵顆粒黏附於石英窗上。如此除污使用的雷射光即可在集塵腔外以透鏡聚 焦後經過集塵腔空間投射於待除污試片上。



圖 1.1.15 愛達荷國家實驗室試驗雷射除污金屬試片所設計使用的集塵腔與雷射光束、 透鏡、試片及高效濾網入口之示意圖。[9]

表 1.1.4 摘要實驗使用之 2 千瓦連續波二氧化碳雷射、6 瓦 Q 開關 Nd:YAG 脈衝雷 射與 100 瓦氟化氪準分子脈衝雷射。在此使用的 Q 開關 Nd:YAG 雷射雖然僅有最低的 6 瓦平均輸出功率,然而因其產出的雷射脈衝時寬為 8 奈秒,因此在 150 毫焦耳的脈 衝能量下,可於聚焦為 10 毫米長×0.15 毫米寬的線聚焦分佈時(如圖 1.1.15 所示)達到 測試所達的最高雷射強度 1.2×10⁹ W/cm²。而氟化氪準分子雷射則可產生時寬 28 奈 秒、能量達 350 毫焦耳的雷射脈衝。在聚焦為 30 毫米長×0.3 毫米寬的線聚焦時雷射強 度為 1.4×10⁸ W/cm²,然而雷射波長為 248 奈米,使其單一光子能量較 Nd:YAG 雷射之 1.064 微米光子高約 4 倍,有利達到更好的雷射剝蝕效果。

表 1.1.4 愛達荷國家實驗室執行雷射除污金屬試片時所使用的雷射系統重要參數比較 與相關聚焦於試片時之光強度參數[9]

| | 二氧化碳雷射 | Q 開闢 Nd:YAG 雷射 | 氟化氪準分子雷射 |
|---------------|--------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|
| 波長 | 10.6 µm | 1.064 µm | 248 nm |
| 輸出功率 | 最高 2000 W | 6 W | 最高100W 實驗至50W |
| 重複頻率 | 連續波 | 30 Hz | 最高 300 Hz 實驗至 150 Hz |
| 脈衝時寬 | | 8 ns | 28 ns |
| 脈衝能量 | | 最高 190 mJ 實驗 150 mJ | 實驗 350 mJ 於 120 Hz |
| 光束尺寸 | | 7 mm | 20 mm×30 mm |
| 取住二件的 | 130 mm 焦距圓透鏡 | 100 mm 焦距圓柱透鏡 | 100 mm 焦距圓柱透鏡 |
| 承焦九件 與 | 300 W, 2.5 mm dia. | 10 mm×0.15 mm 線聚焦 | 30 mm×0.3 mm 線聚焦 |
| 承 法 强度 | $6 \times 10^5 \text{ W/cm}^2$ | $1.2 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ | $1.4 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ |

表 1.1.5 摘要實驗使用的非放射性模擬污染試片 SIMCON (simulated contamination coupons)與實際放射性污染試片 REALCON (actual radioactive metal coupons)之主要特

性。SIMCON 1 試片表面塗有數毫米厚的絕(Cs)鹽與鋯(Zr)鹽層,而 SIMCON 2 在與 SIMCON 1 用相同方式製備但額外施以 700°C 的熱處理因而可使絕更深入不鏽鋼表面 下。REALCON 1 為以 Haynes 25 鈷鉻合金製作的高硬度耐久噴嘴,用以噴灑放射性液 體至鍛燒爐(calciner),主要含鈷-60 而輻射強度為每小時 3 毫倫琴(mR/hr)。REALCON 2 試片則是由臨界屏障(criticality barrier)所切割下的放射性 304 不鏽鋼試片,主要含鈷-60 與銫-137,輻射強度為每小時 1 毫倫琴。此外,實驗還測試脈衝雷射照射下對多種 主要金屬材質的剝蝕速率。

| 試片代稱 | SIMCON 1 | SIMCON 2 | REALCON 1 | REALCON 2 |
|------|---|---|---|--|
| 試片特性 | 直徑 2.5 公分的 不鏽鋼片,表層 含 1.3 μm 的銫鹽 與 5.2 μm 的鋯鹽 | 與 SIMCON 1 相 同製備程序外多 加入 700 ℃ 的 熱處理使銫更深 入不鏽鋼表面下 | 噴灑放射性液體 至鍛燒爐的鈷鉻 合金噴嘴,主要 含鈷-60,輻射強 度 3 mR/hr | 由臨界屏障出、面 積為1平方英寸的 304 不鏽鋼試片。 主要含鈷-60 與銫- 137,輻射強度1 |
| | | | | mR/hr |

表 1.1.5 愛達荷國家實驗室執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[9]

在使用二氧化碳雷射的除污實驗上,實驗先以面積2平方英寸、厚度1/16 英吋304 不鏽鋼作測試。光束掃描之速度為每分鐘300至400英吋,在100-1000瓦的功率下, 實驗顯示二氧化碳雷射會持續加熱不鏽鋼試片進而使試片熔化變形。而在使用310瓦功 率之雷射以2.5毫米直徑之面積照射304不鏽鋼時,可藉由量測重量下降程度估算鋼材 約以每秒310微克的速率汽化逸失,而光束照射區下的鋼材會熔化並噴濺出照射區域。 實驗結果顯示二氧化碳雷射使試片熔化的現象不利於除污操作,因為表面污染物可能因 熔化而更深入基材內部。表1.1.6 比較使用約400瓦的二氧化碳雷射光束除污兩個 SIMCON1模擬試片之X射線螢光光譜(X-ray fluorescence spectroscopy, XRF)結果。在 此除污因子(de contamination factor)之定義為雷射照射前後XRF訊號之比值。光束掃描 之速度為每分鐘400英吋。結果顯示除污效果尚可,然而由於XRF只能分析表面的元 素成分,因此若有部分錯或銫原子因試片熔化而進入基材內則此實驗結果將有一定之誤 差。

表 1.1.6 愛達荷國家實驗室使用二氧化碳雷射除污兩個 SIMCON 1 模擬試片之 X 射線 螢光分析結果[9]

| 試片編號 | 鋯移除比例 | 銫移除比例 | 鋯除污因子 | 銫除污因子 | 雷射功率 |
|------|--------|--------|-------|-------|------|
| A-11 | 79 % | 98 % | 4.8 | 49.8 | 400 |
| A-12 | 92.2 % | 96.3 % | 12.9 | 27.3 | 420 |

使用 Q 開闢 Nd:YAG 雷射與氟化氪準分子雷射產生的雷射脈衝則因其光強度大於 10⁸ W/cm² 而可實現明顯的雷射剝蝕效果,如此即可觀測到試片的重量逸失(weight loss) 如表 1.1.7 所摘要對多種金屬材料之實驗結果。在使用 Q 開關 Nd:YAG 雷射脈衝的實驗 中,脈衝能量固定於 150 毫焦耳並藉由更換使用 100 毫米焦距或 200 毫米焦距之圓柱透 鏡以改變於材料表面的線聚焦強度,面積分別為 10 毫米長×0.15 毫米寬與 10 毫米長 ×0.3 毫米寬。線聚焦以每秒 0.5 毫米的速度在各試片以 5 毫米的距離沿短軸方向來回移 動一小時後量測試片重量逸失。表 1.1.7 中 Q 開關 Nd:YAG 雷射相關的結果顯示重量逸 失並未因理論光強度倍增而等量增加,推測原因為較高強度下的照射也同時產生更高密 度的電漿,如此在電漿也吸收較多雷射能量的情況下,實際可傳遞至材料表面的雷射能 量/強度即有所下降並抑制剝蝕之效果。表 1.1.7 中氟化氪準分子雷射相關的結果則於脈 衝能量 300 毫焦耳、重複頻率 150 赫茲(平均功率 45 瓦)與脈衝能量 350 毫焦耳、重複 頻率 120 赫茲(平均功率 42.5 瓦)兩組射束參數來執行實驗。兩組雷射脈衝皆以 100 毫米 焦距之圓柱透鏡於材料表面聚焦為 30 毫米長×0.3 毫米寬的線聚焦,並以每秒 3 毫米的 速度在各試片以5毫米的距離沿短軸方向來回移動20分鐘後量測試片重量逸失。結果 顯示單發 350 毫焦耳之脈衝可造成較高的材料重量逸失,然而由於 300 毫焦耳之脈衝以 較高的重複頻率 120 赫茲與材料作用,故兩組參數於每單位時間下造成的材料重量逸失 量相近。表 1.1.7 中顯示在選用的的脈衝參數下,氟化氪準分子雷射可比 Q 開關 Nd:YAG 雷射造成更高的單脈衝材料重量逸失。原因其一可為氟化氪準分子雷射脈衝的 28 奈秒 時寬大於 Q 開闢 Nd:YAG 雷射脈衝的 8 奈秒時寬,如此準分子雷射脈衝於靶材面的強 度較低,因而減少電漿造成的能量吸收而讓較多的光能與材料作用。第二原因可為氟化 氪準分子雷射的 248 奈米波長較 Q 開關 Nd:YAG 雷射的 1.064 微米波長為短因而有較 高的吸收率如圖 1.1.9(a)所示。第三個原因則是在此例中氟化氪準分子雷射脈衝的能量 與照射面積皆高於 Q 開闢 Nd:YAG 之雷射脈衝,有利於提高剝蝕的效率。

| 表 | £ 1.1.7 | 愛達荷國家實驗室使用 | 月 Q 開闢 Nd:YA(| J 雷射脈衝與氟 | 氯化氪準分子雷 | 官射脈衝照 |
|---|---------|------------|---------------|----------|---------|-------|
| 泉 | 1下量浿 | 刘之重量逸失[9] | | | | |

| | Q 開關 Nd 脈衝能量 | :YAG 雷射 量 150 mJ | 氟化氪準分子雷射 圓柱透鏡焦距 100 mm | | | |
|-------------|---|---------------------|----------------------------------|----------------------------------|--|--|
| | 圓柱透鏡焦距/ | 照射面積/強度 | 脈衝能量/照 | 脈衝能量/照射面積/強度 | | |
| | 100 mm | 200 mm | 300 mJ | 350 mJ | | |
| 金屬材質 | 10 mm×0.15 mm | 10 mm×0.3 mm | 30 mm×0.3 mm | 30 mm×0.3 mm | | |
| | $1.2 \times 10^9 \text{ W/cm}$ $6 \times 10^8 \text{ W/cm}$ | | $1.2 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ | $1.4 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ | | |
| Aluminum | 51 | 51 | 140 | 149 | | |
| Copper | 88 | 69 | 189 | 231 | | |
| Monel | 64 | 73 | 151 | 196 | | |
| 304 S.S. | 50 | 74 | 53 | 66 | | |
| 316 S.S. | 49 51 | | | 44 | | |
| Inconel 600 | 55 | 43 | 151 | 196 | | |

| Inconel 825 | 56 | 51 | 80 | 101 |
|---------------|-----|----|----|-----|
| Hastalloy X | 52 | 59 | | 66 |
| Hastalloy C4 | 71 | 59 | | 83 |
| Hastalloy C22 | 105 | 57 | | 117 |

表格內數值單位為奈克/每脈衝(ng/pulse),空白處在原文獻中即無實驗數據

Q 開關 Nd:YAG 雷射測試除污 SIMCON 1 與 SIMCON 2 模擬試片之結果摘要於表 1.1.8。雷射脈衝能量為 150 毫焦耳,並聚焦為 10 毫米長×0.15 毫米寬的線聚焦,強度為 1.2×10⁹ W/cm²。SIMCON 1 模擬試片以每秒 2.3 毫米的速度移動使光束掃描過試片表面, 而 SIMCON 2 模擬試片的掃描速度為每秒 2 毫米。實驗結果同樣以 X 射線螢光光譜分 析錯與銫在試片表面的濃度變化。表 1.1.8 的結果顯示使用更長的照射時間並不會明顯 增加錯與銫的移除率(removal rate),而當 SIMCON 1 試片的完整表面都已被雷射照射後, 鋯移除率可高於 99.6%而銫的移除率可近於 99%。對 SIMCON 2 試片的鋯移除率結果 與 SIMCON 1 試片結果相近,然而對銫的移除率則明顯變差。推測是由於 SIMCON 2 試 片經過攝氏 700 度的熱處理使部分銫擴散至面下較深的區域而影響除污成效。

| 表 | 1.1. | 8 爱 | 達荷 | 國家 | 實驗 | 室使用 | Q 開 | 闘 | Nd:YAG | 雷射除 | 污 | SIMCON | V1與 | SIMC | ON 2 | 模 |
|---|------|-----|------|-----|-----|------|-----|---|--------|-----|---|--------|-----|------|------|---|
| 擬 | 試片 | 的 | X 射約 | 泉螢シ | 七分权 | 行結果[| 9] | | | | | | | | | |

| 試片編號 | 鋯移除比例 | 銫移除比例 | 鋯除污因子 | 銫除污因子 | 掃描趟數 | 照射時間(秒) |
|----------|-------|-------|-------|-------|------|---------|
| SIMCON 1 | | | | | | |
| A-27 | 99.7 | 93.6 | 306 | 15.7 | 1 | 15 |
| A-28 | 99.8 | 98.7 | 465 | 77 | 1 | 19 |
| A-20 | 100 | 98.8 | œ | 83 | 2 | 38 |
| A-21 | 100 | 99.4 | œ | 166 | 2 | 66 |
| A-15 | 100 | 99.8 | œ | 500 | 4 | 132 |
| A-26 | 100 | 99.7 | œ | 333 | 6 | 190 |
| A-22 | 99.6 | 99.4 | 236 | 166 | 8 | 264 |
| SIMCON 2 | | | | | | |
| I-24 | 100 | 73.3 | œ | 3.7 | 4 | 153 |
| I-19 | 99.5 | 67.2 | 212 | 3.0 | 6 | 229 |
| I-25 | 97.8 | 80.5 | 46.5 | 5.1 | 8 | 305 |
| I-21 | 100 | 79.4 | x | 4.9 | 10 | 381 |

表 1.1.9 摘要使用氟化氮準分子雷射脈衝除污 SIMCON 1 與 SIMCON 2 模擬試片之 結果。雷射脈衝能量為 350 毫焦耳,並聚焦為 30 毫米長×0.3 毫米寬的線聚焦,強度為 1.4×10⁸ W/cm²。對 SIMCON 1 試片除污時脈衝的重複頻率為 150 赫茲,而對 SIMCON 2 試片除污時重複頻率降為 120 赫茲。結果顯示在相同照射時間下,改變光束掃描表面 的趟數並不會明顯改變錯與銫移除率。SIMCON 1 試片的銫移除率普遍較鋯移除率高,

| 試片編號 | 鋯移除比例 | 銫移除比例 | 鋯除污因子 | 銫除污因子 | 掃描趟數 | 照射時間(秒) |
|----------|-------|-------|-------|-------|------|---------|
| SIMCON 1 | | | | | | |
| A-14 | 97.8 | 99.7 | 46.4 | 305 | 7 | 0 |
| A-16 | 97.4 | 99.6 | 38.2 | 259 | 9 | 26 |
| A-19 | 97.9 | 98.8 | 46.7 | 81.6 | 2 | 34 |
| A-18 | 98.3 | 99.5 | 57 | 194 | 4 | 34 |
| A-17 | 97.2 | 99.1 | 36 | 117 | 4 | 34 |
| A-24** | 94.0 | 99.8 | 16.8 | 430.4 | 10 | 51 |
| A-29 | 94.8 | 96.6 | 19.1 | 29.5 | 20 | 56 |
| A-23 | 99.1 | 98.7 | 116 | 75 | 2 | 102 |
| A-30 | 99.2 | 100 | 122 | x | 20 | 102 |
| A-13 | 99.1 | 99.9 | 108 | 920 | 40 | 203 |
| A-25 | 98.5 | 99.4 | 67 | 174 | 4 | 203 |
| SIMCON 2 | | | | | | |
| I-29 | 99.7 | 68.9 | 298 | 3.2 | 4 | 20 |
| I-27 | 99.7 | 78.9 | 338 | 4.7 | 6 | 31 |
| I-28 | 99.1 | 79.2 | 113 | 4.8 | 8 | 41 |
| I-26 | 98.1 | 82.6 | 53.9 | 5.7 | 10 | 51 |
| | | | | | | |

表 1.1.9 愛達荷國家實驗室使用使用氟化氪準分子脈衝雷射除污 SIMCON 1 與 SIMCON 2 模擬試片的 X 射線螢光分析結果[9]

A-14 試片於原文獻所示的照射時間為0可能有誤

氟化氪準分子雷射所產生的雷射脈衝也應用於測試對實際放射性污染試片 REALCON的除污成效。REALCON1試片為含鈷-60、輻射強度每小時3毫倫琴 (mR/hr)的鈷鉻合金噴嘴。結果顯示對五個 REALCON1噴嘴的雷射除污皆不成功,其 原因可能是放射性核種藏於表面裂縫(crack)或裂紋(fissure)因而限制除污齿不成功,其 REALCON2試片則是主要含鈷-60與銫-137、輻射強度每小時1毫倫琴的1平方英吋 304 不鏽鋼試片。實驗結果顯示雷射對三個試片皆可達到幾乎完全的除污如圖1.1.16 所示之貝他與加馬活度隨雷射照射時間變化之結果。



圖 1.1.16 愛達荷國家實驗室使用實際放射性污染試片 REALCON 2 由氟化氪準分子雷 射除污之貝他與加馬活度隨照時間變化之結果。[9]

愛達荷國家實驗室的報告也評估雷射除污操作所需的時間。依照前述對Q開關 Nd:YAG 雷射與氟化氪準分子雷射的實驗結果,訂定雷射強度 5×10⁸ W/cm²為 Nd:YAG 雷射脈衝的除污需求強度,準分子雷射脈衝的除污需求強度為 10⁸ W/cm²。在給定的脈 衝能量與脈衝時寬下,即可依除污需求光強度計算雷射光束的照射面積如式 1.19 所 示。因此,對除污面積為A 的物件時,除污時間T_{decon}即可估算為

 $T_{decon} = (np * A)/(R * a)$ (1.1.29)

在此a為在單一位置的光束照射面積, np為在單位面積a下雷射脈衝須照射的數目而R 為雷射脈衝的重複頻率。表 1.1.10 即摘使用 4 套商售輸出參數各異的脈衝雷射系統對 面積為 4 平方公尺(m²)的水箱表面進行除污的時間估算。依現今較成熟用於除污應用 的高功率二極體泵浦 Nd:YAG 雷射與光纖雷射之參數,則以第四組 US Laser 系統的估 算較為合理而可做為主要參考依據。

表 1.1.10 愛達荷國家實驗室使用準分子雷射與 Nd:YAG 雷射對面積為 4 平方公尺(m²) 的水箱表面進行除污的時間估算[9]

| 雷射/系統 | 準分子雷射 | Nd:YAG 雷射 | Nd:YAG 雷射 | Nd:YAG 雷射 |
|-------------|---------------------|----------------------|---------------------|--------------------------------------|
| | [Questek2460vp] | [Continuum YG660] | [Continuum NY82] | [US Laser] |
| 重複頻率 R | 150 Hz | 30 Hz | 30 Hz | 5000 Hz |
| 脈衝能量 | 250 mJ | 150 mJ | 70 mJ | 50 mJ |
| 脈衝時寬 | 25 ns | 8 ns | 10 ns | 150 ns |
| 單位照射面積 a | 0.1 cm ² | 0.037 cm^2 | 0.14 cm^2 | 6.7×10 ⁻⁴ cm ² |
| 單位面積下脈衝數 np | 15 | 15 | 15 | 15 |
| 操作時間 | 11.4 hrs | 151.4 hrs | 40.5 hrs | 51.1 hrs |

<u>3.3</u> 混凝土表面除污操作[10]

日本原子力研究所(Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI)於 1998 年為了執 行其轄下停止運轉的再處理測試設施(Japan Reprocessing Test facility, JRTF)的除污任務 而發展相應的混凝土雷射除污系統。此JRTF 於 1968 至 1969 年運作並於 1970 年除 役,隨後即用以發展非反應器相關核子設施相關的阿伐粒子除污。帶除污的面積為 3,600 平方公尺,而為了讓放射污染的空間達到外釋標準,除污必須確保混擬米表面不 再帶有污染物質。出污的需求為移除表面下 5 毫米深度以上的混凝土層,計畫藉由雷 射除污達成減量廢棄物與減少人員曝露之目標。

雷射混凝土除污主要藉由剝落(spalling)與玻璃化(glazing)兩種機制達成如圖 1.1.17 所示。玻璃化為高功率雷射照射下使表層混凝土熔化而後於表面形成易於去除的玻璃 層。剝落為高能雷射光束照射混凝土表面時使其中所含的水氣因快速加熱而膨脹達成 移除混凝土的效果。圖 1.1.18 (a)摘要 JAERI 所發展的 Nd:YAG 雷射混凝土除污系統, 主要由 2 千瓦的雷射、遠程控制以及粉塵收集裝置所組成。除污成效所測試的混凝土 表面為包含地板、牆面與天花板的 1.7 平方公尺面積,並且分別使用剝落或玻璃化混 凝土的模式進行試驗。在剝落測試時,雷射功率為 1200 瓦,光束移動速度為每分鐘 600 毫米,光束直徑為 19 毫米。而在玻璃化測試上,雷射功率為 600 瓦,光束移動速 度為每分鐘 80 毫米而光束直徑為 13 毫米。結果顯示剝落操作模式下僅能移除深度達 0.7 毫米的混凝土層,並且無法再進一步持續剝落。玻璃化操作模式下則每次掃描照射 可達成 4-5 毫米的混凝土除污深度,並且在進行三次照射後可使除污深度增加至 14 毫 米如圖 1.1.18 (b)所示。除污時的混凝土碎屑廢棄物可由集塵裝置收集,其約可以收集 到 90%由地板、牆面與天花板散出的廢棄物,證明此集塵裝置可有效搭配雷射系統收 集大部分除污時產生的廢棄物。



圖 1.1.17 藉由玻璃化與剝落兩種機制達成雷射混凝土除污之示意圖。[10]



圖 1.1.18 日本 JAERI (a)應用於混凝土除污之 Nd:YAG 雷射系統與相關遙控和粉塵收集 裝置示意圖。(b)使用 600 瓦雷射功率以玻璃化機制執行混凝土除污之結果。[10]

3.2 與 3.3 小節所摘要之金屬與混凝土表面雷射除污測試實驗皆為較早期之結果。 有鑒於近年高功率二極體泵浦 Nd:YAG 雷射與光纖雷射的快速發展,近年之相關雷射 除污結果即於第4節作更完整的彙整分析。

(四)雷射除污放射性金屬表面與混凝土表面之成效

4.1 金屬除污實驗結果

本章節討論雷射應用於金屬表面的除污成效,包含不同放射性核種的除污效率 [11-16]以及表面微觀結構[17,18],也針對研究報告中使用的雷射參數提出相關的雷射 除污操作限制,並探討雷射除污後產生的碎屑與顆粒[19],以及使用高效率粒子空氣 濾器去除顆粒之結果[20]。

4.1.1 雷射金屬除污實驗結果

有鑒於以高功率二極體為泵浦光源的光纖雷射與 Nd:YAG 雷射之發展如第3節所述,近年相關雷射除污放射性金屬試片的研究皆大多使用平均功率可達數百瓦等級之 光纖雷射與 Nd:YAG 雷射系統發展除污技術,因此本節即彙整多個國家代表性機構應 用光纖雷射與 Nd:YAG 雷射對電廠設備常使用的鋼材與鋁材表面執行放射性除污的實 驗測試結果,並整理雷射除污照射後對基材表面所造成之結構與型態改變。

4.1.1.1 雷射應用於不鏽鋼表面之除污實驗結果

法國原子能和替代能源委員會(Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, CEA)在 2018 年發表的研究結果[11]中針對金屬表面氧化層的雷射除污技術進行開發和研究。文獻使用摻鐿光纖雷射來對 AISI 304L 不鏽鋼試片中銪(Eu)和鈷(Co)的除污效率進行研究。銪和鈷是構成核電廠鋼鐵設備的元素之一,銪作為鈾裂變產物的代表元素,鈷則作為鎳的活化產物,而鎳為反應器主冷卻系統的組成元素,因此針對這些元素進行除污。表 1.1.11 為本研究使用之雷射參數。

表 1.1.11 法國 CEA 執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[11]

| 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|------|---------|--------|--------|
| 20 W | 1064 nm | 110 ns | 20 kHz |

帶有銪和鈷的不繡鋼試片(30 毫米× 30 毫米× 3 毫米)皆以特定方式進行氧化和污染,試片製備的目的是模擬整個體積中帶有污染物的氧化物層生長,並具有所需的特性。銪污染試片的氧化物層是通過將硝酸銪 Eu(NO₃)₃溶液霧化後並置於溫度為 473 K 的熱板上製備,再通過雷射加熱氧化樣品以獲得次微米氧化層(sub micrometric oxide layer)將銪固定在氧化物的體積中。銪污染試片的氧化層厚度透過輝光放電質譜儀(Glow Discharge Mass Spectrometry, GD-MS)的曲線分析,估計為 127±31 奈米,平均重量污染為 0.95±0.45%;鈷污染試片的製備方法則為先使用雷射照射且氧化後,將試片在室溫和大氣壓下浸入硝酸鈷 Co(NO₃)₂溶液中1小時,以增強鈷在氧化層中的滲透來 製備,鈷污染試片通過輝光放電光譜儀(Glow Discharge Optical Emission Spectrometry, GD-OES)分析,氧化層厚度為 90 奈米,平均重量污染為 1.09%。除污操作前含銪氧化層試片輝光放電質譜與含鈷氧化層試片輝光放電光譜之量測結果摘要如圖 1.1.19 所示。



圖 1.1.19 法國 CEA 測試雷射除污不繡鋼試片成效所準備的(a)含錆污染氧化層試片輝 光放電質譜與(b)含鈷污染氧化層試片輝光放電光譜量測結果。[11]

實驗使用除污效率(DR)來評估試片之除污結果,除污效率定義為處理前後污染物 質量之間的比率,如下方公式1.1.30所示。

$$DR = \frac{M \frac{contaminant}{initial} - M \frac{contaminant}{final}}{M \frac{contaminant}{initial}} \times 100 \quad (1.1.30)$$

分析使用輝光放電質譜儀或輝光放電光譜儀對污染試片 5 微米深度內的積分訊號 來評估,使用單位脈衝 5.0 J/cm²到 14.9 J/cm²的雷射能量密度。掃描速度在每秒 244 毫 米到每秒 976 毫米之間變化,且保持讓兩個連續點之間有 60 %到 90 %的空間重疊。

銷污染試片的除污結果如下圖 1.1.20 所示,圖 1.1.20 (a)表明使用 5.0 J/cm²的低雷 射能量密度是不足以剝蝕整個氧化層,藉由圖 1.1.21 觀察不同能量密度下單個雷射脈 衝後的剝蝕孔徑,確定閾值能量密度為 5.0 J/cm²。而在使用 12.4 J/cm²進行一次掃描後,如圖 1.1.20 (b), 銷氧化層幾乎被剝蝕,除污效率達到 92.9%; 在圖 1.1.20 (c)中透 過降低掃描速度來增加傳遞的能量,可發現除污效率增為 96.6%,但時間需增加為兩 倍。



圖 1.1.20 法國 CEA 對含銪氧化層試片執行雷射除污後的輝光放電質譜結果: (a)能量 密度 5.0 J/cm², 掃描速度每秒 488 毫米。(b)能量密度 12.4 J/cm², 掃描速度每秒 488 毫米。(c)能量密度 12.4 J/cm², 掃描速度每秒 244 毫米。[11]



圖 1.1.21 法國 CEA 觀察不同能量密度下單個雷射脈衝後的剝蝕孔徑(a) 能量密度 3.30 J/cm²。(b) 能量密度 5.0 J/cm²。(c) 能量密度 6.61 J/cm²。[11]

鈷污染試片的除污結果如下圖 1.1.22 所示,由於在 AISI 304L 不鏽鋼中已測量到 0.2%的鈷濃度,若在 5 微米深度的積分會導致背景值過大,降低精準度,因此改為針 對鈷污染試片的前 100 奈米進行,下圖 1.1.22 顯示了 12.4 J/cm²和每秒 488 毫米掃描速 度下的結果,觀察到氧化層被剝蝕,鈷污染試片的除污效率為 95.5%



圖 1.1.22 法國 CEA 對鈷污染試片執行雷射除污後的輝光放電光譜儀結果。[11]

而法國 CEA 研究團隊在 2020 年發表的研究報告[12]中則應用高重複率奈秒脈衝 光纖雷射進行對含銪氧化層的不鏽鋼金屬試片除污。雷射裝置如圖 1.1.23,由可控制 透鏡位置的 X-Y 掃描器和焦距 300 毫米的聚焦透鏡組成,並將雷射光束於試片表面聚 焦至直徑 62 微米的尺寸,雷射參數如表 1.1.12。



圖 1.1.23 法國 CEA 團隊在 2020 年發表雷射除污測試使用光纖雷射裝置示意圖。[12]

| 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 脈衝能量 | 重複頻率 | 能量密度 |
|--------|---------|--------|---------------|--------|--|
| 6-15 W | 1064 nm | 120 ns | 0.75 mJ (15W) | 20 kHz | 5 J/cm ² - 12.4 J/cm ² |

實驗使用 304L 不鏽鋼試片,化學成分組成如表 1.1.13,以含非放射性銪濃度 4000 mg/L 的 Eu(NO₃)3 溶液霧化噴灑於 304L 不鏽鋼試片,以模擬鈾分裂產物。氧化層 則透過能量密度 6.1 J/cm² 的雷射以每秒 348 毫米的速度移動照射試片後形成,試片大 小經切割為 30 毫米×30 毫米×3 毫米,使用輝光放電質譜術得到氧化層的元素隨深度 分佈曲線,如圖 1.1.24 所示。

表 1.1.13 法國 CEA 在 2020 年執行雷射除污使用 304L 不鏽鋼試片之化學成分組成[12]

| 元素 | Fe | Cr | Ni | Mn | Si | Cu | Co | Mo |
|---------|-------|-------|------|------|------|------|------|------|
| 重量濃度(%) | 68.87 | 18.57 | 9.23 | 1.41 | 0.86 | 0.59 | 0.22 | 0.22 |



圖 1.1.24 CEA 在 2020 年執行雷射除污使用金屬試片之氧化層元素隨深度分佈圖輝光 放電質譜量測結果。[12]

進行除污測試時, 雷射的能量密度範圍從 5.0 到 12.4 J/cm², 掃描速度範圍從每秒 244 毫米到每秒 976 毫米,分別對應到的空間重疊為 90 %和 60 %。透過輝光放電質譜 術分析 30 毫米×30 毫米的除污面積以確定除污效率。除污效率(cleaning efficiency, CE) 定義為($M_{initial}^{Eu} - M_{final}^{Eu}$)/ $M_{initial}^{Eu}$, 其中 $M_{initial}^{Eu}$ 為除污前銷的質量, M_{final}^{Eu} 為除污後銷 的質量。圖 1.1.25 顯示除污效率隨試片每單位面積累積能量(total laser energy)的變化,每個符號上方的數字代表每個脈衝的雷射能量密度。對於 5.0 J/cm² 的能量密度,除污效率不高,因為此能量密度接近除污的閾值。



圖 1.1.25 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片之除污效率隨試片每單位面積累積能量的 變化。[12]

表 1.1.14 摘要四組選定的除污處理雷射參數與其相對的除污效率。使用輝光放電 質譜術得到四組參數設定的氧化層元素隨深度分佈曲線,如圖 1.1.26。圖 1.1.26 (a)與 圖 1.1.26 (b),能量密度為 5 J/cm²,透過能量累積進行除污而不剝蝕氧化層。圖 1.1.26 (c)與圖 1.1.26 (d)將能量密度增加到 12.4 J/cm²,氧化層剝蝕顯著,在圖 1.1.26 (c)有 80 %的空間重疊,結果顯示污染物幾乎完全被去除,並實現了 93 %的除污效率。而圖 1.1.26 (d)使用每秒 244 毫米的較低掃描速度來增加累積能量,並有 90 %的空間重疊,除污效率達 97 %的飽和閾值,但其效率受到限制。由以上實驗得出為了實現有效的除污,需最大化雷射能量密度(在此文獻中為 12.4 J/cm²),掃描速度必須限制在每秒 488 毫米與 80 %的空間重疊,最終認定處理 3 的參數為去除氧化層和污染試片的最佳參數。

表 1.1.14 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片設定四組具不同能量密度、掃描速度、空間重疊、總雷射能量之參數與其相對的除污效率[12]

| 處理編號 | 能量密度 | 掃描速度 | 空間重疊 | 總雷射能量 | 除污效率 CE |
|------|------------------------|----------|------|-------------------------|------------|
| 1 | 5.0 J/cm ² | 976 mm/s | 60 % | 12.2 J/cm ² | 0 % |
| 2 | 5.0 J/cm ² | 488 mm/s | 80 % | 48.6 J/cm ² | 48 % ± 2 % |
| 3 | 12.4 J/cm ² | 488 mm/s | 80 % | 121.6 J/cm ² | 93 % ± 1 % |
| 4 | 12.4 J/cm ² | 244 mm/s | 90 % | 486.4 J/cm ² | 97 % ± 1 % |



圖 1.1.26 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片之氧化層元素隨深度分佈曲線(a)能量密度為 5 J/cm²,掃描速度為每秒 976 毫米。(b)能量密度為 5 J/cm²,掃描速度為每秒 488 毫米。(c)能量密度為 12.4 J/cm²,掃描速度為每秒 488 毫米。(d)能量密度為 12.4 J/cm²,掃描速度為每秒 244 毫米。[12]

實驗並使用直徑 25 毫米, 孔徑 0.45 微米的聚碳酸酯濾器(polycarbonate filter)收集 雷射剝蝕產生的顆粒,再透過感應耦合電漿光發射光譜儀(inductively coupled plasmaoptical emission spectrometer, ICP-OES)進行顆粒組成分析。結果如表 1.1.15,處理 2 中 過濾器收集的物質總體成分類似於氧化物 Fe₃O₄和 FeCr₂O₄,而處理 3 的成分更接近於 不鏽鋼的組成。

表 1.1.15 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片透過感應耦合電漿光發射光譜儀得到雷射 剝蝕顆粒的組成分析[12]

| 元素 | Fe | Cr | Ni | Mn | Eu |
|-----|-------|-------|------|------|------|
| 處理2 | 59.77 | 32.47 | 4.43 | 2.30 | 1.03 |
| 處理3 | 69.25 | 20.29 | 8.28 | 1.56 | 0.62 |

分析也利用靜電低壓衝擊器(electrical low-pressure impactor, ELPI)獲得去除顆粒的 尺寸分佈,圖 1.1.27 顯示設定處理 2 和處理 3 的參數所收集的粒子尺寸分佈以及設定 處理 3 的參數獲得的收集顆粒的掃描電子顯微鏡背散射電子 (scanning electron microscopy backscattering electron, SEM-BSM)圖像,可以發現除污時釋放的顆粒尺寸小 至 120 奈米,而奈米尺度的顆粒也可聚集形成數微米尺度的顆粒。



圖 1.1.27 法國 CEA 在 2020 年除污金屬試片設定處理 2 和處理 3 的參數所收集的粒子 尺寸分佈圖及設定處理 3 的參數之掃描電子顯微鏡背散射電子圖像。[12]

韓國原子能研究所(Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI)之研究團隊研究 使用Q開關 Nd:YAG 雷射產生的第二階諧波 532 奈米雷射脈衝來測試被銫離子、鈷離 子、氧化銪和氧化鈰沉積的 304 不鏽鋼試片的基本除污性能[13]。使用的雷射裝置如



圖 1.1.28 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片之 Nd:YAG 雷射裝置示意圖。[13]

表 1.1.16 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片時所使用的雷射系統重要參數[13]

| 脈衝能量 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|--------|-------|--------|------|-------|
| 150 mJ | 1.5 W | 532 nm | 5 ns | 10 Hz |

實驗將 304 不鏽鋼切割成矩形以作為實驗試片,使用 Co(NH4)2(SO4)2、CsNO3 溶 液模擬離子污染,用蒸餾水稀釋的 Eu2O3 和 CeO2 粉末模擬顆粒污染物,並將四種污染 物分別滴在 304 不鏽鋼試片上。四種試片的化學成分組成如表 1.1.17,試片為不鏽 鋼,因此均以 Fe、Cr、Ni 為主要成分。

表 1.1.17 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片之化學成分組成[13]

| 元素 | N | 0 | Ni | S | Cr | Fe | Н | Eu | Cs | Ce | Co |
|--------------------------------|-----|------|-----|-----|------|------|----|----|-----|-----|-----|
| Co(NH4)2(SO4)2 | 2.0 | 10.7 | 6.9 | 0.2 | 18 | 59.2 | 微量 | - | - | - | 3.0 |
| Eu ₂ O ₃ | - | 30.6 | 7.7 | - | 10.1 | 45.6 | - | 6 | - | - | - |
| CsNO ₃ | 4.5 | 25.4 | 5.9 | - | 13.6 | 45.6 | - | - | 5.0 | - | - |
| CeO ₂ | - | 11.6 | 6.0 | - | 17.1 | 58.3 | - | - | - | 7.0 | - |

本文獻探討雷射能量密度、雷射發數、照射角度對剩餘污染物比例的影響,剩餘 污染物比例定義為(剩餘離子的莫耳百分比)/(初始離子的莫耳百分比)。雷射能量密度 的影響結果如圖 1.1.29(a),將雷射發數固定為8發,結果顯示隨能量密度的增加, CsNO3、Co(NH4)2(SO4)2、Eu2O和 CeO2四種污染物離子皆可被快速去除,但當能量密 度達到約 13.3 J/cm²,去除率上升緩慢,因此 13.3 J/cm²的能量密度被確定為合適的參 數。雷射發數的影響結果如圖 1.1.29(b),將能量密度固定為 13.3 J/cm²,結果表明當雷 射發數在 8 發內,四種污染物離子的去除率與雷射發數成正比。在前 8 次發射後, 銫 離子幾乎被完全去除, 鈷離子去除率超過 99 %, 銪和鈰離子去除率超過 98.5%,因此 8 發的雷射發數被確定為合適的參數。雷射照射角度的影響結果如圖 1.1.29(c),0 度角 表示雷射束的照射方向垂直於試片,15 度表示試片從雷射束的垂直方向傾斜 15 度。 結果顯示當角度增加到 45 度時,去除率突然下降,因此為了確保除污性能,0 度和 30 度之間的照射角度被確定為合適的參數。最終給出的雷射參數最佳選擇為 13.3 J/cm² 的能量密度、8 發的雷射發數、0 度到 30 度的照射角度。



圖 1.1.29 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子、鈷離子、氧化銪和氧化鈰污染的 304 不 鏽鋼試片實驗(a)能量密度對剩餘污染物比例的影響示意圖。(b)雷射發數對剩餘污染物 比例的影響示意圖。(c)照射角度對剩餘污染物比例的影響示意圖。[13]

韓國 KAERI 之研究團隊於另一篇 2010 年的研究文獻[14]提及對該研究所自 2000 年開始營運的燃料發展設施 DFDF(DUPIC Fuel Development Facility)的需求。由於,此 設施的熱室內有高放射性且主要的放射性元素是銫離子,若有重新裝修熱室的需求, 則需應用遠端操作的除污技術。而雷射除污的優點為可以遠端操作,因此雷射除污為 合適的選擇。報告中使用 Nd:YAG 雷射,對除污氧化層含銫離子的 304 不鏽鋼試片做 了一系列的實驗,探討參數設定對除污成效的影響。使用的雷射裝置如圖 1.1.30,雷 射參數如表 1.1.18。



圖 1.1.30 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子污染的 304 不鏽鋼試片之 Nd:YAG 雷射 裝置示意圖。[14]

表 1.1.18 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子污染的 304 不鏽鋼試片時所使用的雷射 系統重要參數[14]

| 脈衝能量 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|--------|-------|---------|-------|-------|
| 450 mJ | 4.5 W | 1064 nm | 10 ns | 10 Hz |

304 不鏽鋼試片使用 0.015 M CsCl 溶液污染,然後乾燥。另外分別使用 0.03 M KNO3 和 0.03 M KCl 溶液對試片進行處理。三種試片的化學成分組成如表 1.1.19。

表 1.1.19 韓國 KAERI 執行雷射除污銫離子污染的 304 不鏽鋼試片之化學成分組成[14]

| 元素 | Cs | K | Ο | Cr | Fe | Ni | 其他 |
|----------------|------|-----|-----|------|------|-----|------|
| CsCl + KCl | 4.9 | 3.7 | 0.2 | 12.7 | 56.4 | 4.3 | 17.8 |
| $CsCl + KNO_3$ | 5.6 | 3.2 | 3.9 | 18.6 | 59.0 | 3.4 | 6.3 |
| CsCl | 12.1 | 0.0 | 0.1 | 18.4 | 51.6 | 4.9 | 12.9 |

文獻探討雷射能量密度的參數最佳選擇,對單純使用 0.015 M CsCl 溶液污染的不 鏽鋼試片進行測試,如圖 1.1.31(a)與圖 1.1.31(b)。圖 1.1.31(a)的縱軸為 (剩餘絕離子的莫耳百分比)/(初始絕離子的莫耳百分比),可以觀察到對於 57.3 J/cm² 和 229.3 J/cm²的能量密度,在前 10 次的發射期間,表面的絕離子急劇減少,而圖 1.1.31(b)的縱軸為剝蝕區域的深度,發現於 229.3 J/cm²的能量密度,304 不鏽鋼的剝蝕 非常強烈,剝蝕深度比其他能量密度大很多,這樣會造成產生的二次廢物不可被忽 略,因此 229.3 J/cm²的能量密度並不適合。綜合 1.1.31(a)與圖 1.1.31(b)的結果,最佳 的雷射能量密度為 57.3 J/cm²。接著討論單純使用 0.015 M CsCl 溶液污染試片,與分 別使用 0.03 M KNO3 和 0.03 M KCl 對溶液進行處理的除污性能差異,如圖 1.1.31(c), 圖中顯示在前 40 次的發射期間,超過 95 %的絕離子被去除。而用 KNO3 溶液處理後 的試片顯示出更好的絕離子除污性能。原因為 CsCl+KNO3 溶液會於表面上形成 Cs2O 和 K₂O 顆粒,而它們易於從 304 不鏽鋼表面去除,因此 CsCl+KNO3 具有較高的絕離 子除污效率。



圖 1.1.31 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子污染的 304 不鏽鋼試片實驗(a)使用不同 能量密度的雷射發數與剩餘絕離子比例示意圖。(b)使用不同能量密度的雷射發數與剝 蝕深度示意圖。(c) CsCl+KCl、CsCl+KNO3與 CsCl 試片的雷射發數與剩餘絕離子比 例示意圖。[14]

而中國核動力研究設計院(Nuclear Power Institute of China, NPIC)之研究團隊在 2020年出版的研究報告[15]中使用 350 瓦 Q 開闢光纖雷射,探討雷射功率、脈衝時 寬、掃描速度、焦點位移對平均剝蝕深度的影響,決定最佳的除污參數。使用的雷射 參數如表 1.1.20。

表 1.1.20 中國核動力研究設計院執行雷射除污金屬試片使用的雷射系統重要參數[15]

| 平均功率 | 尖峰功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|-----------|-------|---------|------------|--------------|
| 最高達 350 W | 18 kW | 1064 nm | 8 - 500 ns | 1 - 4000 kHz |

研究報告探討雷射功率、脈衝時寬、掃描速度、焦點位移的影響,測試的試片為 304 不鏽鋼試片並以平均剝蝕深度作為除污結果。雷射功率影響結果如圖 1.1.32(a), 脈衝時寬固定為 350 奈秒, 重複頻率為 230 千赫茲, 掃描速度為每秒 5000 毫米, 焦點 位移為 0 微米,結果表明,隨著雷射功率增加,試片的剝蝕深度隨之增加。脈衝時寬 影響結果如圖 1.1.32(b),平均功率固定為 350 瓦,重複頻率為 230 千赫茲,掃描速度 為每秒 5000 毫米,焦點位移為 0 微米,結果表明,剝蝕深度隨著脈衝時寬增加而變 深,然後在脈衝時寬約為350 奈秒的峰值點後剝蝕深度下降。通常,每個雷射脈衝的 功率隨著脈衝時寬的增加而變大,因此剝蝕深度會隨著雷射脈衝功率的增加而增加。 但在峰值點之後功率密度會降低,進而使除污成效降低。掃描速度影響結果如圖 1.1.32(c),平均功率固定為 350 瓦,脈衝時寬為 350 奈秒,重複頻率為 230 千赫茲, 焦點位移為0微米,結果顯示掃描速度提高,雷射束在同一點照射的時間減少,照射 能量也減少,因此當速度大於每秒8000毫米,金屬的表面無法剝蝕完全。焦點位移影 響結果如圖 1.1.32(d),功率固定為 350 瓦,脈衝時寬為 350 奈秒,重複頻率為 230 千 赫茲,掃描速度為每秒 5000 毫米,結果表明,當位移大於 ±2 毫米時,剝蝕深度差 會急劇增加,因此需控制雷射束聚焦在每個目標表面上,焦點位移小於2毫米。結論 為雷射功率是影響除污成效最顯著的因素,應選用高功率雷射,脈衝時寬適合選在峰 值點,應盡量避免焦點位移,並選擇適當的掃描速度,過高可能會造成表面無法剝蝕 完全。



圖 1.1.32 中國核動力研究設計院除污金屬試片實驗(a)雷射功率影響剝蝕深度示意圖。 (b)脈衝時寬影響剝蝕深度示意圖。(c)掃描速度影響剝蝕深度示意圖。(d) 焦點位移影 響剝蝕深度示意圖。[15]

此中國核動力研究設計院之研究團隊也發展出一套自動化 1050 瓦的雷射除污系統 (摘要於第 6.7 節),並於秦山核電廠(Qinshan nuclear power factory)對所發展的系統進行 試驗與評估除污結果。實驗由電廠中選擇樓梯踏板(stair treads)、支撐結構(support structure)、支架(scaffolds)三種放射性污染金屬廢棄物為樣品。

使用β表面污染偵檢器偵測除污前與除污後樣品的表面污染水平,單位為 Bq/cm²)。使用除污因數(decontamination factor, DF)來評估樣品之除污結果,表示為

 $DF = A_i / (A_i - A_r)$ (1.1.31)

此公式中 Ai 代表除污前樣品的活度, Ar 代表除污後樣品剩餘的活度。

除污前與除污後的樣品如圖 1.1.33,除污結果如表 1.1.21。對於樓梯踏板,即使在 簡單的除污條件下,表面污染也大幅低於解除管制水平(clearance level),因為附著在 表面的鬆散污染物不易滲入不鏽鋼,因此很容易透過剝蝕附著物與氧化層來達到除 污。對於控制棒的支撐結構,即使在簡單的除污條件下,也有 90%以上的污染物被去 除,但當剝蝕深度大於 10 微米時,表面污染物水平可以被除污到 0.8 Bq/cm²以下。因 為這些樣品由控制棒的支撐結構製成,在儲存池中使用了很長時間,水中的放射性核 種可能會滲入金屬的淺層,大部分深度在 10 微米以下。當剝蝕深度從 10 微米增加到 20 微米時,除污效果沒有改善,而除污因數提高很多。對於鍍鋅支架,由於鋅的雷射 反射率高於鋼,因此鍍層更難被剝蝕。鋼材選擇的所有參數都不是很適合鍍鋅的除 污,因此需要進一步研究鍍鋅結構以優化除污參數。



圖 1.1.33 中國核動力研究設計院使用光纖雷射在核電廠進行除污試驗(a)除污前的樣品 照片。(b)除污後的樣品照片。[15]

| 样口 | 制品源府 | 表面污 | ∽ い ら テ 田 歩 (DF) | |
|--------|-------|-------|------------------------------------|-----------|
| 1永口口 | 羽蚀休及 | 除污前 | 除污後 | 际77凶数(DF) |
| 樓梯踏板-1 | 0 µm | 2.69 | 0.10 | 27.5 |
| 樓梯踏板-2 | 5 µm | 1.62 | 0.18 | 9.2 |
| 樓梯踏板-3 | 10 µm | 1.52 | 0.04 | 36.6 |
| 支撐結構-1 | 0 µm | 38.68 | 2.39 | 16.2 |
| 支撐結構-2 | 5 µm | 49.15 | 2.67 | 18.4 |
| 支撐結構-3 | 10 µm | 23.72 | 0.48 | 49.4 |
| 支撐結構-4 | 20 µm | 48.39 | 0.66 | 73.3 |
| 支架-1 | 0 µm | 19.45 | 7.96 | 2.4 |
| 支架-2 | 5 µm | 26.76 | 1.79 | 14.9 |
| 支架-3 | 10 µm | 12.79 | 1.79 | 7.1 |

表 1.1.21 中國核動力研究設計院使用光纖雷射在核電廠進行除污試驗之結果[15]

下表 1.1.22 統整本小節中各國研究機構的雷射除污應用在不鏽鋼表面之實例,包 含法國 CEA、韓國 KAERI、中國核動力研究設計院,並摘要各除污實例使用的雷射類 型、雷射系統重要參數與除污成效。

| 雷射類型 | 參考文獻 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 除污成效 |
|------|----------|------|---------|--------|--------|------------------------------|
| 光纖 | 文獻[11] | 20 W | 1064 nm | 110 ns | 20 kHz | 在使用雷射能量密度 |
| 脈衝雷射 | 圖 1.1.20 | | | | | 12.4 J/cm ² 及掃描速度 |

表 1.1.22 雷射應用於不鏽鋼表面除污成效統整表

| | 回 1 1 00 | | | | | 211 |
|--------------|--------------------------------|---------------|---------|----------|---------------|-------------------------------|
| | 直 1.1.22 | | | | | 244 mm/s ト, 不鏞銅 |
| | | | | | | 試片上銷氧化層除污效 |
| | | | | | | 率可達到 96.6%;而使 |
| | | | | | | 用雷射能量密度 12.4 |
| | | | | | | J/cm ² 及掃描速度 488 |
| | | | | | | mm/s下,不鏽鋼試片 |
| | | | | | | 上鈷氧化層的除污效率 |
| | | | | | | 則為 95.5% |
| | | | | | | 最終認定處理3的參數 |
| | 文獻[12] | | | | | 為最佳參數,能量密度 |
| | 圖 1.1.26 | 15 W | 1064 nm | 120 ns | 20 kHz | 為 12.4 J/cm ² 、掃描速 |
| | 表 1.1.14 | | | | | 度為 488 mm/s、80 % |
| | | | | | | 空間重疊 |
| | 文獻[15] 圖 1.1.32 表 1.1.21 | 最高達到 350 W | 1064 nm | 8-500 ns | 1-4000 kHz | 雷射參數應選用高功 |
| | | | | | | 率,脈衝時寬適合選在 |
| | | | | | | 峰值點,應盡量避免焦 |
| | | | | | | 點位移,並選擇適當的 |
| | | | | | | 掃描速度,但不可過 |
| | | | | | | 高。另外發展一套自動 |
| | | | | | | 化 1050 瓦的雷射除污 |
| | | | | | | 系統,並於秦山核電廠 |
| | | | | | | 進行試驗,結果顯示具 |
| | | | | | | 有良好的除污成效 |
| | L - +1 [10] | | | | | 最佳參數:能量密度為 |
| | 文獻[13] | 1.5 W | 532 nm | 5 ns | 0.01 kHz | 13.3 J/cm ² 、雷射發數 |
| Nd:YAG 雷射 | 圖 1.1.29 | | | | | 為8、角度為30度 |
| | | | | | | 最佳參數:能量密度為 |
| | 5 ET 1 43 | | | | | 57.3 J/cm ² 、 |
| | 文獻[14] | 4.5 W | 1064 nm | 10 ns | 0.01 kHz | CsCl+KNO3的試片組 |
| | 圖 1.1.31 | | | | | 合顯示更好的銫離子去 |
| | | | | | | 除性能 |
| L | | | | | 1 | 1 |

4.1.1.2 雷射應用於鋁鋼表面之除污實驗結果

韓國 KAERI 之研究團隊於 2011 年的研究報告[16]使用三種不同波長 Nd:YAG 雷射,除污含有銫離子和鈷離子的鋁試片,並探討其表面除污性能,使用的雷射裝置如圖 1.1.34,參數如表 1.1.23。



圖 1.1.34 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子和鈷離子污染的鋁試片之 Nd:YAG 雷射 裝置示意圖。[16]

表 1.1.23 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片時所使用的雷射 系統重要參數[16]

| | 波長 | 平均功率 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|------|---------|-------|------|-------|
| 基諧波 | 1064 nm | 9 W | 6 ns | 10 Hz |
| 第二諧波 | 532 nm | 4.5 W | 5 ns | 10 Hz |
| 第三諧波 | 355 nm | 2 W | 5 ns | 10 Hz |

使用鋁試片為試片,並分別將含有銫離子和鈷離子的溶液噴灑在鋁試片表面,以 進行污染。試片的化學成分組成如表 1.1.24。

表 1.1.24 韓國 KAERI 執行雷射除污銫離子和鈷離子污染的鋁試片之化學成分組成[16]

| 元素 | Ν | 0 | Al | Ag | Н | Cs | Co |
|----------------------|----|------|------|-----|----|-----|-----|
| $Co(NH_4)_2(SO_4)_2$ | 微量 | 13.6 | 81.3 | 0.4 | 微量 | - | 4.7 |
| CsNO ₃ | 微量 | 26.8 | 68.7 | 0.2 | - | 4.3 | - |

表 1.1.25 列出了優化條件下鋁試片的除污性能。基諧波(1064 奈米)雷射能量密度為 57.3 J/cm²,第二諧波(532 奈米)為 13.3 J/cm²,第三諧波(355 奈米)為 8.3 J/cm²。實驗顯示最短波長 355 奈米之雷射脈衝最易於去除鈷離子,且隨著波長增加,需要更高的能量密度和雷射發數,才能達到良好的除污性能,代表短波長的雷射脈衝有較高的除污效率。

表 1.1.25 韓國 KAERI 執行雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片於優化條件下的除 污性能[16]

| | 1064 nm | 532 nm | 355 nm |
|--------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| | (900 mJ/pulse) | (450 mJ/pulse) | (200 mJ/pulse) |
| | 能量密度:57.3 J/cm ² | 能量密度:13.3 J/cm ² | 能量密度: 8.3 J/cm ² |
| | 雷射發數:40 | 雷射發數:20 | 雷射發數:10 |
| Cs (%) | 99.0 | 99.2 | 99.6 |

| Co (%) | 99.2 | 99.5 | >99.9 |
|--------|------|------|-------|
|--------|------|------|-------|

圖 1.1.35(a)與圖 1.1.35 (b)的縱軸為

(剩餘離子的莫耳百分比)/(初始離子的莫耳百分比),橫軸為雷射發數,雷射能量密度 固定為 12 J/cm²。當使用波長 532 奈米和 355 奈米的雷射脈衝時,大部分銫離子和鈷 離子在前 10 次照射被去除。然而,在 1064 奈米的 30 次照射內,去除效果不佳。最終 結論為去除效率的排序 355 奈米 > 532 奈米 > 1064 奈米。



圖 1.1.35 韓國 KAERI 執行雷射除污被絕離子和鈷離子污染的鋁試片實驗(a)絕離子剩餘比例隨雷射發數變化示意圖。(b)鈷離子剩餘比例隨雷射發數變化示意圖。[16]

| 雷射類型 | 參考文獻 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 除污成效 |
|--------------|--------------------|------------------------------|--------------------------------|---|-------|---------------------------------------|
| Nd:YAG 雷射 | 文獻[16] 圖 1.1.35 | 9 W \land 4.5 W \land 2 W | 1064 nm \$ 532 nm \$ 355 nm | $6 \text{ ns} \cdot 5$ $ns \cdot 5 \text{ ns}$ | 10 Hz | 除污效率: 355 nm > 532 nm > 1064 nm |

表 1.1.26 雷射應用於鋁表面除污成效統整表

4.1.1.3 雷射剝蝕結果與對基材表面所造成之結構與型態改變之探討

由於鈷、銫、鍶為除污的重點放射性核種,德國的德勒斯登工業大學於2019年發 表的文獻中[17] 即使用150 瓦脈衝 Nd:YAG 雷射來探討放射性核種之除污的成效。此 研究主要針對金屬材料如不鏽鋼之剝蝕量、剝蝕深度、剝蝕閾值等參數以及表面結構 和微觀變化來討論,也針對剝蝕後的結果與影響進行研究,其使用的雷射參數如下表 1.1.27 所示。

表 1.1.27 德勒斯登工業大學執行雷射除污金屬試片時所使用的試片基本參數[17]

| | | | | • • • • • | > |
|-------|----------|---------|--------|-----------|-------------------------|
| 平均功率 | 尖峰功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 能量密度 |
| 150 W | 112.4 kW | 1064 nm | 110 ns | 20 kHz | 0-6.1 J/cm ² |

實驗使用高功率脈衝 Nd:YAG 雷射(CL150, cleanLASER)來剝蝕污染試片如下圖 1.1.36 顯示之架構示意圖。此系統雷射頭使用焦距 130 毫米、工作距離為 137 毫米的 商用雷射光學器件(OSH 50),將雷射光於材料表面聚焦為直徑 472 微米的尺寸進行除 污。實驗以封閉工作區域並調整低壓區域以保留剝蝕氣體和雷射頭內的顆粒,從而結 合了光束聚焦和掃描以及移動氣溶膠的保留。另外,使用工業真空系統(ULT 260)控制 工作氣體的吸入,在 8,300 帕(Pa)的真空下提供 200 m³/h 的流速且使用 F9 和 H14A10 的組合過濾器類別。



圖 1.1.36 德勒斯登工業大學試驗雷射除污金屬試片所設計使用的雷射剝蝕測試裝置之 示意圖。[17]

除污試片為 100 毫米×50 毫米×2 毫米的鐵磁體鋼(ferritic steel)、奧氏體鋼 (austenitic steel)和鋅(zinc)。污染試片的方式為將 100 毫升水混合污染溶液並添加氯化 物形式的穩定同位素鈷-59 (Co-59)、鍶-88 (Sr-88)和銫-134 (Cs-134)各 100 微克,再使 用鹽酸調至 pH 2 後於通風櫥下使用噴嘴將溶液分佈在試片表面上。

實驗結果顯示,單一7.5毫焦耳、110 奈秒的雷射脈衝之剝蝕量約為0.45 微米且 剝蝕量隨著能量密度增加而增加。隨著單位面積累積能量輸入的增加,剝蝕深度不斷 增加如下圖1.1.37 所示,而在單一雷射脈衝照射表面時的能量密度超過某個閾值時材 料會顯著剝蝕,此能量密度即為剝蝕閾值。污染試片的剝蝕閾值如表1.1.28 所示。對 鐵磁體鋼試片,單位面積能量達5,152 J/cm²時可達成11.9 微米的剝蝕深度。而奧氏體 鋼的清除率近乎為線性增加,約為鐵素體鋼的三倍,相比之下,鋅顯示出高剝蝕閾 值,同時在剝蝕閾值以上顯示出極高的清除率。



圖 1.1.37 德勒斯登工業大學使用 105 奈秒的脈衝時寬試驗雷射能量密度和單位面積累 積能量之雷射剝蝕深度結果。[17]

| | | 应当了 大 小臣马 | | 1550 1 |
|------|------------------------|------------------------|------------------------|--------|
| | 鐵磁體鋼 | 奧氏體鋼 | 鋅 | |
| 剝蝕閾值 | >3.5 J/cm ² | >2.6 J/cm ² | >5.3 J/cm ² | |

表 1.1.28 德勒斯登工業大學試驗鐵磁體鋼、奧氏體鋼及鋅之剝蝕閾值[17]

研究也分析雷射除污後表面的晶粒結構變化,並發現表現出典型的鐵素體晶粒結構,在105 奈秒脈衝時寬下,表面晶粒尺寸或形狀沒有變化,如圖1.1.38 (a)所示;若使用230 奈秒脈衝時寬處理的試片,則顯示出表面以下30 奈米的晶粒細化,如圖1.1.38 (b)所示。晶粒結構的變化是由於雷射期間材料快速加熱和冷卻所引起的。較長的脈衝允許吸收能量有更深的熱傳遞進而使近表面層的晶粒細化,而對於短脈衝,材料中幾乎沒有熱能殘留。



圖 1.1.38 德勒斯登工業大學觀察雷射處理鐵素體鋼試片後表面晶粒結構變化之橫截面圖(a)單位面積累積能量 5152 J/cm²,脈衝時寬 105 奈秒。(b) 單位面積累積能量 5675 J/cm²,脈衝時寬 230 奈秒。[17]
由於核電設施中許多表面皆有塗層以防止放射性核種沉積於凹口或孔隙中。如圖 1.1.39 (a)所示,污染物可沉積於金屬表層上並形成氧化層,而如圖 1.1.39 (b)所示污染 物僅沉積於塗層之上為最容易清除之狀況,當如圖 1.1.39 (c)所示污染物同時位於塗層 上與金屬表層上時則須完全移除塗層並移除數十微米的金屬層。如圖 1.1.40 與圖 1.1.41 所示,此研究也以脈衝時寬 105 奈秒的雷射脈衝對剝蝕塗層進行實驗,在此使 用的雷射光束能量密度範圍為 1.8 J/cm² 至 6.1 J/cm²,而在掃描下即給予試片 73.6 J/cm² 至 547.9J/cm² 的單位面積能量。試片分別接續塗有個 300 微米厚的 E87-Zinc 底層(base layer)、E87-ZB 中層(intermidate layer)與 EW10 頂層(top coating)塗層如圖 1.1.40 左側之 圖示,而該圖右側可見剝蝕後的金屬表面。由圖 1.1.41 比較試片單位面積能量由 73.6 J/cm² 增加到 257.6 J/cm² 與剩餘塗層之結果可發現逐步累積能量可逐步清除塗層,而在 重複雷射掃描使單位面積能量累積至 547.9J/cm² 時可完全清除塗層。



圖 1.1.39 金屬表面、塗層與污染物分佈示意圖(a)污染物沉積於金屬表層上。(b)污染物 沉積於塗層之上。(c)污染物同時位於塗層上與金屬表層上。[17]



圖 1.1.40 德勒斯登工業大學觀察塗漆碳鋼(左)和雷射處理金屬表面後(右)之橫截面圖。 [17]

| | a | b | C | d | e | f | 9 |
|-------------|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| Φ J/cm² | 1.8 | 2.6 | 3.5 | 4.4 | 5.3 | 6.1 | 6.1 |
| EA J/cm² | 73.6 | 110.4 | 147.2 | 184.0 | 220.8 | 257.6 | 515.2 |

圖 1.1.41 德勒斯登工業大學試驗雷射處理後的金屬試片表面。[17]

下圖 1.1.42 比較了不同脈衝時寬下試片的剝蝕深度,結果表明使用 105 奈秒的短 脈衝可達到最高剝蝕深度,對於短脈衝 Nd:YAG 雷射,脈衝時寬和強度成反比,因此 短脈衝具有高強度,單位脈衝清除的材料較多。在除污過程中,使用短脈衝的好處除 了可快速清除任何覆蓋層且可最大限度地減少金屬基材的熱量損失以抑制熔體形成。



圖 1.1.42 德勒斯登工業大學試驗在 105 奈秒、160 奈秒及 230 奈秒脈衝時寬下對金屬 試片塗層的剝蝕深度結果。[17]

使用 4.38 J/cm² 的雷射能量密度和 115 J/cm² 或 460 J/cm² 的單位表面積施加能量來 進行試片除污,結果顯示顯著降低污染濃度,如下表 1.1.29 所示。鍶-88 的濃度比原來 減少了 96 倍, 銫-134 減少了原來的 98.7 倍, 鈷-60 則減少了原來的 62 倍。

| 元素 | 鈷-60 | 鍶-88 | 銫-134 | | | | |
|---------|---------------|-----------------|---------------|--|--|--|--|
| 除污前濃度 | 0.66 %-0.72 % | 0.37 %-0.38 % | 2.8 %-3.1 % | | | | |
| 除污後濃度 | 0.21 %-0.3 % | 0.002 %-0.015 % | 0.03 %-0.04 % | | | | |
| 除污後減少濃度 | 62 % | 96 % | 98.7 % | | | | |

表 1.1.29 德勒斯登工業大學試驗金屬試片於除污前後的濃度與除污因子[17]

維吉尼亞大學 (University of Virginia) 和 紐波特 紐斯造船廠 (Newport News Shipbuilding)合作發表的文獻[18]中評估雷射剝蝕清除塗層 (laser ablation coating removal, LACR)方法的使用,研究雷射與底層金屬基材(鋼)的相互作用,使用 Nd:YAG 雷射來討論材料的表面輪廓及微觀結構,使用的雷射參數如下表 1.1.30 所示。雷射脈衝會在雷射頭內產生 7.6 公分寬的光束,並以光柵掃描。7.6 公分掃描寬度在 0.25 毫米塗層上的有效塗層去除率為每分鐘 45 平方英寸,此速率取決於雷射窗清潔頻率和雷射聚焦條件。

表 1.1.30 維吉尼亞大學執行雷射剝蝕清除塗層時所使用的基本參數[18]

| 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 掃描速率 |
|------|---------|-------|--------|-------|
| 1 kW | 1064 nm | 83 ns | 24 kHz | 110Hz |

在探討表面特徵中,主要注意的是表面是否熔化,由於熔化會影響材料的微觀結構 進而改變材料的性能。針對不鏽鋼基材以電子顯微鏡觀察的結果如下,使用每秒12.7 毫 米的掃描速度掃描四次與十次的電子顯微照片分別如下圖 1.1.43(a)與 1.1.43(b)所示,鋼 基材的表面變為光滑,這個形態變化與雷射造成的熔化與再凝固一致,可以在圖 1.1.43(b) 中看到光滑、流動的表面。使用雷射剝蝕塗層後的結果一致,如圖 1.1.44 所示,證實了 雷射清除塗層的過程中有熔化和重新固化的情形。



圖 1.1.43 維吉尼亞大學試驗雷射剝蝕清除塗層之掃描電子顯微照片(a)四次掃描。(b)十次掃描。[18]



圖 1.1.44 維吉尼亞大學試驗在固定掃描速度為每秒 6.4 毫米下雷射剝蝕噴砂板後的掃描電子顯微照片(a)一次掃描。(b)二次掃描。(c)三次掃描。(d)四次掃描。[18]

而在微觀變化的部分觀察了熔化區域的深度,試片的微觀結構顯示出表面附近的晶 粒結構變形,厚度約為10微米。而雷射剝蝕後的金屬基材的橫截面在近表面區域熔化 的熔體深度為1到5微米,如下圖1.1.45顯示雷射凝固區域的輪廓,深度約為5微米。



圖 1.1.45 維吉尼亞大學試驗雷射除污試片後熔化區域深度之橫截面掃描電子顯微照 片。[18]

此文獻指出,討論固體雷射相互作用模擬的結果,顯示出存在一個閾值,低於閾 值則鋼基材不會發生表面熔化。因此,通過選擇適當的雷射參數,可以避免底層基材 的表面熔化,但會降低清除塗層率。

下表 1.1.31 彙整德國的德勒斯登工業大學以及美國維吉尼亞大學針對雷射除污後

之表面結構與微觀變化之探討,包含使用之雷射類型、雷射參數以及其試驗的重點結 果。

| 雷射類型 | 參考文獻 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 表面結構與微觀變化 |
|--------|----------------------|--------|-----------|---------|-------------|-------------------------------|
| | | | | | | 雷射剝蝕量約為 0.45 |
| | | | | | | µm/pulse,使用 105 ns |
| | ナ南[17] | | | | | 的短脈衝可達最高剝蝕 |
| | 又厭[1/] | 150 W | 1064 mm | 105 ns- | 12 40 1-11- | 深度,且模擬鍶-88、銫 |
| | 回 1.1.42 ま 1 1 20 | 130 W | 1004 1111 | 230 ns | 12-40 KHZ | -134、鈷-60 試片的除 |
| Nd:YAG | 表 1.1.29 | | | | | 污成效為濃度分別較原 |
| | | | | | | 來減少 96 倍、98.7 倍 |
| 雷射 | | | | | | 及62倍。 |
| | | | | | | 7.6 cm 掃描寬度在 0.25 |
| | | | | | | mm 塗層的有效去除率 |
| | 文獻[18] | 1000 W | 1064 mm | 82 mg | 24 1-11-7 | 為4 in. ² /min,而雷射清 |
| | 圖 1.1.45 | 1000 W | 1004 1111 | 65 lis | 24 kHz | 除塗層的過程中有熔化 |
| | | | | | | 和重新固化的情形且熔 |
| | | | | | | 體深度為 1-5μm。 |

表 1.1.31 統整雷射除污後表面結構與微觀變化之探討

4.1.2 雷射金屬除污下產生顆粒及碎片之特性與集塵處理

在核電廠除污作業中,為維持安全的工作環境,使用雷射除污應特別注意雷射和 除污材料相互作用而產生的顆粒及碎片。由日本原子能研究開發機構(Japan Atomic Energy Agency, JAEA)提出的研究報告表明[19],由於雷射過程中使用高能量密度去照 射材料可能使材料蒸發,而後在快速冷卻下會產生細顆粒,且液滴和碎片也可能從雷 射照射後的材料熔融層噴出。而根據 KAERI 提出的研究報告[20],為了成功應用雷射 剝蝕除污技術,有必要透過消除剝蝕產生的顆粒來防止再污染。因此,雷射除污作業 中需考慮顆粒物的排放及擴散。

本小節將說明日本 JAEA 及韓國 KAERI 研究團隊對於雷射除污時產生粉塵特性的 研究成果[19,20],包含日本 JAEA 針對雷射和不鏽鋼、氧化鋁相互作用後產生碎片及 顆粒的實驗結果[19],以及韓國 KAERI 對於剝蝕受水溶性放射性核種和非水溶性放射 性核種污染的 304 不鏽鋼試片進行實驗[20],分析粒子尺寸分佈特徵,也測量在不同 雷射剝蝕和污染條件下出現的顆粒大小和濃度,並使用高效率空氣濾器研究了各種測 試條件下的顆粒去除特性的相關研究成果。

日本 JAEA 研究團隊於 2021 年發表的文獻即針對雷射和不鏽鋼、氧化鋁相互作用 後產生的碎片及顆粒進行實驗[19],下表 1.1.32 為使用之準連續波(quasicontinuous wave)摻鐿光纖雷射參數。

表 1.1.32 日本 JAEA 試驗雷射除污金屬試片後產生顆粒及碎片特性所使用的試片基本 參數[19]

| 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|--------|---------|-------|-------|
| 2.7 kW | 1070 nm | 10 ms | 10 Hz |

研究對於雷射照射後受影響的表面輪廓及範圍進行討論,估計影響的直徑,實驗 結果顯示,隨著雷射功率上升,熔融直徑增加,如下圖 1.1.46 所示,當雷射功率從 0.9 千瓦提升至 1.8 千瓦時,熔融表面直徑即從 0.68 毫米增加到 0.98 毫米,且對於高功率 雷射觀察到凹孔而非隆起。



圖 1.1.46 日本 JAEA 使用雷射功率為 0.9、1.8 和 2.7 千瓦照射不鏽鋼試片的光學顯微 鏡圖像(a) 0.9 千瓦。(b)對應 0.9 千瓦之試片橫截面圖。(c) 1.8 千瓦。(d)對應 1.8 千瓦之 試片橫截面圖。(e) 2.7 千瓦。(f)對應 2.7 千瓦之試片橫截面圖。(g) 2.7 千瓦。(h)對應 2.7 千瓦之試片橫截面圖。[19]

實驗也使用 He-Ne 雷射光學元件及高速相機結合單色陰影系統來觀察快速粒子及 碎片,如下圖 1.1.47 所示,雷射束使用焦比(f-number)為 10 的聚焦光學元件聚焦在試片 上。在陰影圖的系統中,He-Ne 雷射進入擴束器,使擴展後的平行光束照明位於 QCW 光纖雷射器和試片之間的區域,使用 633 奈米(光譜寬度 10 奈米)帶通濾波器的高速相 機(Photoron FASTCAM MINI Ax50)記錄陰影圖。在實驗條件下,二維陣列偵檢器的像素 數為 256×256,圖幀率為每秒 20000 個,偵檢平面上的空間解析度為 40 奈米,假設解 析度至少影響 3 個像素,其中每個像素大小為 13.0 奈米。為了記錄相同光譜範圍內相 互作用區域的自發射圖像,安裝了第二台高速相機(Photoron FASTCAM MC2.1)與波長 633 奈米的窄光譜濾波器,光譜寬度 6 奈米,其二維陣列偵檢器的像素數為 512×96,圖 幀率為每秒 10000 個,因此偵檢器平面上的空間分辨率為 700 奈米,每個像素大小為 236 奈米。另外,使用光纖連接光譜儀(StellerNet Inc., Miniture Fiber Optic Spectrometer UV-VIS-NIR)記錄數據,而鋁收集器則用於收集雷射相互作用區域的顆粒。



圖 1.1.47 日本 JAEA 使用高速相機觀察陰影圖和自發射圖像之實驗裝置示意圖。[19]

下圖 1.1.48 為雷射照射不繡鋼後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒噴射之示意圖, 此時由於反衝壓力(recoil pressures)推動熔融層,因此顆粒、液滴(droplet)向上散射。所 產生的金屬蒸氣隨後因冷卻快速成核(nucleation)與凝結(condensation)為尺寸小於1 微米 的細顆粒,而液滴則可形成較大尺寸的顆粒。下圖 1.1.49 為雷射照射不鏽鋼後的結果, 紀錄雷射開始照射後 1 毫秒、5 毫秒、10 毫秒、11 毫秒以及自發射影像。圖 1.1.49 中 明亮區域由高溫游離粒子組成,黑色圓圈處則為細顆粒區域,相對高密度的細顆粒來自 不鏽鋼的蒸氣。在雷射照射期間,可以看到大約十個宏觀熔融顆粒,其尺寸和速度通常 為 50 微米和每秒五公尺。宏觀顆粒的質量約為幾微克。



圖 1.1.48 日本 JAEA 使用雷射照射不繡鋼後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒和碎片 之示意圖。[19]



圖 1.1.49 日本 JAEA 試驗雷射照射不鏽鋼試片之陰影圖及自發射圖像(a)雷射開始照射後 1 毫秒之陰影圖。(b)雷射開始照射後 5 毫秒之陰影圖。(c)雷射開始照射後 10 毫秒 之陰影圖。(d)雷射開始照射後 11 毫秒之陰影圖。(e) 雷射開始照射後 1 毫秒之自發射 影像。(f)雷射開始照射後 5 毫秒之自發射影像。(g)雷射開始照射後 10 毫秒之自發射 影像。(h)雷射開始照射後 11 毫秒之自發射影像。[19]

下圖 1.1.50 為雷射照射氧化鋁後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒和碎片噴射之示 意圖,除了金屬蒸氣與液滴向上散射外,還有破裂的碎片(fragment)形成較大的顆粒。而 下圖 1.1.51 為雷射照射氧化鋁後的結果,觀察到其中熔融層膨脹,破碎成許多碎片擴散 到環境大氣中。碎片的大小為幾十微米到幾百微米。在雷射照射期間,羽流和碎片會再 次被加熱,因此也可以看到細顆粒區域中有加熱和冷卻的碎片。



圖 1.1.50 日本 JAEA 使用雷射照射氧化鋁後誘導熔融層、蒸氣、液滴、細顆粒和碎片 之示意圖。[19]



圖 1.1.51 日本 JAEA 試驗雷射照射氧化鋁試片之陰影圖及自發射圖像(a)雷射開始照射後 1 毫秒之陰影圖。(b)雷射開始照射後 5 毫秒之陰影圖。(c)雷射開始照射後 10 毫秒 之陰影圖。(d)雷射開始照射後 11 毫秒之陰影圖。(e) 雷射開始照射後 1 毫秒之自發射

影像。(f)雷射開始照射後5毫秒之自發射影像。(g)雷射開始照射後10毫秒之自發射影像。(h)雷射開始照射後11毫秒之自發射影像。[19]

使用高速相機追蹤液滴和碎片,發現在反衝壓力作用下這些顆粒可以每秒幾公尺到 每秒幾十公尺的速度被噴射到環境中。較小的碎片和液滴會以更快的速度噴射,已超出 設備的觀察限制。另外還觀察到,雷射照射區域內的小碎片和液滴可能被連續的雷射照 射蒸發。

使用 JEOL Ltd.的 JSM-7800F 熱場發射掃描式電子顯微鏡觀察顆粒及碎片,排放的 顆粒和空氣作用後會產生氧化細顆粒,從下圖 1.1.52 中觀察從不鏽鋼試片收集的細顆 粒,可看到顯示出氧化的球形白色顆粒。尺寸約為 0.1 微米的細顆粒應來自蒸氣。



圖 1.1.52 日本 JAEA 使用電子顯微鏡觀察不鏽鋼試片產生之細顆粒影像。[19]

下圖 1.1.53 為使用電子顯微鏡 TM4000 plus 觀察從氧化鋁試片收集的細顆粒,噴 出直徑小於幾微米的細顆粒。圖 1.1.53 (a)顯示噴射碎片的尺寸約為 10 微米, 1.1.53(b) 觀察源自氧化鋁試片熔融部分的單個細球形顆粒。



圖 1.1.53 日本 JAEA 使用電子顯微鏡 TM4000 plus 觀察氧化鋁試片的顆粒照片(a)各種 類型的噴射粒子。(b)單個細顆粒。[19]

雷射照射後產生的顆粒和碎片的尺寸分佈在幾十奈米到幾毫米之間,大碎片來自 於雷射照射區域附近,由內熱應力產生;直徑小於1微米的顆粒可能來自蒸氣的成核 和凝結;直徑大於1微米的顆粒可能由熔融液體中噴出。 從廢棄物處理的角度來看,碎片更易於回收,因產生的細顆粒量較少。碎片的收 集也將適用於遠程採樣技術。下圖 1.1.54 顯示了各種細顆粒隨其尺寸變化而變化的列 表,包含由雷射相互作用產生的顆粒。由於細小的顆粒會通過人體肺部影響器官,因 此最需注意的問題是如何有效收集小於 0.1 微米且主要來自蒸氣的細顆粒。



圖 1.1.54 不同顆粒大小和適用之過濾器。[19]

韓國 KAERI 之研究團隊於 2013 年發表的研究報告提出為了成功應用雷射剝蝕除 污技術,有必要透過消除剝蝕產生的顆粒來防止再污染[20]。因熱室內的放射性物質以 氣體或固體顆粒形式存在,氣相放射性核種主要透過通風系統排放,而固體顆粒由於在 空氣中的擴散係數低,會附著在熱室的設備和設施上,並導致金屬表面被氧化物污染。 為模擬對熱室的除污操作,此文獻中即研究對水溶性放射性核種 (water soluble radionuclides,WSRs) 鈷與銫,以及對非水溶性放射性核種 (water insoluble radionuclides, WIRs)的銪和鈰在不鏽鋼試片上的雷射除污成效與除污時產生的粉塵顆粒特性。

通常雷射剝蝕產生的顆粒以碎形結構 (fractal-structured)和團聚物形式(agglomerate form)存在,由直徑幾奈米到幾十奈米的初級顆粒組成。雷射剝蝕產生的顆粒由賤金屬 的重金屬、無機物質、為提高除污效率而添加的添加劑以及特定的放射性核種組成,它 們可以根據剝蝕條件以各種尺寸和形狀存在。304 不鏽鋼 (stainless steel 304, STS 304) 是高放射性設施如熱室中常用的材料,因此需分析剝蝕 304 不鏽鋼表面的放射性核種而 產生的顆粒大小和濃度特性,並尋求有效去除此類顆粒的方法。

在這項研究中,對剝蝕受水溶性放射性核種和非水溶性放射性核種污染的 304 不鏽 鋼試片,進行粒子尺寸分佈特徵的分析。測量了在不同雷射剝蝕和污染條件下出現的顆 粒大小和濃度,然後使用高效率空氣濾器研究了各種測試條件下的顆粒去除特性。

研究使用 Nd:YAG 雷射,參數如表 1.1.33。製備受水溶性放射性核種和非水溶性放射性核種污染的 304 不鏽鋼試片。使用 Co(NH4)2(SO4)2 和 CsNO3 製備兩個水溶性放射性核種污染試片,並使用 Eu2O3 和 CeO2 製備兩個非水溶性放射性核種污染試片。另外,透過將銫離子與 KNO3、KCl 或 KOH 混合來製備另外三個水溶性放射性核種污染的試片,以增強去污效果。

表 1.1.33 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析所使用的雷射系統重要參數[20]

| 脈衝能量 | 平均功率 | 波長 | 脈衝時寬 | 重複頻率 |
|--------|-------|--------|------|-------|
| 150 mJ | 2.1 W | 532 nm | 8 ns | 14 Hz |

為了保持除污效果,必須立即收集雷射剝蝕過程中產生的顆粒,以防止它們擴散 到環境中。為了去除此類顆粒,需獲得粒子尺寸分佈(particle size distribution, PSD)。 如圖 1.1.55 中的設備示意圖,掃描式電動度粒徑分析儀(scanning mobility particle sizer, SMPS)可以量測過濾前與過濾後的顆粒濃度,計算過濾器的收集效率,以了解雷射剝 蝕產生的顆粒是否可以被空氣過濾器有效去除。此篇文獻使用玻璃纖維高效微粒空氣 過濾器(glass-fiber HEPA filter),過濾速度設定為每秒 5.3 公分。在完成顆粒去除性能測 試後,使用掃描電子顯微鏡 (scanning electron micro- scope, SEM)對過濾器收集的顆粒



圖 1.1.55 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析使用之雷射剝蝕顆粒收集實驗裝置示意圖。[20]

圖 1.1.56 顯示雷射剝蝕過程中在玻璃纖維高效微粒空氣過濾器中收集的顆粒掃描 電子顯微鏡圖像,鏈團聚體是雷射剝蝕產生顆粒的一般特徵。圖 1.1.56(a)顯示碎形結 構中的團聚物,其中初級粒子彼此粘附。圖 1.1.56(b)顯示附著在過濾纖維表面的初級 顆粒,大小約 10-20 奈米。



圖 1.1.56 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片,進行顆粒大小和濃度分析實驗之剝蝕後在玻璃纖維高效率粒子空氣濾器中 收集的顆粒掃描電子顯微鏡圖像(a)顯示碎形結構中的團聚物。(b)顯示附著在過濾纖維 表面的初級顆粒。[20]

圖 1.1.57(a)顯示被各種放射性核種污染的 304 不鏽鋼試片進行雷射剝蝕除污過程 中產生的粒子尺寸分佈的測量結果, 雷射能量密度為 18 J/cm²。純 304 不鏽鋼試片和被 水溶性放射性核種(鈷和銫)污染的試片具有幾乎相同的粒子尺寸分佈和粒子濃度,幾何 平均顆粒直徑約為80奈米。非水溶性放射性核種 (銪和鈰)污染的試片比水溶性放射性 核種污染的試片具有更寬的粒子尺寸分佈和更高的粒子濃度,濃度大約高了三倍,幾何 平均顆粒直徑與水溶性污染試片不同,減小到約70 奈米。這種結果是由於與水溶性放 射性核種相比,非水溶性放射性核種在雷射剝蝕除污條件下以顆粒形式存在的可能性很 高。圖 1.1.57(b)顯示由鈷和銫污染產生的粒子尺寸分佈與雷射能量密度的關係。從這些 結果可以看出,粒子濃度隨著能量密度的增加而增加,以通量對粒子產生的影響而言, ・絕污染大於鈷污染。在絕污染的情況下,當雷射能量密度增加三倍時,從6到18J/cm², 粒子濃度也增加了三倍。在鈷和銫的污染中,無論能量密度為何,平均直徑幾乎相同。 圖 1.1.57(c)顯示由銪和鈰污染產生的粒子尺寸分佈與雷射能量密度的關係。與水溶性放 射性核種污染的情況一樣,非水溶性放射性核種的粒子濃度隨著能量密度增加而增加。 然而,粒子濃度的增加程度非常輕微,且粒子的平均直徑幾乎保持不變。另外在研究報 告中,透過將銫離子與 KNO3、KCl 或 KOH 混合來製備另外三個水溶性放射性核種污 染的試片,以增強除污效果。圖 1.1.57(d)顯示對含有鉀鹽的銫污染試片進行雷射除污後 產生的粒子尺寸分佈,對於添加鉀鹽的水溶性銫污染產生平均直徑為70 奈米的顆粒, 對於純銫污染產生略小於 80 奈米的顆粒。此外,與純銫污染相比, 雷射剝蝕含有鉀鹽 的銫離子污染物所產生的顆粒,濃度高出兩倍以上。原因為空氣中的 O2 與添加的鉀離 子形成 K2O 氧化物,而鉀離子在雷射燒蝕環境中很容易蒸發。雷射除污含鉀鹽的絕離 子污染物的顆粒濃度順序為 KNO3 > KOH > KCl。由於 KNO3 或 KOH 經剝蝕分解出的 氧在與銫結合後,作為Cs2O被去除,結果除污成效增強,並產生更多的顆粒。



圖 1.1 57 韓國 KAERI 對不同放射性核種污染的 304 不鏽鋼試片進行雷射剝蝕除污過程 中產生的粒子尺寸分佈的測量結果(a)剝蝕純 304 不鏽鋼試片與鈷、銫、銪及鈰污染 304 不鏽鋼試片之粒子尺寸分佈圖。(b)剝蝕鈷和銫污染 304 不鏽鋼試片產生的粒子尺 寸分佈與雷射能量密度的關係示意圖。(c)剝蝕銪和鈰污染 304 不鏽鋼試片產生的粒子 尺寸分佈與雷射能量密度的關係示意圖。(d)剝蝕含有鉀鹽的銫污染試片產生的粒子尺 寸分佈圖。[20]

應使用適當的方法去除雷射剝蝕過程中產生的顆粒。高效微粒空氣過濾器可有效去 除直徑為300 奈米的粉塵顆粒(效率為99.97%)。在使用玻璃纖維高效微粒空氣過濾器 下,圖1.1.58(a)顯示過濾器對304 不鏽鋼試片進行雷射剝蝕時產生顆粒的收集效率,還 顯示常用作空氣過濾器測試用的NaCl顆粒的收集效率,以進行性能比較。結果顯示, 高效微粒空氣過濾器對NaCl和雷射剝蝕產生顆粒的收集效率在整個顆粒直徑範圍內都 高達98%以上。然而,當直徑大於50 奈米,NaCl顆粒的空氣過濾效率表現出典型的 曲線形狀,其最小值在100 奈米到300 奈米之間,約為97.5%。相反,雷射剝蝕產生的 顆粒都顯示出非常高的效率,為99.9%,因此得知與顆粒大小無關。簡單總結造成差異 的原因有兩點,一為顆粒電荷的差異,研究已經證實在雷射剝蝕過程中產生的顆粒是帶 電的,當帶電粒子通過纖維過濾器時,粒子和過濾器纖維之間會產生靜電力,並使收集 效率提高。二為雷射剝蝕中產生的碎形顆粒團塊的幾何性質,團塊之間的碰撞率比NaCl 顆粒大得多,因此收集效率提高。圖1.1.58(b)顯示高效空氣過濾器對純304 不鏽鋼試片、 水溶性與非水溶性放射性核種污染的304 不鏽鋼試片進行雷射剝蝕時產生的所有顆粒 的收集效率。在所有情況下,高效微粒空氣過濾器都顯示出高收集效率,超過99.4%。 因此如高效微粒空氣過濾器這樣的高效空氣過濾器確實可有效去除放射性熱室中雷射 剝蝕除污產生的顆粒。



圖 1.1.58 韓國 KAERI 對剝蝕受水溶性放射性核種及非水溶性放射性核種污染的 304 不 鏽鋼試片實驗,使用高效微粒空氣過濾器去除雷射剝蝕過程中產生的顆粒結果(a)高效 微粒空氣過濾器對雷射剝蝕產生的顆粒與測試用的 NaCl 顆粒的收集效率。(b) 高效微 粒空氣過濾器對純 304 不鏽鋼試片、水溶性與非水溶性放射性核種污染的 304 不鏽鋼 試片進行雷射剝蝕產生的顆粒收集效率。[20]

4.1.3 雷射金屬除污操作限制

由 4.1.1 與 4.1.2 小節所彙整之結果可知,近年來雷射除污金屬表面的研究皆主要使 用 Q 開關 Nd:YAG 雷射或光纖雷射產生的奈秒時寬雷射脈衝執行除污成效測試。這些 雷射系統在輸出光束的平均功率上相差甚大,如韓國 KAREI 使用的 Q 開闢 Nd:YAG 雷 射平均功率僅數瓦 (表 1.1.16, 1.1.18, 1.1.23, 1.1.33)而德國德勒斯登大學則使用平均功 率達 150 瓦的 Q 開闢 Nd:YAG 雷射進行除污測試,然而評估雷射可否有效除污的最重 要參數為單一雷射脈衝照射材料表面時的能量密度,亦即於每單位面積下雷射脈衝給予 的照射面的能量。如圖 1.1.20 為法國 CEA 之研究以不同能量密度及掃描速度探討除污 效率之結果所示, 雷射給予的能量密度須大於 5.0 J/cm²閾值能量密度並搭配適當掃描速 度才可以達到一定的除污成果,否則將無法完全剝蝕氧化層如圖 1.1.21 所示。如此由表 1.1.22 之彙整比較與表 1.1.28 之結果可知, 雷射金屬除污需在單一雷射脈照射於表面之 能量密度達 5 J/cm²左右時始有成效,而後即可藉由移動光束使待除污金屬表面於單位 面積下持續累積能量而增加剝蝕深度如圖 1.1.37 所示,或達成完全去除表面塗層之目的 如圖 1.1.41 所示。根據此剝蝕深度與單位面積下累積能量成正比之關係可知決定除污操 作所需時間的最重要雷射參數即為光束的平均功率,在單一雷射脈衝可提供足夠能量密 度的情況下,使用更高輸出功率的雷射系統即可縮短除污操作所需的時間。以單位面積 累積能量達 5,152 J/cm² 可剝蝕 11.9 微米的鐵磁體鋼為例,使用文獻[17]所採用的 150 瓦 Q 開關 Nd:YAG 雷射除污 1 平方公尺的面積約須 95 小時,若改採用 1000 瓦雷射則可 縮短操作時數至 14.25 小時。若以單位面積累績能量 547.9J/cm² 清除塗層時,則除污 1 平方公尺的面積約須10小時,若改採用1000瓦雷射則可縮短操作時數至1.5小時。

55

由圖 1.1.27、1.1.54 與 1.1.57 對雷射金屬除污所產生的粉塵顆粒分析可知除污以產 生直徑尺寸為 100 奈米左右的金屬顆粒為主。而如圖 1.1.58 韓國 KAERI 對高效微粒空 氣過濾器的效率分析可知,因雷射剝蝕產生的顆粒帶電荷與碎形顆粒團塊的幾何性質, 使用規格達 H13 級(300 奈米粒子的過濾> 99.95%)的玻璃纖維高效微粒空氣過濾器即可 達 99.9%的顆粒收集效率。為進一步抑制雷射除污產生粉塵擴散污染,日本中部電力公 司(CHUBU Electric Power)、TOYOKOH 公司(株式会社トヨコ—)以及光產業創成大學 院大學(The Graduate School for the Creation of New Photonics Industries, GPI)共同研發之 CoolLaser 雷射除污系統即進行了水下雷射除污的測試如圖 1.1.59 所示,使粉塵能夠封 存於水中而不會擴散至空氣中[21]。目前此水下除污操作模式尚在初期測試中,未有發 表的實驗結果。



圖 1.1.59 日本中部電力公司等進行之 CoolLaser 系統水下除污測試。[21]

目前尚未搜尋到可應用於核電廠除污的水下操作雷射除污設備或相關實驗結果。然 而已有雷射設備應用於船體(ship hull)或離岸(offshore)設施的水下清潔以達成去除油污 或生物附著(biofouling)所造成的生物膜(biofilm)[22,23]。圖 1.1.60 (a)-(d)即為應用於水 下去除生物膜的雷射清潔系統示意圖,此類系統多搭配機器人達成遠程操作之目的。然 而由圖 1.1.60 (g)比較於空氣下與於水下五公分深度使用脈衝光纖雷射清潔金屬試片上 原油膜之效率的結果可知[24],於水下操作時會降低雷射清潔之效率。因此在執行核電 廠除污操作時,於水下操作的雷射除污效率也可能較空氣下的除污操作為低。



圖 1.1.60 (a)-(d)應用於水下去除生物膜的雷射清潔系統示意圖與(e)-(f)除污結果[22, 23]。(g)比較於空氣下與於水下五公分深度使用脈衝光纖雷射清潔金屬試片上原油膜之

效率[24]。

4.2 雷射除污放射性混凝土表面之成效

雷射除污技術應用在核電廠中的混凝土除污上,是透過高雷射強度雷射照射混凝土 表面,使待除污表面瞬間加溫而發生表面材料改質以利去除的技術。當材料經由一定強 度的雷射照射使表面達到一定溫度,材料表面會發生剝落(spalling)的現象,並透過增加 強度進而發生材料表面玻璃化(vitrification)及蒸發(vaporization)等現象。而一般使用於核 電廠的混凝土結構可先粗略分為塗層(painted)與混凝土本身,塗層通常由氯化橡膠 (chlorinated rubber)、含 PCB(polychlorinate biphenyls)環氧樹脂(epoxy resin)和含 PVC(polyvinyl chloride)環氧樹脂所組成[25],這些高分子化合物需要將近攝氏 1000 度 的高溫才有辨法發生降解,進而從混凝土表面排除,故只有高功率雷射能夠瞬間加熱到 高溫進行熱分解。混凝土本身則是由水泥、水、粗骨材(coarse aggregate)、細骨材(fine aggregate)及沙粒所組成,而構成混凝土最主要的粗骨材佔了總體積的百分之八十,故雷 射除污的成效與粗骨材的種類有很大的關係[26]。粗骨材通常有三種不同類型,分別由 石灰岩(limestone)、玄武岩(basalt)、石英岩(又稱矽質 siliceous)所組成,不同的成分所對 應到的除污成效也大不相同。例如圖 1.1.61 所示,以相同雷射強度的光纖雷射分別照射 OP 水泥漿(ordinary portland cement paste, OPC)和灰泥(mortar)混凝土表面 40 秒,可以看 到灰泥表面產生了玻璃化的現象,而 OPC 並沒有相對的玻璃化現象[27]。



圖 1.1.61 英國雪菲爾大學團隊以 177 W/cm² 的光纖雷射除污(a)OPC (b)灰泥混凝土表面 40 秒。[27]

當混凝土表面開始受到雷射照射時,照射區域會因為接收到雷射的能量而開始升溫, 此時在混凝土內部孔隙中存留的水份也會在升溫過程中轉變成水氣並受熱膨脹,進而對 混凝土內的孔隙產生孔隙壓力(pore pressure),一旦孔隙壓力高過混凝土的降伏強度 (yield strength),將有可能讓材料發生破裂而剝落混凝土。於是,在使用雷射除污混凝土 時,混凝土內的水分含量分布及混凝土本身的機械性質對於混凝土剝落扮演了很重要的 角色。其中混凝土內的水分含量會受到存放條件及混製比例的影響,而混凝土本身的機 械性質則是可以藉由細骨材的添加而有所不同,這在 2016 年時英國雪菲爾大學 (University of Sheffield)便有專門設計實驗研究此特性[28]。另外,混凝土會因為材料本 身的熱導率(thermal conductivity),使得經由雷射照射後的熱影響(thermal effect)區域具 有深度上的限制,所以在使用雷射除污過程時,雷射給予混凝土表面相當高的升溫速率 會導致材料表面溫度較高而內部較低,進而建立起相當大的溫度梯度於材料表面與內部, 並對材料產生了熱應力(thermal stress),此熱應力也會對材料表面剝落具有一定的影響 程度[29]。

而材料熱影響區域的溫度達一定高溫時,會造成混凝土內的碳酸鈣(CaCO₃)分解及 氫氧化鈣(Ca(OH)₂)脫水等化學作用,造成材料的質量損失,並對表面具有一定程度的結 構破壞,讓混凝土表面不需要較高的孔隙壓力即可發生剝落,進而加速混凝土的剝落行 為[30]。當雷射強度進一步提升,足以將混凝土升溫至混凝土熔點時,照射區域的混凝 土將會發生熔化,並在降回室溫的過程中快速冷卻而進一步發生玻璃化,在其表面產生 容易去除的玻璃層,如圖 1.1.62 所示,玄武岩混凝土在雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖 雷射照射下發生了玻璃化現象。若上升的溫度到達混凝土的氣化溫度,甚至有可能會蒸 發照射區域的表面。



圖 1.1.62 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污玄武岩混凝 土表面(a)除污過程中。(b)40 秒除污後。[30]

由上述得知, 剝落行為的發生主要來自於雷射除污時, 混凝土內產生的孔隙壓力及 熱應力兩者對其結構的破壞。其中決定剝落行為的主要因素取決於材料內水分的多寡。 水分較多的混凝土(如 OPC)在雷射照射後, 其水氣受熱膨脹所造成的孔隙壓力較大而增 加孔隙壓力所帶來的影響, 且同時水的導熱性優於空氣, 會增加材料的導熱性而因此降 低了照射時的溫度梯度, 進而減少熱應力的效應。反之,水分較少的混凝土(如灰泥), 所能引發的孔隙壓力就較少, 且由於導熱性的降低而增加了雷射除污時所產生的熱應力 [30]。若混凝土本身水分含量較少, 且孔隙也較少而具有較佳的導熱性(如玄武岩), 造 成剝落速率明顯不足時, 材料無法藉由剝落而裸露較為低溫的內部, 這時混凝土表面會 不斷受到雷射照射而持續升溫, 材料除污的行為將會從剝落轉變為玻璃化。如圖 1.1.17 與小節 3.3 所述。

然而一般核電廠設備中所使用到的混凝土不會直接曝露在大氣環境上,通常會塗有 樹脂等高分子塗層覆蓋在混凝土表面,例如德國 Kerntechnische Entsorgung Karsruhe(KTE)核電廠所使用的塗層[25,31],其結構如圖 1.1.63 所示。這些塗層在設備長 期曝露於輻射照射使用下含有相當高的輻射劑量,在核電廠除役前也需要經由除污的方 式將設備表面的放射性物質含量降低至法定限度以下。若使用雷射除污技術,可以透過 使用足夠能量的雷射照射塗層,在照射過程中藉由瞬間加熱的方式讓塗層中的高分子升 溫降解,以利方便處理及回收受輻射污染的塗層物質,並能同時除污塗層下方的混凝土。 塗層中最常見的有害物質為多氯聯苯(PCB),其需要在 1000℃的高溫下才會發生降解 [31]。

| Name of Coating | Thickness |
|--------------------------------|---------------------|
| 4.) GEHOPON EW10 | 100 - 125 µm |
| 3.) GEHOPON EW10-ZB | 100 - 125 µm |
| 2.) GEHOPON EW32 (filler) | not defined |
| 1.) GEHOPON EW38 (primer coat) | not defined |
| Conrete (base material) | |

圖 1.1.63 德國 KTE 核電廠所使用的塗層。[31]

圖 1.1.64 簡介了雷射作用於高分子表面到能夠產生穩定火焰(stable flame)的流程圖, 在雷射開始照射到塗層後,塗層會因為接收雷射的能量而瞬間升溫至氣化溫度,在這過 程中塗層會開始慢慢釋放氣體,釋放氣體的現象會隨著時間慢慢加劇直到塗層燃燒,若 雷射功率高於 4 千瓦時會在燃燒的過程中發生爆燃作用(deflagration),之後燃燒的火焰 會再隨著時間慢慢逐漸縮小而演變成穩定火焰持續燃燒,若雷射除污的過程在尚未演變 成穩定火焰時即中斷,塗層表面會留下許多燃燒後的塗層殘留物。在文獻中[25]利用一 萬瓦的連續波二極體雷射剝蝕 100 微米到 700 微米的環氧樹脂表面,根據圖 1.1.65 的結 果,若塗層厚度越厚,則需要平均每單位長度更高的能量輸入(energy input per unit length) 才可以使表面的塗層完全被剝蝕掉,進而剝蝕到塗層底下的混凝土。



圖 1.1.64 雷射除污於具高分子塗層的混凝土表面示意圖。[25]



圖 1.1.65 德國德勒斯登工業大學團隊實驗中所使用的塗層厚度與每單位長度的能量輸 入關係。[25]

根據上述介紹, 雷射除污於不同材質的混凝土表面時所發生的行為機制有所差異, 其中使用不同雷射參數也會對除污成效帶來影響。本章節將摘要各國團隊將雷射除污應 用於混凝土表面的除污成效, 並討論不同因素對於除污成效的結果。根據研究報告中的 相關內容, 提出雷射除污實際應用在混凝土表面除污時可能會遇到的限制, 以及探討除 污時所產生的顆粒特性與集塵管理。

4.2.1 雷射混凝土除污實驗結果

除污成效一般會與除污時的儀器使用參數和待除污物材料性質有關,其中的實驗參 數包括雷射強度、照射時長及掃描速度(scan speed),材料性質方面則依本身混凝土粗骨 材種類、水分含量、水膠比(water/binder ratio,w/b)及細骨材含量決定。除污成效可藉由 搭配不同儀器及分析方式來證實,常見的方式為高速照相機及熱成像儀的拍攝觀測試片 表面形貌、量測試片體積變化及差熱分析與熱重分析(DTA/TGA)。透過高速照相機的拍 攝可在除污過程中即時追蹤除污後的表面形貌,藉由此種方式判斷其除污機制是剝落或 玻璃化,並進一步確認其除污機制的確切發生時間。高速照相機的拍攝搭配熱成像儀可 以即時追蹤材料表面因雷射照射所上升的溫度,並可確認在除污過程中混凝土內部是否 有高溫熔融混凝土從孔隙內噴發或是玻璃化現象的發生。此外,藉由熱成像儀紀錄試片 表面溫度隨時間的變化,可以透過溫度曲線波動大小判斷試片以小顆粒形式或大面積剝 落,這是因為表面接收到雷射能量具有較高的溫度,當溫度較高的區域剝落而離開混凝 土,此時混凝土會裸露出較低溫的內部區域,所量測到的溫度就會出現波動,剝落的低 溫面積越大則混凝土表面平均溫度降低更多,因此量測到的溫度波動就會越大,並且還 可從波動的頻率判斷剝落顆粒的數量多寡[27]。觀測試片表面形貌及量測試片體積變化, 可幫助我們判別不同參數的雷射對於不同材質的混凝土除污可至多少深度及剝落的總 體積量多寡,以利後續判斷所需的雷射參數以達到期望之除污成效。而差熱分析與熱重 分析則是可以提供在除污過程中,試片經由雷射照射後升溫所發生的各種物理及化學變 化,例如圖 1.1.66 及下表 1.1.34 所展示混凝土經由雷射照射後所發生的熱反應,其中包 含了水氣蒸發、水泥相分解及脫氫作用等,這些變化會在不同溫度區間下發生,其中一 些熱反應也會造成混凝土的質量變化,影響材料的剝蝕行為。



圖 1.1.66 英國雪菲爾大學團隊實驗中灰泥樣品雷射除污後 DTA/TGA 分析曲線。[27]

| | | | | | 材料 | | |
|-----------|------------------------|----------|---------|---------|---------|---------|---------|
| | | | LC | BC | М | Р | О |
| 剥落發生溫度(℃) | | | 350 | 400 | 350 | 200 | 200 |
| 剥落發生時間(s) | | | 2 | 2 | 2 | 1 | 1 |
| 比值(°C/s) | | | 175 | 200 | 175 | 200 | 200 |
| 波峰 | 熱反應發生溫度及質量變化(發生早於剝落行為) | | | | | | |
| | | 溫度範圍(°C) | 40-130 | 40-140 | 40-150 | 40-155 | 40-155 |
| а | 水氣蒸發 | 溫度峰值(°C) | 103 | 107 | 110 | 97 | 117 |
| | | 質量變化(%) | -1.3 | -1.2 | -3.9 | -7.7 | -5.8 |
| b | 水泥相分解 | 溫度範圍(℃) | 130-165 | 140-160 | 150-185 | 155-195 | 150-190 |

表 1.1.34 英國雪菲爾大學團隊在不同混凝土材料升溫後溫度、質量變化及熱反應[27]

| | | 溫度峰值(°C) | 150 | 150 | 100 | 162/185 | 160 |
|---|-----------------|----------|---------|---------|---------|---------|---------|
| | | 質量變化(%) | -0.6 | -0.3 | -1.1 | -2.0 | -2.0 |
| с | 放熱行為 | 溫度範圍(°C) | | | 238-677 | 255-677 | |
| | 太属 扣 気 ル | 溫度範圍(°C) | | | 496-511 | 510-561 | |
| С | 並燭相 111 | 質量變化(%) | | | +0.01 | +0.1 | |
| 4 | 水识扣八额 | 溫度範圍(°C) | | | 340-435 | 340-440 | 340-430 |
| a | 小池柏分胜 | 質量變化(%) | | | -0.5 | -1.4 | -1.5 |
| | | 溫度範圍(°C) | 435-470 | 440-475 | 440-490 | 440-500 | 435-510 |
| e | 波特蘭水泥 脫氫作用 | 溫度峰值(°C) | 453 | 455 | 464 | 472 | 475 |
| | | 質量變化(%) | -0.3 | -0.2 | -0.7 | -1.6 | -3.5 |
| f | 瞐體結構轉 變 | 溫度峰值(°C) | 572 | 572 | 572 | 550-585 | |
| | | 溫度範圍(°C) | 645-720 | 660-712 | 685-738 | 675-745 | 700-733 |
| g | 六方方解石 分解 | 溫度峰值(°C) | 713 | 706 | 716 | 733 | 719 |
| | | 質量變化(%) | -7.7 | -0.7 | -2.3 | -3.2 | -1.9 |
| | | 溫度範圍(°C) | 720-870 | 712-777 | 738-787 | 745-767 | 733-785 |
| h | 方解石分解 | 溫度峰值(℃) | 838 | 760 | 764 | 754 | 765 |
| | | 質量變化(%) | -25.6 | -2.0 | -2.5 | -0.7 | -2.8 |

*LC:石灰岩混凝土、BC:玄武岩混凝土、M:灰泥、P:75%OPC+25%PFA(Pulverised Fuel Ash, 為水泥的替代品)、O:OPC

4.2.1.1 比較儀器使用參數的影響

比較除污時所使用的雷射強度影響,日本 JAEA 曾使用不同雷射強度的準連續波 光纖雷射,並使用每秒5毫米的掃描速度對相同材質的混凝土表面進行表面除污,觀 測雷射除污完後的剝落行為,詳細的雷射實驗參數如表 1.1.35 所示。此實驗中所使用 的混凝土其主要成分如下表 1.1.36 所示,將材料依此成分混合完後倒入模具,固化成 直徑 10 公分的圓柱體形狀,再利用 1.6 千瓦的準連續波光纖雷射對置備好的混凝土試 片進行除污,照射過程的即時影像由高速照相機拍攝,並搭配熱成像儀即時追蹤表面 溫度。

表 1.1.35 日本 JAEA 實驗中所使用的準連續光纖 雷射參數[30]

| 實驗參數 | 強度 | 脈衝時寬 | 重複頻率 | 雷射波長 | 照射角度 |
|------|--------------------------|-------|-------------------|---------|--------------|
| 參數值 | $156 \sim 1166 \ kW/m^2$ | 10 ms | $1 \sim 15 \; Hz$ | 1070 nm | 15 ~ 50 deg. |

表 1.1.36 日本 JAEA 實驗中所使用的混凝土主要成分[30]

| 主要材料 | 水泥 | 粗骨材 | 細骨材 | 水 | 添加劑 |
|------|-----------------------------------|-----------------------|----------------------------|-----------------------|------------------------|
| 密度 | 356 kg/m ³ | 935 kg/m ³ | 325 kg/m ³ | 174 kg/m ³ | 3.03 kg/m ³ |
| 成分 | 波特蘭水 泥 (Portland cement) | 5-20mm 碎石 | <1.2mm 二氧化 矽 <5mm 細砂 | | |

透過高速照相機及熱成像儀拍攝的結果,如圖 1.1.67 所示,發現雷射強度的增加 會讓待除污物的表面得以上升到更高的溫度,所處的除污溫度不同,會發生的物理、 化學作用便有所不同。使用雷射強度低於 400 W/cm² 的光纖雷射照射,可以使混凝土 表面溫度上升至攝氏 700 度,使材料內的水分蒸發膨脹導致表面發生剝落,並且同時 發生氫氧化鈣脫水及碳酸鈣分解等化學作用加劇剝落行為。當雷射強度高於每平方公 分 700 瓦時,表面溫度最高可達到混凝土熔點,此時混凝土表面會開始轉變成熔融狀 態,進而發生玻璃化,最後在表面形成薄薄的玻璃層。若更進一步將強度提高至 1100 W/cm²時,雷射照射所提供的表面溫度將會高到足以讓混凝土發生氣化,在這瞬間加 熱氣化的程中照射區域會立即產生蒸氣羽流(vapor plume)並增加孔隙內部壓力,直到 孔隙壓力大到足以將熔融態的混凝土從孔中噴發[30]。另外值得一提的是在兩段雷射 脈衝之間雷射並未照射混凝土表面時,混凝土的表面溫度仍足以使混凝土呈熔融狀 態,並在這期間仍有少許混凝土噴發的現象,如圖 1.1.68 的高速照相機所拍攝的照片 顯示。



(c): Surface melting and vitreous glazed layer

圖 1.1.67 日本 JAEA 以不同強度的準連續波光纖雷射以掃描速度每秒 5 毫米、脈衝時 寬 10 毫秒及重複頻率 10 赫茲照射混凝土表面所產生的剝落行為及溫度分布。[30]



圖 1.1.68 日本 JAEA 實驗中以尖峰功率 1.6 千瓦、脈衝時寬 10 毫秒、重複頻率 10 赫 茲及光束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土的熱成像儀圖片。[30]

德國德勒斯登工業大學(Technische Universität Dresden)Torsten Kahl 等人在探討雷射 除污所產生的粉塵顆粒性質時所進行的研究中[31],使用塗有水性環氧樹脂塗層(同圖 1.1.63 結構)的石英岩混凝土進行雷射除污,此塗層結構是有實際應用在德國 KTE 核電 廠中的設備表面。在此研究中使用了便攜式的雷射頭,以不同功率的光纖雷射對塗有塗 層的石英岩混凝土進行雷射除污,並藉由配置奈米粒子計數器(Condensate Particle Counter, CPC, Model 3922,TSI)及引擎排氣電移動度分析儀(Engine Exhaust Particle Sizer, EEPS, Model PR-9090, TSI)以進行粉塵顆粒的粒度分析,分析結果於圖 1.1.69 所示。結 果發現,以2至4千瓦的光纖雷射照射塗有環氧樹脂塗層的石英岩混凝土所產生的顆粒 尺寸大多為30公分左右;若以6至10千瓦的光纖雷射照射,則產生的顆粒尺寸大多為 70至90公分。透過此結果發現,雷射強度的增加會使塗有水性環氧樹脂塗層的混凝土 經由雷射除污後所產生的粉塵顆粒尺寸變大。



圖 1.1.69 德國德勒斯登工業大學以不同功率的光纖雷射對(a)塗有塗層(b)未塗塗層的混 凝土試片除污後所得到的粒度分布。[31]

探討雷射照射方向對於除污成效的影響,日本 JAEA 在 2017 年的研究中[30]曾分 別使用雷射向上裝置及雷射向下裝置,以相同尖峰功率的準連續波光纖雷射對混凝土 試片進行雷射鑽孔(laser drilling),雖然與雷射除污有些許的不同,雷射鑽孔將雷射照 射點固定在相同位置剝蝕混凝土,而雷射除污則是會藉由移動雷射頭進行一個範圍的 表面剝蝕,但其破壞混凝土結構的機制皆與雷射除污相同,故也有其參考價值。其實 驗中所使用的試片成分已於表 1.1.35 摘要。實驗裝置示意圖如圖 1.1.70 所示,將雷射 頭固定在單一位置以不同角度照射混凝土表面,並配備高速照相機及熱成像儀觀察剝 蝕行為。



圖 1.1.70 日本 JAEA 使用的實驗裝置示意圖(a) 雷射向上裝置。(b) 雷射向下裝置。[30]

實驗結果如圖 1.1.71 所示,相同尖峰功率下, 雷射向上照射所能穿透的深度會較 向下照射來的深,其原因是來自於向上照射時,混凝土的剝落行為會因為本身會受到 重力的幫助,輔助孔隙壓力破壞表面結構,故其影響的深度範圍會相對雷射向下照射 的結果來得深。在相同雷射照射時間下,向上照射的方式可以用較低的尖峰功率值便 可達到並超越更高尖峰功率下以向下照射方式的穿透深度(penertration depth)。此外, 同樣在使用向上照射方式的條件下照射混凝土,較低的入射角可以達到較深的穿透深 度,這也是因為重力在較低的入射角下分力的作用較大,進而輔助孔隙壓力破壞混凝 土的結構使混凝土表面剝落[30]。



圖 1.1.71 日本 JAEA 以不同(a)雷射照射方向及(b)入射角度下,以脈衝時寬 10 毫秒、重 複頻率 10 赫茲及光束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深度。 [30]

由圖 1.1.72 得知,相同實驗條件下,以較高尖峰功率的雷射照射混凝土能對混凝 土表面產生較高的溫度,故其所能產生的孔隙壓力相對較大,因此造成較深的穿透深 度。若進一步提升雷射的尖峰功率,此時雷射照射所產生的表面溫度能熔化甚至氣化 混凝土,這會更進一步加深穿透混凝土的範圍。透過重複頻率的增加,增加雷射照射 在混凝土表面的次數,會使相同照射時間下的試片表面溫度平均值較高,進而產生較 大的孔隙壓力,因此也能得到比較高的穿透深度[30]。

66



圖 1.1.72 日本 JAEA 在不同(a)尖峰功率及(b)重複頻率下,以脈衝時寬 10 毫秒及光束 直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深度。[30]

透過增加照射時長, 雷射照射會有足夠的時間使混凝土表面升溫後剝落, 裸露的低 溫表面也有足夠的時間升溫後剝落, 進而一層一層往下剝蝕表面, 這會使得穿透深度較 深, 如圖 1.1.73 所示, 因此其照射後混凝土的體積變化率較大[30]。這個結果可以進一 步推論至掃描速度對於除污成效的影響, 掃描速度的增加雖然可以增加雷射除污單位時 間的除污面積, 但相對的同一區域照射到雷射的時間會因此減少, 故可剝落的深度範圍 會隨之降低。



圖 1.1.73 日本 JAEA 在不同照射時長下,以脈衝時寬 10 毫秒、重複頻率 10 赫茲及光 束直徑 1.1 毫米的準連續波光纖雷射照射混凝土所產生的穿透深度。[30]

比較雷射除污時儀器使用參數對於除污成效的影響,可得到以下幾點結論:

(1) 隨著雷射強度的增加,照射區域表面的溫度會隨之上升,其發生的物理化學作用也 就有所不同,此外,若除污於塗有水性環氧樹脂塗層的混凝土時,隨著雷射強度的 增加會造成產生的粉塵顆粒尺寸變大。

- (2) 以雷射向上照射混凝土時,可以藉由重力的幫助使孔隙壓力較為容易破壞混凝土的 結構,進而達到較深的剝蝕深度。
- (3)使用較高尖峰功率的雷射,能於混凝土表面產生較高的溫度,其所能產生的孔隙壓力也會相對較大,因此剝蝕的深度範圍較深。
- (4) 重複頻率的提升,可以增加雷射照射在混凝土表面的次數使試片表面溫度平均值較高,進而產生較大的孔隙壓力,因此剝蝕的深度範圍較深。
- (5) 若將雷射照射時長拉長,則具有足夠的時間一層一層往下剝蝕混凝土,進而達到較 深的剝蝕深度。
- (6) 提升掃描速度,會使單一區域受雷射照射的時間縮短,雖然可提升單位時間內的除 污面積,但整體的剝蝕深度會因此減少。

4.2.1.2 比較混凝土材料性質的影響

英國雪菲爾大學 B.Peach 等人曾混製不同成分的混凝土存放在不同環境,並使用 光纖雷射對這些混製好的混凝土進行除污,利用表 1.1.37 的雷射參數進行實驗,進而 比較混凝土材料性質對於除污成效的影響[27,28,32]。實驗中所使用的混凝土試片配製 成分及原料皆是參考英國 Heysham-2 核電廠所使用的規格,混製成分及試片存放條件 如表 1.1.38 及表 1.1.39 所示。

| 雷射種類 | 功率 | 光束直徑 | 掃描速度 | 能量強度 |
|------|---------|-------|----------|-----------------------|
| 光纖雷射 | 4.76 kW | 60 mm | 100 mm/s | 177 kW/cm^2 |

表 1.1.37 英國雪菲爾大學所使用的雷射重要參數[27,28,32]

在一系列的實驗中[27,28,32],不同成份混製的混凝土試片皆以相同步驟製備:

- 將試片各成分材料乾混 30 至 60 秒
- 乾混完後接著濕混3至5分鐘

混合完後將其倒入模具中固化,倒入模具的過程中需注意混凝土表面
是否平整,

若不平整需要將其震動直到表面平整

- 將倒入至模具的混凝土升溫至 65℃的環境下維持 36 小時的烘烤
- 烘烤後再降至室溫環境240小時達到固化作用
- 固化好的混凝土即可利用鑽石刀切割成實驗中所需要的尺寸形狀
- 依實驗需求條件保存試片直到進行雷射除污

| 石灰岩 | 混凝土 | 玄武岩混凝土 | | 灰泥 | | PFA+OPC | | OPC | |
|-----|-----|--------|----|----|----|---------|-----|-----|-----|
| Lp | Lo | Вр | Bo | Мр | Mo | P42 | P32 | O42 | O32 |

表 1.1.38 英國雪菲爾大學 2015 年實驗中不同種類的混凝土混製成分[27]

| 水 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.32 | 0.42 | 0.32 |
|-------------|--------|--------|--------|--------|------|------|------|------|------|------|
| OPC | 0.75 | 1 | 0.75 | 1 | 0.75 | 1 | 0.75 | 0.75 | 1 | 1 |
| PFA | 0.25 | 0 | 0.25 | 0 | 0.25 | 0 | 0.25 | 0.25 | | |
| 細骨材 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | | | | |
| 塑化劑 | 0.0045 | 0.0045 | 0.0045 | 0.0045 | | | | | | |
| 10 毫米 骨材 | 3.21 | 3.21 | 3.21 | 3.21 | | | | | | |

| 1.1. | 5) 天闼 手非阚八 | 于 2013 千頁 呶 | 谷 伲 厥 上 叶 叶 | 亦行际月[27] |
|--------|------------|-------------|-----------------------------------|----------|
| 測試樣品 | 材料組成 | 試片保存狀態 | 雷射照射時間 | 老化時間 |
| LCS40 | | 水分飽和 | 40 s | 114 天 |
| LCS10a | アな出田路上 | 水分飽和 | 10 s | 115 天 |
| LCS10b | 石灰石化碳工 | 水分飽和 | 10 s | 115 天 |
| LCA40 | | 乾燥 | 40 s | 113 天 |
| BCS40 | | 水分飽和 | 40 s | 114 天 |
| BCS10a | 玄武岩混凝土 | 水分飽和 | 10 s | 115 天 |
| BCS10b | | 水分飽和 | 10 s | 115 天 |
| BCA40 | | 乾燥 | 40 s | 113 天 |
| MS40 | | 水分飽和 | 40 s | 100 天 |
| MS10a | 左 汨 | 水分飽和 | 10 s | 101 天 |
| MS10b | <u> </u> | 水分飽和 | 10 s | 101 天 |
| MA40 | | 乾燥 | 40 s | 99 天 |
| PS40 | PFA+OPC | 水分飽和 | 40 s | 100 天 |

表 1.1.39 英國雪菲爾大學 2015 年實驗中各混凝土試片的保存條件[27]

| PS10a | | 水分飽和 | 10 s | 101 天 | |
|-------|--------|------|------|-------|--|
| PS10b | | 水分飽和 | 10 s | 101 天 | |
| PA40 | | 乾燥 | 40 s | 99 天 | |
| OS40 | | 水分飽和 | 40 s | 100 天 | |
| OS10a | OPC | 水分飽和 | 10 s | 101 天 | |
| OS10b | OPC | 水分飽和 | 10 s | 101 天 | |
| OA40 | | 乾燥 | 40 s | 99 天 | |
| BRA40 | ナキビアホア | 乾燥 | 40 s | - | |
| LRA40 | 幺武石石火石 | 乾燥 | 40 s | - | |

為了比較混凝土種類對於除污成效的影響,此實驗使用雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射,藉由每分鐘 200 毫米的掃描速度分別對石灰岩、玄武岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA(Pulverised Fuel Ash,為水泥的替代品)的混凝土照射 40 秒進行除污。 實驗透過高速照相機搭配熱成像儀觀測混凝土經雷射照射後的表面剝蝕行為,並以溫 度變化曲線輔以說明剝蝕情形。實驗結果發現,此相同實驗參數的條件下,雷射除污 僅能對 BCA(乾燥玄武岩混凝土)、BCS(飽和玄武岩混凝土)及 OS(飽和 OPC)造成約 1 至 1.5 公分深的刮痕,其餘試片的刮痕則可達 2 至 3 公分深,如圖 1.1.74 所示。不同 種類的混凝土在經過相同條件下的雷射除污後,剝落深度上具有差別主要是由於每種 混凝土除污機制上的不同,混凝土表面留下較淺的刮痕是由於表面經由雷射除污後並 非發生剝落行為,而是發生了玻璃化現象後在照射區域的表面產生了一層薄薄的玻璃 層,此玻璃化的現象可以在 BCA、BCS 及 OS 看到,如圖 1.1.75 所示。



圖 1.1.74 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 40 秒後的表面起伏變化。[27]



圖 1.1.75 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 40 秒後的試片表面變化。[27]

此外,透過量測試片除污前後的體積變化率,發現石灰岩樣品經由雷射除污後表面 雖然沒有發生玻璃化,但是由於本身材料較為均質,較不會因為不同成分間的熱膨脹係 數不同而導致剝落,故其體積變化率幾乎為0,明顯低於其他不同種類的混凝土,如圖 1.1.76 所示。透過熱像儀分析,如圖 1.1.77 所示,從溫度曲線可以看到不同種類的混凝 土大部分都在雷射照射 2 秒後開始出現溫度波動的現象,並在持續照射 10 秒內達到穩 定表面溫度。這意味著雷射照射 2 秒後大部分的混凝土試片都已開始發生體積變化,且 根據剝蝕行為的不同,波動的頻率也有所不同。觀察各混凝土的體積變化率與其熱成像 儀所追蹤到的溫度變化,會發現灰泥的溫度波動振幅最大,代表其剝落下來的碎屑顆粒 相對較大,可以透過裸露較大的低溫表面使表面溫度瞬間下降,也因為剝落碎屑尺寸較 大,此現象反應出了灰泥在所有混凝土中的體積變化率最大。



圖 1.1.76 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污後的體積變化率。[27]



圖 1.1.77 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土除污 10 秒後的表面溫度變化。[27]

對 PFA+OPC 與 OPC 進行比較, 會發現經由相同參數的雷射照射後, PFA+OPC 的體積變化率較 OPC 大, 溫度波動的頻率較高, 波動振幅也較小, 這是因為部分的 PFA 置換會減少 OPC 的比例,進而對 OPC 的材料性質帶來改變。透過 XRD 分析的峰 譜顯示, 如圖 1.1.78 所示, 使用 PFA 替代 25%的 OPC 會改變 OPC 峰譜, 即為改變的 OPC 化學成分, 並進而影響到材料的孔隙率、滲透性等材料性質, 如表 1.1.40 所示。

由於 PFA 的添加會造成 OPC 的孔隙率增加以及滲透性的下降,會造成試片內部的水 分含量增加且不易排出,故在雷射除污時試片內部水氣受熱膨脹所產生的孔隙壓力會 相對較大,較容易使材料表面發生剝落,因此除污後的體積變化率也增加了不少。



圖 1.1.78 英國雪菲爾大學團隊於實驗中所使用的(a)PFA+OPC (b)OPC 樣品其 XRD 分析結果。[27]

| 測試樣品 | 孔隙率 | 水分含量 | 水分飽和程度 | 密度 |
|------|---------|---------|--------|-------------------------|
| LCS | 11.07 % | 4.57 % | 99 % | 2385 kg/cm ² |
| LCA | 10.76 % | 3.02 % | 67 % | 2395 kg/cm ² |
| BCS | 11.60 % | 4.53 % | 98 % | 2518 kg/cm ² |
| BCA | 11.27 % | 3.20 % | 71 % | 2500 kg/cm ² |
| MS | 22.19 % | 9.73 % | 98 % | 2223 kg/cm ² |
| MA | 22.44 % | 7.98 % | 77 % | 2186 kg/cm ² |
| PS | 43.49 % | 21.90 % | 96 % | 1902 kg/cm ² |
| PA | 42.08 % | 18.16 % | 80 % | 1828 kg/cm ² |

表 1.1.40 英國雪菲爾大學中不同混凝土的材料性質[27]

| OS | 38.44 % | 19.76 % | 100 % | 1996 kg/cm ² |
|-----|---------|---------|-------|-------------------------|
| OA | 39.52 % | 14.86 % | 70 % | 1868 kg/cm ² |
| BRA | 0.20 % | 0.1 % | - | 3006 kg/cm ² |
| LRA | 7.37 % | 0.1 % | - | 2465 kg/cm ² |

比較試片存放在不同環境下對於除污成效的影響,將相同成分的灰泥在進行雷射除 污前分別以表 1.1.41 記載的不同的保存條件下保存後,再以相同條件進行雷射除污。藉 由比較不同混凝土試片經雷射除污後的體積變化率及表面形貌,可看出經爐烤至攝氏 105 度的 Mp105 及 MpRS 試片,在雷射除污後試片表面皆發生大範圍的玻璃化,這是 因為上述兩個試片在存放過後的水分含量較低,不足以使水分蒸發成水氣後產生足夠的 孔隙壓力使表面材料剝落,使混凝土無法裸露低溫表面而逐漸升溫並引發玻璃化現象, 也因此 Mp105 及 MpRS 試片發生的剝落行為較少,導致這兩個試片相較其他環境存放 的試片 MpAir、MpSat、MpDes 及 MP50 的體積變化率來得低許多,如圖 1.1.79 所示。 也正因為剝落行為的減少,導致試片表面在除污過程中並不會裸露出內部較低溫的材料 表面,故整個除污過程中試片表面所上升的溫度也會相對較高。此外,試片中含有的水 分並非均勻分布,這個現象有可能會影響到實驗的結果。例如 MpRS 含有的水分較 Mp105 高且集中在表層,故 MpRS 試片在一開始雷射照射時會因為含水層內的水蒸發 膨脹所產生的孔隙壓力而發生剝落行為,等水分皆已氣化後離開混凝土表面後才開始發 生玻璃化的現象。另外 MpSat 的含水量是所有試片中最多的,而水的導熱性又會相較 空氣來得好,所以在全部試片中 MpSat 在除污過程的熱影響區範圍會是最大的,這會 使剥落的碎片尺寸越大,而剥落所需要的温度也就相對需要更高。

| | | | | - | - |
|-------|--------------------------------|---------|----------------|------------|-------|
| 測試樣品 | 試片保存條件 | 保存時間 | 平均 質量變化 | 水分 飽和程度 | 水分含量 |
| MpSat | >95%相對溼度 | 261 天 | 0/0 g/% | 100 % | 9.3 % |
| MpAir | 20℃約 40%相對溼 度 | 168 天 | -34.1/-3.2 g/% | 66.9 % | 6.2 % |
| MpDes | 先以 MpAir 條件 存放後再與矽膠一 同存放 | 69+99 天 | -43.7/-4.1 g/% | 57.5 % | 5.4 % |
| Mp50 | 以爐溫乾燥 | 25 天 | -38.0/-3.5 g/% | 63.0 % | 5.9 % |

表 1.1.41 英國雪菲爾大學於實驗中不同存放條件下的灰泥試片[28]

| Mp105 | 以爐溫 100℃乾燥 | 18 天 | -102.8/-9.5 g/% | 0 % | 0 % |
|-------|--------------------------------|------|-----------------|--------|-------|
| MpRS | 使 Mp105 條件保 存的試片重新達水 分飽和 | 2 天 | +52.8/+4.9 g/% | 51.4 % | 4.8 % |

*MpDes 試片先經過 69 天以 MpAir 條件存放後,再經過 99 天和矽膠一同存放



圖 1.1.79 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對不同存放條件 下的灰泥試片除污 40 秒後的體積變化率。[28]

透過改變灰泥中的水分比例,可以進而改變試片的水膠比含量。使用相同雷射照射 條件對不同水膠比的灰泥進行雷射除污,可以比較水膠比對除污成效的影響,表 1.1.42 詳細記述了實驗中用來比較水膠比所使用的混凝土成分。其中表中的%m 沙代表灰泥 (mortar)在混凝土中的比例,mp 則是沒有改變參數的初始混凝土條件。由研究結果圖 1.1.80 發現,由於水膠比較低的試片具有較低的滲透性,而滲透性低會導致混凝土內的 水分蒸發成水氣後不易在混凝土中擴散,使得雷射照射下升溫膨脹的水氣會容易侷限在 同個區域,因此可以很快就達到剝落混凝土所需要的孔隙壓力,使得 Mo37 及 Mp37 兩 個水膠比較低的試片剝落行為較為頻繁,整體試片的體積變化率較高,且由於容易剝落, 掉落的碎片尺寸也相對較小,由熱成像儀看到的溫度曲線波動也較小。反之,水膠比較 高的試片則會有比較高的滲透性,混凝土中分布廣泛的水分會減緩孔隙壓力對於材料的 影響,導致試片表面不容易因為水氣膨脹而剝落。不過由於剝落不易,相同的材料表面 會一直持續受雷射照射而達到較高的表面溫度,這會容易對混凝土產生溫度梯度並進而 產生熱應力。

使用相同雷射照射條件對不同細骨材含量的灰泥進行雷射除污,可以比較細骨材含 量對除污成效的影響。一般在混凝土中添加細骨材可以有效地增加材料的強度,故當混 凝土的細骨材含量增加時,會發現因為材料強化的原因而導致剝落的顆粒不容易崩解, 因此剝落下來的混凝土碎屑傾向以大碎片的形式剝落,這可以從圖 1.1.80 中溫度變化曲線看出,細骨材含量較高的混凝土其溫度波動振幅較大,且由於碎屑尺寸較大,混凝土經由雷射除污後的體積變化率也因此較高。此外,因為細骨材料的添入強化混凝土的關係,造成混凝土剝落需要更高的表面溫度,才能使水氣升溫膨脹產生更足夠的孔隙壓力使表面剝落。另外也發現,細骨材含量低的試片其水分含量較高,如表 1.1.43 所述,在 雷射除污過程中這些從孔隙排出的水分蒸發時會帶走材料表面的熱能,若水分越多則熱 能損失越多,故會發現細骨材含量較低的試片其測得表面的平均溫度會相對較低。

| | | | 不同, | 水膠比 | | | 不同細竹 | 骨料含量 | |
|-------|------|------|------|------|------|----------|-----------|-----------|-----------|
| | Мр | Mp37 | Mp47 | Mo37 | Mo47 | Mp0 % | Mp20 % | Mp40 % | Mp60 % |
| 水 | 0.42 | 0.37 | 0.47 | 0.37 | 0.47 | 0.42 | 0.42 | 0.42 | 0.42 |
| OPC | 0.75 | 0.75 | 0.75 | 1 | 1 | 0.75 | 0.75 | 0.75 | 0.75 |
| PFA | 0.25 | 0.25 | 0.25 | 0 | 0 | 0.25 | 0.25 | 0.25 | 0.25 |
| 細骨材 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 1.84 | 0 | 0.36 | 0.95 | 2.13 |
| %(m)沙 | 56 | 57 | 56 | 57 | 56 | 0 | 20 | 40 | 60 |

表 1.1.42 英國雪菲爾大學實驗中不同水膠比及細骨材含量的灰泥試片成分[28]



圖 1.1.80 英國雪菲爾大學團隊以雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射對不同水膠比及

| 測試樣品 | 孔隙率 | 水分含量 | 密度 | 抗壓強度 |
|-------|--------|--------|-------------------------|--------|
| Мр | 21.1 % | 9.3 % | 2262 kg/cm^2 | 63 MPa |
| Mp37 | 18.3 % | 8.1 % | 2267 kg/cm^2 | 65 MPa |
| Mp47 | 22.8 % | 10.1 % | 2250 kg/cm^2 | 55 MPa |
| Mo37 | 17.1 % | 7.4 % | 2293 kg/cm ² | 76 MPa |
| Mo47 | 21.2 % | 9.3 % | 2277 kg/cm ² | 67 MPa |
| Mp0% | 42.2 % | 21.8 % | 1937 kg/cm ² | 57 MPa |
| Mp20% | 34.8 % | 16.9 % | 2058 kg/cm^2 | 60 MPa |
| Mp40% | 18.9 % | 8.4 % | 2264 kg/cm ² | 59 MPa |
| Mp60% | 26.3 % | 12.0 % | 2188 kg/cm ² | 62 MPa |

表 1.1.43 英國雪菲爾大學團隊於不同水膠比及細骨材含量的灰泥試片的材料性質[28]

比較混凝土材料性質對於除污成效的影響,可得到以下幾點結論:

- (1) 以相同雷射照射條件分別對石灰岩、玄武岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土進行雷射除污,只有玄武岩混凝土會發生玻璃化現象,且石灰岩經雷射除污後的體積變化率幾乎為0。
- (2)若混凝土水份含量較少,受雷射照射升溫所產生的水氣量不足以產生足夠的孔隙壓力使混凝土表面剝落,混凝土表面會持續升溫熔化並進而發生玻璃化現象,在混凝 土表面產生一層薄薄的玻璃層,導致體積變化率的下降。
- (3)若混凝土水膠比較高,會使混凝土滲透性下降,導致混凝土水分蒸發成的水氣不易 在混凝土中擴散,容易侷限在同個區域升溫膨脹,因此可以很快就達到剝落混凝土 所需要的孔隙壓力,使得剝落行為發生頻繁,體積變化率增加。
- (4)若混凝土細骨材含量較高,會使混凝土的機械強度提升,剝落下來的碎屑會因為不容易崩解而傾向以大碎片的形式剝落下來,體積變化率增加。

4.2.1.3 老化對雷射混凝土除污的影響

老化(aging)是描述混凝土從混製倒入模板固化後的存放過程。對混凝土來說,老化 對於混凝土除污成效主要取決於混凝土內的水分含量,而水分含量對於混凝土除污的影響於 4.2.1.2 節中已有詳細說明。另外,老化時不同種類混凝土的性質所受到乾燥與風 化的影響有所不同,故不同種類的混凝土其受老化的影響也會有所差距。
英國雪菲爾大學 B.Peach 等人於 2018 年時使用雷射強度 177 W/cm² 的光纖雷射, 除污與表 1.1.38 相同成分組成的石灰岩、玄武岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA, 每種混凝土試片皆有經過不同時間的老化可以進行比較[32]。例如圖 1.1.81(a)是水膠比 0.32 與 0.42 的飽和 OPC 試片在經過老化 3 個月及 17 個月後的除污成效比較,可發現 經由雷射除污後,老化較久的試片的體積變化率皆小於相同水膠比但老化較短的試片。 此外,材料的降伏強度隨老化時間的增加而提升,這會使得混凝土內部需要更高的孔隙 壓力才得以剝落混凝土,造成其同一表面接收雷射的時間較長,表面溫度因此相對較高, 而導致材料出現了玻璃化,此現象可於圖 1.1.81(b)看見,老化較長的飽和 OPC 試片表 面皆出現了薄薄的玻璃層。圖 1.1.82 可得知老化長短對於飽和 OPC+PFA 及飽和灰泥試 片的體積變化率影響不大,隨老化時長增加而略顯增加但不明顯,這與飽和 OPC 試片 的情況有所不同。由下圖 1.1.83 顯示,飽和石灰岩混凝土經雷射能量強度 177 W/cm² 的 光纖雷射照射後的體積變化率較玄武岩混凝土高,且老化時長較久的混凝土試片的體積 變化率相對較大。而玄武岩混凝土若老化較久,試片則不易剝落,導致照射區域的表面 溫度會持續上升進而發生玻璃化。



圖 1.1.81 英國雪菲爾大學團隊不同水膠比及不同老化時間的飽和 OPC 經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的(a)體積變化率。(b)表面形貌。[32]



圖 1.1.82 英國雪菲爾大學團隊比較不同水膠比及不同老化時間的飽和 OPC(左)飽和 OPC+PFA(中)及飽和灰泥(右)經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的體積變化 率及表面溫度變化。[32]



圖 1.1.83 英國雪菲爾大學團隊研究中不同老化時間的飽和石灰岩混凝土(左)及飽和玄 武岩混凝土(右)經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的體積變化率及表面溫度 變化。[32]

圖 1.1.84 左側兩張圖為老化時長 30 個月的玄武岩混凝土、石灰岩混凝土和灰泥經 過雷射除污後的表面溫度變化。其中玄武岩混凝土及灰泥皆顯示乾燥存放的混凝土試片 所歷經的溫度波動相較飽和試片略小,但差距不大,故可推論經過 30 個月的老化後, 混凝土內的水分飽和程度對玄武岩混凝土及灰泥影響不大。圖 1.1.84 右側兩張圖則為 OPC 與 OPC+PFA 經過雷射除污後的表面溫度變化。比較兩者的結果發現,飽和 OPC 相對乾燥 OPC 的溫度波動較小,剝落的碎屑尺寸相對較小,這和 OPC+PFA 的結果相 反,飽和 OPC+PFA 相對乾燥 OPC+PFA 的溫度波動較大,剝落的碎屑尺寸相對較大。



圖 1.1.84 英國雪菲爾大學團隊研究中歷經老化 30 個月後不同種類的乾燥及飽和混凝土 經雷射能量強度 177 W/cm² 的光纖雷射除污後的表面溫度變化。[32]

圖 1.1.85 是以不同種類的混凝土依其初始水分飽和度對雷射除污後體積變化率的 影響,結果發現飽和度較低的玄武岩混凝土、OPC 和灰泥中樣品的體積變化率較高,而 PFA+OPC 及灰泥分別在初始飽和度 63%和 78%時具有最高的體積變化率,此時的剝蝕 速率較佳(陰影區域)。



圖 1.1.85 英國雪菲爾大學團隊研究中不同種類的混凝土其初始水分飽和度對於雷射除 污成效的影響。[32]

從上述實驗結果得知,老化時長對於混凝土除污成效具有以下的影響: (1) 老化對於除污成效最大的影響是來自於風乾所造成的水分減少,因水分不足而降低

混凝土的剥落行為。

- (2)不同種類的混凝土受老化影響的趨勢不同。飽和 OPC 及石灰岩混凝土的剝落行為 會隨著老化增加而趨於嚴重,飽和灰泥及飽和 OPC+PFA 則不受老化影響,飽和玄 武岩混凝土則是隨著老化增加而開始發生玻璃化現象。
- (3) 不同種類的混凝土具有各自最適合雷射除污的初始水分飽和度。

4.2.1.4 雷射除污塗有水性環氧樹脂塗層的混凝土

4.2.1.1 至 4.2.1.3 節所敘述的除污成效,大多皆以表面未塗層的混凝土作為試片, 但實際應用在核電廠除役的設備除污時,混凝土的表面大多具有高分子塗層,當雷射除 污於具有塗層的混凝土表面時,塗層的降解一樣會產生可觀的粉塵顆粒,這在於雷射除 污中的安全性問題是一大考量點。此外,塗層降解形成顆粒的機制又與混凝土剝蝕有所 不同,故在 4.2.1.1 至 4.2.1.3 節所敘述的除污成效雖然不同因素所帶來的效應不變,但 其結果仍有可能會與實際應用時有所差距。在 2018 年,德國德勒斯登工業大學 Torsten Kahl 等人在探討雷射除污所產生的粉塵顆粒性質時所進行的研究中[31],使用具有實際 應用在德國 KTE 核電廠的水性環氧樹脂塗層的石英岩混凝土進行雷射除污,這些塗層 中含有的高分子需要在約攝氏 1000 度的高溫下才能降解,故對雷射的強度具有一定要 求,其使用的雷射參數如表 1.1.44 所示,且由於具有塗層,其實驗結果較能貼近實際除 污時的情況而更具有參考價值。

| 雷射種類 | 最大功率 | 光束大小 | 雷射波長 | 能量強度 |
|---------|-------|--------------------|--------------------------|------------------------|
| 二極體光纖雷射 | 10 kW | 450mm ² | 800 \ 915 \ 9400 \ 980nm | 2.222 W/cm^2 |

表 1.1.44 德國德勒斯登工業大學所使用的重要雷射參數[31]

實驗中的混凝土製備是根據德國混凝土標準規格 DIN 1045 的成分混製而成,如表 1.1.44 所示,每一試片皆為 300 毫米 x 150 毫米 x 30 毫米的尺寸,並將一組試片塗有塗 層(同圖 1.1.63 結構),另一組則無,可進一步比較塗層對於粉塵顆粒性質的影響,兩組 試片的成分皆是德國核電廠中所使用的材料。此實驗利用二極體產生雷射,並透過光纖 的方式將光纖雷射透過手持雷射頭固定至待除污物表面上方照射,如圖 1.1.86 所示,使 用的光纖雷射其功率 6 千瓦、強度 2.222 W/cm²,雷射的光束點尺寸為 45 毫米 x 10 毫 米的長方形,以每秒 16 毫米的掃描速度除污混凝土試片表面,一次實驗中所花費的除 污時間為四秒,除污所產生的粉塵顆粒會以過濾系統(LAS 260,ULT)過濾後排放,顆粒 性質會以引擎排氣電移動度分析儀進行分析,上述的實驗設置以圖 1.1.87 加以示意。

| 成分 | 二氧化矽 | 氧化鈣 | 氧化鋁 | 三氧化二鐵 |
|-------|------|--------|-------|-------|
| 重量百分比 | 49 % | 21.4 % | 6.7 % | 2 % |

表 1.1.45 DIN 1045 規格的石英岩混凝土成分比例[31]



圖 1.1.86 德國德勒斯登工業大學團隊以手持雷射頭掃描混凝土試片。[31]



圖 1.1.87 德國德勒斯登工業大學團隊研究中所使用的雷射除污遠端操作配有過濾系統 的裝置示意圖。[31]

透過配置在雷射頭上的熱電偶進行雷射除污間的溫度量測,圖 1.1.88(a)顯示使用 6 千瓦功率的雷射可將表面加熱至約攝氏 900 至 1000 度的恆定溫度,並在約 4 秒內可讓 混凝土表面升至最高溫度,並在之後降回低溫,由此可知,6 千瓦的功率是不足以提供 足夠的表面溫度使塗層中的 PCB 發生降解,若需要透過雷射除污混凝土表面並同時讓 塗層中的 PCB 降解則需要使用更高功率的雷射。由 EEPS 分析所得到的粒度分布可得 知,2.8 秒至 5.6 秒間最高顆粒濃度幾乎為定值,但表面最高溫則是發生在 4 秒至 5.8 秒 間,這代表了最高顆粒濃度並非發生在最高溫時,故可得知其值可能和表面溫度是否達 到 PCB 降解所需要的溫度無關,而是當高過於一定溫度後,產生的顆粒濃度就會趨於 定值不會再上升太多,其粒度分析結果於圖 1.1.88(b)顯示。若進一步將分析到的粉塵顆 粒依尺寸大小區分如圖 1.1.88(c)所示,會發現生成的顆粒尺寸多為 56-100 奈米的尺寸, 這 類 大 小 的 顆 粒 具 有 高 移 動 性 , 對 人 體 呼 吸 系 統 所 有 危 害 。



圖 1.1.88 德國德勒斯登工業大學團隊使用 6 千瓦光纖雷射對試片除污 4 秒的(a)溫度變 化 (b)粉塵顆粒濃度及尺寸 (c)粉塵顆粒數量變化。[31]

對有塗層及未塗層的混凝土除污結果進行比較。從下圖不同顆粒尺寸對於顆粒濃度 作圖可得知,表面塗有塗層的混凝土結果出現兩個不同顆粒尺寸的峰值,在使用功率2 至4千瓦的雷射除污時,所產生的顆粒大小大多為30奈米左右,而使用功率6至10千 瓦的雷射下顆粒大小多為70奈米到90奈米之間,明顯大於低功率雷射除污的結果。這 是由於高功率雷射可以提供除污時所產生的氣化顆粒較多的能量,在足夠能量下,這些 顆粒較為容易發生成核,並當核尺寸大於臨界尺寸時可以不斷聚集成原子團,造成顆粒 尺寸變大。而未塗層的混凝土除污時的顆粒生成機制與塗有塗層時有所不同,顆粒生成 方式主要是透過 H₂O 原子蒸發、脫水、斷鍵及鍵合等化學作用,造成混凝土表面有剝 蝕剝落的情況,故其產生的主要顆粒大小並不會隨雷射功率改變而有所不同,成單峰分 布,此實驗結果已於圖 1.1.71 呈現。

塗層的存在對於混凝土雷射除污成效的影響,可得到以下幾點結論:

- (1)實際應用在塗有塗層的混凝土除污時,需要選用足夠功率的雷射才有辦法提供足夠 表面溫度使表面塗層發生降解,此實驗是選用大於6千瓦功率的雷射才足以使塗層 高分子降解。
- (2)除污時的最高顆粒濃度並非發生在最高溫時,故其值與是否達到高分子降解所需要 的溫度無關,而是當高於一定溫度後趨於定值。
- (3) 其產生的顆粒尺寸多為將近56 奈米,具有高移動性,並對人體呼吸系統具有相當大的危害,需特別以此點做為安全性考量。
- (4)使用較高功率的雷射可以使塗層降解所產生的氣化顆粒容易成核而凝聚成原子團, 進而提升顆粒尺寸。

4.2.2 雷射混凝土除污產生的粉塵顆粒特性與集成處理

雷射除污相較於其他除污方式的優點,在於除污過程中不會產生大量的灰塵及粉塵 顆粒,其所產生的少量碎石及碎屑顆粒可藉由配備過濾系統的吸收幫浦集中回收,不對 環境造成影響,如圖 1.1.87 所示。值得注意的是在選用過濾系統規格上,需要配合雷射 除污所產生的顆粒尺寸去選用適當的過濾系統,如圖 1.1.54 所示,故雷射除污後所產生 的碎屑及顆粒性質是需要特別留意之處。 日本 JAEA 在 2021 年發表的結果曾使用 2.7 千瓦的準連續波雷射對其混製的重混 凝土(heavy concrete)樣品進行剝蝕[19],其混凝土性質記載於表 1.1.46。經由雷射除污後 所產生的粉塵顆粒可以從圖 1.1.89 中看到,粉塵顆粒尺寸大約落在數微米到數十微米 之間,而尺寸較大的顆粒通常是由於混凝土成分不同,進而導致熱膨脹係數間的差異, 在受熱時產生熱應力使大顆粒剝落。依圖 1.1.54 中的資訊,可以發現目前現有的過濾收 集系統中,小於 0.1 微米的粉塵顆粒比較難透過過濾系統去過濾後收集,這會是目前雷 射除污在粉塵顆粒收集方面所遇到一大問題。2018 年德國德勒斯登工業大學 Torsten Kahl 等人曾針對雷射除污於塗有水性環氧樹脂塗層所產生的粉塵顆粒進行性質分析[6], 其雷射除污後所產生的顆粒尺寸以於圖 1.1.71 呈現,大部分的顆粒尺寸皆小於 0.1 微米。 由於小於 0.1 微米的粉塵顆粒其成因是由除污時的蒸氣所產生,目前發現在水下進行除 污時可以大幅減少蒸氣與小顆粒的產生,故水刀(water-jet)與雷射除污的互相搭配可能 是未來能夠大量減少雷射除污所產生粉塵顆粒的一種方式[19]。

| 密度 | 2.3 g/cm^3 |
|-------|--------------------------|
| 熱導率 | 20℃時為2w/m・K,600℃時為1w/m・K |
| 比熱 | 1 J/g • K |
| 熔點溫度 | ~1500 °C |
| 楊氏模數 | 40-50 Gpa |
| 線膨脹係數 | 13 10 ⁻⁶ /K |
| 蒲松比 | 0.16-0.22 |

表 1.1.46 日本 JAEA 使用的重混凝土樣品性質[19]



圖 1.1.89 日本 JAEA 於混凝土除污實驗時產生的(a)細粉塵顆粒與(b)粗粉塵顆粒的電子 顯微鏡影像圖。[19]

美國阿岡國家實驗室(Argonne National Laboratory, ANL)研究團隊於 2000 年發表的 結果中使用 Nd:YAG 雷射對實驗用沸水反應器(the Experimental Boiling Water Reactor)的 混凝土進行除污實驗,透過粒徑分布結果(圖 1.1.90)可以得知,粒徑分布出現了雙峰分 布,分布呈現峰值的較小顆粒通常會聚集在波特蘭水泥中鋁,這是由於氣相顆粒會在富 含鋁的區域成核而成,而分布呈現峰值的較大顆粒是因熔化後飛濺而形成的空心顆粒。 此現象代表了混凝土受熱處理時有可能會發生類似的偏析現象,這也是日後進行粉塵顆 粒處理時值得考慮的一環。



圖 1.1.90 美國阿岡國家實驗室以 Nd:YAG 雷射對混凝土除污後得到的粒徑分布。[33]

除了產生的粉塵顆粒尺寸與性質需要考量外,混凝土在進行雷射除污時,由於其瞬間加溫所導致的高速膨脹,會使剝落下來的碎片以高速噴出,故基於安全考量會額外使 用管路覆蓋剝蝕表面以防止碎片噴濺,並同時回收剝蝕粉塵顆粒。當雷射除污於塗有塗 層的混凝土表面時,多氯聯苯(PCB)塗層在升溫剝蝕和熱分解的同時會生成煙氣,這些 煙氣中含有有毒物質多氯二噁英(PCDD、戴奧辛)和多氯呋喃(PCDF)。為了安全考量, 利用一般空氣將熱煙氣淬火到低於攝氏250度後再排放可有效防止形成上述化學物質, 減少對環境的污染[25]。

雷射除污雖然相較其他傳統除污方式所產生的粉塵顆粒較少,但仍有可能會面臨到 顆粒尺寸過小以至於過濾系統無法有效處理的問題,而透過水刀(water-jet)與雷射除污 的互相搭配,可能是未來能夠解決粉塵顆粒過小的方法之一[19]。另外,在處理粉塵顆 粒時需要注意到操作人員的安全,是否有相關防護措施避免剝落下來的混凝土碎屑噴濺, 以及注意是否有戴奧辛等有毒煙氣的形成與排放。

4.2.3 雷射混凝土除污操作限制

混凝土除污成效跟混凝土的成分有很大的關係,在英國 Heysham-2 核電廠中的進步型氣冷反應器(Advanced Gas Cooled Reactor, AGR)所使用的混凝土成分如表 1.1.38 所示,以此配方為基礎研究了石灰岩、玄武岩、灰泥、波特蘭水泥等不同成分但配方類似

的混凝土。經過一連串的實驗發現玄武岩混凝土的成效最差,在不同配方下以玄武岩為 基底的混凝土都有相同的趨勢,故在除污時遇到玄武岩含量高的混凝土需要特別注意。

使用雷射除污的缺點是需要耗費時間聚焦雷射光束,且此技術比較適合用於小區域 除污,若需要使用雷射進行大面積除污時則可能較為耗時。例如在 2010 年西班牙舉行 的歐洲核能會議(ENC2010)發表的結果[10],實驗結果顯示使用 5 千瓦的光纖雷射除污 一平方公尺的石灰岩混凝土達最小深度 10 毫米,需要耗費將近 2 個小時。若是想提升 單位時間的除污面積以縮短除污時長的話,可以藉由加快掃描速率的方式達成,不過同 時單位面積的區域平均所受雷射照射的時間會因此減少,因為雷射照射時長的減少會使 剝蝕深度下降,如圖 1.1.74 所示[29]。這會導致雷射無法有足夠的時間剝蝕至所需要的 深度,整體而言剝蝕深度會因為掃描速率的增加而降低,故整體而言的除污花費時間仍 然無法有效降低。此外,雷射除污不便於使用在除污不規則的表面(例如設備接縫處), 這是由於雷射無法立即對焦在不同高度上的平面,具有技術上的限制,而一些雷射頭無 法接觸到的表面(例如管路內壁),也會限制了雷射除污的使用[34]。

(五)雷射安全規範[35]

本章節內容主要摘錄自 H. Cember 與 T. E. Johnson 合著的"Introduction to Health Physics" [35]教科書對雷射防護之相關介紹。在使用雷射進行除污時,應注意雷射可能 造成的生物效應,光造成人體傷害的機制主要為經由吸收能量和光化學反應所引起的熱 效應,取決於輻射波長和照射組織的速率。而眼睛及皮膚為使用雷射輻射時最需注意的 危急器官。與游離輻射相比,保護標準主要根據有害的隨機效應零閾值的保守假設。而 國際非電離輻射防護委員會(International Commission on Non-Ionizing Radiation Protection, ICNIRP)和其他國家組織如美國政府工業衛生學家會議(American Conference of Governmental Industrial Hygienists, ACGIH)、美國國家標準學會(American National Standards Institute, ANSI)會根據這些閾值建議雷射輻射的最大曝露限制。

<u>5.1.1 眼睛損傷及安全規範</u>

雷射可能對角膜、晶狀體或視網膜造成損傷,取決於光的波長和眼睛組織的能量 吸收特性。下圖 1.1.91 顯示了在不同波長下,光通過角膜、前房液和晶狀體的透射比 率。從圖中顯示大部分的都被透射,而近紫外線和近紅外線的透射率則急劇下降。由 人眼介質傳輸的可見光被視網膜強烈吸收。由透射和吸收特性推斷,單位入射光的能 量,可見光損傷角膜的可能性比損傷視網膜的可能性要小得多。



圖 1.1.91 不同波長下光通過角膜、前房液和晶狀體的傳輸能力。[35]

雷射安全標準的制定基礎為最小可見病灶(minimum visible lesions, MVL)閾值,會 於曝露後 24 小時對最小可見病灶進行評估。使用檢眼鏡來觀察可見的最小視網膜病變 來制定視網膜最小可見病灶標準,在最小可見病灶處或更大曝露處的視網膜損傷會導致 永久性盲點。而損傷程度和可見病灶出現前的潛伏期和照射面積、照射率和總照射量有 關。視網膜損傷的基本因素是從受照射組織中去除熱能的速度以及隨之而來的溫度變化。 下表 1.1.47 為針對可見光的視網膜損傷閾值。

| | | • • • • • • • • • | |
|-------|--------|-------------------|------------------------|
| 雷射類型 | 波長 | 脈衝 | 水平 |
| 連續波 | 白光 | | 6 W/cm ² |
| 一般脈衝 | 694 nm | 200 ms | 0.85 J/cm ² |
| Q開關脈衝 | 694 nm | 30 ns | 0.07 J/cm ² |

表 1.1.47 連續波、一般脈衝及 Q 開闢脈衝雷射之視網膜損傷閾值[35]

一般雷射輻射的最大許可曝露量(maximum permissible exposure, MPE)限制通常為 最小可見病灶的十分之一。

針對雷射的眼睛安全標準制定須考慮晶狀體的聚焦作用,由於進入眼睛的光能總 量由瞳孔的面積決定,到達視網膜的透射光能被色素上皮吸收,其中大部分轉化為熱 量。由於晶狀體的聚焦作用,在視網膜上形成的限制孔徑(瞳孔開口)的像比瞳孔開口 小很多。對於波長為λ(cm)的光,以及瞳孔直徑為dp且晶狀體焦距為f(cm)的眼睛,可 由下方公式得知視網膜上圖像的直徑 dr:

$$dr = \frac{2.44\lambda f}{d_p} \quad (1.1.32)$$

由於輻照曝露(H)或輻照度(E)與照明區域的關係為:

$$H(or \ E) = \frac{energy}{area} \quad (1.1.33)$$

而角膜的 H 或 E 與視網膜的 H 或 E 之比與瞳孔直徑與視網膜上圖像直徑之比的 平方成反比,如下方公式所示:

$$H(retina) = H(cornea) x \left(\frac{d_p}{d_r}\right)^2$$
 (1.1.34)

由於晶狀體的聚焦作用,視網膜的最大曝露必須允許光能的高度集中。根據視網 膜損傷閾值和眼睛光學系統在視網膜上的光濃度,下表 1.1.48 為許多組織所建議的曝 露限值,列出了美國國家標準學會直接眼睛曝露的部分限制,包含曝露頻率和時間的 相關限制。由於視網膜上圖像的大小與瞳孔直徑成反比,因此隨著瞳孔直徑的增大, 光在視網膜上的集中程度也隨之增大。因此,表 1.1.48 中列出的最大許可曝露量基於 7 毫米的瞳孔直徑,此為眼睛虹膜隔膜的最大開口。

| .70 直按呱明 咏路的取八百 | 了 咏 路 里[55] |
|---|--|
| 曝露時間(s) | 最大許可曝露量 |
| 10-13-10-11 | $1.5 \text{ x } 10^{-8} \text{ J/cm}^2$ |
| 10 ⁻¹¹ -10 ⁻⁹ | $2.7 t^{0.75} J/cm^2$ |
| 10 ⁻⁹ -18 x 10 ⁻⁶ | $5.0 \text{ x } 10^{-7} \text{ J/cm}^2$ |
| 18 x 10 ⁻⁶ -10 | $1.8t^{0.75} \ge 10^{-3} \text{ J/cm}^2$ |
| $10^{-3} \ge 10^{4}$ | $1 \ge 10^{-3} \text{ J/cm}^2$ |
| 18 x 10 ⁻⁶ -10 | 1.8C _A t ^{0.75} x 10 ⁻³ J/cm ² |
| 50 x 10 ⁻⁶ -10 | 9.0C _c t ^{0.75} x 10 ⁻³ J/cm ² |
| 10-3 x 10 ⁴ | 0.1 W/cm ² |
| | 味露時間(s) 10 ⁻¹³ -10 ⁻¹¹ 10 ⁻¹³ -10 ⁻¹¹ 10 ⁻¹¹ -10 ⁻⁹ 10 ⁻⁹ -18 x 10 ⁻⁶ 18 x 10 ⁻⁶ -10 18 x 10 ⁻⁶ -10 50 x 10 ⁻⁶ -10 10-3 x 10 ⁴ |

表 1.1.48 直接眼睛曝露的最大許可曝露量[35]

(對於 λ =0.700-1.050, C_A =10^{2(λ -0.700)};對於 λ =1.050-1.150, C_C =1.0;對於 λ =1.150-1.200, C_C =10^{18(λ -1.150</sub>;對於 λ =1.200-1.400, C_C =8。)}

<u>5.1.2 皮膚損傷及安全規範</u>

當入射輻射照射組織,輻射轉化為熱量,而由於組織導熱性差,熱量不會迅速消 散,因此,當雷射能量過高時即可能使皮膚急性曝露而導致灼傷,這和一般的熱灼傷 或日光灼傷相同。過度曝露時,因局部溫度升高而導致組織蛋白質變性。若組織吸收 足夠能量,組織中的水可能會蒸發,造成組織被加熱至白熾並碳化,皮膚會發生非特 異性凝固性壞死,取決於過度曝露的程度。

皮膚對雷射的反應主要取決於雷射波長和脈衝時寬。皮膚損傷閾值也包含皮膚色 素沉著的影響。一般來說,對雷射的反應隨色素沉著的增加而增加。當急性過度曝露 造成的嚴重損傷時,可能會形成疤痕。

長期低水平曝露於可見雷射下通常不會導致傷害。但仍需注意紫外線可能導致皮 膚癌。實驗證據表明,在沒有光敏物質的情況下,在 290-320 奈米波長之間的紫外線 是致癌的。流行病學研究表明,曝露在包括該波段的陽光下會增加皮膚癌的發病率, 包括黑色素瘤,這是一種高度惡性的皮膚癌。這些研究表明,隨著接近赤道,所有類 型的皮膚癌的發病率大約每8度到10度的緯度會增加一倍。下表1.1.49為不同曝露條 件下雷射對成年白人前臂屈肌表面的最小反應量(minimal reactive doses, MRD)。下表 1.1.50 為皮膚的最大許可曝露量。

| 索針 | 波長 | 腥雾哇閂 | 區域 | 最小反應量 |
|-----------|------|--------------|----------------------------|------------|
| 亩划 | (nm) | 啄路 时间 | (cm^2) | (J/cm^2) |
| 紅寶石(一般脈衝) | 694 | 0.2 ms | 2.4-3.4 x 10 ⁻³ | 14-20 |
| 氫氣 | 500 | 6 s | 95 x 10 ⁻³ | 13-17 |
| 二氧化碳 | 1060 | 4-6 s | 1 | 4-6 |
| 紅寶石(Q 開闢) | 694 | 10-12 ns | 0.33-1.0 | 0.5-1.5 |

表 1.1.49 成年白人前臂屈肌表面之最小反應量[35]

| 衣 1.1. | .50 針對畜射的皮膚取大許 | 可曝路重[33] |
|----------------------|------------------------|--|
| 波長(nm) | 曝露時間(s) | 最大許可曝露量 |
| 400-1400 | 10-9-10-7 | 2C _A x 10 ⁻² J/cm ² |
| 400-1400 | 10-7-10 | $1.1C_{\rm A} t^{0.25} {\rm J/cm^2}$ |
| 400-1400 | 10-3 x 10 ⁴ | $0.2 \text{ C}_{\text{A}} \text{ W/cm}^2$ |
| 1400-1500 | 10-9-10-3 | $0.1 \mathrm{J/cm^2}$ |
| 1400-1500 | 10 ⁻³ -10 | 0.56t ^{0.25} J/cm ² |
| 1400-106 | 10-3 x 10 ⁴ | 0.1 W/cm ² |
| 1500-1800 | 10-9-10 | 1.0 J/cm^2 |
| 1800-2600 | 10-9-10-3 | 0.1 J/cm ² |
| 1800-2600 | 10-3-10 | 0.56t ^{0.25} J/cm ² |
| 2600-10 ⁶ | 10-9-10-7 | $1 \ge 10^{-2} \text{ J/cm}^2$ |
| 2600-10 ⁶ | 10 ⁻⁷ -10 | 0.56t ^{0.25} J/cm ² |

主1150 从北西山山市唐旦上长可唱索旦[25]

(對於 λ =400-700 奈米 , C_A= 1.0;對於 λ =700-1050 奈米 , C_A=10^{2(λ -700)};對於 λ =1050-1400 奈米, Cc=5.0。)

下表 1.1.51 統整常見類型的連續波雷射器的直接眼睛曝露限值和皮膚曝露限值。 表 1.1.51 不同連續波雷射器下眼睛與皮膚的最大許可曝露量統整表[35]

| 雪 白 粞 刑 | 波長 | 曝露時間 | 眼睛最大許可 | 皮膚最大許可 |
|----------------|------|------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| 苗利類型 | (nm) | (s) | 曝露量 | 曝露量 |
| 氬氣 | 275 | 10.2×10^4 | $2 \times 10^{-3} \text{ J/om}^2$ | $2 \times 10^{-3} \text{ J/am}^2$ |
| (Argon) | 275 | 10-3 x 10 ⁻ | 5 x 10° J/cm | 5 x 10° J/cm |
| 氦鎘 | 225 | 10,1000 | 1 L/am^2 | $1 \text{ L/}\text{om}^2$ |
| (He-Cd) | 525 | 10-1000 | I J/CIII | I J/CIII |

| 氫氣 | 351 | 10-1000 | 1 J/cm ² | 1 J/cm ² |
|--------------------|-------|--------------------|---------------------------|---------------------|
| (Argon) | | | | |
| 掺釹釔鋁石榴石 | 1064 | 10.2×10^4 | $5 \times 10^{-3} W/am^2$ | $1 W/cm^2$ |
| (Neodynium:YAG) | 1004 | 10-3 X 10 | 5 x 10° w/cm | 1 w/cm |
| 二氧化碳 | 10600 | 10.2×10^4 | $0.1 W/cm^2$ | $0.1 W/cm^2$ |
| (CO ₂) | 10000 | 10-3 X 10 | 0.1 w/cm | 0.1 w/cm |

5.1.3 雷射操作要求

在美國,聯邦雷射產品性能標準 (Federal Laser Product Performance Standard, FLPPS) 和法規中協調的雷射安全標準由兩個機構頒布,分別為衛生與公共服務部的放射健康與 設備中心 (Center for Radiological Health and Devices, CRHD) 和美國職業安全衛生署的 勞工部 (Department of Labor, DOL)。而放射健康與設備中心僅要求製造商符合規範之 性能,而非使用者。

美國國家標準協會、國際電工委員會(International Electrochemical Commission, IEC) 和美國監管機構等組織根據潛在危險的級別對雷射器進行分類。美國雷射安全分類在聯邦雷射產品性能標準中是統一的,除了細微差別外,所有雷射分類基本相同。

根據雷射的風險級別,將所有雷射分為四種類別,Ⅰ類為最不危險,而 IV 類為最危險。下表 1.1.52 列出四種雷射類別的危險潛力。

| 類別I | 雪射不會因為功率大低或的安全工程控制而造成傷害。 |
|--------------|--|
| (Class I) | 田和不自口為另子人國家的文王一位任何的定成後日 |
| 類別 Ⅱ | 可觀看時間需少於 0.25 秒。厭惡反應(aversion response)會在小於 0.25 |
| (Class II) | 秒引起眨眼以防止眼睛受傷。最大功率位準(power level)為 1mW。 |
| 類別 IIIA | 在光束內觀看小於 0.25 秒或觀看鏡面反射小於 0.25 秒時可能會傷害 |
| (Class IIIA) | 眼睛。最大功率為 5mW。 |
| 類別 IIIB | 與類別 IIIA 相同,除了最大功率為 500mW,最大輻射曝露為單位脈 |
| (Class IIIB) | 衝 10 J/cm ² 。 |
| 類別 IV | 在光束內和漫射曝露期間對眼睛和皮膚有害。有潛在火災危險。功率 |
| (Class IV) | 位準大於 500mW。 |

表 1.1.52 雷射類別之危險潛力[35]

根據雷射的等級,法規中規定了工程規範和標示規範。在工程規範內容中,包含 以下七項:

- (1)有保護外殼以防止曝露於非執行雷射器的預期功能如洩漏輻射
- (2)安全聯鎖裝置,防止人員在移除或移動保護外殼時接觸到雷射輻射
- (3)有遠程控制連接器,允許額外的聯鎖和遠程開關控制
- (4)上鎖掛牌,鑰匙控制,防止未經授權使用雷射器,且鑰匙須為可拆式的,除非鑰匙 控制被鑰匙打開,否則雷射器為不可操作

(5)光束停止以正確且安全地終止光束

(6)活化警告系統,可通知雷射操作區域內和附近的人員

(7)有獨立於其他停止光束的方式的光束衰減器

而在標示規範內容中,包含以下三項:

- (1)適當標誌上有顯眼提示訊息
- (2) 雷射危險警告
- (3)有關雷射及其輻射信息,需標示於顯著位置

美國食品藥物管理局(Food and Drug Administration, FDA)法規的 21 CFR 1040 中以 及美國國家標準學會和國際電工委員會標準中列出了不同雷射類別的工程規範和標示 規範,如下表 1.1.53 所示。美國職業安全與健康局(Occupational Safety and Health Administration, OSHA)規範了雷射在工業中的使用,並指定了用戶資格、張貼和標示規 範、最大許可曝露量和合適的雷射安全防護眼鏡。根據美國職業安全與健康局規定(29 CFR, 1926.54),員工不得曝露於高於 1 mW/cm² 的直視光、1 mW/cm² 的偶然觀察 (incidental observing)和 2 W/cm² 的漫射光線。

| | | 雷射類別 | | | |
|----------|--|---|----|-----|----|
| | | Ι | II | III | IV |
| | 防護罩(Protective housing) | х | x | х | х |
| | 安全聯鎖(Safety interlock) | X | х | X | x |
| 它入山北 | 遠程連接器(Remote connector) | | | х | х |
| 女至切肥 | 按鍵控制(Key control) | | | X | X |
| | 發射指標(Emission indicator) | | х | X | x |
| | 光束衰減器(Beam attenuator) | ector)) ator) x ator) x turer) x turer) x x x x x x turer) x x x | x | X | х |
| | 認證和製造商 | | | | |
| | (Certification and Manufacturer) | X | X | X | X |
| | 類別名稱和警告標識 | | | | |
| 播 | (Class designation and warning logotype) | | X | X | X |
| 侨韱 | 光圈標籤(Aperture label) | | х | х | х |
| | 輻射輸出(Radiation output) | | | | |
| | 非互鎖保護外殼 | | v | v | V |
| | (Noninterlocked protective housing) | | X | X | X |

表 1.1.53 不同雷射類別的工程規範和標示規範[35]

5.1.4 安全保護

<u>5.1.4.1 雷射直接觀察</u>

雷射能量的束內照射以輻射曝露 H (J/cm²)或輻照度 E (W/cm²)來標明。示意圖如 下圖 1.1.92 所示。輻照度與輻射曝露有關,公式如下:

$$H = E \times t (1.1.35)$$

其中 t 是以秒為單位的曝露時間。雷射孔徑處的相應量分別稱為出射輻射曝露量 Ho和出射輻照度 Eo, 並由雷射孔徑單位面積上的能量輸出 J (J/pluse)或單位面積雷射 孔徑的雷射功率輸出 P(Eo)。



圖 1.1.92 主射束或直射光束的束內觀察之示意圖。[35]

以相同平均能量來說,若脈衝輻射較窄且以重複脈衝傳遞,其所造成的熱損傷比 以均勻速率傳遞所造成的熱損傷更嚴重。因此,對於掃描連續波雷射和重複脈衝雷 射,單位脈衝的最大許可曝露量會降低。在雷射安全的考量下,重複脈衝雷射是產生 持續小於 0.25 秒且脈衝重複頻率(PRF)≥1 赫茲的連續脈衝雷射。對於重複脈衝雷射, 最大許可曝露量根據的三種不同標準計算,而最終以最低的最大許可曝露量為標準, 美國國家標準學會 Z136.1-2007 的三個規則如下所述:

(1)單一脈衝限制:假設僅曝露於來自多個脈衝雷射的一個脈衝,則最大許可曝露量僅 用於該脈衝。

(2)平均功率限制:最大許可曝露量基於沉積在受照射組織中的所有能量的總和除以曝 露期間的脈衝數,以得出每個脈衝的平均能量。

(3)重複脈衝限制:為了防止曝露於來自重複脈衝雷射的n個脈衝的脈衝累積熱損傷, 序列中單一脈衝的最大許可曝露量以多脈衝校正因子(multiple pulse correction factor, C_p)來修正,其中n為觀察時間內的脈衝數,公式如下:

$$Cp = n - 0.25 (1.1.36)$$

5.1.4.2 雷射反射

當雷射射束打在表面上時,部分入射光將被反射,若反射表面被拋光如鏡面,光 束的入射角等於反射角時,即為鏡面反射;若反射面粗糙,且被照射表面在所有視角 下都顯得同樣明亮,則表面為無光澤,此情形即為漫反射;若一些入射光被漫反射, 而另一些則為鏡面反射,那即產生混合反射。表面反射係數給出了被該表面反射的入 射光的比率,如下表 1.1.54 所示,提供部分材料的反射係數。

| 類型 | 材料 | 反射係數 |
|--------------|----------------------|-----------|
| | 鏡面玻璃(Mirrored glass) | 0.8-0.9 |
| 定規(Specular) | 鋁箔(Aluminum foil) | 0.84-0.87 |
| | 銠(Rhodium) | 0.7-0.9 |

表 1.1.54 反射材料及反射係數[35]

| | 鋁,拋光(Aluminum, polished) | 0.6-0.7 |
|-------------|--------------------------------|-----------|
| | 鉻(Chromium) | 0.60-0.65 |
| | 不鏽鋼(Stainless steel) | 0.55-0.65 |
| | 黑色結構玻璃(Black structural glass) | 0.04-0.05 |
| | 鋁,氧化(Aluminum, oxidized) | 0.70-0.85 |
| 混和(Mixed) | 鋁,拉絲(Aluminum, brushed) | 0.54-0.58 |
| | 鋁漆(Aluminum paint) | 0.6-0.7 |
| | 不鏽鋼,緞(Stainless steel, satin) | 0.51-0.56 |
| 擴散(Diffuse) | 白石 膏(White plaster) | 0.90-0.92 |
| | 白色油漆,平面(White paint, flat) | 0.75-0.90 |
| | 石灰石(Limestone) | 0.35-0.65 |
| | 砂岩(Sandstone) | 0.30-0.42 |

擴展源(extended source)意旨波長落在視網膜危險範圍 400-1400 奈米內且其尺寸相對於觀看距離較大的光源。在此情況下,除點源之外,可以將光源解析為視網膜上的幾何圖像。

理論上,直接觀察雷射二極管為擴展源,而漫反射可能為擴展源。以雷射安全為考量,當光源對著視角>1.5×10⁻³ 弧度時,即有擴展源。只要眼睛看到擴展源的反射,視 網膜上的光能強度就與觀看距離無關,因為光強度隨距離的變化可以通過對著視角的變 化進行精確補償,如下圖 1.1.93 所示,其中 DL 為反射大小; r1 為觀看距離; α 為眼睛觀 看角度,三者的關係如下方公式所示:

$\alpha = \frac{D_L \ x \ cos\theta_v}{r_1} \quad (1.1.37)$



圖 1.1.93 觀察漫反射的擴展源之示意圖。[35]

下表 1.1.55 列出對於>0.7 秒的曝露和波長在 0.400 至 0.600 奈米之間,最大許可曝 露量基於包括熱效應和光化學效應在內的視網膜危害。需同時考慮這兩種效應,並使 用更保守的值。

| | | 波長(µm) | 曝露時間(s) | 最大許可曝露量 | |
|----------------------------|--------------|-------------------|-----------------------------|---|--|
| | 對於 α 小於等於 11 | 0.400-0.600 | 0.7-100 | C _B x 10 ⁻² | |
| 火儿翔 | mrad,MPE 表示為 | 0 400 0 600 | $100.2 - 10^4$ | C 10-4 | |
| 光化学 (Photoche mical) | 輻照度和輻射曝露 | n輻射曝露 0.400-0.600 | | $C_B \times 10^{-5}$ | |
| | 對於α大於11mrad, | 0.400-0.600 | 0.7-1 x 10 ⁴ | 100 C _B | |
| | MPE 表示為輻射亮 | 0 400 0 600 | 1 x 10 ⁴ -3 x | $C = 10^{-2}$ | |
| | 度和積分輻射亮度 | 0.400-0.600 | 10^{4} | $C_B X 10^{-2}$ | |
| 熱 | | 0.400-0.700 | 0.7 - T ₂ | $1.8C_{\rm E} \ {\rm x} \ {\rm t}^{0.75} \ {\rm x} \ 10^{-3}$ | |
| (Thermal) | | 0.400-0.700 | T_2 - 3x 10 ⁴ | $1.8C_{\rm E} \ge T_2^{0.75} \ge 10^{-3}$ | |

表 1.1.55 在雷射射束下進行擴展源之眼部的最大許可曝露量(曝露時間大於 0.7 秒)[35]

(對於 λ =0.400-0.450 微米, C_B =1;對於 λ =0.450-0.600 微米, C_B =10^{20(λ -0.450</sub>); 對於 α 小於 1.5 毫弧度, C_E =1;對於 α 介於 1.5-100 毫弧度, C_E = α /1.5;對於 α 大於 100 毫弧度, C_E = α ²/150;對於 λ =0.400-1.400 微米, T_2 = 10 × 10^{(α -1.5)/98.5}。)}

5.1.4.3 保護裝備

使用雷射輻射時,可佩戴防護眼鏡來保護眼睛免受傷害,其可減弱雷射強度,同時 保有足夠的環境光以確保安全可見度,而最佳防護眼鏡即為可最大程度地衰減雷射,同 時最大程度地保有環境光,因此,防護眼鏡需同時考慮必須光密度以及光透射率。

防護眼鏡對光的衰減由光密度 OD 值給出,其定義為

$$OD = log \frac{E (or H)}{MPE} (1.1.38)$$

其中 MPE 為角膜上最大許可曝露量,E 是輻照度,H 為輻射曝露。搭配輻照度的 公式 E = P/area,可計算出所需的最小光密度值。

最佳眼鏡可最大程度地衰減雷射,同時最大程度地傳輸環境光。因此,在指定雷射 安全眼鏡時,必須將光透射率與光密度值一起考慮。最佳護目鏡是在傳輸最大量環境光 的同時提供最大雷射衰減的護目鏡。光透射率表示為來自標準光源的光的透射比率,其 光譜分佈相當於 6500 埃下的黑體的光譜分佈。該光源為國際電力委員會(Commission International d'Electricit'e, CIE)的標準光源 C,大約相當於平均日光。

下圖 1.1.94 為一種市售防護眼鏡的吸光特性曲線,此防護眼鏡為來自紅寶石雷射 (ruby laser),波長 694 奈米的光提供的光密度值為 8,但它們幾乎無法抵禦來自 He-Ne 雷射,波長為 455-515 奈米的光,而此防護眼鏡對於標準光源 C 的光透射率為 12%。



圖 1.1.94 一種市售雷射防護眼鏡隨波長的光密度變化。[35]

在選擇雷射防護眼鏡時,必須考慮鏡片對雷射束損壞的抵抗力。防護眼鏡鏡片吸 收雷射能量導致鏡片溫度升高。透鏡必須能夠在預期的操作條件下吸收能量,而不會 影響透光率的變化,不會軟化或破碎,也不會遭受可能損害其實用性或對用戶造成危 險的其他表面損壞。然而,並沒有一種鏡片材料適用於所有波長和所有輻射曝露,因 此,在選擇防護眼鏡時,必須仔細考慮雷射操作參數、最大許可曝露量、使用條件以 及防護眼鏡在最嚴格的使用條件下的損傷情形。脈衝時寬是短脈衝防護眼鏡的另一個 特殊考慮因素,因為非線性效應可能發生並破壞防護眼鏡的保護特性。最終選擇的防 護眼鏡必須滿足這些類別中的所有安全標準。

由於在核電廠除污所使用的雷射皆達類別 IV(Class IV)等級,即使光束的漫射曝露 皆可傷害人員的眼睛與皮膚,並有潛在火災危險,因此在安全防護上必須穿戴光衰減度 足夠之護目鏡與可遮蔽雷射光的防護依,並在操作區間對任何可能反射雷射光束的物體 外加上遮罩,以避免高功率雷射對操作人員的傷害。

(六)各國發展現況摘要

6.1 日本雷射除污技術發展

早在 2000 年出,日本原子力研究所(Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI)(目前已合併入 JAEA)即開始研究應用於核電廠除役與核燃料再處理測試設施除 役的雷射除污技術,如 3.3 節所述。而在 2011 年 3 月 11 日東日本大地震過後,對放射 性除污的效率與需求大幅增加,雷射除污也成為除污技術中的發展重點之一。福島核災 所外洩的輻射污染物除了核電廠本身外,還遍布了周圍環境、甚至到非常遠處的城市都 還能偵測到極高的劑量率。為了能在災後盡速回復正常的生活環境,這些周邊高污染地 區(hot spot)也是除污的重要對象。

本章節將會介紹三種日本發展之雷射除污技術:

- (1) 東京電力公司(Tokyo Electric Power Company Holdings, TEPCO)發展的「應用於福島第一核電廠法蘭型儲水塔之雷射除污技術與粉塵抑制方法」。
- (2) 若峽灣能源研究中心(The WAKASA WAN Energy Research Center, WERC)與 LDD

公司發展的「新型雷射除污機與遠端操控雷射除污機器人」。

- (3) 中部電力公司、Toyokoh 公司與光產業創成大學院大學合作發展的「CoolLaser 雷射除污技術與粉塵處理裝置」。
- 6.1.1 應用於福島第一核電廠法蘭型儲水塔之雷射除污技術與粉塵抑制方法

東京電力公司(Tokyo Electric Power Company Holdings, TEPCO)從2019年8月底開始,正式啟用福島第一核電廠的法蘭型儲水塔的雷射除污。此種新型雷射除污工法為在拆儲水塔前,先對水槽內部進行雷射除污,去除表面的放射性物質。從該年度7月以來的測試可知,經過雷射除污後,可減少約7成的表面劑量與3成的工作人員輻射劑量。

6.1.1.1 福島第一核電廠法蘭型儲水塔的廢除[36]

在福島第一核電廠,為能夠暫時儲存大量經由多核種去除設備(Advanced Liquid Processing System, ALPS)處理淨化後的核廢水,在核電廠拆解作業早期多使用搭建快速的法蘭型儲水塔儲存核廢水。但在經過幾次漏水事件後,決定停止使用 334 座法蘭型儲水塔,改用溶接型儲水塔,如圖 1.1.95,以降低往後再發生漏水的風險。至 2015 年 6 月 至 2019 年 9 月為止,已廢除了 240 座法蘭型儲水塔,剩餘 94 座。[36]



(螺栓搭建)

圖 1.1.95 福島第一核電廠法蘭型儲水塔與熔接行儲水塔。[36]

6.1.1.2 飛塵抑制方法執行步驟

在進行解體作業前,必須先進行抑制附著於水槽表面的含有輻射物質粉塵的飛 散。如圖 1.1.96 所示,儲水塔拆解作業大略可分為四個步驟:

- (1) 前置作業:將內容的廢水排除後沖洗內壁,初步去除表面的污染物質。
- (2) 殘留水處理:經過初步的表面沖洗後,打開上方蓋板,並將剩餘的水抽出。
- (3)抑制粉塵方法:僅用水沖洗無法將附著於表面的放射性粉塵全部清洗掉,傳統的方式為在內必表面進行塗裝,使粉塵黏著於表面而不會飛散。近年隨著除污技術的進步,改使用雷射除污的方式,更有效的清除輻射物質。
- (4) 儲水塔拆解作業:除污完畢後,從上方蓋板、側板、底板,依序拆除。



| | 傳統 | | 今往 | 发 |
|--------|----|----|----|----|
| | 側面 | 底面 | 側面 | 底面 |
| 飛散抑制對策 | 塗 | | 雷射 | 塗裝 |

圖 1.1.96 福島第一核電廠法蘭型儲水塔拆除作業步驟。[37]

在拆除作業剛開始時,是利用在表面進行塗裝,使放射性物質能夠附著在表面,不 易擴散到空氣中。2017年開始引進雷射除污系統,利用高功率的雷射照射鋼材表面,使 表面材質直接昇華後,再利用粉塵回收裝置收集蒸發物質,不僅能加速除污的效率,也 更能防止二次輻射物質所造成的污染[36],圖1.1.97為表面塗裝與雷射除污方法之比較。



圖 1.1.97 東京電力公司使用之傳統塗裝法與雷射除污方法示意圖。[37]

6.1.1.3 雷射除污裝置與除污方法

圖 1.1.98 為進行儲水塔雷射除污時的設備架構。可遠程操作,以圓柱為中心架有 兩支雷射手臂,前端搭載雷射照頭與蒸散物回收裝置,末端連結至儲水塔外的蒸散物 回收及集塵機,對收集得的粉塵進行處理。福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污所 使用的雷射裝置規格如表 1.1.56。



圖 1.1.98 福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污裝置示意圖。[37]

| 表 1.1.56 福島第一核 | 電廠法蘭型儲水塔雷射除污 | '裝置之規格與雷射參數。 | 37 |
|----------------|--------------|--------------|----|
|----------------|--------------|--------------|----|

| 雷射種類 | 光纖雷射 | 照射組件 | 3D 雷射掃描鏡 | |
|------|-----------|--------|-----------|--|
| 雷射輸出 | 連續波雷射(CW) | 最大輸出功率 | 6kW | |
| 雷射波長 | 1070±50nm | 照射速率 | 1~20m/sec | |

在進行雷射除污時,由於上方蓋板已經打開,為了防止水槽內部的放射性飛塵擴散, 水槽內會進行負壓管理,抑制粉塵的擴張。經由雷射照射後的材料可能會釋放出一些金 屬蒸散物,因此雷射手臂前端也裝有蒸發物回收裝置,及時收集產生的蒸散物,並在末 端的集塵器內部透過濾片進行淨化。

如圖 1.1.99 所示, 雷射手臂共有兩個, 方向相反, 每支手臂會旋轉 180 度對水槽內 部側面整體進行照射。雷射在照射時, 會以一個區塊(600 毫米×300 毫米)為單位, 在每 個單位中由左而右, 再由下而上, 持續移動重複照射 →移動→照射→移動的動作, 直 至約 2500 個區塊完成除污。

98



圖 1.1.99 福島第一核電廠法蘭型儲水塔雷射除污照射方向示意圖。[37]

在進行除污作業時為遠端監控,如圖 1.1.100(b)(c)所示,工作人員不須進入除污環 境內,可減少輻射的曝露。雷射除污前後都需進行輻射劑量的檢測;經過測量,如圖 1.1.100(d),進行除污前後之儲水槽內表面劑量約減7成,而工作人員所受劑量約減少3 成,由每人180毫西弗降至約每人130毫西弗。[36,37]



圖 1.1.100 (a) 雷射除污裝置對水槽內部除污情況 (b)(c)從遠端可監視與控制的系統 (d) 除污前後的效果,水槽內表面劑量約減少7成,在後續進行解體時工作人員輻射劑量可減少約3成。[36]

6.1.1.4 雷射除污對象與除污前後之放射性粉塵濃度變化

本次報告所討論的目標對象為福島第一核電廠 E 區 A5 法蘭型儲水塔,如圖 1.1.101。在進行雷射除污前儲水塔內部的放射性物質活度濃度為 7.5×10⁻⁴ Bq/cm²。



圖 1.1.101 福島第一核電廠 E 區 A5 法蘭型儲水塔。[37]

6.1.1.4.1 未進行飛塵抑制方法時之水槽內部空氣放射性物質濃度

在進行雷射除污前,為比較除污前後的成效,會先測試尚未進行除污時,儲水塔 內部的放射性物質濃度。由圖 1.1.102 所示未進行雷射除污前 5 天內之放射性物質濃 度:

- (1) 由上方蓋板下方5公尺的兩處進行測試。水槽內部的儲存水排出後不久時所測得的輻射物質濃度為1.0×10⁻⁴至1.0×10⁻³Bq/cm²。
- (2)利用集塵器進行內部換氣,抽取出飄逸在空間中的飛麈污染物。開始換氣後數小時內,輻射物質濃度及可降至工作管理基準值5.0×10⁵Bq/cm²以下,並在集塵器 停機後三天內都可維持在此基準值以內。
- (3) 在集塵器停機後第四天開始,儲水塔內部因乾燥使輻射物質濃度再度上升。 由圖 1.1.102 曲線可知,若未對儲水塔內部進行適當的除污工作時,輻射物質濃度 將會在幾日內再度升高,因此需進行除污才能有效抑制放射性粉塵的擴 散。



圖 1.1.102 福島第一核電廠法蘭型儲水塔未進行雷射除污時,換氣後 5 天內放射性物質 濃度變化。[37]

6.1.1.4.2 進行飛塵抑制方法後之水槽內部空氣放射性物質濃度

在進行雷射除污(粉塵抑制方法)後,停止集塵機,由上方蓋板往下 5 公尺與 10 公 尺處測量控器中放射性物質濃度。由圖 1.1.103 曲線可看出,在經過雷射除污後的 10 天 內放射性物質濃度持續維持在工作管理基準值以下 25%的程度,濃度顯著的減少且數 值穩定。

比較進行雷射除污前後之結果,可得知有雷射除污處理後可減少內部表面劑量,儲 水塔內的放射性粉塵濃度在數日內都能維持在工作管理值之下,影響到後續切割與拆除 作業時之工作人員對二次污染物的輻射劑量。



圖 1.1.103 福島第一核電廠法蘭型儲水塔進行雷射除污後,換氣後 10 天內放射性物質 濃度變化。[37]

6.1.1.4.3 雷射除污進行中水槽內部與外部之放射性物質濃度

雷射除污的目的在於減少在拆除作業時擴散至環境中的放射性污染物與工作人員 的曝露劑量。因此除了儲水塔內部的濃度變化外,儲水塔外部環境的濃度也是非常重要 的指標。在進行雷射除污時,除了水槽內的負壓管理外,雷射手臂前端裝有粉塵回收裝 置連接到外部的集塵器,並在集塵器內部過濾淨化。集塵器內設有多層的濾網捕捉飛塵, 最末端再利用高效濾網收集更微小的粒子,如圖 1.1.104 所示之儲水塔外部粉塵濃度偵 測示意圖與現場。



圖 1.1.104 福島第一核電廠法蘭型儲水塔外部粉塵濃度偵測示意與現場照。[37]

雷射除污進行中的水槽內放射性物質濃度最大值為3.87×10⁻³Bq/cm²,最小值小於 1.0×10⁻⁵Bq/cm²;與進行中雷射除污的水槽內部對比,經過集塵機內多層濾網過濾後, 集塵機出口出所測得知濃度僅有 < 3.7×10⁻⁷Bq/cm²不到,效果遠超過工作管理基準值 5.0×10⁻⁵Bq/cm²,達到預期抑制飛塵擴散至周遭環境的效果。[37]

對於福島第一核電廠法蘭型污水儲水塔的廢除,在過去為利用表面塗裝的方式防止放射性物質的擴散,在引入雷射除污技術後,水槽內部的表面劑量減少7成以上, 工作人員的曝露劑量減少3成以上;搭配粉塵回收裝置與集塵機的過濾,同時可控制 儲水塔內外的放射性物質濃度,防止二次污染物的擴散。

<u>6.1.2</u> 應用於核電廠除污之新型雷射除污技術與遠端操控除污機器人的開發 6.1.2.1 用於核電廠雷射除污須具備之能力

在原子反應爐中,主要的輻射污染物質為放射性同位素鈷-60(Co-60),其會隨著初 級冷卻系統的高溫水循環至各處,最後與黑鐵鏽與紅鐵鏽沉積於鋼材表面。一般除污操 作雖能從表面清除掉鐵鏽,但鈷-60 也會沉積在應力腐蝕所產生的孔洞或龜裂中而不容 易完全清除。通常應力腐蝕所產生的裂痕平均為 30 微米,要完全清除裂痕中的污染物, 從表面要削去的深度就必須大於裂縫深度,例如 40 微米的裂縫必須削去 100 微米以上 的厚度,因此雷射除污必須具有相當移除表面物質的能力。[39]

為了能夠耐受原子爐內的高溫水,應用在原子爐的材料通常為不鏽鋼。若雷射功率 不夠高, 雷射射束可能會被表面的薄鐵鏽或下層的金屬基材反射而無法達到除污的效果。 因此雷射除污技術所使用的雷射輸出功率要足夠大,且能夠有效的聚焦在材料表面,產 生夠高的能量密度, 能瞬間昇華材料, 一併清除沉積在縫隙中的 RI 物質。[38,39]

6.1.2.2 新型雷射除污技術

本項發明由若峽灣能源研究中心(WERC)與 LDD 公司首先提出。在過去, 雷射除污 所使用的雷射多為較低功率的脈衝雷射, 為了要使能量密度提高而將齊聚焦至很小的射 束面積, 也因此在進行掃描時可能會產生未照射完全的區域, 而必須重複掃描多次。若 將射束面積放大, 則功率過低(MW/cm²以下), 雷射光會被金屬表面反射, 無法清除藏 匿於裂縫的放射性物質。[38,39]

對比於過去,新型雷射除污技術備有三個特點[38,39]:

- (1) 連續波雷射:相較於過去使用的脈衝雷射(pulse laser),新型雷射除污機使用射束 截面積極小的連續波雷射(CW laser),除了價格便宜許多之外,聚焦後可達更高的 能量密度(GW/cm²等級),很容易即可使不鏽鋼表面瞬間昇華。
- (2) 高速掃描:在雷射的掃描速度低的情況下,因單位面積照射時間過長,高功率的 雷射可能會造成材料的熔化,使輻射污染物質混入熔融物而變得不易清除,或造 成鋼材斷裂,因此需要備有能夠高速掃描雷射的系統。
- (3) 焦點維持在物體表面:為了能夠維持高能量密度,雷射聚焦點須一直保持在物體 表面,因此需搭配 3D 掃描裝置,探測表面三個維度上的變化,以調整聚焦點的 位置。

如圖 1.1.105,高能量密度的雷射光照射至不鏽鋼材,使表面與內部龜裂部分的輻射污染物連同周圍的母材瞬間昇華,達到深度除污的效果。



圖 1.1.105 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司研發之新型雷射除污方法說明圖。[38]

圖 1.1.106 為新型雷射除污機之雷射系統結構,主要可分為三個部分:

- 除污用雷射:連續波光纖雷射,最大輸出功率2千瓦,雷射截面積(spot size)20微米,可隨著高度落差與傾斜程度改變截面積。
- (2) 測量距離用雷射:掃描探測物體的空間距離,讀取表面的 3D 位置。
- (3) 掃描振鏡(Galvano scanner)與變焦透鏡:掃描振鏡(Galvano scanner)為主要由 XY 光學掃描頭、電子驅動放大器和光學反射鏡片構成,電腦提供信號透過放大電路 驅動掃描頭,從而在 XY 平面控制雷射射束的偏轉。而變焦透鏡為改變透鏡焦 距,調整焦點在 Z 軸上的位置,使聚焦點保持在物體表面。

結合上述兩個系統,可在 10 公分×10 公分×2 公分的範圍內任意的改變雷射之聚 焦點。



圖 1.1.106 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司研發之新型雷射除污機系統結構。[39]

圖 1.1.107 說明此新型雷射除污機用於 316L、304L、430 不鏽鋼及碳素鋼上之除 污步驟:

- 3D 高速掃描測量物體表面,掃描速率為每秒 10 公尺~20 公尺,誤差值為 0.03 毫 米,讀取表面空間作為後續雷射聚焦點的調整依據。
- (2) 3D 雷射焦點掃描:在得到物體表面空間位置的數據後,即可隨著位置變化調整掃描振鏡與透鏡焦距,使雷射聚焦點保持在除污表面。雷射焦點可在 10 公分×10 公分×2 公分的空間內自由調整。
- (3) 表/裡層瞬間昇華:受到高能量密度雷射的照射後,表層與部分裡層的金屬材料瞬間昇華。
- (4) 蒸發物的回收:利用水封集塵機收集昇華產生之蒸散物並處理。

除污表現:深度 0.04 毫米~1 毫米,每分鐘可清除 0.3 公克~100 公克重的鋼材。以 雷射輸出功率 250 瓦為例,深度 0.04 毫米時,每小時可除污 0.2 平方公尺;深度 0.002 毫米時,每小時可除污 4 平方公尺。圖 1.1.107 為若峽灣能源研究中心與 LDD 公司新型 雷射除污機之除污步驟[39]。



圖 1.1.107 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司新型雷射除污機之除污步驟。[39]

如圖 1.1.108,在成功開發出新型雷射除污機後,加上機械手臂,可使除污範圍由 10 公分×10 公分×2 公分增加至 2 公尺×2 公尺×1 公尺,大幅增加了雷射的活動範圍, 有效利用於更大或不平整的表面除污[38]。



圖 1.1.108 機器手臂與雷射除染機分別在三維度上的驅動範圍,加裝機器手臂後,雷射 移動範圍可從 10 公分×10 公分×2 公分增加至 2 公尺×2 公尺×1 公尺。[38]

6.1.2.3 基於新型雷射除污技術研發之遠端操控雷射除污機器人

福島第一核電廠近期最主要的雷射除污對象為一號機到三號機的地下一樓到地上 四樓,在地下一樓的核燃料棒周邊之劑量率達10kGy/hr,且最大累積劑量為10百萬戈 雷[41]。在如此高劑量的環境內,工作人員幾乎無法進出。有鑑於此,WERC 開發遠端 操控雷射除污機器人,工作人員可在遠離高放射線區域進行除污工作,並且雷射除污機 的材料皆需耐放射線。

圖 1.1.109 為若峽灣能源研究中心開發之世界第一台可遠端操控之雷射除污機器人。 主要結構為雷射除污機、機器手臂、機械履帶以及其他周邊儀器(空氣壓縮裝置、除污 物質回收裝置等)。使用的輸出功率為2千瓦之連續波光纖雷射,除污效率如表1.1.57。



圖 1.1.109 若峽灣能源研究中心與 LDD 公司共同研發之遠端操控雷射除污機器人(a)實 體圖 (b)結構說明圖。[41]

表 1.1.57 遠端操控雷射除污機器人對金屬與混凝土之除污效率[41]

| 目標材質 | | SUS 鋼材 | 混凝土 |
|---------|--------|------------------------|-------------------------|
| 材料深度對應之 | 100 µm | 1 (m ² /h) | 10 (m ² /h) |
| 除污效率 | 10 µm | 10 (m ² /h) | 100 (m ² /h) |

6.1.2.4 新型雷射除污機對原子爐一次冷卻水系統之 304 不鏽鋼除污效果

在近10年內,進行了數次新型雷射除污技術對實際核電廠系統材料之除污測試, 對象為重水原子反應爐ふげん(FUGEN)之不鏽鋼材。

如圖 1.1.110 所示,除污測試樣品為大小 35 毫米×35 毫米×10 毫米之一次冷卻水 系統不鏽鋼材切片,因原子爐的長期運作,表面含有較厚的水垢與鐵鏽,放射性活度 濃度達 1MBq/kg。經過新型雷射除污後,可有效去除 99.7%的放射性物質。[40,42]



圖 1.1.110 新型雷射除污機對一次冷卻水系統之不鏽鋼切片除污效果。[40]

經過雷射除污後,利用鍺(Ge)偵檢器量測樣品經由雷射除污前後之鈷-60 之能譜, 如圖 1.1.111。除污前可明顯測量到由鈷-60 所放射出 1.17 百萬電子伏特與 1.33 百萬電 子伏特之光電效應峰值(photopeak);在經過除污後,所測得的能譜已接近背景值(圖 1.1.111 之白色直方圖),光電效應峰值與康普頓散射區域(Compton continuum)皆消失, 劑量率達原有的萬分之一以下。[42]

新型雷射除污技術使用連續波光纖雷射,降低成本並且提供更高功率之雷射輸出, 搭配 3D 掃描振鏡,可將雷射聚焦點維持在物體表面,保持最大能量密度,能夠瞬間昇 華物體表層與部分裡層,完整的清除附著於鋼材內外的放射性物質。後期加上機械手臂, 使除污範圍增加;並可遠端操控除污機器人,維護工作人員不受高放射線的曝露。用於 實際對原子爐材料進行除污的結果,除污後放射性劑量率為除污前萬分之一以下,除污 效果達 99.7%。



圖 1.1.111 新型雷射除污機進行除污後,利用鍺偵檢器測量雷射除污前後之鈷-60 能 譜。[42]

6.1.3 CoolLaser 之雷射對金屬表面放射性物質的除污與粉塵處理技術

6.1.3.1 CoolLaser 雷射除污系統與粉塵處理技術

由日本中部電力公司、Toyokoh 公司與光產業創成大學院大學共同研究之 CoolLaser 應用於放射性污染金屬表面雷射除污技術與粉塵處理系統。CoolLaser 原先多用於工業 上去除塗膜,2015年開始討論將該技術應用於核電廠除污上[21]。

雷射除污相較於其他除污方法,不會產生二次廢棄物而造成多餘的污染,除污效率 佳,用於核電廠除污上能有效降低放射性物質的擴散,並且開發粉塵處理技術,回收雷 射除污時產生的的粉塵顆粒。[43,45]

CoolLaser 為 Toyokoh 公司主力開發的雷射除污系統。大多數雷射除污機是將雷射 聚焦至面積極小射束大小,提高能量密度後直接打在材料面上;而 CoolLaser 在雷射聚 焦後再透過旋轉的稜鏡,使射束呈現圓形螺旋狀,加大除污的面積,如圖 1.1.112。[44]



圖 1.1.112 CoolLaser 雷射除污機之圓形螺旋狀雷射射束示意圖。[44]

圖 1.1.113(a)為 CoolLaser 雷射除污系統與作業時工作人員配備示意圖。在進行除污時, 雷射共振腔、冷卻裝置與壓縮機不會進入到工作環境內, 透過約 100 公尺之光纖導線將雷射導引至工作環境內; 工作人員皆配有由獨家開發的防護配備, 能確保工作人員 能在安全的情況下進行除污工作[44]。圖 1.1.113(b)與圖 1.1.113(c)為除污系統所使用之 雷射共振腔與雷射照射頭實體。



圖 1.1.113 CoolLaser 雷射除污系統(a)除污作業時儀器與工作人員配置圖[44] (b)雷射共 振腔 (c)雷射照射頭。[45]

除了 Toyokoh 公司創新的雷射技術外,中部電力公司研究團隊亦開發粉塵回收與處 理裝置,如圖 1.1.114,收集並淨化雷射除污時產生之粉塵顆粒,避免粉塵擴散對周圍環 境造成污染。



圖 1.1.114(a)粉塵吸引設備與粉塵處理裝置架設圖 (b)粉塵吸引設備 (c)粉塵處理裝置。 [45]

6.1.3.2CoolLaser 雷射除污試驗與結果

在應用於實際核電廠材料之前,先行對大口徑炭素鋼配管、不鏽鋼配管,小口徑不 鏽鋼配管及水泥固化鏟等四種不同形狀及面積的樣品進行雷射除污測試。圖 1.1.115 為 四種除污測試對象與雷射除污次數與污染物測定值之變化圖。

由圖 1.1.115(b)可看出,除了小口徑的不鏽鋼管外,多數測試目標在經過第一次雷射除污後,所測得輻射計數(count pre minute, cpm)明顯下降至趨近於 0。[45]



圖 1.1.115 CoolLaser (a) 雷射除污測試對象與(b) 除污次數與污染物測定值之變化。[45]

6.2 德國雷射除污技術發展

德國應用於核電廠除污的雷射除污研究主要為德勒斯登工業大學主導。該校的研究 團隊於 2013 年起已發表 4 篇主要的研究論文介紹對雷射混凝土除污所開發的系統與除 污成效實驗結果[25, 31, 47, 48]。而近年該校團隊也開始研究雷射對金屬表面的除污成 效,測試的金屬基材包含不鏽鋼、碳鋼、鋁、銅及鎳鉻合金,也針對塗層的清除進行研 究並於 2019 年發表相關研究結果[17]。

德勒斯登工業大學對雷射金屬表面除污實驗的結果摘要於本報告 4.1.1.3 節,研究 團隊以平均功率 150 瓦、波長 1064 奈米、脈衝時寬 105-230 奈秒、重複頻率 12-40 千 赫茲的 Nd:YAG 脈衝雷射探討金屬材料中鐵磁體鋼、奧氏體鋼和鋅的剝蝕量、剝蝕深 度、剝蝕閾值及剝蝕後的表面結構與型態。如表 1.1.28 所示,鐵磁體鋼、奧氏體鋼和鋅 的剝蝕閾值分別為 3.5 J/cm²、2.6 J/cm²和 5.3 J/cm²,在圖 1.1.41 中表明,雷射能量增加 到 257.6 J/cm²及重複掃描後可完全清除塗層。此外,該文獻也提出使用短脈衝的 Nd:YAG 雷射之優點,因短脈衝具有高強度,單位脈衝可清除較多材料,可快速清除任何覆蓋層 且可最大限度地減少金屬基材的熱量損失以抑制熔體形成。

德勒斯登工業大學對混凝土表面除污實驗的結果摘要於本報告 4.2.1.4 節。一般若 要去除含有 PCB 的表面塗層,會先經由研磨等機械技術將其去除後,在對於產生的粉 塵顆粒進行熱處理,若使用高功率二極體雷射對待除污表面進行加溫,可以在數秒間加 熱至攝氏 1000 度使 PCB 降解。如圖 1.1.116 為德國德勒斯登工業大學所使用的雷射除 污系統 VORATOR,此裝置含有高速攝影機與熱電偶,可以在使用時監控顆粒噴濺的行 為,並配有 10kW 的二極體連續波雷射(10kW diode laser in cw-mode),透過透明玻璃聚 焦於混凝土與塗層表面,表面溫度快速升高使開始塗層分解後產生煙氣(flue gas),此裝 置會注入冷空氣使煙氣與空氣進行萃火後排出,淬火溫度透過熱電偶進行量測。



圖 1.1.116 德國德勒斯登工業大學使用的雷射除污系統 VORATOR。[30]

而 Torsten Kahl 等人[30]認為除污過程最重視的部分即為安全疑慮,其中最容易發生的危害即為粉塵顆粒中的有毒物質及放射性物質,若在除污作業中使用適當的過濾系統即可大致解決此問題,而如何挑選合適的過濾器則需要有關粉塵顆粒大小、濃度、形狀等資訊。故此團隊後續做了研究分析使用 10 千瓦功率的二極體雷射對有塗層及未塗層的混凝土表面除污後所產生的顆粒特性,研究內容以含有水性環氧樹酯塗層的混凝土為主,利用與核電場相同的材料成分模擬實際除污時產生粉塵顆粒的情況,分為有塗層與沒有塗層兩種。實驗最終結果得知須超過6千瓦的連續波二極體雷射才足以使塗層產

生剝蝕,且隨著能量上升剝蝕產生的粉塵顆粒由30 奈米變為90 奈米。

而同為德國德勒斯登工業大學的 A.Anthofer 同樣利用了 10 千瓦的二極體雷射達到 每小時 6.4 平方公尺的除污速率(decontamination rates),這裡專指除去 0.1 毫米到 0.7 毫 米厚的環氧樹脂層的情況。圖 1.1.117 中, PL 為雷射功率、v 為掃描速率(scan rate)、Es 為每單位長度的輸入能量(the energy input per unit length), δ 為殘留厚度、Ra 為平均粗 糙度。在 E 過小的情況下會沒有辦法將環氧樹酯進行除污,而 E 過大反而會產生玻璃 化,降低除污效率,故選擇在適當的 Es 值下才能有效的將表面塗有環氧樹酯的混凝土 進行除污[25]。



圖 1.1.117 德國德勒斯登工業大學在使用不同雷射使用參數下對含有塗層混凝土的除污 狀況。[25]

圖 1.1.118 (a)展示德國德勒斯登工業大學所發展之含有氣吸平台(pneumatic suction plates)的雷射除污系統操縱器(manipulator)[47],操縱器可以沿著牆壁、天花板與地板進 行移動,數字分別代表的是 1=底盤、2=感測器(sensor box)、3=剝蝕軌跡、4=氣吸平台, 圖片中的箭頭代表了裝置可以移動的自由度。圖 1.1.118 (b)的數字分別對應 1=剝蝕表 面、2=雷射裝置、3=矩形鏡(retangular mirror),此裝置每次剝蝕 3 條寬 45 毫米長 500 毫 米的軌跡時便需要改變位置以便進行下一次的剝蝕。此外,此裝置是由卡爾斯魯爾理工 學院(Karlsruhe Institute of Technology,KIT)所製造與裝設[47]。



圖 1.1.118 德國德勒斯登工業大學(a)雷射除污系統之操縱器(b)雷射除污系統的操縱器 與雷射裝置。[47]

表 1.1.58 為德國學者 A.Anthofer 的相關研究,分別使用雷射對混凝土與環氧樹酯 層進行研究,以不同的掃描速度和雷射能量對剝蝕速率進行量化。

| | 最大剝蝕速 率 | 剝蝕深度 | 掃描速度 | 雷射能量 | 出處 |
|-------|-------------------------|------------|------------------------|------------|------|
| | 2.5 m ² /hr | 1-2 mm | 1-2 mm 400-1000 mm/min | | [47] |
| 混凝土 | 2.16 m ² /hr | 5 mm | 200-1000 mm/min | 4 kw-10 kw | [47] |
| 環氧樹酯層 | 6.4 m ² /hr | 0.1-0.7 mm | 200-2200 mm/min | 2 kw-10 kw | [25] |
| | 7.2 m ² /hr | 100-600 μm | 2655 mm/min | 10 kw | [48] |

表 1.1.58 摘要德國文獻中除污相關結果 [25, 47, 48]

6.3 韓國雷射除污技術發展

韓國應用於核電廠除污的雷射除污研究主要為韓國原子能研究所 KAERI 主導。 KAERI 主要專注於對金屬表面的除污實驗,相關結果摘要於本報告 4.1.1 節。KAERI 研 究團隊於 2010 年發表的研究報告[13, 14]與 2011 年發表的研究報告[16]中主要探討 Nd:YAG 雷射使用不同的參數對除污效率的影響。研究團隊執行雷射除污被銫離子污染 的 304 不鏽鋼試片的研究報告[14],使用的雷射參數列於表 1.1.18,使用 0.015 M CsCl 溶液污染,並另外使用 0.03 M KNO3和 0.03 M KCI 溶液對試片進行處理,試片化學成 分組成如表 1.1.19。經實驗得到最佳參數為能量密度 57.3 J/cm²,且 CsCl + KNO3 的試 片組合顯示更好的銫離子去除性能。研究團隊執行雷射除污被銫離子、鈷離子、氧化錆 和氧化鈰污染的 304 不鏽鋼試片的研究報告[13],使用的雷射參數列於表 1.1.16,使用 Co(NH4)2(SO4)2、Eu2O3、CsNO3、CeO2模擬污染物,試片化學成分組成如表 1.1.17。經 實驗得到最佳參數為能量密度 13.3 J/cm²、雷射發數為 8 發、角度 30 度。研究團隊執行 雷射除污被銫離子和鈷離子污染的鋁試片的研究報告[16],使用的雷射參數列於表 1.1.23,並分別使用含有銫離子和鈷離子的溶液污染試片,試片化學成分組成如表 1.1.24。 報告討論使用三種不同波長的除污性能,結果顯示鈷離子比銫離子容易去除,且對不同 的波長,除污性能為 355 奈米> 532 奈米> 1064 奈米,因此低波長的應用更有效。

為了成功應用雷射剝蝕除污技術,KAERI於2013年發表的論文也分析對剝蝕304 不鏽鋼試片時,在不同污染條件下出現的顆粒大小和濃度分析,然後使用高效率空氣濾 器研究產生顆粒的去除特性[20]。研究提出有必要透過消除剝蝕產生的顆粒來防止再污 染。該實驗製備含水溶性放射性核種 Co(NH4)2(SO4)2與 CsNO3,以及非水溶性放射性核 種 Eu2O3與 CeO2 污染的304 不鏽鋼試片,進行在不同雷射剝蝕和污染條件下出現的顆 粒大小和濃度分析,然後使用高效率空氣濾器研究了各種測試條件下的顆粒去除特性。 各種放射性核種污染試片並進行剝蝕所產生的粒子尺寸分佈如圖1.1.57,純304 不鏽鋼 試片和被水溶性放射性核種污染的試片具有幾乎相同粒子尺寸分佈和濃度,幾何平均顆 粒直徑約為80 奈米。非水溶性放射性核種污染的試片比水溶性污染的試片具有更寬的 尺寸分佈和高約三倍的顆粒濃度,濃度大約高了三倍,幾何平均顆粒直徑減小到約70 奈米。圖1.1.58(b)顯示高效微粒空氣過濾器對純304不鏽鋼試片、水溶性與非水溶性放 射性核種污染的304不鏽鋼試片進行雷射剝蝕時產生的所有顆粒的收集效率。在所有情 況下,高效微粒空氣過濾器都顯示出超過99.4%的高收集效率。因此,高效微粒空氣過 濾器對於去除放射性熱室中雷射剝蝕除污產生的顆粒確實十分有效。

6.4 法國雷射除污技術發展

法國應用於核電廠除污的雷射除污技術主要法國原子能和替代能源委員會 CEA 主 導。CEA 研究團隊於近年發表 2 篇主要的研究論文介紹對對金屬表面的雷射除污實驗 結果,在實驗中使用鏡光纖雷射對 304L 不鏽鋼試片進行除污並分析除污成效,相關結 果摘要於本報告 4.1.1.1 節。

由於銪和鈷是構成核電廠鋼鐵設備的元素之一,CEA研究團隊於 2018 年發表的研究成果執行對不鏽鋼試片除污含銪與鈷氧化層之實驗[11]。實驗中使用的雷射參數列於表 1.1.11,將不鏽鋼試片氧化後以輝光放電質譜儀分析銪污染試片以及使用輝光放電光 譜儀分析鈷污染試片,除污效率定義為處理前後污染物質量之間的比率,實驗結果顯示, 銪污染試片在能量密度為 12.4 J/cm²且掃描速度為每秒 244 毫米的情況下,除污效率高 達 96.6%,如圖 1.1.20 (c)。鈷污染試片則在能量密度為 12.4 J/cm²且掃描速度為每秒 488 毫米的情況下,除污效率高達 95.5%,如圖 1.1.22。另外,研究報告顯示,使用低雷射 能量密度是不足以剝蝕整個氧化層,藉由觀察不同能量密度下單個雷射脈衝後的剝蝕孔 徑,確定閾值能量密度為 5.0 J/cm²,圖 1.1.21 所示。

研究團隊另於 2020 年發表雷射除污含銪污染 304L 的不鏽鋼試片,主要探討實驗 設計四組雷射參數之除污成效[12]。實驗使用的雷射參數列於表 1.1.12 而結果主要摘要 於表 1.1.14。結果顯示處理 3 的參數為去除氧化層和污染試片的最佳參數。另外透過感 應耦合電漿光發射光譜儀,分析纖維聚碳酸酯濾器所收集的顆粒,結果如表 1.1.15。處 理 2 中過濾器收集的物質總體成分類似於氧化物 Fe₃O₄和 FeCr₂O₄,而處理 3 的成分更
接近於不鏽鋼的組成。並利用靜電低壓撞擊器獲得去除顆粒的尺寸分佈,如圖 1.1.27, 圖中顯示除污時釋放的顆粒尺寸小至 120 奈米,而奈米粒子也可聚集形成數微米尺度的 顆粒。研究團隊提出未來的研究還需要評估雷射設置特性,例如雷射波長、重複頻率和 脈衝時寬對除污性能的影響。此外,需要對具有裂紋或腐蝕等表面缺陷的試片進行處理, 以提高損壞設備的除污效率。

法國 CEA 亦發展商售的 Aspilaser 系統,主要用於除污混凝土表面塗層[49]。 Aspilaser 的原理為聚焦雷射光束於材料表面,透過微爆(micro-explosions)引起表面剝蝕。 使用低平均功率雷與掃描振鏡(galvanometer)一起使用,可在不移動載體的情況下使用雷 射光束掃描。所有經剝蝕產生的顆粒都通過抽吸/限制系統(suction/confinement system) 收集,該系統具有可清潔的濾筒(cartridge filter)、高效微粒空氣過濾器 HEPA 和活性碳 過濾器,可防止產生的顆粒再次沉積在表面上。選擇的雷射參數限制為對污染塗層產生 剝蝕而不會對基材造成損壞。

Aspilaser 進行的測試顯示[49]在除污環氧樹脂塗層時,每次剝蝕的深度約為 10 微 米不會損壞基材,而在不同類型的塗層上,每次剝蝕的深度為 5 微米。除污因子是透過 測量雷射除污前與後塗層中含有的銪濃度的比值,測試結果顯示除污因子超過 1,000, 再沉積少於千分之一。而剝蝕產生顆粒的捕獲率高於設備的檢測極限(> 96%)。

Aspilaser 除污的實例為在 Cadarache 的濃縮鈾處理製造廠 (enriched uranium processing facilities, ATUE) 中除污混凝土牆上的塗層如圖 1.1.119 所示[49]。另外還有在 演示實驗中的除污成果,以每小時1平方公尺的速度剝蝕,可以將整個表面的α放射性 活度降低到每平方公分小於 0.1 貝克,並且通常降低到每平方公分小於 0.01 貝克。這次 演示在抽吸系統沒有功率損失的情況下,一個6平方公尺的區域被剝蝕,只產生少量的 廢物。在 Saclay 的 CÉLIMÈNE 設施也成功對鋼表面的塗層進行除污,如圖 1.1.120。相 關系統介紹顯示法國 CEA 的 Aspilaser 可以在平坦、無孔的表面上運行並且有效除污, 而未來希望將其應用範圍擴展到具有微裂紋缺陷的表面、不平坦的表面以及更深的表面。



圖 1.1.119 法國 CEA 的 Aspilaser 應用在 Cadarache 的濃縮鈾處理製造廠中除污混凝土 牆上的塗層。[49]



圖 1.1.120 法國 CEA 的 Aspilaser 應用於 CÉLIMÈNE 設施除污鋼表面塗層。[49]

6.5 美國雷射除污技術發展

美國的愛達荷國家實驗室(Idaho National Laboratory, INL)的研究團隊在 1994 年即 發表其對雷射金屬表面除污的實驗結果[9](摘要於小節 3.2),為所收集到的文獻中最早 開始研究雷射對放射性表面除污成效的研究單位。而阿岡國家實驗室(Argonne National Laboratory, ANL)則於 1999 年與 2000 年發表關於雷射混凝土除污成效的研究成果[50]摘 要於小節 4.2.2。由此可見美國的研究單位先於他國開始發展應用於核電廠除污的雷射 除污技術,然而在文獻蒐尋的結果也顯示近十年來鮮少有美國研究單位對放射性雷射除 污的新研究成果,為較日、德、法、英等國發展相異之處。

愛達荷國家實驗室之研究團隊 1994 年發表的報告比較連續波二氧化碳雷射、Q 開 關 Nd:YAG 雷射與氟化氪準分子雷射應用於除污放射性金屬鋼材之成效如小節 3.2 所 摘要之內容[9]。該研究之重要貢獻為驗證千瓦級連續波二氧化碳雷射會因造成試片熔 化而不適合應用於雷射金屬表面除污。因此實驗主要以可產生時寬小於 20 奈秒之雷射 脈衝的 6 瓦 Q 開闢 Nd:YAG 雷射與 50 瓦氟化氪準分子雷射執行除污成效測試,當產 生的雷射脈衝其光強度大於 10⁸ W/cm² 時可明顯觀察到雷射剝蝕效果並量測試片的重 量逸失(weight loss)相關雷射參數可參考表 1.1.4 與表 1.1.7 之結果比較。在將 Nd:YAG 雷射產生之能量 150 毫焦耳、時寬 8 奈秒的紅外光雷射脈衝聚焦為 10 毫米長×0.15 毫 米寬的線聚焦時,以5 毫米的距離來回掃一小時可對不鏽鋼、銅、鋁與鎳基合金試片於 每雷射脈衝造成 50 奈克以上的重量逸失。在相似光束參數下,使用能量 300 毫焦耳、 時寬 28 奈秒由氟化氪準分子雷射產生的紫外光雷射脈衝可增加重量逸失至每脈衝 150 奈克以上,證明使用短波長有助提高雷射剝蝕的效率。實驗也製備含銫鹽與鋯鹽的不鏽 鋼金屬試片並使用 Nd:YAG 雷射與氟化氪準分子雷射驗證除污成效如表 1.1.8 與表 1.1.9 所示。氟化氪準分子雷射所產生的雷射脈衝也應用於測試對含鈷-60 與銫-137 的實際放 射性污染試除污,以證明雷射照射可幾乎達到完全除污金屬試片的結果如圖 1.1.16 所 示,為重要驗證雷射除污成效之報告文獻。

而阿岡國家實驗室則發雷射對混凝土表面的除污成效[50]。不同於使用連續波雷射 照射下除污機制為透過混凝土中不同成分的熱膨脹係數差異產生熱應力使材料斷裂和 去除,使用脈衝雷射則可透過快速加熱局部區域引起材料分解和熱衝擊。因此研究團隊 使用 Nd:YAG 雷射對實驗用沸水反應器(the Experimental Boiling Water Reactor)的混凝土 進行除污試驗。表 1.1.59 為美國阿岡實驗室研究團隊所使用之雷射參數,觀察雷射除污 面積重疊率與混凝土除污成效的關係如圖 1.1.121,並發現到小型粉塵顆粒與波特蘭水 泥中的鋁的成分有關。而較大的顆粒是熔化或飛濺而成的空心顆粒。圖 1.1.121(a)為雷 射剝蝕系統的示意圖,由上而下順時針介紹部位與功能,依序為光纖雷射、雷射頭、準 直鏡、聚焦鏡、混凝土樣品、樣品載台、級聯衝擊機(cascade impactor)、雷射光。圖 1.1.121(b) 為使用 Nd:YAG 雷射進行多次除污後的結果,寬度為雷射光束之寬度 0.6 毫米而深度達 0.5 毫米。表 1.1.60 提供了 2000 年左右阿岡國家實驗室研究團隊所發表之雷射剝蝕混凝 土的除污效率比較,由於年份較早混凝土除污效率的統計方法較為不一致。不過仍然能 夠比較其不同成分混凝土的除污效率。

表 1.1.59 美國阿岡實驗室研究團隊所使用之雷射參數[50]

| 雷射種類 | 功率 | 光束波長 | 脈衝時寬 | 脈衝能量 | 重複頻率 |
|-----------|--------|---------|--------|------|--------|
| ND:YAG 雷射 | 1.6 kW | 1064 nm | 0.5 ms | 2 J | 800 Hz |



圖 1.1.121 美國阿岡國家實驗室使用的(a)除污裝置示意圖及實驗中(b)除污後混凝土表面 的電子顯微鏡影像。[50]

| 最大剝蝕速率 | 成分 | 雷射能量 | 出處 |
|-------------------------|--------------------|-------|------|
| 每秒 0.12 立方公分 | 40%粗砂 60%波特蘭水 泥 | 1.6kw | [50] |
| 每秒 0.1 立方公分 | 60%砂 40%砂石 | 1.6kw | [50] |
| 0.084cm ³ /s | 波特蘭水泥 | 1.6kw | [50] |

表 1.1.60 美國阿岡國家實驗室使用雷射除污混凝土之除污效率比較。

| 0.23mg/J | 60%砂 40%水泥 | 1.6kw | [33] |
|----------|------------------|-------|------|
| 370mg/s | 60%砂 40%水泥 | 1.6kw | [33] |
| 0.16mg/J | 高密度水泥(含有大顆 粒) | 1.6kw | [33] |

根據圖 1.1.122 隨著雷射除污面積重疊的部分上升到超過 80%之後,剝蝕效率反而 會下降,而在較低重疊面積的情況下反而沒有什麼太大的變動。下方用光學顯微鏡依序 觀察雷射重疊面積 0%、60%、90%,可以發現在無重疊的情況下,表面呈現顆粒狀,多 去除單個沙粒留下的孔洞,當重疊區域達到 60%後整體的表面剝蝕深度更深,凹槽也更 明顯,弧形的邊緣顯示發生熔化。在重疊區域高達 90%時,可發現表面熔化後發生釉化, 使剝蝕效率反而下降。



圖 1.1.122 美國雷射學會雷射除污混凝土後的剝蝕效率與線性除污重疊率的關係。[12]

6.6 英國雷射除污技術發展

英國應用於核電廠除污的雷射除污技術主要由英國雪菲爾大學(The University of sheffield)主導,由 B.Peach 所帶領的研究團隊近3篇主要的研究論文中介紹隊雷射混凝 土除污技術的實驗結果,在 2016 年發表的論文中[28],一開始先針對不同的混凝土成 分並改變初始的含水量來觀察實驗結果如表 1.1.37、表 1.1.38、表 1.1.39。可以發現透 過觀察除污時的溫度與時間、除污時溫度的變化速率以及除污時溫度的波動,可以得知 混凝土除污的成效。對於不同的混凝土成分來說,不論含水量與否,使用波特蘭水泥 (ordinary Portland concrete,OPC)+PFA(Pulverised Fuel Ash,為水泥的替代品)的水泥膠是最 容易被去除的;而在低水泥膠成分的的實驗上會產生較高的溫度,這是因為水泥膠本身 含水量較多,若要達到相同的除污成效需要蒸發更多的水來形成孔隙壓力,而混凝土當 中的骨材(aggregate)是混凝土重要的強化機制,可以增加材料的抗拉強度。研究發現熱 機械的影響比熱化學影響要強的多。例如石英岩的相變化溫度遠高於剝蝕溫度,故不是 其發生剝蝕的主要驅動力、玄武岩中的骨材在熔化時會產生玻璃化防止剝蝕、石灰岩在 剝蝕發生時會維持恆定表面溫度。這些現象可以用孔隙壓力與高的剝蝕溫度來解釋。而 混凝土的水分飽和度不是關鍵因素[31]。

接著對於不同的水膠比、黏合劑的成分、骨材和黏合劑的比例與粗骨材的大小,進 行混凝土除污實驗,結果顯示水泥膠主要是透過孔隙壓力來進行剝落並且灰泥作為影響 混凝土除污的主要原因,造成其剝落的機制有熱應力與孔隙壓力兩種影響,其對於混凝 土除污的驅動力比粗骨材還要大。研究中發現低熔點的玄武岩會容易形成玻璃化與石灰 岩粗骨材產生的脫碳酸作用(decarbonation)會造成雷射剝蝕的阻礙。就上述結果可以得 知,雷射剝蝕對於使用低水膠比或是含有 PFA 的混凝土有較好的剝蝕效率。

灰泥在混凝土的成分中為含水量相對較高的一種,故調整灰泥的比例對混凝土除污有較 大的影響[27]在 4.2.1.2 節中討論並能夠得到,以相同雷射照射條件分別對石灰岩、玄武 岩、灰泥、OPC 及 75%OPC+25%PFA 的混凝土進行雷射除污,玄武岩混凝土會發生玻 璃化現象,且石灰岩經雷射除污後的體積幾乎不會有改變。若混凝土水份含量較少,受 雷射照射升溫所產生的水氣量造成的孔隙壓力無法使混凝土表面剝落,混凝土表面會持 續升溫熔化並進而產生玻璃化現象,在混凝土表面產生一層薄薄的玻璃層,影響了除污 效率。若混凝土細骨材含量較高,會使混凝土的機械強度增加,體積變化率會提升但是 碎片型式會以大片方式剝落。[27]

根據 4.2.1.3 節的敘述可以得知以下結果老化對於除污成效最大的影響是來自於風乾所 造成的水分減少[32],因水分不足而降低混凝土的剝落行為。不同種類的混凝土受老化 影響的趨勢不同。飽和 OPC 及石灰岩混凝土的剝落行為會隨著老化增加而趨於嚴重, 飽和灰泥及飽和 OPC+PFA 則不受老化影響,飽和玄武岩混凝土則是隨著老化增加而開 始發生玻璃化現象。而不同種類的混凝土具有各自最適合雷射除污的初始水分飽和度。

英國雪菲爾大學的研究團隊所進行的研究是與曼徹斯特大學(The Universeity of Manchester)和 TWI 這家位於英國劍橋的公司進行合作,綜觀整個研究是為去除核電廠 表面 8-12 毫米的污染混凝土,因為其輻射污染區域大多聚集於材料表面數個毫米,利 用雷射除污的方式可以降低除污後產生的顆粒與碎屑。高能雷射應用於混凝土除污使用 波長為一微米的雷射並透過光纖傳輸,能夠在數百米之外進行除污並監測,與機械除污 最大的不同為雷射加熱導致溫度快速升高產生剝落與玻璃化兩種結果。

6.7 中國雷射除污技術發展

中國近年相當積極發展高功率雷射技術,並有諸如武漢銳科光纖激光技術(Wuhan Raycus Fiber Laser Technologies Co., Ltd.)與河南啟封新源光電科技(Newlight Source QiFeng Technology Co.)等擁有自主技術的雷射公司,具有良好的基礎發展雷射除污的應用技術。以武漢銳科公司的1000 瓦高功率脈衝光纖雷射(RFL-P1000)為例,雷射光波長1064 奈米、脈衝時寬為 90-160 奈秒、脈衝重複頻率為 20-50 千赫茲、脈衝能量最高至50 毫焦耳(於 20 千赫茲時)即適合應用於雷射除污技術的發展。

中國核動力研究設計院(Nuclear Power Institute of China, NPIC)即於近年發展基於Q 開關光纖雷射的除污技術[15]。在執行雷射除污表現的測試上,該單位研究員發展了一 套除污測試裝置如圖 1.1.123(a)所示。該系統使用 350 瓦的脈衝光纖雷射,可產生時寬 8-500 奈秒,重複頻率至 4000 千赫茲的雷射脈衝。使用平均功率 350 瓦、時寬 350 奈 秒、重複頻率 230 千赫茲之雷射參數執行金屬試片的實驗結果可參考 4.1.1.1 節中對圖 1.1.32 數據的相關彙整摘要。雷射光束於除污測試物件表面的聚焦點直徑為 60 微米, 而系統即可依據此光束直徑 D,以小於 D 的橫向 dx 與縱向 dy 位移量依序移動光束位 置如圖 1.1.123(b)所示以完整掃描試片表面。光速掃描的速率可為每秒 3000-9000 毫米, 掃描面積可達 180 毫米×180 毫米。實驗系統也設有光學顯微鏡以量測除污後的金屬層 深度變化如圖 1.1.123(c)所示,並以調整雷射參數,以達成至多移除 100 微米深度之金 屬表層為目標。



圖 1.1.123 (a)中國核動力研究設計院所發展的雷射除污測試實驗站。(b)控制雷射光束 掃描除污表面示意圖。(c)使用顯微鏡量測除污後材料表面深度變化示意圖。[15]

該研究院也設計製作了一套自動化雷射除污設備如圖 1.1.124(a)所示。此設備主要 由雷射系統、自動控制系統與二次廢棄物處理系統所組成。雷射系統含三套 350 瓦的脈 衝光纖雷射,可個別使用或同時運作達到 1050 瓦的總雷射功率。單一雷射系統可照射 的面積為 25 毫米×25 毫米至 25 毫米×75 毫米。在全功率運作時,雷射光學透鏡須以水 冷系統散熱以保證 12 小時以上的持續運作時間。自動控制系統則由機器人手臂與多組 距離感測器組成。機器人手臂的延展距離可至 2.25 公尺,承重為 40 公斤。除污頭端 (decontamination head)配有一個三維輪廓感測器(3D contour sensor)與一個雷射距離感測 器以合併使用測定待除污金屬件的表面形狀,並依量測結果由控制系統演算出除污照射 路徑。自動控制系統也會調整光束方向使光束保持正向入射待除污表面。除污頭端另有 三組雷射距離感測器避免頭端在運作是與其他物件發生碰撞。二次廢棄物處理系統由多 級過濾系統(filtration system)組成,以去除 99.9 以上的放射性粉塵與氣溶膠。排氣入口 固定於雷射光束頭端旁,並可隨自動控制系統的控制移動。使用上須避免二次廢棄物沉 積於雷射光學透鏡上,否則透鏡上的髒污會降低除污成效或造成局部熱累績而損壞透鏡。

系統可設定 0、5 微米、10 微米、20 微米、50 微米與 100 微米等不同的金屬除污深 度。對不鏽鋼與鐵材在執行上述除污深度時的除污效率(單位為每小時平方公尺面積)可 參考圖 1.1.124 (b),在僅作表面清潔時(除污深度為 0)效率為每小時 17.5 平方公尺,而 在除污深度為 10 微米時,效率為每小時 1.5 平方公尺。系統耗電總功率為 11.4 千瓦, 圖 1.1.124(c)即摘要在不同除污深度下除污的電能消耗(單位為每平方公尺千瓦小時),而 在除污深度為 10 微米時,電能消耗約為效率為每平方公尺 6 千瓦小時。此系統之除污 成效測試結果可參考 4.1.1.1 節中對圖 1.1.33 與表 1.1.21 數據的相關彙整摘要。



圖 1.1.124 (a)中國核動力研究設計院所發展的自動化雷射除污設備。(b)設備除污效率 與除污深度關係圖。(c)設備除污電能消耗與除污深度關係圖。[15]

6.8 台灣雷射除污技術發展

國立清華大學原子科學技術發展中心曾主導發展一套小型化雷射除污金屬表面的 系統如圖 1.1.125(a)所示。此系統使用一台 15 瓦 Q 開關摻鏈光鐵雷射,以 60 千赫茲的 重複頻率輸出時寬 10 奈秒、能量為 250 微焦耳的主雷射脈衝串,單一雷射脈衝串又由 3 個時寬 3-5 奈秒、尖峰功率 250 千瓦的次脈衝組作為除污光源。該系統的特色為使用 一個 12 面多邊形鏡(polygon mirror)搭配一個平場聚焦透鏡(F-theta lens)產生掃描金屬表 面的線聚焦光束如圖 1.1.125(a)與 1.1.125(b)所示。此多邊形鏡由馬達帶動以超過每分鐘 5000 轉的速度旋轉,如此雷射光由多邊形鏡中單一反射面(面積 13.5 毫米×10 毫米)反射 時即會隨時間改變入射進平場聚焦透鏡的角度,進而使投影至靶材試片的線聚焦光束產 生最大橫向移動距離為 50 毫米的掃描效果。焦距為 63 毫米的平場聚焦透鏡可將直徑 7 毫米的入射光束整形為長 50 毫米×寬 24 微米的線聚焦,如此在 13.5 瓦的光束平均功率 下,單一次脈衝可以 3.5×10⁹ W/cm² 的強度於試片表面進行除污。當此 12 面多邊形鏡 以每分鐘 8850 轉的速度運作時,線聚焦照射試片的頻率為 1.77 千赫茲,並以每秒 88,500 毫米的速度掃描試片,每一線聚脈衝掃描片時的參數。此系統期望發展成為一個手持式的雷射 除污設備如圖 1.1.125(c)所示。主要含多邊形鏡與平場聚焦透鏡的除污頭端約為 1.7 公斤重,系統總消耗功率約 45 瓦,搭配使用 12.8 伏特、18 安培小時的鋰電時約可運作 2 小時。



圖 1.1.125 (a)國立清華大學原子科學技術發展中心主導發展的小型化雷射除污系統。 (b)雷射線聚焦光線於除污腔內照射金屬試片示意圖。(c)手持式雷射除污設備示意圖。 [51]

表 1.1.61 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統於不同多邊形鏡轉 速下,線聚脈衝掃描片之參數變化[51]

| 多邊形鏡旋轉速度 | 掃描線頻率 | 單一掃描線所有 雷射脈衝串數 | 掃描速度 |
|----------|----------|-------------------|-------------|
| 5735 RPM | 1.15 kHz | 52 | 57,350 mm/s |
| 6035 RPM | 1.21 kHz | 50 | 60,350 mm/s |
| 6745 RPM | 1.35 kHz | 44 | 67,450 mm/s |
| 7415 RPM | 1.48 kHz | 40 | 74,150 mm/s |
| 7885 RPM | 1.58 kHz | 38 | 78,850 mm/s |
| 8850 RPM | 1.77 kHz | 34 | 88,500 mm/s |

實驗準備了放射性不鏽鋼、黃銅、鐵與鋁的金屬試片測試除污成效如圖 1.1.126 所 示。每片試片直徑 53 毫米而厚度 1-2 毫米,浸泡於輻射污泥達 30 天後移至通風櫃(fume hood)自然乾燥。此輻射污泥由清華大學水池式反應器(THOR)所屬的冷卻水清潔系統之 液體廢棄儲存槽物底收集而得,可使金屬試片帶有至多每秒數十貝克的鈷-60 放射活度。 除污前後的試片放射性活度以高純鍺偵測器量測,其結果摘要於表 1.1.62。結果顯示此 雷射除污系統可有效除污不鏽鋼與黃銅試片、對鐵試片也有一定成效,然而鋁試片的成 效則不理想僅約達到 50%左右的除污因子數值。其原因是由於鋁材在浸泡於輻射污泥 的製備步驟中於表面造成較嚴重的表面腐蝕,因而使表面變得更為粗糙而降低除污成效。



Stainless Steel

Brass

Iron

Aluminum

圖 1.1.126 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統於實驗所準備的放 射性不鏽鋼、黃銅、鐵與鋁金屬試片。[51]

表 1.1.62 國立清華大學原科學中心主導發展的小型化雷射除污系統對不鏽鋼、黃銅、 鐵與鋁金屬試片的除污成果比較[51]

| | 鈷-60 活度 | | 以に用す | 表面粗糙度 | |
|-------|-----------|----------|---------|---------|---------|
| 試方 | 除污前 | 除污後 | 除污因于 | 除污前 | 除污後 |
| 不鏽鋼-1 | 5.7405 Bq | 0.444 Bq | 92.27 % | 0.6 µm | 3.1 µm |
| 不鏽鋼-2 | 8.803 Bq | 0.292 Bq | 97.38 % | | |
| 黄銅-1 | 6.006 Bq | 0.046 Bq | 99.23 % | 15.0 μm | 2.5 μm |
| 黄銅-2 | 5.475 Bq | 0.228 Bq | 95.84 % | | |
| 鐵-1 | 21.715 Bq | 2.093 Bq | 90.36 % | 5.2 µm | 7.1 μm |
| 鐵-2 | 22.63 Bq | 4.219 Bq | 81.36 % | | |
| 鋁-1 | 69.575 Bq | 34.25 Bq | 50.78 % | 14.0µm | 33.3 µm |
| 鋁-2 | 74.1 Bq | 39.73 Bq | 46.39 % | | |

(七)現有除污系統

7.1 日本除污系統—LDD 公司 (株式会社 LDD)

在早期, 雷射除污的效率並不佳, 原因為雷射功率的不足與不適合利用於不平整的 物體表面, 近年來隨著新型雷射除污技術的開發, 以前的缺點也逐漸被改善。在 311 福 島核災後,為因應燃料棒周邊高劑量環境的除污作業, 搭配新型雷射除污技術研發之世 界首創遠端操控雷射除污機器人。詳細說明與除污測試於章節 6.1.2, 系統實體圖與結 構圖如圖 1.1.109。

因產品尚於開發階段,價格可能受後續調整或應用範圍而變動。以下為詢問 LDD

社未來進入商售階段時之初步估價,實際價格會依顧客需求調整系統架構或運作參數有 所更動。

(1) 前期研發製品:約1500萬日圓(不含稅)。表 1.1.63 至表 1.1.66為 LDD 公司開發遠端操控雷射除污機器人所使用之儀器部分的規格與製造商,根據除污條件與環境上的限制,可能會有型號或廠牌上的變動。

表 1.1.63 LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之雷射參數與製造商

| 雷射種類 | 雷射功率 | 光纖長度 | 製造商 |
|-----------------------|----------------|---------|-------------------|
| 油 徳 | 2001 | 5 | IPG Photonic |
| 建領波兀鐵苗射 | 300 W | 3111 | (IPG フォトニクス社) |
| 浦靖 | 11 -W 7 | 20,100m | MITSUI Electronic |
| 建領波尤藏苗射 | 1 K W | 20-100m | (三井物産エレクトロニクス社) |

表 1.1.64 LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之掃描振鏡(Galvano scanner) 製造商

| 掃描振鏡種類 | 製造商 |
|---------|----------|
| 2 維掃描振鏡 | 使用數間公司製品 |
| 3 維掃描振鏡 | LDD 公司 |

表 1.1.65 LDD 公司開發之遠端操控雷射除污器人所使用之機器人系統部件製造商

| 系統部件 | 製造商 |
|-------|-------------------|
| 機械履帶 | MITSUI E&S (三井造船) |
| 機械手臂 | Yaskawa Denki |
| 高速掃描儀 | (安川電機) |
| IP 相機 | |

表 1.1.66 LDD 公司開發之新型雷射除污技術對 SUS 鋼材與混凝土之除污效率

| 目標相 | 竹質 | SUS 鋼材 | 混凝土 |
|---------|-------|------------------------|-------------------------|
| 材料深度對應之 | 100µm | 1 (m ² /h) | 10 (m ² /h) |
| 除污效率 | 10µm | 10 (m ² /h) | 100 (m ² /h) |

(2) LDD 社開發與改良製品:約1300 萬日圓(不含稅)

相較於前期研發製品的差異為:

- (1) 雷射系統多為改良自 RAYCUS 公司製品,價格較低廉且通用以降低成本。
- (2)將雷射共振腔、掃描振鏡控制盤、冷卻機等部分改放置在系統機架,機械履帶 上放置分離機、水洗器、機械手臂WiFi控制系統等。

7.2 德國 cleanLASER 之雷射除污系統介紹

德國 cleanLASER 公司為目前生產雷射清潔系統的主流設備商之一。其生產之雷射 系統已廣泛應用於脫漆、去除氧化物與油污、清洗模具、修整金屬表面結構、清洗天然 石器與移除金屬表面塗層等工業材料處理與表面清潔之需求。該公司之高功率雷射系統 也逐漸被學術研究單位應用於發展放射性金屬表面的除污系統,諸如德國德勒斯登工業 大學之研究團隊即使用該公司的 CL150 雷射系統(平均功率 150 瓦)執行放射性金屬表 面的除污實驗,相關結果可參考 4.1.1.3 節中對圖 1.1.36-1.1.42 與表 1.1.27-1.1.29 數據的 相關彙整摘要。

圖 1.1.127 即為德國 cleanLASER 公司之 CL300 雷射系統,依原廠提供之文件顯示 日本的 J-tech 公司(日本原燃 Japan Nuclear Fuel Limited 之子公司)所發展的 Wide laser decontamination technology 即採用此 CL300 雷射系統作為雷射源。表 1.1.67 即為 cleanLASER 公司台灣代理商閩台貿易有限公司所協助提供之概略雷射規格,該二極體 泵浦 Nd:YAG 雷射之輸出平均功率為 300 瓦,可在 12 千赫茲的脈衝重複頻率下輸出脈 衝能量 25 毫焦耳,時寬 70 奈秒的雷射脈衝執行除污。雷射系統之尺寸為長 1.61 公尺, 寬 0.77 公尺與高 1.155 公尺,重量約 350 公斤。光纖長度可達 10 公尺。



圖 1.1.127 德國 cleanLASER 公司之 CL300 雷射與相關雷射除污系統設計。

| 雷射源 | 運作模式 | 波長 | 最高功率 | 脈衝重 複頻率 | 最高脈衝 能量 | 脈衝時寬 | 二極體壽 命 |
|------------------|--------------|---------|-------|----------------|------------|-------|-----------|
| 二極體泵 浦 Nd:YAG | Q 開關或 連續波 | 1064 nm | 300 W | 12 - 40 kHz | 25 mJ | 70 ns | ~10,000 h |

表 1.1.67 德國 cleanLASER 公司之 CL300 雷射系統概略規格

在雷射除污操作時所需搭配的高效濾網集塵系統則依照閩台貿易有限公司之經驗 可搭配如圖 1.1.128 所示的德國 Krantz 公司之 RH13 / H13-1500 的高效濾網集塵設備。 此系統規格為 H13 的 HEPA 濾網,對直徑大於 0.3 微米之顆粒的過濾效率大於 99.95%。 若以 CL300 雷射系統搭配 RH13 / H13-1500 高效濾網設備組成一套雷射除污系統,則 代理商閩台貿易公司之粗略價格估算為一千五百萬台幣。在操作經驗上,CL300 雷射的 年度耗材保養費用約為 60 萬台幣,其泵浦二極體之預期壽命為一萬小時,隨後雷射輸 出功率即會隨使用時間增加而遞減,若須更換時則費用約為 300 萬台幣。廠商表示上列 皆為粗估價格,對電廠除污所需之雷射除污系統則可依需求做設備規格更改而使系統售 價有所差異。

譬如購買使用功率達 1000 瓦的 CL1000 雷射則可更加確保除污成效與提升除污處 理速度,然而在設備成本隨雷射規格等量增加的情況下,成本規劃即成為擬定除污計畫 時須仔細考量之處。



圖 1.1.128 德國 Krantz 公司之 RH13 / H13-1500 高效濾網集塵設備。

(八)結語

本報告依序介紹可應用於核電廠 雷射除污的高功率 雷射技術與 雷射材料汽化與剝 蝕原理,並彙整摘要 雷射金屬除污與混凝土除污成效,而後整理多國發展 雷射除污技術 之現況與現有商售系統,也提供 雷射操作安全規範作為管制機關參考。

由第4節對雷射除污放射性金屬表面與混凝土表面之成效結果摘要可知,目前發展 雷射除污技術之團隊多使用Q開關Nd:YAG 雷射或二極體泵浦光鐵雷射產生的奈秒時 寬雷射脈衝執行除污成效測試。雷射對金屬表面的除污仰賴光束對材料的快速加溫致使 金屬汽化,亦或在達到10⁷W/cm²的強度下並產生震波壓縮材料表面而後與伴隨的應力 鬆弛使表層因散裂而被移除。以4.1.1節對雷射金屬表面除污所彙整的實驗結果而言, 雖然所使用的各式雷射系統其產生之雷射脈衝的能量(約數毫焦耳至數百毫焦耳)與時 寬(數奈秒至數百奈秒)有所差異,但實驗證明單一雷射脈衝於照射金屬表面之能量密度 達 5 J/cm²左右時即可開始對金屬材料表面有明顯的雷射剝蝕效果,而後對材料的剝蝕 深度即與掃描雷射光束時於單位面積下累積的光束能量成正比。以文獻[17]中實驗所得 在單位面積累積能量為 5,152 J/cm² 可剝蝕 11.9 微米的鐵磁體鋼為例,150 瓦 Q 開關 Nd:YAG 雷射除污 1 平方公尺的面積約須 95 小時,在單位面積累積能量 547.9 J/cm²可 清除塗層的情況下,清除 1 平方公尺塗層約須 10 小時。若改採用 1000 瓦雷射則可分別 縮短操作時數至 14.25 小時與 1.5 小時,如此即可更加確保除污成效與提升除污處理速 度,然而在設備成本隨雷射規格等量增加的情況下,成本規劃即成為擬定除污計畫時須 仔細考量之處。

在雷射對混凝土除污的應用上,照射區域會因雷射照射升溫,致使混凝土內部孔隙 中存留的水份轉變成水氣並受熱膨脹,進而對混凝土產生孔隙壓力至其高於混凝土的降 伏強度時即可剝落混凝土。若混凝土本身水分含量較少且具有較佳的導熱性(如玄武岩), 則混凝土表面會不斷受到雷射照射而持續升溫至熔化形成易於去除的玻璃層。對電廠中 覆有環氧樹脂塗層的混凝土除污而言,則可藉由雷射照射加熱使塗層中的高分子升溫降 解,並能同時除污塗層下方的混凝土。以 4.2.1 節對雷射混凝土表除污所彙整的重要實 驗結果可歸納為

- (1)使用較高尖峰功率的雷射脈衝或提升脈衝重複頻率可提高混凝土表面溫度,至使孔 隙壓力增大而加深剝蝕深度。
- (2) 混凝土水份含量較少則受雷射照射所產生的水氣量不足以產生足夠的孔隙壓力使表面剝落,表面會持續升溫熔化並進而產生一層薄玻璃層。
- (3)較高混凝土水膠比會使混凝土滲透性下降,導致蒸發的水氣不易在混凝土中擴散而 侷限在同個區域升溫膨脹,如此即可快速達到剝落所需之孔隙壓力。
- (4) 混凝土細骨材含量較高時會使混凝土的機械強度提升,剝落下來的碎屑會因為不容易崩解而傾向以大碎片的形式剝落。
- (5)老化對於除污成效最大的影響是來自於風乾所造成的水分減少,因水分不足而降低 混凝土的剝落行為。
- (6)實際應用在塗有塗層的混凝土除污時,需要選用足夠功率的雷射才有辦法提供足夠 表面溫度使表面塗層發生降解,

而由 4.1.2 節對雷射金屬除污所產生的粉塵顆粒特性整理可知,除污以產生直徑尺 寸為 100 奈米左右的金屬顆粒為主。而由文獻[20]對高效微粒空氣過濾器的效率分析可 知因雷射剝蝕產生的顆粒帶電荷與碎形顆粒團塊的幾何性質,使用規格達 H13 級的玻 璃纖維高效微粒空氣過濾器即可達 99.9%的顆粒收集效率。而由 4.2.2 節對混凝土除污 粉塵顆粒特性整理可知,文獻[19,33]實驗所測得的粉塵顆粒尺寸大約落在數微米到數 十微米間,而尺寸較大的顆粒通常是由於混凝土成分不同,進而導致熱膨脹係數間的差 異,在受熱時產生熱應力使大顆粒剝落。而文獻[31]分析雷射除污塗有水性環氧樹脂塗 層混凝土所產生的粉塵顆粒顯示大部分由蒸氣所產生的顆粒尺寸可小於 0.1 微米,而文 獻[25]指出環氧樹脂塗層在高溫會產生有毒物質多氯二噁英(PCDD、戴奧辛)和多氯呋喃 (PCDF),需要使用空氣淬火的方式使雷射除污產生的煙氣降到攝氏 250 度後排出。

由第六節所摘錄之各國雷射除污技術發展現況可知,目前以日本與德國的研究機構 最為積極發展相關技術。日本已有應用於福島第一核電廠法蘭型儲水塔之雷射除污經驗, 而若峽灣能源研究中心與 LDD 公司團隊所開發之遠端操控雷射除污機器人也積極朝商 售系統發展。而日本中部電力公司、Toyokoh 公司與光產業創成大學院大學共同研究之 CoolLaser 系統也逐步發展成為完整的放射性金屬表面雷射除污系統。德國則由德勒斯 登工業大學所屬的多個研究團隊逐步開發雷射金屬與混凝土除污技術,並搭配諸如 cleanLaser 公司所生產的高功率光纖雷射發展除污系統。

在商售系統的資訊上,日本若峽灣能源研究中心與 LDD 公司持續改進其發展的雷 射除污機器人系統,以降低整體售價與改進機械結構為主要方向。該除污系統之特性為 使用兩千瓦連續波光纖雷射為光源以降低成本,而為了避免材料的熔化使輻射污染物質 混入熔融物而不易於清除,該系統搭配自製的高速光束掃描系統以準確控制照射能量,

126

使表面材料瞬間昇華達成除污。文獻[41]表示該雷射除污機器人系統對除污 10 毫米深 的金屬與混凝土表面之規格分別為每小時 10 平方公尺與每小時 100 平方公尺,可作為 新式雷射除污系統成效的基本評估標準。在系統成本上,以 cleanLaser 公司之 300 瓦雷 射系統為標準搭配加上 H13 高效微粒空氣過濾器之價格約需一千五百萬台幣。系統之 年度保養費用約 60 萬台幣,系統之泵浦二極體壽命約一萬小時而後輸出功率開始遞減, 更換成本約 300 萬台幣可為評估操作成本之參考。

表 1.1.68 為文獻[39]所列對多種主要核電廠除污技術的整理比較。化學除污、電解 研磨除污、噴砂除污等方法雖除污效果佳,但會產生二次廢棄物增加處理成本。超音波 除污、水噴流除污雖廢棄物較少,但除污效果有限,且有產生噪音的可能。過往雷射系 統尚未成熟前成效較差,且不適用於複雜的物體表面,但隨著高功率雷射技術的進步已 使除污成效提升,除了可應於核電廠除污外,也有潛力可對環境污染進行除污。

| 除污方法 | 方法摘要 | 優點 | 缺點 |
|--------|--------------------------------|---|--------------------------------------|
| 化學除污 | 利用酸性溶劑去除 污染物 | 除污效果佳、可適應各 種複雜的形狀 | 需量成本處理廢液、不 適用於核電廠外環境小 範圍熱點除污 |
| 電解研磨除污 | 利用機械式研磨機 削減 | 對於燃燒或摩擦產生的 污漬效果佳 | 裝置規模大、 會產生廢液 |
| 超音波除污 | 利用超音波震動剝 離污染物 | 可用於形狀複雜、狹窄 部位、孔洞 可遠端操作 | 不適用於頑固的附著 物、對形狀複雜物的除 污效果不佳、噪音大 |
| 水噴流除污 | 利用超高壓水柱剝 離污染物 | 二次污染物少、 可用於熱點除污 | 不適用於頑固的附著 物、對形狀複雜物的除 污效果不佳、噪音大 |
| 濕式噴砂除污 | 噴射各式砂礫達到 | 除污效果佳、 可用於熱點除污 | 需處理廢液以及噴砂產 生的二次污染物 |
| 乾式噴砂除污 | 削减與剝離污染物 | 除污效果佳、 可用於熱點除污 | 需處理廢液以及噴砂產 生的二次污染物 |
| 雷射除污 | 利用高功率雷射瞬 間使物體表面昇 華,去除污染物 | 除污效果佳、 能應對不同除污度、二 次污染量少、能夠遠端 操作、可用於熱點除 污、可大面積除污 | 早期雷射除污成效較 差、不適用於複雜的形 狀結構 |

表 1.1.68 現有主要應用於核電廠除污技術之比較[39]

參考文獻

- 1. US Environmental Protection Agency, "Technology Reference Guide for Radiologically Contaminated Surface," EPA-402-R-06-003, Washington, DC (2006).
- M. K. A. A. Razaba, A. M. Noorb, M. S. Jaafarc, N. H. Abdullahb, F. M. Suhaimid, M. Mohamedb, N. Adame, N. A. A. N. Yusuf, "A review of incorporating Nd:YAG laser cleaning principal in automotive industry," J. Radiat. Res. Appl. Sci. vol.11, p. 393 (2018).
- 3. X. Li, H. Wang, W. Yu, L. Wang, D. Wang, H. Cheng, L. Wang, "Laser paint stripping strategy in engineering application: A systematic review," Optik. vol. 241, p.167036 (2021).
- W. Steen and J. Mazumder , "Laser Material Processing,"4th ed. Springer (2010), ch. 1, 2, 5 and 10.
- 5. P. Kinnunen. "ANTIOXI Decontamination techniques for activity removal in nuclear environments," vol. 3, pp. 5-33, VTT-R-00299-08 (2008).
- 6. B. E. A. Saleh and M. C. Teich, "Fundamentals of photonics,"2nd ed. Wiley-Interscience (2007), ch. 15
- 7. D. Bäuerle," Laser processing and chemistry, "3rd ed. Springer (2000), ch. 6, 9 and 11.
- V. P. Veiko, T. Ju. Mutin, V. N. Smirnov, E. A. Shakhno, S. A. Batishche, "Laser cleaning of metal surfaces: physical processes and applications," Proc. SPIE vol. 6985, p. 69850D-1 (2008).
- 9. R. L. Demmer and R. L. Ferguson," Testing and Evaluation of Light Ablation Decontamination, "INEL-94/0134, Idaho National Engineering Laboratory (1994).
- 10. T. Hirabayashi, Y. Kameo, M. Myodo, "Application of a laser to decontamination and decommissioning of nuclear facilities at JAERI," Proc. SPIE vol. 3887, p. 94 (2000).
- L. Carvalho, W. Pacquentin, M. Tabarant, J. Lambert, A.Semerok, H. Maskrot, "Development of laser cleaning for metallic equipment," Proceedings of the 2018 26th International Conference on Nuclear Engineering, London, England, July 22–26 (2018).
- 12. L. Carvalho, W. Pacquentin, M. Tabarant, J. Lambert, A.Semerok, H. Maskrot, "Metal decontamination by high repetition rate nanosecond fiber laser: Application to oxidized and Eu-contaminated stainless steel," Appl. Surf. Sci. vol.526, 146654 (2020).
- J. K. Moon, B. Baigalmaa, H. J. Won, K. W. Lee, "Decontamination Characteristics of 304 Stainless Steel Surfaces by a Q-switched Nd:YAG Laser at 532 nm," J. of the Korean Radioactive Waste Society. vol.8(3), p.181-188 (2010).
- H. J. Won, B. Baigalmaa, J. K. Moon, C. H. Jung, K. W. Lee, "A comparative study on the laser removal of Cs⁺ ion from type 304 stainless steel," Korean J. Chem. Eng. vol.27(6), p.1780-1785 (2010).
- W. Zhao, J. Cao, S. Wang, X. Chen, Y. Zhang, "A laser decontamination technology for radioactive contaminated metals," Proceedings of the 2020 International Conference on Nuclear Engineering, Online (2020).

- S. H. Jung, H. J. Won, B. S. Choi, J. K. Moon, C. H. Jung, K. W. Lee, "Laser removal of contaminants from aluminum surface using Q-switched Nd:YAG radiation at 1064, 532 and 355nm," Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Taebaek (2011).
- G. Greifzu, T. Kahl, M. Herrmann, W. Lippmann, A. Hurtado, "Laser-based decontamination of metal surfaces," Opt Laser Technol, vol.117, p.293-298 (2019).
- Md. Shamsujjoha, Sean R. Agnew, Mike A. Melia, James R. Brooks, Terry J. Tyler, James M. Fitz-Gerald, "Effects of laser ablation coating removal (LACR) on a steel substrate:Part 1: Surface profile, microstructure, hardness, and adhesion, "Surf. Coat. Technol., vol.281, p.193-205 (2015).
- H. Daido, T. Yamada, H. Furukawa, C. Ito, M. Miyabe, T. Shibata, S. Hasegawa, "Generation of particles and fragments by quasicontinuous wave fiber laser irradiation of stainless steel, alumina, and concrete materials," J Laser Appl, vol.33, 012001 (2021).
- C. H. Jung, H. S. Park, H. J. Won, J. K. Moon, B.S. Choi, W. K. Choi, "Size distribution and filtration property of particles generated from laser ablation decontamination process," Environ. Prog. Sustain. Energy, vol.32(3), p.649-654 (2013).
- The Graduate School for the Creation of New Photonics Industries, TOYOKOH Inc., CHUBU Electric Power, レーザー除染条件の明確化と粉塵飛散防止機構の研究, 静岡県防災・原子力学術会議・第9回原子力経済性等検証専門部会・平成26年度第 4回原子力分科会合同会議 (2015).
- 22. C. Song and W. Cui, "Review of Underwater Ship Hull Cleaning Technologies," J. Mar. Sci. vol. 19, p. 415 (2020).
- V. V. Kostenko1, A. Yu. Bykanova1, A. Yu. Tolstonogov, "Underwater Robotics Complex for Inspection and Laser Cleaning of Ships from Biofouling," IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci. vol. 272, p.022103 (2019).
- 24. G. X. Chen, T. J. Kwee, N. R. Lei, K. P. Tan, Y. S. Choo, M. H. Hong, "Underwater laser cleaning for marine and offshore applications," ICALEO vol. 2010, p.456 (2010).
- A. Anthofer, W. Lippmann, A. Hurtado, "A. Laser decontamination of epoxy painted concrete surfaces in nuclear plants," Optics & laser technology, vol. 57, p. 119-128 (2014).
- P. Hilton, Laser Removal of Contaminated Concrete in the Nuclear Sector. (https://www.twi-global.com/technical-knowledge/published-papers/fibre-lasers-forsurface-removal-of-contaimated-concrete-in-the-nuclear-sector)
- B. Peach, M. Petkovski, J. Blackburn, D. L. Engelberg, "An experimental investigation of laser scabbling of concrete," Construction and Building Materials, vol 89, p.76-89 (2015).
- 28. B Peach, M. Petkovski, J. Blackburn, D.L. Engelberg, "Laser scabbling of mortars,

"Construction and Building Materials, vol 124, p.37-44 (2016).

- 29. B.Peach, M. Petkovski, J. Blackburn, D.L. Engelberg, "The effect of concrete composition on laser scabbling,"Construction and Building Materials, vol 111, p.461-473 (2016).
- 30. N.P. Long, H. Daido, T. Yamda, A. Nishimura, N. Hasegawa, T. Kawachi, "Experimental characterization of concrete removal by high-power quasicontinuous wave fiber laser irradiation," Journal of Laser Applications, vol.29(4), p.041501 (2017).
- T. KAHL, G. Greifzu, M. Herrmann, W. Lippmann, A. Hurtado, "Particle Release During Laser Decontamination of Concrete Surfaces," In International Conference on Nuclear Engineering (Vol. 51531, p. V009T16A036), American Society of Mechanical Engineers (2018).
- B. Peach, M. Petkovski, J. Blackburn, D. L. Engelberg, "The effect of ageing and drying on laser scabbling of concrete," Construction and Building Materials, vol.188, p.1035-1044 (2018).
- 33. M. Savina, Z. Xu, Y. Wang, C. Reed, M. Pellin, "Efficiency of concrete removal with a pulsed Nd: YAG laser," Journal of Laser Applications, vol.12(5), p.200-204 (2000).
- 34. A. Leontyev, "Laser decontamination and cleaning of metal surfaces: modelling and experimental studies," PhD Thesis, Université Paris Sud-Paris XI, (2011).
- 35. Herman Cember, Thomas E. Johnson, "Introduction to Health Physics," 4th ed, McGraw-Hill Education / Medical (2008), ch14
- Tokyo Electric Power Company Holdings, タンク解体での作業員の被ばく線量を約3割低減「レーザー除染工法」で廃炉作業がより安全に,東京電力ホールディングス東京電力報。(https://www.tepco.co.jp/toudenhou/hd/1518625_9039.html)
- Tokyo Electric Power Company Holdings, 福島第一原子力発電所における新技術 「レーザー除染」によるフランジタンク解体時のダスト飛散抑制対策について, (2019).
- E. J. Minehara, A New Laser Decontamination Device, Laser Review, vol.40, p.165-170 (2012).
- 39. E.J. Menehara, "A New laser cleaner development for decontamination of the nuclear power plants and other related facilities," JRANDEC, vol.45, p.10-18 (2012).
- E.J. Menehara, K. Tamuara, "Laser cleaning trials for the heavily radioisotopecontaminated stainless-steel samples in the primary cooling loop of the nuclear reactor," JRANDEC, vol.48, p.47-55 (2013).
- 41. S. Toyama, E.J. Menehara, "Development of technologies of cutting and decontamination employing high power fiber laser," JRANDEC, vol.56, p.55-65 (2017).
- 42. E.J. Menehara, "Launch of venture for laser decontamination and laser decommissioning," Electrical Review, vol.103, p.76-81 (2018).
- 43. CHUBU Electric Power, レーザーを用いた放射能除染技術の開発, 中部電力テク ノフェア 2020 の展示内容

(https://www.chuden.co.jp/seicho_kaihatsu/kaihatsu/techno/techno_webtenzikai2020/we b_safety_03.html)

- 44. TOYOKOH Inc., CoolLaser について,株式会社トヨコーCoolLaser。 (https://www.toyokoh.com/coollaser/)
- 45. CHUBU Electric Power, レーザーを用いた放射能除染技術, 中部電力テクノフェ ア 2020 (2020).
- 46. STANMORE , B.R: The formation of dioxins in combustion systems . In: Combustion and Flame 136 (2004), Nr. 3, S. 398 427
- 47. A. ANTHOFER, W. LIPPMANN, A. HURTADO, "Development and testing of a laserbased decontamination system," Optics & Laser Technology, vol.48: p.589-598 (2013).
- A. Anthofer, P. Kögler, C. Friedrich, W. Lippmann, A. Hurtado, "Laser decontamination and decomposition of PCB-containing paint," Optics & Laser Technology, vol.87, p.31-42 (2017).
- 49. CEA Monographs, "Clean-up & Dismantling of Nuclear Facilities," p.93 (2018).
- 50. M. Savina, Z. Xu, Y. Wang, M. Pellin, K. Leong, "Pulsed laser ablation of cement and concrete," Journal of Laser Applications, vol.11.6: p.284-287 (1999).
- 51. Y.-C. Lin, Y.-Y. Lin, Y.-H. Huang, A.-C. Chiang, "A compact and portable laser radioactive decontamination system using passive Q-switched fiber laser and polygon scanner," Appl. Radiat. Isot. vol. 153, p. 108835 (2019).

二、評析除役技術之典型除污工作項目(封閉式系統與開放式系統)所採取之 除污技術和廢棄物管理之考量,研析各國除役核電廠之相關應用實例

(一) 前言[1]

隨著全世界的核電廠除役需求日漸增加,目前已經開發出數種除污技術來支援核電廠的維護作業,並已成功地應用於除役階段,其中有些是針對除役目的所開發出的特定除污技術,在選擇適合的除污技術時,必須根據個廠特定條件進行分析,考量的重點包括:污染位置、材料、性質、曝露劑量以及廢棄物處理等因素。本子項計畫係針對污染系統或組件,在封閉系統(closed system)與開放系統(open system)的典型除污工作項目, 蒐集研讀其在除役技術中所採取之除污技術,以及相關的廢棄物處理考量議題,且持續 蒐集國外核電廠除役及除污的最新案例與進度,以提出相應管制建議。

(二) 執行方法及研究步驟[1]

根據核一廠除役計畫[2]所述,該電廠受污染或可能受污染之系統主要為金屬材質, 其表面最上層通常是一些結構較鬆散之沈積物或污染物,接著由上往下,分別有外層氧 化層、內層富鉻氧化層、擴散層及金屬底材,故必須移除受污染的表層氧化物,再移除 材料表面層下方之污染物質,以降低工作人員於進行除役拆除作業時之輻射曝露,為達 到除役所需之除污因子(Decontamination Factor, DF)要求,核一廠目前係規劃採用化學除 污方式,進行封閉系統之除污。

所謂封閉系統(closed system),係針對管路或管線;而開放系統(open system)則指水 池或桶槽等,根據國際原子能總署(IAEA, International Atomic Energy Agency)指出[3], 針對金屬構造在不同階段進行除污,各具有不同的目標,且建議使用的除污方式也不同, 其概念簡述如下:

(1) 金屬構造拆除前的除污,主要目標為降低人員的輻射劑量曝露

- 封閉系統:建議採用化學或機械除污方式
- 開放系統:建議採用水力噴射(hydro jet)、噴射(blast)或可剝塗層(strippable coating)等方式
- (2) 金屬構造拆除後的除污,主要目標為減少放射性廢棄物或回收再利用
 - 無論封閉或開放系統:建議採用化學浸泡(chemical immersion)、電化學 (Electrochemical)、噴射(blast)、超音波(Ultrasonic wave)或凝膠(gel)等方式

本子項計畫於 108 年度[5]及 109 年度[6]分別針對國際核電廠除役採用的化學與機 械除污技術,從其技術的基本應用原理、優缺點與策略考量,進行全面性的介紹,並且 蒐集國際核電廠於除役階段的除污技術實際應用案例。本年度工作項目之研究流程及執 行方法如圖 1.2.1 所示。針對前述 IAEA 所分類的典型除污工作項目(closed system & open system),所採取之除污技術與廢棄物管理方面的考量,蒐集相關資料進行研讀及彙整; 放射性廢棄物是核能運轉無可避免的產物,電廠除役亦要面對其安全管理的問題,需要 針對除役階段所產生的廢棄物數量進行減容,一般會使用表面除污、壓實(compaction)、 切割、特殊包裝、焚化(incineration)及玻璃固化(vitrification)等技術來減少容積與污染。 除此之外,國內核一廠已正式進入除役階段,核二廠除役計畫亦已完成審查,管制機關 勢必將面臨組件拆除前、後的相關除污議題,本子項將蒐集相關資訊及國際案例,彙整 相關資料呈現於本期末報告,以利管制機關掌握國際核電廠除役案例及相關除役關鍵技 術與實務經驗,亦可強化對於除役作業之安全審查與管制能量。



圖 1.2.1 子項計畫 1-2 研究流程及執行方法

(三) 典型除污工作項目(封閉式系統與開放式系統)所採取之除污技術

除污主要係藉由[3]洗滌、加熱、化學或電化學作用、機械作用等方式,將污染物自 表面移除,有時可能涉及移除材料深處的放射性(主要是針對混凝土),其最主要有以下 3個目的:

- (1) 移除組件上的污染物,以降低拆除時的劑量等級
- (2) 盡可能減少後續拆除過程中污染物擴散的可能性

- (3) 將組件的污染程度降低到以下水平,以便:
 - 可用較低的類別處理(成本較低)
 - 在傳統業界中可回收或再利用(材料淨化)

目前全球已經開發了好幾種除污技術來支援核電廠的維護作業,並已成功地應用於 除役階段,且隨著各國除役工作日漸增加,亦有針對除役目的所開發出的特定技術,然 而,國外相關的除役資料中均顯示,沒有任何單一除污技術能解決所有的問題,技術選 用時,必須考量電廠類型(發電用電廠、燃料回收設施、研究用電廠)、涉及的同位素種 類、所關注的組件與零件的輻射等級、要拆除的設備/零件(例如混凝土與金屬),以及放 射性同位素與污染層的物理/化學特性。表 1.2.1 分別列出 IAEA [3]與另一份技術報告 [4]所列舉的除污技術選取詳細考量項目,在選擇適合的除污技術時,必須根據廠址的特 定條件進行細部分析。

| 資料來源: "Decommissioning of Nuclear | 資料來源: Dismantling Techniques, | | |
|---|---|--|--|
| Facilities Decontamination Technologies," | Decontamination Techniques, Dissemination | | |
| IAEA, Oct. 2006 [3] | of Best Practice, Experience and Know-how | | |
| | Final Report, June 2009[4] | | |
| • 電廠及其程序的類型 | • 污染的位置:封閉式流體系統的內、 | | |
| • 電廠的運轉歷程 | 外表面 | | |
| • 組件類型:管路、桶槽 | • 材料:鋼材、混凝土等 | | |
| • 材質種類:鋼、鋯、混凝土 | • 運轉歷史(以確定污染狀況) | | |
| • 表面型態: 粗糙、多孔、具塗料 | • 污染性質:氧化物、污垢、污泥等 | | |
| 污染種類:氧化物、鏽垢、污泥 | • 曾使用過的化學除污技術的有效性 | | |
| • 污染物的成份(活性產物、錒系元素等 | • 污染物的分佈:表面、裂縫、散裝材 | | |
| 及相關的放射性核種) | 料中的均匀分佈 | | |
| • 是否容易接近内部或外部污染的表 | • 對人類健康與環境的曝露 | | |
| 面及電廠相關區域 | • 安全、環境與社會議題 | | |
| • 要求的除污因子 | • 降低曝露劑量的規定(例如:回收與處 | | |
| • 組件除污後的存放地點 | 置) | | |
| • 除污所需時間 | • 經由除污及處理所產生的二次廢棄 | | |
| • 二次廢棄物的處理及調節能力 | 物的數量及類型 | | |
| | • 除污材料的最終放置 | | |
| | • 時間與費用 | | |

表 1.2.1 除污技術選取細部考量因素

3.1 封閉式系統與開放式系統定義[3]

所謂封閉系統(closed system),係針對管路或管線;而開放系統(open system)則指水 池或桶槽等,根據國際原子能機構(IAEA, International Atomic Energy Agency)指出[3], 針對金屬構造在不同階段進行除污,各具有不同的目標,且建議使用的除污方式也不同, 因應除役計畫預期要達到的目標,可能會調整除污作業進行的先後順序,其概念簡述如 下:

- (1) 金屬構造拆除前的除污,主要目標為(如圖 1.2.2 所示):
 - 降低處理組件週邊的劑量率(放射性防護目的)
 - 為了減少後續組件拆除期間的污染擴散風險(安全目的)
 對於不同系統採取的方式建議如下:
 - 封閉系統:建議採用化學或機械除污方式
 - 開放系統:建議採用水力噴射(hydro jet)、噴射(blast)或可剝塗層(strippable coating)等方式
- (2) 金屬構造拆除後的除污,是希望能減少放射性廢棄物或回收再利用,主要目標為 (如圖 1.2.3 所示):
 - 改變組件的廢棄物類別,以便處置(廢棄物類別及成本目的)
 - 讓材料最終能重複使用或回收(自由外釋目的)
 - 减少後續處理廢棄物時的劑量率
 - 無論封閉或開放系統:建議採用化學浸泡(chemical immersion)、電化學 (electrochemical)、噴射(blast)、超音波(ultrasonic wave)或凝膠(gel)方式



圖 1.2.2 拆除前(金屬結構)的除污



圖 1.2.3 拆除後(金屬結構)的除污

核電廠內多數要進行除污的組件類型為管路、桶槽、水池。其中,全系統及封閉式 系統的除污(full system and closed system decontamination, FSD)的目標[3],即是為了降低 拆除期間的劑量率及避免污染擴散,其除污因子普遍介於 5~40,主要是應用在停機後 的反應器一次側管路(反應器壓力槽、蒸汽產生器及輔助管路)直接除污,以及封閉式迴 路內的組件除污,並針對(主要)管路內部或所關注迴路,移除 5~10µm 的鏽垢層。進行 全系統除污時[7],會使用化學溶液對管道與系統組件進行除污,以減少操作人員的劑量 攝入。而拆除後對開放式系統(open system)進行除污,則是為了減少二次廢棄物,會利 用機械、各種化學或電化學方法,針對設備、組件及結構進行除污,在降低放射性活度 的同時,達到具成本效益的處置或解除管制。

在處理這些二次廢棄物[3]時,必須確認是否具備處理除污後產生的化學溶劑、氣溶 膠、殘渣等二次廢棄物的設施,且最終產物(例如包裝、除污的廢水等)必須符合最終處 置要求,特別值得注意的是,由於除污技術中,會將最終廢棄物集中,而成為重要的輻 射來源。

3.2 金屬除污技術分類

綜覽目前的金屬除污技術[3],主要分成化學除污與物理除污,在廣泛的化學除污技術方面,可用於封閉式系統的包括:APCE、TURCO、CORD、SODP、EMMA、LOMI、 DFD、泡沫或各種試劑等;對於拆除下來的開放性組件則可用:MEDOC、Cerium/nitric acid、CANDEREM、DECOHA、DFDX、HNO3、HCl、HF等;電化學技術則不論開放 式或封閉式系統均可使用,常見為搭配磷酸(phosphoric acid)、硝酸(nitric acid)、草酸 (oxalic acid)或檸檬酸(citric acid)、硫酸(sulfuric acid)等。而物理除污技術則較適用於開放式系統,像是濕式或乾式噴砂(wet or dry abrasives)、超音波淨化(ultrasonic cleaning)、高壓水(high pressure water)、CO2乾冰噴射(CO2 ice blasting)等。

一般常用的化學技術有及其開發單位如下:

- 以高錳酸(AP)為基底的 CORD 化學氧化還原除污- Siemens
- LOMI 低氧化態金屬離子(AP) England
- 以鹼性溶液中高錳酸鹽為基底的 APCE- Russia
- 以硝酸或檸檬酸為基底的 NITROX 或 CITROX- Westinghouse
- 以氟硼酸為基底的 DFD(除役用除污)- EPRI

3.2.1 封閉式系統與開放式系統的除污技術彙整

表 1.2.2 將金屬除污關注的技術彙總列表[4],這些技術分為化學、電化學、物理技術,及結合機械與化學的技術。

| 入国队汇 | 封閉式 | 開放式 | 人国队运 | 封閉式 | 開放式 |
|------------------------|------------|------------|-------------|------------|------------|
| 金圖际為 | 系統 | 系統 | 金屬係乃 | 系統 | 系統 |
| 化學技術 | | | 物理式技術 | | |
| ● 氧化技術 | | | ● 超音波淨化 | | \bigcirc |
| - ODP/SODP | \bigcirc | | ● 高壓水 | | \bigcirc |
| - 鈰/硫酸 | | \bigcirc | • CO2乾冰噴砂 | | \bigcirc |
| - 鈰/硝酸 | | \bigcirc | ● 冰水 | | \bigcirc |
| ● 氧化還原技術 | | | ● 氟氯烷替代品 | | \bigcirc |
| - APCE/NPOX | \bigcirc | \bigcirc | ● 溼式磨料 | \bigcirc | \bigcirc |
| - TURCO | \bigcirc | \bigcirc | ● 乾式磨料 | | \bigcirc |
| - CORD | \bigcirc | \bigcirc | ● 研磨/刨 | | \bigcirc |
| - CANDEREM CANDECON | | \bigcirc | | | |
| - CONAP | | \bigcirc | 結合機械/化學技術 | | |
| - AP/NP+LOMI(PWR) | \bigcirc | | ● 漿糊+物理式清潔 | | \bigcirc |
| - EMMA | \bigcirc | | ● 泡沫/凝膠/物理式 | | \bigcirc |
| | | | 清潔 | | |
| • LOMI(BWR) | \bigcirc | | ● 真空淨化(乾式/溼 | | \bigcirc |
| | | | 式) | | |
| ● 磷酸類技術 | | \bigcirc | | | |
| 泡沫 | \bigcirc | | | | |
| ● 不同試劑 | | | | | |
| - 硝酸(HNO3) | | \bigcirc | | | |
| - 硝酸(HNO3)+氟化氫(HF) | \bigcirc | \bigcirc | | | |

表 1.2.2 除污技術應用於金屬組件的系統分類[4]

| 人區以二 | 封閉式 | 開放式 | 金屬除污 | 封閉式 | 開放式 |
|--------------------------|------------|------------|------|-----|-----|
| 金燭除75 | 系統 | 系統 | | 系統 | 系統 |
| - 硝酸(HNO3)+氟化鈉(NaF) | \bigcirc | \bigcirc | | | |
| - 鹽酸(HCl) | \bigcirc | \bigcirc | | | |
| - DECOHA | | \bigcirc | | | |
| 電化學技術 | | | | | |
| ● 磷酸(Phosphoric acid) | | \bigcirc | | | |
| ● 硝酸(Nitric acid) | | \bigcirc | | | |
| ● 硝酸(Nitric acid)-電鍍 | | \bigcirc | | | |
| • 硫酸鈉 (sodium sulphate)- | | \bigcirc | | | |
| ELDECON 技術 | | | | | |
| • 草酸(Oxalic acid) | | \bigcirc | | | |
| ● 檸檬酸(Citric acid) | | 0 | | | |
| • 硫酸(Sulphuric acid) | | 0 | | | |
| ● 其它電解質 | | 0 | | | |

整個系統或封閉式系統除污的最重要目標在於:

- 降低所關注系統周圍的劑量率;
- 盡量減少與主要作業有關的輻射劑量;
- 以最少的二次廢棄物情況下,將活度集中移除;
- 使用的裝置及其迴路,只作最小程度的調整。

目前已使用或已知的全系統除污技術,依其主要特徵彙整如表 1.2.3 所示。

| 技術名稱 | 一般介紹 | | | | | |
|----------|---|--|--|--|--|--|
| LOMI | LOMI 是低氧化態金屬離子的字母縮寫,係由英國以前的中央發電 | | | | | |
| | 委員會(Central Electricity Generating Board, CEGB)於 1970 年末至 | | | | | |
| | 1980 年初所開發。該方法加入釩(II)作為還原劑,並結合吡啶甲酸 | | | | | |
| | 作為錯合劑或螯合劑。 LOMI 是移除沈積物的絕佳技術, 在反應器 | | | | | |
| | 運轉期間已採用鋅與氫水化學法(HWC),這也是美國電力研究所 | | | | | |
| | (Electrical Power Research Institute, EPRI)及奇異公司(General | | | | | |
| | Electric, GE)核准用於 GE 設計的反應器系統,包括反應器壓力槽及 | | | | | |
| | 燃料的唯一技術。 | | | | | |
| LOMI-2 | 與前述針對 LOMI 介紹的特性類似,但已調整為再生應用模式,該 | | | | | |
| | 方法係由 EPRI 在 1990 年代後期開發, 可減少除污所產生的二次廢 | | | | | |
| | 棄物。 | | | | | |
| CANDEREM | 加拿大原子能公司(Atomic Energy of Canada, AECL)在 1980 年代中 | | | | | |
| | 期,開發了一種由檸檬酸與 EDTA 組成的再生技術。PN services 公 | | | | | |

表 1.2.3 適用於封閉式系統的除污技術

| 技術名稱 | 一般介紹 |
|----------|---|
| | 司曾於 1990 年代中期,利用 CANDEREM 技術進行 Indiana Point |
| | #2 機的全系統化學除污, 西屋公司目前已核准用於該公司 PWR 在 |
| | 燃料就位時的全系統除污。 |
| CITROX | 於 1980 年代開發的一種稀釋再生技術, 可應用於 PWR 及 BWR 反 |
| | 應器管路與系統組件,CITROX 技術由檸檬酸與草酸組成。 |
| NITROX | 這是 PN services 公司在 1990 年代中期開發的專利化學物質,主要 |
| | 用來進行反應器冷卻水泵(Reactor Coolant Pumps, RCPs)的化學除 |
| | 污,以含有硝酸(nitric acid)、草酸(oxalic acid)及高錳酸鉀(potassium |
| | permanganate)的循環技術開發出 CITROX 技術,且能大幅地減少二 |
| | 次廢棄物,NITROX 技術經過西屋公司的專業認證,可用於西屋 |
| | RCP 的化學除污。 |
| NITROX-E | 與前述針對 NITROX 介紹的特性類似,但在程序中略經調整來破壞 |
| | 螯合物質,自 1990 年代後期問世以來,NITROX-E 化學已非常成 |
| | 功地應用於反應器冷卻水泵及受污染的系統。 |
| REMCON | 是 PN services 公司客製化的化學反應系列。 |
| AP 及 NP | 當放射性沈積物中含有較多的鉻時,鹼性高錳酸鹽(Alkaline |
| | Permanganate, AP)及硝酸高錳酸鹽(Nitric acid Permanganate, NP)會 |
| | 被氧化。這些方法是在 1980 年代初期開發的,適用於沈積物中存 |
| | 在鉻,使其受到簡單的酸性溶解而變得不溶時使用,化學除污前的 |
| | 殘留測試或技術中採集的樣品,可以決定何時需要使用這些物質。 |
| DFD | EPRI 開發了除役用除污(Decontamination for Decommissioning, |
| | DFD)技術,主要用於反應器系統與組件進行無條件外釋的除污。該 |
| | 技術於 1990 年代後期開發, PN services 公司曾應用在密西根州的 |
| | Big Rock Point 及 Maine Yankee 的全系統除污。 |
| CORD | 西門子 KWU 開發的化學氧化還原(Chemical Oxidizing Reducing |
| | Decontamination, CORD)技術, 是一種三步驟的化學技術, 必須進行 |
| | 數次循環,每個循環包括以下步驟:使用高錳酸的氧化步驟;及使 |
| | 用草酸的除污步驟;以及添加高錳酸或過氧化氫的淨化步驟 |
| EMMAC | Framatome-ANP 與其附屬公司 STMI 聯合採用 EdF(法國電力公司) |
| | 所開發並獲得專利的稀釋化學技術(稱為 EMMAC), 作為 SG 更換 |
| | 後的除污技術。 |
| | 該技術亦用於化學與體積控制系統熱交換器(chemical and volume |
| | control system heat exchanger)的除污。如今,該技術已用在法國 |
| | Maubeuge 的 SOMANU(Framatome-ANP 子公司)熱修復及維護工 |
| | 場。該設施由四個長 1.3m ³ 的桶槽及兩個長 4.2m 的平行六面體桶 |
| | 槽所組成,用來對設備與組件進行拆卸/組裝及機械性操作的除污。 |
| | 每年大約有 10 台一次側的冷卻水泵要維修,且最初的輻射強度為 |

| 技術名稱 | 一般介紹 | | |
|------|---------------------------------------|--|--|
| | 100 GBq,運用 EMMAC 技術進行除污,其除污因子最高可達 50。 | | |

而應用於子系統、設備及零件拆卸後的除污技術,主要目的是讓廢棄物能被分類(意 即將廢棄物變為較低階的類別或劑量,讓處置費用更便宜),甚至可能達到無條件外釋, 以便大幅減少所產生的金屬廢棄物數量。

這些技術中,絕大多數的操作都是以非連續性的形式,將個別零件浸在桶槽中,或 分批進行。表 1.2.2 係列出目前針對此目的最常使用的技術,後續章節會對其中一些進 行更詳細的說明,主要是根據其工作原理(即化學,電化學、機械等)進行分類。

3.2.2 選擇適當的全系統除污指引[3]

- 根據除污因子設定目標
- 定義材料的種類:酸性溶劑不適用於碳鋼
- 分析二次廢棄物的數量:偏好使用再生技術(DFD, CORD, LOMI 等)
- 留意二次廢棄物的成份:避免使用像 EDTA(錯合劑)這類有機元素
- 確定氧化層的類型:針對鏽垢層中的高鉻含量,應選用氧化技術
- 確知處理及調節二次廢棄物的能力(蒸發、IEX、沈澱、過濾等)

這些用於除污的技術,主要是要降低劑量率,其通常會分成好幾個步驟來進行,用 於一次側迴路除污的 CORD 技術,也會用來對拆卸零件進行除污測試,當將這些技術 用於桶槽內的切割零件時,可以結合化學與超音波來提高其效率。

反應器運轉階段,通常因為考慮到設備必須重複使用,這些技術特別適合用來進行 除污,因為其侵蝕性較弱,不會影響複雜系統的完整性(如墊圈、密封、閥或重要零件)。

但若是為了拆除組件,而在桶槽內對已切割的零件進行除污,使其可能作為非放射 性廢棄物外釋,則建議採用更具侵蝕性的方法來溶解基底金屬,以確保其最終污染劑量 在預期內,這類多步驟除污技術的額外缺點是,其通常要連續進行數次循環,且需要串 聯更多的除污桶槽,這些零件會先從一個桶槽移到另一個桶槽,然後開始新的循環,直 到輻射殘留劑量達到預估值。

3.2.2.1 DFD 技術[6、7]

DFD 是除役用除污(Decontamination For Decommissioning)的代名詞,係由美國電力 研究所(The Electric Power Research Institute, EPRI)於 1996 年開發,為利用氟硼酸 (fluoroboric acid)作為活性成份、高錳酸鉀及草酸組成的循環技術。該技術利用腐蝕金屬 表面來移除其面上的放射性。理論上,這種對基材金屬的一般腐蝕,會讓沈積在基材金 屬內凹坑或縫隙中的任何放射性核種被釋出,組件在經過數次 DFD(8~10)循環後,其輻 射強度會降低,且可能可以自由外釋。

其利用氟硼酸溶解氧化薄膜與基材的化學式如下:

 $Fe_2O_3 + 6HBF_4 \rightarrow 2Fe(BF_4)_3 + 3H_2O$

$$2Fe(BF_4)_3 + 6H^+_{-R} \rightarrow 6HBF_4 + 2Fe^{3+}_{-R}$$

國外核電廠應用該技術產生的二次廢棄物數量記錄,如表 1.2.4 所示。

| 電廠名稱 | 除污方法 | 離子交換樹脂 (m ³) |
|-----------------------|------------|--------------------------|
| Big Rock Point | DFD | 15.2 |
| Connecticut Yankee | CORD-UV | 13.2 |
| Maine Yankee | DFD | 15.1 |
| Stade | HP/CORD-UV | 15.3 |
| Jose Cabrera (Zorita) | NITROX/DFD | 13.3 |

表 1.2.4 國外核電廠應用 FSD 技術產生的二次廢棄物數量

3.2.2.2 CORD 技術[6、7]

由 SIEMENS(現為 Areva SA)開發的 CORD(Chemical Oxidation Reduction Decontamination)技術,是一種以高錳酸(HMnO4)為氧化劑,草酸為溶解及螯合劑的技術類別,高錳酸會將腐蝕薄膜中的保護性鉻氧化為水溶性重鉻酸根陰離子,一旦高錳酸鹽及二氧化錳被還原為錳離子,草酸會藉由以下反應,將腐蝕薄膜中的磁鐵礦分解,所有產生的廢棄物都是離子交換樹脂,使用高錳酸作為氧化劑也降低了整體的離子交換需求。

 $Cr_2O_3 + 2MnO_4^- + H_2O \rightarrow 2HCrO_4^- + 2MnO_2$ $Fe_3O_4 + 4H_2C_2O_4 \rightarrow 3FeC_2O_4 + 4H_2O + 2CO_2$

德國 Woergassen 電廠應用該技術的除污效果,如圖 1.2.5 所示。

| V 8 | 8.116.14 | () 1 : 1 4) > 2 : 1= |
|----------|----------|--|
| 除污系統 | DF | 劑量減少因子 |
| 緊急爐心冷卻系統 | 170 | 108 |
| 冷卻水循環系統 | 1296 | 30 |
| 餘熱移除系統 | 753 | 9 |
| 冷卻水淨化系統 | >100 | 7 |
| 燃料池冷卻系統 | 733 | 64 |
| | | (針對不銹鋼) |

表 1.2.5 Woergassen 電廠的 CORD 除污效果

3.2.2.3 LOMI 技術[6]

英國中央電力局(Central Electricity Generating Board)在 1980 年代初期開發了 LOMI(Low Oxidation state Metal Ion)化學除污技術,其使用了一種強還原劑(溶液中的釩 離子與吡啶-2-甲酸(picolinic acid)螯合)來攻擊氧化物基質中的鐵離子,使二價釩離子被 氧化為三價釩離子,鐵離子同時被還原為亞鐵離子。 LOMI 技術的缺點包括:(1) 釩離子在碳鋼體系中不穩定,如果除污量體中含有大量碳鋼,則應使用其它的技術、(2)必須移除大量的樹脂,因為絕大部分的樹脂負擔是來自 溶液中的釩離子、(3) 釩甲酸鹽是為每個客戶量身訂制的,儲存期限較短(6個月),故其 化學品成本遠高於其他技術。

3.3 化學技術

3.3.1 多步驟技術

形成 PWR 反應器典型鏽垢(crud)的腐蝕產物層極難溶解,其特徵是氧化鉻含量相 當高,這些技術的順序都是先採用氧化,接著是氧化物溶解以及溶解金屬錯合,這類技 術很多,但所用的試劑性質及/或試劑濃度各有不同。

如同封閉式系統的除污,這2大類技術可以列入考慮:高濃度試劑的所謂"硬"技術 及低濃度試劑的"軟"技術,使用硬技術將產生大量的二次廢棄物,軟技術可用來進行整 體或局部迴路的除污。表1.2.6列出最常使用的技術,並附加其最重要的特性。

| | CANDEREM/CANDECOM | LOMI | CORD |
|------------------|-------------------|------------------|-------------------|
| 氧化 | AP | AP | HMnO ₄ |
| | NP | NP | |
| | 95°C | 95°C | 100°C |
| 還原 | $H_2C_2O_4$ | $H_2C_2O_4$ | $H_2C_2O_4$ |
| | | HNO ₃ | 80-90°C |
| 除污 | 草酸(Oxalic acid) | LOMI 試劑 | $H_2C_2O_4$ |
| | 檸檬酸(Citric acid) | 含釩的吡啶甲酸 | |
| | 乙二胺四乙酸(EDTA) | 鉻(Vanadous | |
| | | picolinate) | |
| | | 甲酸鹽(formate) | |
| 淨化(Purification) | 離子交換樹脂 | 離子交換樹脂 | 離子交換樹脂 |

表 1.2.6 最常採用的多步驟技術

AP= 鹼性高錳酸鹽

NP= 硝酸高錳酸鉀

3.3.2 單一步驟技術

本節綜覽單一步驟應用且試劑濃度夠強的化學技術,使經過處理的組件,其殘留輻 射值低到能無條件外釋。

3.3.2.1 四價鈰(Ce4+)技術

四價鈰技術利用 Ce⁴⁺ (+1.61 V/ENH) 升高的氧化電位,以確保同時氧化鏽垢層中 存在的氧化物(三價~六價鉻及亞鐵氧化成三價鐵),及氧化並將數微米的基材金屬層浸 入溶液中,只要試劑能到達所有受污染的表面,此雙重步驟能確保組件被徹底除污。四 價鈰技術的發展包括在瑞典 Studsvik 定義的 SODP(強臭氧除污技術)、在日本 JAERI 及 JPDR 開發的 REDOX 技術,以及比利時 SCK•CEN 的 MEDOC 技術。

3.3.2.2 SODP 技術

係應用於拆除壓水式反應器除污的單一步驟除污技術,其在環境溫度下操作,以 pH 值約 0.6 的硝酸環境為基礎,使用的氧化劑是藉由添加臭氧再生的四價鈰,還原成 3 價 的鈰被 4 價的臭氧重新氧化。

該技術在瑞典用於熱交換器與蒸汽產生器的除污,並在法國 Dampierre 的蒸汽產生器進行測試,除污後的溶液處理,包括使用過氧化氫將超標的四價鈰還原三價鈰,然後在鹼性環境中沈澱出氫氧化物,由於工作溫度為 20°C,此技術的效率相對較慢,但非常適用於從電廠反應器拆除的蒸汽產生器除污,因為對於這些反應器而言,應用更高溫度的技術可能會造成一些問題。

3.3.2.3 REDOX 與 SC(硫酸鈰, Sulfuric Acid Cerium)技術

這兩種由日本開發的技術,都是基於相同的化學原理,即利用四價鈰的氧化能力及 60~80°C的除污溫度,故與 SODP 在環境溫度下的應用相比,可以加速反應過程。這 兩個技術使用藉反應還原的三價鈰電化學再生,除污溶液能不斷再生。

這些技術主要用於複雜組件的槽內除污。

除污後,將組件從除污池中取出,並在超音波池中沖洗,除污溶液會一直使用,直 到溶解的鹽濃度超過約10 kg/m³。事實上,鹽的溶解一方面降低了再生的電化學性能, 另一方面,它必須保持在溶解鹽的溶解度極限以下,此外,溶液的活性也增加。

3.3.2.4 MEDOC 技術

SCK•CEN 改進現有技術並開發出一種名為 MEDOC(含鈰氧化金屬除污, Metal Decontamination by Oxidation with Cerium)的技術。該技術的主要特色是在氣液接觸器中使用臭氧,使溶液能在除污溫度下連續再生。

該技術結合兩種既有技術的優點:在升高的溫度下工作以加快侵蝕速度,及運用簡 單的臭氧再生技術。

二次廢棄物量低,預估20m²/ton及10µm的溶解度,處理材料會產生11.5 L/ton的 瀝青廢棄物,利用回收硫酸可進一步減少這個體積,例如可藉由溶液的電滲析來實現。

與臭氧技術相比,因其存在某些缺點,故沒有選擇以電化學方式再生,包括:

- 會產生氫氣;

- 電解槽模組的維護問題;

- 電極的長期電阻。

該技術用於不銹鋼組件的槽內除污。

該裝置主要包括:

- 一個附帶籃子的除污槽,裡面裝滿了要除污的組件;

- 一個用於臭氧再生的緩衝罐與氣液接觸器; 臭氧由供應氧氣的臭氧發生器產生;

- 一個超音波沖洗槽。

其除污因子大於 10,000。

MEDOC 技術已用於分批處理切割後的污染組件,或用於大型組件(如蒸汽產生器、 調壓槽或各式桶槽等)的封閉迴路除污。

3.3.2.5 HNO3/HF 技術

亞硫酸鹽混合物通常用於不銹鋼的蝕刻,在此情況下,會在槽內使用壓力噴射器進 行粉碎,或是使用蝕刻膏,當不銹鋼被氧化層覆蓋時,腐蝕機制是由於液體滲透到氧化 層,溶解下方金屬而減少氧化物腐蝕。

通過侵蝕基材金屬,氧化物會脫落並留在溶液中,故溶液中逐漸充滿顆粒狀的不溶 性氧化物,及部分氧化物溶解與基材金屬轉化所形成的鹽。

3.3.2.6 槽浴技術或溶液粉碎(pulverization)

該技術已經通過測試,可徹底移除金屬碎片的污染。

表 1.2.7 提供其典型的操作條件。

| 计公会业 | ENEL | CEA | Belgoprocess | SCK•CEN |
|--------------------|-----------------|----------|--------------|------------|
| | (Italy) | (France) | (Belgium) | (Belgium) |
| 溫度(℃) | 40 | 25 | 40 | |
| HF M | $0.5 \sim 0.75$ | 0.5 | 2.5 | |
| HNO ₃ M | 0.4 ~ 0.8 | 2 | 4.5 | |
| 持續時間(小時) | 4 ~ 6 | 2 ~ 8 | 1 | |
| 溫度(℃) | 80 | 85 | | 60 ~ 95 |
| HF M | 0.15 ~ 0.25 | 0.05 | | 0.25 ~ 0.5 |
| HNO ₃ M | $0.4 \sim 0.8$ | 2 | | 0.5 |
| 持續時間(小時) | 5 | 1 | | 1 ~ 3 |

表 1.2.7 氟化物技術

處理後,用壓力噴射器或在超音波沖洗槽中沖洗組件。

反應速度與效率會隨著溫度、HF 濃度及反應時間而增加,該技術通常採低溫且高 濃度來粉碎大塊組件(即桶槽的內表面等),以及在高溫但低濃度下,對放入槽中的組件 進行粉碎。

即使受到嚴重污染的組件,該技術也能徹底進行除污,移除氧化層及10~20μm的 金屬厚度,能確實移除污染,鈷-60的比活度可以從100-5000 Bq/g降低到小於0.3 Bq/g, 在超音波槽內沖洗組件,可以提高該技術的整體效率,而利用過濾可除去部分未溶解的 氧化物。

處理效率會隨著溶液中鹽溶解濃度增加而逐漸降低,由於氟離子對溶解金屬的螯合 作用,會降低氟離子的侵蝕性,因此,必須在溶液中加入新的HF或更換桶槽。 氟離子溶液的處理,通常是對剩餘的游離氟化物進行中和及螯合處理。表 1.2.8 提供處理方法概述。

桶槽浸泡技術並不具有太大的優勢,其需使用特殊的建築材料(主要是塑料材料), 且在工人安全方面有重大的問題,此外,浴槽的效率下降得相當快,因而導致試劑的大 量消耗。

相反地,粉碎待除污設備壁上的薄膜則非常有效,所用試劑的量非常有限,在低溫 下使用能減少安全問題,產生的廢水量也較小。

| ENEL (Italy) | CEA (France) | Belgoprocess | SCK•CEN (Belgium) |
|----------------|---------------------------|---------------------------|-------------------|
| | | (Belgium) | |
| 中和 | 中和 | Al(NO3)3的螯合作用 | 與 Belgoprocess 的 |
| NaOH | NaOH, Ca(OH) ₂ | 中和 | 方法相同 |
| 氫氧化物 | CaCL ₂ , 鐵氰化物 | NaOH, Ca(OH) ₂ | 將溶液送至 |
| (hydroxides)沈澱 | ferrocyanide)的螯合 | 氫氧化物沈澱 | Belgoprocess 處理 |
| | 作用 | | |
| | 氫氧化物沈澱 | | |
| 過濾器及污泥的膠結 | 過濾器和污泥的膠結 | 掺入瀝青 | |
| | | | |

表 1.2.8 氟硝酸(fluoronitric)溶液的處理技術

3.3.2.7 蝕刻膏(etching paste)技術

在待處理物體的表面上塗抹蝕刻膏,幾個小時後,糊狀物變乾,可以機械方式移除, 最後再以高壓水射流沖洗完成處理。該技術主要用於外表面或局部污染的地方,其已成 功應用在實驗室規模的測試,並可用於經拆卸的設備組件除污,該技術能將設備取出, 或在池水中長時間使用後進行蝕刻-鈍化處理。

3.3.2.8 DECOHA 技術

DECOHA 是使用氟硼酸為基礎的技術。

金屬反應為: n HBF₄ + Me ⇒ Me(BF₄)n + n/2 H₂

氧化物反應為: n HBF₄ + 金屬氧化物 ⇒ Me(BF₄)n +H₂O

該技術係在低溫溶液下粉碎或浸入較高溫的桶槽,最高溫度可達約 90°C。用過的 溶液可以電化學再生,然後陽離子在陰極還原並沈積為金屬:

 $Me(n+) + n e \Rightarrow Me(0)$

HBF4 酸在陽極被重整,鈷-60 在陽極與金屬共同沈澱。

再生無法 100%消除陽離子;通常會在 98%的陽離子沈積時停止, 絕-137 不會沈積 在陰極, 而是留在溶液中。為了處理剩餘 2%的陽離子,可以採用以下幾種技術:

- 利用添加磷酸來沈澱不溶性的磷酸鹽;

- 沈澱不溶性的草酸鹽或不溶性矽酸鹽;

- 用 Ca(OH)2 中和溶液,以形成不溶性的 CaF2。

DECOHA 技術的概念,將以其應用於 Chernobyl 核電廠污染金屬組件的工業規模 等級(5 頓/天)處理來說明。該技術的步驟如下:

- 將金屬組件放置在桶槽中。

- 噴灑體積約 500 升的 10% HBF4 溶液來移除非固定活性。

- 然後在桶槽內注入 15 m³的 HBF₄,濃度為 20 %、溫度為 90°C,開始進行除污; 反應速度約為 0.2 或 1μm/h,反應持續時間為 3~18 小時。

- 排出溶液, 並用 500 升冷水沖洗組件。

- 用 15 m³的水沖洗組件;沖洗用的水利用蒸餾再生。

- 當溶解的金屬濃度達到 70g/l 時開始再生,從這一刻開始,作業是在靜止條件下 完成的;這意味著溶解金屬的濃度保持不變。

這種除污技術可用於不銹鋼(速率為 0.02~0.5 mg/cm².h)、碳鋼(速率為 0.05~1000 mg/cm².h)的除污,也可用於鋁的除污(速率為 6 mg/cm².h 或 22µm/h)。與其他技術(如鈰 或磺酸技術)相比,該技術的侵蝕性較小(速率較低)。

然而,由於侵蝕性較低,其安全問題比 HF 少,利用陰極沈澱再生,能讓 HBF4 再 回收並讓大部分陽離子沈積在陰極,推薦用在此類產品的建築材料主要是聚丙烯,在反 應技術中,釋放氫氣需要通風並稀釋氣體流出物,使氫氣與空氣混合物保持在最低爆炸 濃度的限值以下。

3.4 電化學技術

3.4.1 電解拋光(Electrolytic polishing)

電解拋光是一種陽極溶解技術,陽極是要除污的材料,陰極是不銹鋼或銅電極(有助於電極),或是除污槽本身。在除污技術中,會溶解一定數量的表面金屬,並帶走固定 在表面的污染物,這種技術目前經常用於製造業在不銹鋼組件的表面處理,以降低其粗 糙度來獲得光滑的表面,如此也能提高耐腐蝕性,並使後續能更好且容易地除污。

該技術亦可用於除污,以降低劑量率(蒸汽產生器水箱的典型案例),或對要拆卸的 組件進行分類,如果該技術是用在要重複使用的零件,表面光潔度是減少零件被重新污 染的重要參數,若是廢棄物類的組件,則表面光潔度不如除污效率及產生的二次廢棄物 量那麼重要,主要會以使用的電解液及操作條件來區分是屬於哪一類的技術。

3.4.2 磷酸技術(phosphoric acid)

使用磷酸除污的代表性參數值為:

- H₃PO4 濃度: 40~80 % 體積;

- 操作溫度:40~80°C;
- 電位差: 8~12 Vdc;
- 電流密度: 60~500 mA/cm²。

該技術可用於碳鋼及不銹鋼。

Gundremmingen 的 KRB 電廠(250 MWe 的 BWR)已進行工業規模的應用,數百噸鐵

磁體鋼(ferritic steel)已利用該技術徹底除污,必須移除 100~500µm 厚度金屬,才能確定 沒有任何污染。

該裝置包括兩個 3 m³的桶槽及一個最大 6000A 的整流器,使用的電流約為 2000A, 根據組件的幾何形狀,對應的電流密度從 100~400mA/cm²,處理時間約為 2 小時。

當溶液中的鐵濃度超過100g/l 時,草酸鐵會沈澱,並帶有部分鈷-60活性,故與溶液相比,獲得了富含鈷-60的污泥。

磷酸溶液的處理包括以下步驟:

- 添加帶鈷-60 活性的草酸來沈澱草酸亞鐵(銫-137 未沈澱);

- 利用沈澱分離殘留的磷酸;稀釋後的酸經蒸發濃縮,以便重新使用;

草酸鐵在 250°C 的高溫下被破壞變成氧化鐵,而可進行最終儲存。

處理 1 噸(5 m²/t)金屬廢棄物會產生 32 公斤的草酸鐵,最後在熱解後產生 15 公斤 的氧化鐵。

該技術對鐵磁體鋼非常有效,但對於二次污水的處理存在一定的複雜度,以避免在 處理後的廢棄物中出現草酸鹽。

從技術角度來看,對於塗漆的碳鋼,還必須考慮進行預處理以去除塗漆,這種預處 理可以是化學(NaOH)或機械方式,該技術也會釋放出氫氣;所以必須強烈稀釋氣體,以 避免爆炸風險。

3.4.3 硝酸技術(nitric acid)

在 Harwell 開發並由 AEA 商業化,用於不銹鋼除污。其開發成兩個系統:其中一 種用於切割的浸泡系統,另一種是附帶小空間,用於遠端操作的除污系統,後者特別適 用在高環境劑量率下對熱點進行除污。

推薦的除污操作條件如下:

- 在常溫下使用 1M 的 HNO3;

- 低電流密度,從 2~3 mA/cm²;

- 使用 Ti 電極來減少 H2 及 NOx 的形成。

該技術具有很強的穿透力;在深度是直徑5倍的封閉管中,除污仍然有效,電流的 分佈很簡單:將組件放入鈦籃中,2小時內可獲得10,000的除污因子,相當於在溶液中 放入5微米的厚度,AEA 宣稱處理每平方公尺會產生0.6m³的廢棄物,所選環境HNO₃ 與AEA 的廢棄物處理裝置相容。

3.4.4 在 HNO3 環境中的滾筒式陽極溶解技術

CEA 開發了一種在 HNO3 環境中的滾筒式陽極溶解技術,用於處理受鈽污染的金 屬廢棄物,散裝廢棄物被放置在一個穿孔的鈦製反應器中,在陽極進行極化並開始運轉。 不銹鋼陰極被平行放置在滾筒中,選擇硝酸是因其能與除污廢水處理及存在二氧化鈾的 情況下再處理相容。

不銹鋼件的實驗條件為:

- HNO3 濃度為 2M;

- 電流密度為 10~30 mA/cm²;

- 處理持續時間:1~3小時。

在這些條件下,侵蝕率約為16µm/h,α廢棄物可以在 3.7 MBq/kg 的限值以下進行 分類,以便能通過地表儲存。該技術也適用於未上漆的鐵磁體鋼,這時的侵蝕率非常高, 約為500µm/h,其亦適用於鋁合金,侵蝕率則高達 20µm/h。

該技術很容易用在沒有"隱藏"污染表面(管子的內側、盲孔.....)的小尺寸零件,但 將這種容量或甚至更大投入使用,會引起一些技術問題。

3.4.5 硫酸技術(sulfuric acid)

係由日本東芝公司開發,用於在日本反應器拆除後的不銹鋼結構組件除污。其特色為:

- H₂SO4 濃度為 5%;

- 溫度為 60°C;

- 電流密度為 300~1000 mA/cm²。

在處理開始階段, 侵蝕率可達 240μm/h, 當鹽溶解的濃度增加, 及因消耗 H⁺而降低 酸度時, 侵蝕率會降至 60μm/h, 且隨著溶解的離子濃度提高, 電流效率會 40%降至 20%, 酸度必須保持在足以將速率與效率保持在最佳值的一定水平。

該技術曾在比利時 BR3 反應器重度污染組件進行探索性試驗,結果顯示,侵蝕率 確實有可能達到約 50 mg/cm²這樣高的成效,為了獲得非常低的殘留污染水平,必須移 除相當大量的材料,存在殘渣中的污染物不會完全溶解,部分重要的殘渣顆粒仍然存在, 必須藉由侵蝕金屬底層才能將這些顆粒從表面移除,為了加速這種現象,最好定期改變 電極的極性。

與鈰技術相比,必須移除更多厚度,才能獲得相同的殘留污染水平,溶液的處理包 括溶液的中和及氫氧化物的沈澱,如果存在銫-137,則必須結合亞鐵氰化物及氫氧化物 沈澱來處理。

3.4.6 硫酸鈉技術(sodium sulfate)

東芝還開發一種使用硫酸鈉作為電解質及交替極化電極為基礎的技術,其被稱為以 硫酸鈉替代電解除污(AEDSS, Alternative Electrolytic Decontamination with Sodium Sulfate) 技術,在陽極電解中,金屬被氧化並溶解,但像氧化鐵這類的氧化物保持不變,位於氧 化層下方的金屬侵蝕,只有在電解液穿透薄膜時才能實現,藉由陰極電解,表面的氧化 膜被還原,三價鐵被還原為二價鐵,但金屬基材保持完整,這兩種技術的結合,意味著 定期修改電極極化,將可顯著加快整體的侵蝕速度。

該技術特別偏好用在覆蓋厚鐵氧化物層的鐵磁體鋼組件。操作條件是:

- Na₂SO4 濃度為 20 wt %;

- 電壓 20V。

溶液中的鐵,係以帶有鈷-60的氫氧化鐵形式被析出。

電流效率約為6%,相對較弱而導致大量的能源消耗,約4000 kWh/ton(200 kWh/m²

腐蝕 50µm),但相對地,依照東芝的作法,二次廢棄物數量非常低,在相同條件下,廢 棄物約只有 10 kg/ton。

3.4.7 ELDECON 技術

該技術使用硫酸鈉作為電解質,由 ABB Atom(瑞典)公司商業化,用於反應器組件 除污。其特點是:

- Na2SO4 濃度為 5 wt %;

- 電流密度從 100~600 mA/cm²;

- pH = 7;

- 電位差最大為24V;

- 處理時間:從15分鐘到1小時,主要取決於零件;在400mA/cm²的電流密度下, 侵蝕率約為60μm/h。

在除污技術中,溶解的鐵以氫氧化物形式沈澱,並帶有鈷-60活性。

3.5 其它化學技術

3.5.1 泡沫除污

清潔劑使用泡沫(像是由清潔劑與濕潤劑產生的泡沫)作為化學除污劑的載體,其能 以薄層形式且不論方向應用於表面,甚至可以用於高架表面、金屬塊及複雜組件的零件, 亦可利用泡沫有效地除污。當增加泡沫的停留時間,就能發揮更高的除污能力,提高發 泡劑中的表面活性劑與表面的接觸,能增強其效果。

技術的優點是能有效應用於外形複雜的大型組件,這是現場進行內部除污的好方法, 得以在拆除前消除可抹去的污染,且只產生少量的最終廢棄物。此外,該技術很容易進 行遠端操作,是一個成熟且廣泛使用的技術,藉由再循環操作可提高其有效性,同時亦 可減少操作員接觸酸的可能性及酸的吸收量。

缺點是一次性應用程序(批式程序)很難獲得良好的除污因子,當用於填充大型腔體時,很難進行再循環,且不適合在破裂的表面或具有深或彎曲的縫隙中使用。

該方法開發完善且廣泛用於核工業,其在 DOE 場址(Savannah River Site, SRS)已發展成減少廢棄物的工具,泡沫及凝膠除污劑的應用經驗顯示,廢棄物減少量高達 70%, 遠高於現有的除污技術,該技術已針對一系列內部結構複雜的大型閥門及熱交換器進行 除污測試,其結果顯示,除污泡沫在不銹鋼表面比在碳鋼或粉刷混凝土上,具有更好的 除污因子。

選用在封閉系統內製備泡沫的技術時,應格外小心,封閉式系統受到加壓,迫使有 機泡沫產生劑與除污劑的混合物通過腔室,腔室中會加入空氣以製備泡沫,並通過噴嘴 噴射泡沫,在 SRS 場址應用時曾發生過意外,由於添加大量的有機泡沫產生劑,引發 化學發泡劑與硝酸(即除污劑)之間的化學反應,使反應速率不斷提高,產生的氣體量大 於洩壓設定點,使該系統因壓力過高而破裂,值得注意的是,該設備並未配置洩壓閥, 而是由電廠在其安裝運轉前才加裝上去的。
3.5.2 化學凝膠

化學凝膠是作為化學除污劑的載體,將凝膠噴在組件上,待其作用後,再擦洗、擦 拭、沖洗或剝離。可用無氣壓縮機進行凝膠噴塗,並變換噴頭進行沖洗,典型的試劑組 合是硝酸-氫氟酸-草酸(nitric-hydrofluoridric-oxalic acid)混合物及與羧甲基纖維素膠凝劑 (carboxy-methy-cellulose gelling agent)混合的非離子洗滌劑,搭配硝酸鋁作為氟化物螯合 劑。會先使用熱水沖洗作為預處理,並在整個空間中噴灑凝膠,再將其刮除並吸走固體 廢棄物。

該技術的優點是可以有效地在現場移除大型組件上的可塗抹污染物,且只產生少量 的二次廢棄物,其易於採用遠端操作,並實現高達100的除污因子;因其為一種化學複 合物,缺點是通常要至少進行兩次以上的噴塗及沖洗,且需要進一步處理,才能使化合 物組成最佳化及操作條件適合現場特定需求。

化學凝膠已被用於冷卻二氧化碳管道及普通鐵磁體鋼管道的除污,其步驟如下:

- 蘇打凝膠噴撒(3 M NaOH);
- 接觸時間 30 分鐘;
- 沖洗;
- 酸性凝膠噴塗(3 M H₃PO₄、3 M H₂SO₄及 16%的二氧化矽);及
- 沖洗30-60分鐘。

結果顯示,在幾何形狀簡單的鐵磁體鋼管上,凝膠噴塗是一種對 β-γ 核種的有效技術,其產生少量的二次廢棄物,且可以收集後用沈澱法進行中和處理。

3.5.3 除污膏

除污膏廣泛用於處理金屬表面,尤其是不銹鋼。其由填充物、載體及作為活性劑的 酸或酸的混合物組成,其中一型改良方法被廣泛使用在獨立國協的國家,其在糊狀物中 加入磨料,利用磨料的機械作用有助於破壞表面薄膜,藉以提高化學試劑的有效性。

3.6 物理技術

除了化學及電化學技術外,還可以使用物理技術,其應用方式通常更為簡單,但普 遍比(電)化學更不具侵略性。顧名思義,物理技術採用物理方式將污染層從基材上移除。

3.6.1 在超音波槽內清洗

在超音波槽中清洗是一種經典的技術,用於組件污染物呈現不穩定且非頑強固定的 除污,其通常與洗滌劑一起使用(例如 DECON90),浴槽溫度提高使其能量以自然方式 損失,從而有利於除污效果。

該技術僅適用於輕微固定的污染。

對於嚴重污染的組件,例如在儲存池中長時間停留的不銹鋼組件,該技術無法移除 固定在組件上的污染物。除污因子小於2。

超音波槽清洗經常用於清洗經過化學除污的組件,以完全消除液膜及固定在材料表 面的微量液滴。由於化學處理後的粗糙度很高,這種處理顯得更為重要。 超音波亦可立即與化學處理技術結合使用。通常在這種情況下,超音波的效果與化 學作用會產生協同作用,從而提高反應效率並縮短處理時間。此外,機械效應讓碎屑顆 粒變鬆散,使表面更易於移除。

3.6.2 CO2 乾冰噴砂

這種除污技術的原理是將二氧化碳冰粒高速噴射到表面的原理來進行除污,這些顆 粒在噴射器中通過 18 bar 的壓縮空氣加速,速度約為 21.5m³/min,污染物被拉出表面 並被多餘的空氣帶走,CO₂ 顆粒會蒸發,而移除的污染物會沈澱或被空氣過濾系統帶 走。最後,污染物將位於箱體底部及/或過濾器中,箱體的通風量必須足夠大,以避免 CO₂ 累積並消除空氣污染,操作員穿著通風的防護服工作,噪音量約為 75~125 分貝, 許多報告強烈建議為某一特定目的而選用此技術時,應先進行一些除污測試。

3.6.3 噴冰(Ice blasting)

這種技術與 CO2 乾冰噴砂極為相似,利用壓縮空氣將冰晶噴射到待處理表面,冰融 化後形成的水,帶走要移除的污染物;然後污染物處於懸浮狀態或被溶解。

這種技術較 CO2 乾冰噴砂更易使用,污染物被截留在水中,需要一個系統來處理液 體污水,其效率與 CO2 乾冰噴砂相當,但該技術的侵蝕性不足,無法徹底移除固定污染物。

3.6.4 磨料除污

該技術利用不同類型磨料,將其高速噴射至待處理表面。

該技術的當務之急是確保磨料的回收利用,以限制二次廢棄物的產生,所以會先排 除無法回收的乾式或濕式噴砂裝置。

利用濕式或乾式噴砂除污並將磨料回收,是磨料除污中較為適當的方式。

3.6.4.1 濕式環境中的磨料:

在此情況下,輸送的流體是水及壓縮空氣。濕式噴砂除污裝置包括:

- 一個通風工作罩, 能經由 HEPA 過濾器連接到一般的通風系統;
- 收集水-磨料-污染混合物的系统;
- 噴水槍/壓縮空氣及添加磨料的噴砂槍;
- 配有循環泵的磨料回收裝置;
- 細磨料及去除污染物的過濾裝置;
- 過濾污泥的預處理裝置。

這類系統已用於各種除役計畫,對處理大型污染組件、塗漆金屬及局部(但可觸及的)污染方面具有良好成效。

3.6.4.2 乾式磨料

在乾式磨料噴射的情況下,輸送的流體是壓縮空氣。乾式噴砂裝置包括:

- 在工作裝置內,由預過濾器及過濾袋進行過濾,並通過 HEPA 過濾器連接到一般 通風系統;

- 具壓縮空氣的噴砂槍或噴射器;

- 收集磨料及污染物的系统;

 - 分離磨料及污染物的系統;通常是旋風式分離器系統,磨料在此被收集並回收, 而污染物及細小的磨料顆粒,則被排到過濾系統中收集與過濾。

此類系統亦用在不同的除役計畫,且效果相對較好。值得一提的是,在 Belgoprocess(比利時)使用的自動化系統,其金屬組件能自動裝載、除污及卸載,且能回 收磨料。

3.6.4.3 濕法與乾法磨料噴砂技術的比較

對於這兩種技術,重要的是選擇使用壽命長和且除污能力高的磨料。以下列出的磨 料硬度是遞減的:

- 不銹鋼珠;

- 陶瓷微球或角形陶瓷;

- 棱角石榴石;

- 玻璃微球。

這些磨料的價格排序也是如此,儘管磨料價格較高,但重要的是挑選劣化非常緩慢的磨料,因為這將可減少二次廢棄物的產生,但較為普遍的作法,是根據應用類型來選 擇研磨介質:

- 礦物(例如磁鐵礦或沙子);

- 鋼丸、氧化鋁;

- 玻璃珠/玻璃料、碳化砂、陶瓷;

- 塑料顆粒;

- 天然產品(例如稻殼或磨碎的堅果殼)。

二氧化矽也被用作磨料,但不建議使用它,因其為高刺激性粉塵且具有中等毒性, 是導致肺部疾病的主要原因。

長期吸入含有游離二氧化矽的粉塵,可能會導致致殘性肺纖維化,稱為矽肺。

這兩種技術(濕式噴砂與乾式噴砂)利用分離磨料與污染物,而得以回收磨料。在濕 式噴砂中,污染物被過濾器捕獲;而乾式磨料噴砂,污染物在防堵塞過濾器上過濾並收 集在滾筒中。

這兩種技術都必須在有通風的環境中使用,但乾式噴砂的空氣污染比濕式噴砂要嚴 重得多,其造成空間牆面的污染風險更大,且將嚴重污染的組件換成輕度污染的組件時, 可能會引起交叉污染。另該系統可以自動化。

3.7 實施除污技術所獲取的經驗

這些除污技術的應用經驗,涉及以下觀點:

• 通常必須結合數種除污技術,而非僅只用一種特定技術。

- 必須事先評估,以優化計畫所需的除污需求,像是劑量吸收、二次廢棄物的 產生與處置等問題都可能會造成影響。
- 如果不與劑量吸收、成本及廢棄物處理路線的優化衝突,則首選現場除污。
- 目前化學除污技術仍用於特定案例,應努力擴大現有技術的直接適用性。
- 用於除污的絕大多數技術都是專有的,在此情況下,在選定某種除污技術前, 必須特別留意該特定化學溶液的性能及其廢棄物的分析結果。
- 對於封閉式系統,一階段除污及處理技術,通常產生的二次廢棄物數量最少。

(四) 廢棄物管理考量[8、9]

除役作業的廢棄物管理,涉及主要及後續廢棄物流的處理、調節、管理、儲存、運 輸及處置。其所產生的廢棄物,將根據其處置的方法來定義及分類。

液體廢棄物包括受污染的液體,通常是稀釋過的酸性或鹼性溶液,以及帶有大量液體的物質,例如污泥、離子交換介質,以及來自蒸發器(evaporators)及薄膜分離器(membrane separators)的濃縮物。

所有廢棄物管理過程中,遵守適用的安全與放射防護法規,是必須考慮的最主要因 素,次要目標則是盡可能使需要處置的材料數量降低,才能讓放射性核種的遷移率最小 化,並依照所具有的放射性類型(含α、不含α、低、中或高放射性強度),最小化廢棄 物數量及其流動性,並對廢棄物進行隔離,以達到安全性與經濟處置的最佳組合。

根據核一廠除役計畫[2],其於除役期間可能產生低階放射性廢棄物,依來源可區分為:中子活化廢棄物、放射性污染廢棄物及其他放射性廢棄物。中子活化係指爐心周圍的組件受到中子照射後,在組件內部生成活化核種,會受到中子活化的系統,主要為反應器壓力槽、反應器壓力槽絕熱材、反應器壓力槽內部組件、反應器一次圍阻體鋼構及 生物屏蔽等鄰近燃料爐心的部分。

放射性污染廢棄物的主要來源,係因活化腐蝕產物或分裂產物之沈積,而受到污染 的管路、設備及結構,包括:反應器冷卻系統、冷凝系統及飼水系統之管路,因受到爐 水長期沖刷,使管路內壁的微量金屬粒子因沖蝕或腐蝕而剝落,之後流經爐心受到中子 照射活化,而產生放射性腐蝕產物,這些活化的腐蝕產物會流經所有與反應器冷卻相連 之系統;另一個放射性污染源,則是由於燃料破損,造成分裂產物釋放到反應器冷卻水 系統,核一廠除役放射性污染廢棄物之分佈,可能涵蓋反應器廠房、廢棄物廠房與汽機 廠房之管線、組件與設備,以及這些廠房結構進行表面除污後,所移除之表面混凝土等。

至於其他放射性廢棄物,則是除役作業期間所產生之二次廢棄物,包含濕性廢棄物 (例如:系統除污與組件除污之廢液等)、乾性廢棄物(例如:防護衣、除污抹布及維修工 具等)與保溫材等。

4.1 國際放射性廢棄物分類簡介

半衰期超過十天的放射性同位素可能會產生放射性廢棄物,其需保持安全,直到衰變過程降低材料的放射性活度,為了儲存及處置,通常根據風險與衰變時間,將其分為不同類型:極低階廢棄物-VLLW、低階廢棄物-LLW、中階廢棄物-ILW 和高階廢棄物-HLW)(如表 1.2.9 所示)[9]。

| | 極低階廢棄物 | 低階廢棄物 | 中階廢棄物 | 高階廢棄物 |
|--------|---------|---------|---------|---------|
| | (VLLW) | (LLW) | (ILW) | (HLW) |
| 放射性 | 含有長半衰期 | 含有有限濃度 | 包含不會衰減 | 含有夠高的輻 |
| | 放射性同位素 | 的長半衰期同 | 到近地表處置 | 射強度,能產生 |
| | 濃度非常有限, | 位素,但具有高 | 可接受輻射強 | 大量放射性衰 |
| | 其輻射強度通 | 放射性 | 度的長半衰期 | 變熱或具有大 |
| | 常高於解除管 | | 放射性同位素 | 量长半衰期同 |
| | 制基準 | | | 位素 |
| 廢棄物來源舉 | 混凝土碎石與 | 衣服、玻璃、建 | 燃料棒外殻、反 | 用過燃料碎片 |
| 例 | 土壤 | 材 | 應器壓力槽零 | |
| | | | 件 | |
| 隔絕 | 工程設計之地 | 近地表的處置, | 在幾十到幾百 | 深層地質構造 |
| | 表填土 | 深度從地表到 | 米深的淺層處 | |
| | | 30 米內 | 置 | |
| 是否需屏蔽 | 否 | 否 | 是 | 是 |
| 是否需散熱 | 否 | 否 | 否 | 是 |

表 1.2.9 放射性廢棄物分類

最終會形成高階放射性廢棄物中的物質,是從運轉中反應器定期所移除的用過燃料, 一個典型的 1000 MWe 反應器每年產生大約 27 頓這種廢棄物,世界上所有反應器產 生的用過燃料量,每年僅勉強填滿兩個奧運規格的游泳池,儘管體積相對較小,但在核 工業廢棄物中,高階廢棄物的放射性佔了 95%,需被隔離數千年。

根據目前的廢棄物管理作法,高階廢棄物最終需要在深層地質構造中進行處置,此 類場地的建設被延遲,一方面與成本有關,另一方面與公眾反對擬建場地有關。

在移除用過燃料後,除役時只會產生少量的高階廢棄物(HLW),其中大部分是最後 一批燃料從反應器中移除後,所殘留下的核燃料碎片。然而,除役產生的廢棄物(VLLW、 LLW 及 ILW)通常是反應器運轉年限產生量的 2/3,拆除一個 1,000 MWe 的反應器,會 產生約 10,000m³ 的 VLLW、LLW 及 ILW,但運用適當的管理及使用機器人,可以將放 射性較高的部份分離出來,使數量大幅減少。這種廢棄物可能包括大量建築材料,以及 鋼製反應器壓力槽設備、化學污泥、控制棒及其他與反應器燃料非常接近的材料,除役 期間產生的廢棄物放射性,通常在幾十年內可以忽略不計。然而,在此之前,這種廢棄 物需要安全處理、儲存及處置。

與核電廠除役有關的廢棄物[8],主要是考慮中低階廢棄物及極低階廢棄物。

對於中低階廢棄物,其最終處置過程與運轉中的廢棄物類似,因其通常在最初建廠 時就存在,處置場所的能力當然要考慮到這些額外的廢棄物量;另一種選擇是在現場臨 時或明確地點處置這些廢棄物,例如放在未拆除的管制建築物中,這取決於各國及個廠 條件所採用的除役策略。

而對於極低階廢棄物(Very Low-Level Waste, VLLW),要解決的問題是,即使經過除 污,其體積還是很大,此類廢棄物的數量取決於解除管制(clearance)量的多寡,解除管 制指的是"將材料從管制系統中移除,但前提是這些材料從放射源移出後的放射性影響 夠低,而不需要進一步管制"。這個解除管制的定義,勢必對廢棄物是當作 VLLW 或 是一般廢棄物儲存的數量,產生重要的影響。

該定義有兩個主要策略,一種使用與輻射強度相關的標準作為閾值,另一種則使用 與廢棄物來源相關的標準:電廠管制區域的結構或廠房,各種解決方案都有其利弊,最 後取決於各國的管制機關,但其影響是雙重的:要儲存的廢棄物量取決於國家政策,但 外釋的材料可能從一個國家運到另一個國家,可能造成解除管制水準不一致的問題。

至於拆解廢棄物的處理技術,與電廠運轉期間所使用的技術均相同,從優化廢棄物 管理,在源頭即將廢棄物最小化,再到濃縮(concentration)、分類(sorting)、包裝(packaging), 最後在特定廢棄物處理廠進行硝化(nitrification)、瀝青化(bitumization)、聚合 (polymerization)、膠結(cementation)、焚化(incineration)等。

放射性廢棄物被處理後[10],殘餘蒸發殘渣、化學泥漿、廢液、廢離子交換樹脂及 焚燒灰燼等,須將這些放射性廢棄物之放射性元素牢固地結合到穩定的基材上,以達到 安全的目的,常利用水泥固化、瀝青固化及聚合物固化這三大類固化技術。

4.2 廢棄物管理策略

廢棄物管理策略[8]應確保除役過程中,廢棄物的產生、處理及處置方式與符合計畫、 廢棄物最小化及可接受標準一致的方式在進行,該策略是根據國家與地區的廢棄物管理 法規,並考慮了政府政策。其通常包括以下項目:

- 預估廢棄物的來源及類型、其物理及化學特性,以及每一類廢棄物的數量, 包括廢棄物的產生速率
- 對於除役的設備或材料,其限制/不受限制的重複使用或回收準則
- 廢棄物的分類標準
- 管理、處理、調節、儲存及處置除役產生的各種放射性、非放射性及危險性 廢棄物的計劃與程序
- 監測及記錄放射性的程序,包括在無限制外釋前,監測已清除的廢棄物,以
 及採集及分析樣品的程序
- 運輸及處置的包裝規定,以及包裝的設計要求
- 確定適當的儲存及處置路線與地點(在某些情況下,廢棄物流可能沒有現成的 調節、處理、儲存及/或處置或再利用的路線)
- 對廢棄物管理策略的安全評估

廢棄物管理策略會考量幾個面向,例如運用廢棄物最小化及減容技術,因為廢棄物

(包括二次廢棄物)或許能再利用及最小化,可以運用的方式包括除污、縮小尺寸、技術優化及減少體積,例如液體的蒸發或固體的壓實,除役過程中預計會產生數種不同的廢棄物流;在開發、調整及應用適當的廢棄物管理技術時,可能需要根據每種情況考慮這些問題。

廢棄物管理策略能讓廢棄物處置符合可接受的標準,如果限制區的廢棄物是採用掩 埋或類似方式處理,則必須具體說明並記錄證明符合外釋基準的方法,對於要外釋作為 非限制使用的廢棄物,則必須著重在測量極低階放射性活度的特殊監測與分析程序。為 此,可能要有一個低輻射背景的區域,以便進行必要的測量及/或可以在實驗室中進行 大量的取樣及計數。

4.3 廢棄物管理安排[8]

只有定出明確的廢棄物管理安排後,才能啟動放射性廢棄物的除役作業,在某些情況下,廢棄物的最終處置將轉移到非電廠持照者的其它機構。在開始回收及處理任何廢 棄物之前,應與儲存機構正式協議處理、包裝與記錄安排。

此外,許多電廠會同時產生放射性廢棄物及其他危險性廢棄物,制定有害物質特徵 計劃,能提供影響這些材料在處理、調理、包裝、儲存及最終處置的重要見解。

定義用於搬運、處理、調節、儲存及處置放射性廢棄物的程序、流程及系統。如果 要在現場臨時儲存放射性廢棄物,則應規定廢棄物的數量、預計的儲存時間、儲存區的 位置,出入口的輻射強度,以及管制的方式。

除役期間管理放射性廢棄物的方法,通常與電廠在運轉、維護及翻新期間所採用的 方法類似,但所採用的方法,可能要因應廢棄物流的龐大數量及特性,而必須作一些調 整。除役廢棄物路線概念如圖 1.2.4 所示。



圖 1.2.4 除役廢棄物路線

4.4 廢棄物的分類及其處理方式

4.4.1 液體廢棄物的處理與調節

含有溶解及/或精細分割污染物質的大量稀釋溶液組成的液體廢棄物,通常需經過 處理才能將溶液中的污染物質萃取出來,從而減少進一步調節及在放射性處置設施中的 處置數量。

液體廢棄物常用的除污技術是離子交換(ion-exchange)、過濾(filtration)、薄膜分離 (membrane separation),以及化學處理與蒸發,這些技術可以單獨使用,也可以串聯使用, 具體取決於處理溶液的特性,過程中所產生的純淨液體,通常會經過充份除污,在進行 監測並確保符合規定後,再排放到環境中。

在一些除污技術中使用的某些液體,例如電拋光中的磷酸及表面清洗中的有機溶劑, 由於其特殊的化學性質,可能需要進行特殊處理。

離子交換介質、過濾器或濃縮器底部液體中所含的濃縮放射性殘留物,需要進行調節以使其固定,所需的固定化方法,是將放射性殘留物與基質材料混合,然後在適當的容器中將混合物凝固。現有的基質材料包括水泥、瀝青、各種聚合物(例如聚苯乙烯(polystyrene)、聚酯(polyesters)、環氧樹脂(epoxies)及脲醛(urea-formaldehyde))、玻璃及陶瓷。

特定計畫選用的處理及調節技術,將取決於以下因素:

- 輻射及一般安全考量
- 液體流的技術要求
- 廢棄物運輸及處置的替代方案
- 經濟方面的考量

在選擇用於特定計畫的除污技術時,電廠是否有適當的液體廢棄物處理及調節技術, 可能也是重要的考慮因素。

4.4.2 固體廢棄物的處理及調節

除役過程中產生的固體廢棄物,主要包括受污染及活化的結構材料與系統組件,包括混凝土、鋼筋與結構鋼、石墨、不銹鋼與碳鋼,以及其他各種金屬、橡膠、塑料、紙 張及其他纖維材料。

處理及調節固體廢棄物的主要目標是:

- 在減少放射性物質的移動性及與廢棄物處理及處置有關的輻射劑量的前提下, 盡量減少廢棄物量
- 根據存在的放射性污染物的類型將廢棄物分類,以便於放置在適當的處置設施中
- 將廢棄物進行處理,並包裝在適合現場運輸的容器中,以便在適當的處置設施中進行處置
- 以經濟的方式完成這些作業

4.4.3 氣體廢棄物的處理及調節

除役作業中最有可能產生的氣態放射性廢棄物,是微量的氚化水蒸氣,如果有必要, 可以使用與空氣流接觸的吸附劑材料,將氚化水蒸氣從通風空氣中去除。

含有細碎放射性物質的氣溶膠,很可能是除役期間使用各種切割方法所產生的,且 這些切割方法也會產生大量具有潛在毒性的煙霧,在所有情況下,在通風流中使用污染 控制罩與適當的過濾器,應足以收集並保留這些微小顆粒。

其所產生的固體廢棄物(吸附器及過濾器)的處理,依4.4.2節所述。

4.5 二次廢棄物的處理注意事項

運用除污技術會產生的"二次"廢棄物,通常是像磨料粒子、液體廢水、煙霧以及氣 溶膠等,因為氣溶膠的產生及處理該廢棄物等,可能會影響作業人員的安全,或是因此 必須處理更大量的廢棄物,進而影響到計畫內的廢棄物管理,故具備能蒐集並控制這類 物質的方法很重要[3]。

對於除污後所產生的二次廢棄物(像是化學溶劑、氣溶膠、殘渣),必須注意是否具 備可以處理的設施,且最終產物(包裝、除污的廢水等)必須符合最終處置要求,此外, 在除污過程中,最終廢棄物被濃縮或集中放置,將成為重要的輻射源。

4.6 减少二次廢棄物的產生

磷酸等化學溶液的再生,可因此減少二次廢棄物的產生。如磷酸的循環利用可藉由

- 添加草酸、將溶解的鐵沈澱成為草酸鐵(iron oxalate)
- 重複用酸進行除污:萃取草酸鐵、蒸發
- 草酸鐵的熱分解:加熱草酸鐵、最終儲存時,轉化成氧化鐵

(五) 國外電廠除污案例

5.1 德國 Stade(PWR)核電廠的全系統除污經驗-1[8] 5.1.1 前言

Stade 核電廠的所有者 E.ON 在決定該電廠的最終關閉期程後,很早就開始規劃其 除役作業,全系統除污(FSD)即為正式除役作業前的核心項目之一。2003 年於 Stade 舉 行的除污研討會中,針對全球所有可用的除污技術,進行有關技術、效率、參考資料及 廢棄物方面的比較,最佳的解決方案是選擇 Framatome ANP CORD®系列(化學氧化還 原除污技術)並結合 AMDA®(自動移動式除污設備),除污作業被排定在電廠最終關閉 作業後的短時間內,然後才開始拆除。

5.1.2 為何要在除役前使用 CORD 系列的除污概念進行 FSD?

- 降低組件及周圍環境的劑量水平
 - => 儘可能地減少人員在後續的計劃及除役作業中的輻射曝露
 - => 輻射強度及最終的表面污染最小化
 - => 毋需用到複雜的拆卸技術
- 利用清潔金屬表面來減少廢棄物
 - => 將拆卸/處理(例如噴砂)技術中產生的廢棄物減至最少
 - => 讓可以自由外釋的重型組件的數量最大化
- 提供客户更高的成本效益比
 - => 使除役期間具更高的安全性
 - => 因能縮短除役作業的審查流程,故可節省成本
 - => 在除役技術中將最廢棄物小化而可節省成本
 - => 受惠於較易拆卸的技術及較少的運輸與儲存限制,而可節省成本
 - => 由於縮短後續的處理時間,及最大程度地減少額外的廢棄物,故可節省成本
 - => 由於縮短時程,故而節省成本
 - => 拍賣可自由外釋材料所獲取的利潤
- 5.1.3 Framatome FSD 在 Stade 核電廠的應用概念

5.1.3.1 除污目標

PWR Stade 採用 4 迴路設計,至永久關閉為止,總共運轉 31 年(1972 年至 2003 年), 除污(FSD)被排定運轉後階段,介於燃料移除後但尚未開始進行除役作業前的短暫期間內。

Framatome 的 FSD 概念,是根據 Stade 核電廠所設定的除污目標量身定制的:

- 最大限度地减少輻射強度,及最終的劑量水平
- 最大限度地降低工作區域的環境劑量率
- 將能自由外釋的材料量最大化(此處的主要對象為蒸汽產生器 SG)
- 廢棄物最少化
- gamma / alpha 比沒有明顯變化

5.1.3.2 除污概念

該計畫分三個階段進行,首先是可行性研究,然後是程序彙編,最後是現場實際操作。在 KKS 與 Framatome ANP 計畫團隊的密切合作下,規劃 FSD 的所有任務並加以實踐,計畫的成功歸功於絕佳的團隊合作。

FSD 的除污迴路包括整個已移除燃料的 RPV 主迴路、RHR 系統、體積控制系統 VCS(包括除氣器)、爐水淨化系統 RWCU 及部分緊急注水系統,該除污迴路的總容積為 310 m³,表面積為 17,000 m²,其中 SG 管的面積是主要且佔比最多的部份。FSD 主要是 透過電廠內部系統及 AMDA 來執行,在 RHR 及 VCS 進行連接,電廠的輔助系統(化學 注水系統、組件冷卻系統、冷卻水儲存、電廠排氣系統、廠房排水、廢樹脂槽)亦提供除 污相關的支援功能,AMDA 的操作主要是利用離子交換樹脂進行旁通除污,機械過濾 鏽垢顆粒並進行 UV 分解,除污技術中排出的樹脂,會從 AMDA 樹脂過濾器轉移到電 廠內部的廢樹脂槽中。

從 CORD 系列中挑選了眾所周知的 HP / CORD UV 除污技術(HP =高錳酸, UV 是 為了誘導化學品分解)。

5.1.4 HP /CORD®UV 概念

HP / CORD UV 與 AMDA 相結合,可用於運轉中及拆除階段的核電廠除污,典型 的應用在組件、系統局部、整個系統以及 FSD 除污,HP / CORD UV 與 CORD 系列的 所有其他最新技術一樣,是屬於多次循環技術,最大的優點是可以根據除污目標來制定 除污流程,每個 HP / CORD UV 循環包括四個步驟(用 HP 進行預氧化、以除污劑還原 HP、除污及利用 UV 分解除污試劑與溶劑的淨化),在除污步驟中,溶解的腐蝕產物及 溶液中的活性會被固定在離子交換樹脂上,所有步驟完成後,除污化學品會分解成水與 二氧化碳,CORD 系列的除污方法,可確保核電廠系統/組件的低劑量率、淨化過的金 屬表面、廢棄物數量少、沒有含螯合物的樹脂廢棄物,且除污迴路中的水質保持不變。

5.1.5 使用 HP / CORD UV 對系統進行全系統除污的參考

Framatome ANP 的 FSD 擁有全球應用實蹟,遍及運轉中的核電廠(瑞典-BWR,芬蘭-VVER 和日本-BWR 的 6 個 FSD)及永久關閉的核電廠(如表 1.2. 10 所示),所有案例計畫均徹底成功,各種反應器類型及不同的水化學都能達到高 DF。

| | V - | | | |
|-------------|---------|---------|-----|--------------|
| 核電廠 | 國家 | 年份 | 類型 | 製造商 |
| BR3 Mol | Belgium | 1991 | PWR | Westinghouse |
| VAK Kahl | Germany | 1992/93 | BWR | GE/AEG |
| MZFR | Germany | 1995 | D2O | Siemens |
| Wuergassen | Germany | 1997/98 | BWR | GE/AEG |
| Haddam Neck | USA | 1998 | PWR | Westinghouse |

表 1.2.10 除役前的全系統除污

| 核電廠 | 國家 | 年份 | 類型 | 製造商 |
|--------|---------|---------|-----|--------------|
| Lingen | Germany | 2001 | BWR | GE/AEG |
| Caorso | Italy | 2004 | BWR | GE |
| Trino | Italy | 2004 | PWR | Westinghouse |
| Stade | Germany | 2004/05 | PWR | Siemens |

5.1.6 結果

共進行了 4 次 HP / CORD UV 循環,合計移除 609 公斤的腐蝕產物,總活度為 2.7 E13 Bq,約為 730 Ci,其中鈷-60 含量超過 90%,腐蝕產物及放射性物質被固定在離子 交換樹脂上,實際用量為 15.4 m³,符合計畫 16 m³的預估值,腐蝕產物及放射性物質的 需求超過 70%。在 NP 技術的廢棄物量方面,意味著用高錳酸鉀及硝酸進行氧化,但沒 有 UV 分解,最終廢棄物量將超過 60 m³,這再次清楚地證明了 HP / CORD UV 技術具 備強大的優勢。

與進行 FSD 作業有關的總體人員曝露為 96.5 mSv,亦達到 90 mSv 的計劃值,額外的作業使總曝露量增加了 56 mSv,但由於已達到優越的除污成效,使整體曝露量仍遠低於計畫預估的 137 mSv。

該技術所達到的除污因子(DF)極為優異,在環境劑量率降低方面也有出色的成果 (如表 1.2.11 所示),幾乎沒有其他除污技術能與之比擬,由於是用未屏蔽的探測器測量 最終劑量率,故實際的除污係數(DFs)會更高,並未偵測到 Gamma / Alpha 核種比有顯 著變化。

| DF | 實際 |
|-------------------|--------|
| DF(整體) | >58*) |
| 主系統的 DF | >74*) |
| SG 管路的 DF | >160*) |
| 輔助系統的 DF | >38*) |
| DRF(整體) | >75*) |
| Gamma / Alpha 核種比 | 無顯著變化 |

表 1.2.11 Stade 核電廠的 FSD 結果

*) DF 及 DRF 是用未屏蔽的探测器所测得-實際的 DF 會更高

由圖 1.2.5(左側為 SG1、2 及4;右側為 SG3)及圖 1.2.6 可以看出在蒸汽產生器的 出色成果,SG1、2 及4約有 2%的管路被堵塞,DF 均達到 100;SG3 雖然有 16%的管 路被堵塞,但 DF 仍達到了 30。因為 SG 管變得非常乾淨,故可藉由量測劑量率來偵測 管路堵塞的位置(如圖 1.2.6 所示),除污後的蒸汽產生器目視檢查呈現乾淨的金屬表面 (如圖 1.2.7 所示),在 SG 水箱上進行塗抹測試檢查污染強度,發現鈷-60 的污染等級能 低至 50 Bq/cm²,已遠低於德國 StrlSchV §44(鈷-60 100 Bq/cm²)的法定限值。圖 1.2.8 左 側顯示在沒有受到相鄰組件(即儀表線)干擾的情況下,劑量減少因子(Dose Reduction Factor, DRF)超過75。圖1.2.8 右側顯示的干擾結果,可歸因於儀器管線並非除污流徑的一部分,在拆除作業開始後,會率先將這些管線移除,就能達到圖1.2.8 左側所顯示的低劑量率。



圖 1.2.5 蒸汽產生器 SGs 1-4 的除污因子



圖 1.2.6 SG 4 除污後的接觸劑量率



圖 1.2.7 除污後在有管板的 SG 通道表面



圖 1.2.8 除污前後的環境劑量率(無屏蔽測量)

5.1.7 結論

Stade 核電廠在最終關閉後,很快就進行 FSD,結果證明這是最佳的方法,因為這 樣能確保電廠內仍有熟悉系統與操作知識經驗豐富的人員,及維持電廠所有系統的功能 及可用性。 即便受到未除污區域的影響,例如儀表線,除污成效的 DRF 仍遠大於 75。由於測 得的低劑量率及使用未屏蔽的測量設備,多數測量都受到除污流徑外的輻射源所影響, 因此,實際上的 DF 值會更高,所達到的極低劑量率將確保為未來的計劃及除役作業能 節省大量的人-西弗,有利且加快除役技術,清潔乾淨的金屬表面確保大量物料能自由 外釋,最終,Stade 核電廠能藉此 FSD 獲得較高的成本收益。

HP/CORD UV 技術已應用於 Stade 的 FSD,其亦為 PWR 或 BWR 運轉中核電廠行 之有效的標準除污技術,所獲得的 DF 及 DRF,明確地證實 FSD 用於除役核電廠所具 備的潛力,故可實現高的人-西弗特節約。

5.2 德國 Stade(PWR)核電廠的全系統除污經驗-2[12]

必須最大限度地減少人員的劑量率及產生可自由外釋的物質,全系統除污(FSD)是 核電廠除役時的首要步驟。

Framatome ANP 在德國 Stade 壓水式反應器(680MWe)進行 FSD。經過 31 年的運轉, 該電廠於 2003 年 11 月關閉。對整個主迴路和主要的輔助系統(餘熱移除系統 Residual Heat Removal System, RHR)、反應器爐水淨化系統(Reactor Water Clean-up System, RWCU) 及體積控制系統(Volume Control System, VCS))進行除污。本文獻概述除污技術 HP/CORD®UV(Framatome ANP 的專利除污技術)的應用經驗,並介紹 Stade 核電廠的 FSD 結果,其成果亦證實對運轉中核電廠有降低劑量的潛力。

5.2.1 簡介

在運轉了 31 年後,德國 Stade 壓水式反應器已於 2003 年 11 月關閉。E.ON NPP Stade(Kernkraftwerk Stade, KKS)的所有者提早啟動其除役計劃。Stade 在 2003 年舉辦了 除污研討會,經過調查市場上所有可用的技術後,基於除污效率及廢棄物方面的考量, 最終選定 Framatome ANP 中的 CORD 系列 HP/CORD UV 為最合適的技術。FSD 的執 行計劃在電廠關閉後和除役前的短暫期間內完成,在電廠關閉後直接執行 FSD,可確保 所有系統都還能充分運行,最重要的是,現場仍有熟識系統功能的人員,如果在關閉數 年或安全封閉之後才執行 FSD,則在 FSD 啟動之前進行的檢查及維護作業,將非常昂 貴且耗時。

以下小節將概述 CORD 系列原理,重點是 Stade 應用的 HP/CORD UV 技術以及 Stade 的 FSD 經驗。

在這種情況下, CORD(化學氧化還原除污)代表了化學除污技術, 而 AMDA[®]則代表自動模組化除污設備。

HP 用過錳酸作為氧化劑,而 UV 則是用紫外線消毒,以現場分解除污化學品。

5.2.2 CORD 系列概念

全世界的除污任務對除污技術的要求截然不同,這些要求取決於反應器的類型、系 統中存在的原料、系統參數及特定的除污目標。

Framatome ANP 開發的除污程序遵循 CORD 系列概念中廣為人知的優點:

- 材料兼容性高
- HP 作為氧化劑
- 一種用於還原及除污的化學品
- 僅需加滿水,即可完成整個除污技術
- 再生技術
- 適用於所有反應器類型及水化學性質的高除污因子
- 完全氧化,將除污酸現場分解為二氧化碳
- 無螯合的廢棄物(廢棄物中無除污化學品)
- 减少廢棄物產生。

下表列出了 CORD 系列最重要的應用彙整:

| Worldwide | | |
|---|--|--|
| PWR/BWR, stainless Steel | HP/CORD UV | |
| Worldwide | | |
| PWR RCP Internals | | |
| Worldwide | | |
| Decommissioning | hr/CORD D U V | |
| Westinghouse NPPs | HB/COPD NUV | |
| Inconel 600-SG, FSD | IIF/CORD N UV | |
| т | | |
| Japan | COPDCUV | |
| Japan RHR Heat Exchangers (Cu-alloys) | CORD C UV | |
| Japan RHR Heat Exchangers (Cu-alloys) GE NPPs | CORD C UV | |
| JapanRHR Heat Exchangers (Cu-alloys)GE NPPsAuxiliary Systems, Carbon Steel | CORD C UV CORD CS UV | |
| JapanRHR Heat Exchangers (Cu-alloys)GE NPPsAuxiliary Systems, Carbon SteelBWR | CORD C UV CORD CS UV | |
| JapanRHR Heat Exchangers (Cu-alloys)GE NPPsAuxiliary Systems, Carbon SteelBWRSystems, Stainless Steel with > 0,06% C | CORD C UV CORD CS UV HP CORD 2000 UV | |
| JapanRHR Heat Exchangers (Cu-alloys)GE NPPsAuxiliary Systems, Carbon SteelBWRSystems, Stainless Steel with > 0,06% CWorldwide | CORD C UV CORD CS UV HP CORD 2000 UV | |

表 1.2.12 CORD 系列最重要的除污應用彙整

5.2.3 HP/CORD[®]UV 概念

一般來說,係結合 HP/CORD UV 技術及 Framatome ANP 移動式除污設備 AMDA 作為外部除污系統,來執行標準系統除污。

典型的應用為:

- 組件除污
- 系統或子系統的除污
- FSD

另可對 HP/CORD UV 技術進行調整,以適用在混合不銹鋼/碳鋼等基礎材料的系統進行除污處理。

圖 1.2.9 顯示了 HP / CORD UV 技術的應用邏輯。



圖 1.2.9 HP/CORD UV 應用邏輯

HP/CORD UV 係為根據除污目標而應用的多循環技術,整個過程僅用水填充即可。 每個週期分為以下步驟:

步驟1:HP 氧化

步驟2:用除污劑還原 HP

步驟3:除污

步驟4:紫外線分解除污劑及淨化

在除污步驟中執行分流純化,以將溶解的活性及腐蝕產物固定在離子交換樹脂上。, 在除污步驟結束時,將對剩餘除污劑進行現場 UV 分解,除污劑會分解為水與二氧化碳, 而剩餘活性及腐蝕產物的純化也同時在進行,通過該程序,在循環結束時,系統水的純 度能接近除礦水的品質。

HP/CORD UV 技術的循環次數是根據給定的除污任務及目標所決定,屬於特制概念的一部分,沒有限定必須執行的循環數量。

5.2.4 FSD 的應用參考

Framatome 在 FSD 方面具有全球的經驗,不僅僅是運轉中的核電廠,在除役方面亦 是如此,表 1.2.13 及表 1.2.14 分別列出該技術應用在運轉中及除役前完成 FSD 的核電廠。

| | | | | • • • • • • |
|-------|----|------|---------------|-------------|
| 核電廠 | 國家 | 年份 | 反應器類型/淨功率 | 原始設備製造商 |
| 奥斯卡港1 | 瑞典 | 1994 | 沸水式反應器/442MWe | ABB |

表 1.2. 13 Framatome 應用在運轉中核電廠的全系統除污案例

| 洛維薩2 | 芬蘭 | 1994 | 俄式壓水式反應器/445MWe | AEE |
|------|----|------|-----------------|-------|
| 1福島3 | 日本 | 1997 | 沸水式反應器/760MWe | 奇異/東芝 |
| 1福島2 | 日本 | 1998 | 沸水式反應器/760MWe | 奇異/東芝 |
| 1福島5 | 日本 | 2000 | 沸水式反應器/760MWe | 奇異/東芝 |
| 1福島1 | 日本 | 2001 | 沸水式反應器/460MWe | 奇異/東芝 |

表 1.2. 14 Framatome 應用在核電廠除役前的全系統除污案例

| 核電廠 | 國家 | 年份 | 反應器類型/淨功率 | 原始設備製造商 |
|-------------------|-----|---------|---------------|---------|
| BR3 Mol | 比利時 | 1991 | 壓水式反應器/10MWe | 西屋 |
| VAK Kahl | 德國 | 1992/93 | 沸水式反應器/16MWe | 奇異/AEG |
| MZFR Karlsruhe | 德國 | 1995 | 壓水式反應器/55MWe | 西門子 |
| Würgassen | 德國 | 1997/98 | 沸水式反應器/670MWe | 西門子 |
| Haddam Neck | 美國 | 1998 | 壓水式反應器/565MWe | 西屋 |
| Lingen | 德國 | 2001 | 沸水式反應器/240MWe | 奇異/AEG |
| Caorso | 義大利 | 2004 | 沸水式反應器/870MWe | 奇異 |
| Trino | 義大利 | 2004 | 壓水式反應器/250MWe | 西屋 |
| Stade | 德國 | 2004/05 | 壓水式反應器/680MWe | 西門子 |

- 5.2.5 Stade 核電廠的 FSD 經驗
- 5.2.5.1 除污目標

FSD 的目標總結如下:

- 最大程度減少蒸汽產生器(SG)的放射性存量,以促進進一步除役,節省人西弗並釋放廢棄物
- 最大程度地减少電廠工作區域的環境劑量
- Gamma / Alpha 比無明顯變化

5.2.5.2 工程

整個項目分為三個部分:

第1部分:研究技術工程的定義與除污方法

第2部分:準備申請程序

第3部分:現場除污的表現

在電廠營運商 Stade 和 Framatome ANP 計畫團隊之間的緊密合作下,得以規劃並執行 FSD 的所有作業。其各自的工作劃分定義如表 1.2.15 所示:

| Stade 核電廠 | Framatome ANP | |
|--|--|--|
| | 整體概念 | |
| 概念批准 | | |
| KKS 系統技術工程 | 整體工程 包括 HP/CORD UV 技術改編 | |
| 糸統改造● 設計● 性能 | 臨時外部除污設備 a) AMDA 組件要求 (Framatome ANP 除污設備) b) 額外除污設備的設計及供應 | |
| 作業 ● KKS 系統的運作 ● 輻射防護 ● 化學品和總伽馬測量 ● 離子交換樹脂加工 | 作業 ● AMDA 交貨及現場安裝 ● 現場性能(4 個除污週期) ● 化學技術控制 ● 運送除污化學品 | |

表 1.2.15 Stade 核電廠應用 FSD 的作業範圍劃分

5.2.5.3 除污流程途徑

Stade 壓水式反應器是四迴路設計,已經運行了 30 年(1972 年至 2003 年)。FSD 在 停工後不久進行了檢查,以方便即將進行的除役作業。

FSD 包括以下主要系統和組件,如圖 1.2.10 所示:

- 反應器壓力槽(RPV),已移除燃料
- · 增壓器
- 主系統包括所有 4 個迴路,反應器冷卻水泵(RCP)和蒸汽產生器(SG)
- 餘熱移除系統(RHR)
- 體積控制系統(VCS)
- ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・

 ・<
- 反應器爐水淨化系統(RWCU)
- 緊急注射系統零件



圖 1.2.10 Stade 核電廠 FSD 的流徑圖

包含在除污流徑中的系統總體積約為 310 m³(81,893 gal),總表面積約為 17,000 m²(183,000 ft²),表 1.2.16 列出與主要基材有關的表面積。

| | | 面 | 積 |
|-----------|-----------|----------------|-----------------|
| | | (近位 | 以值) |
| 基材 | 系統 | m ² | ft ² |
| 英高合金-800 | 蒸汽產生器(SG) | 12,000 | 129,000 |
| 沃斯田的熔接包覆層 | 蒸汽產生器水道蓋 | 1,000 | 10,700 |
| | 迴路 | | |
| | 反應器冷卻水泵 | | |
| 沃斯田的鉻鎳鋼 | 運轉和輔助系統 | 4,000 | 43,000 |

表 1.2.16 除污流徑的材料及表面特性

5.2.5.4 技術工程

如圖 1.2.10 所示,FSD 是藉由操作電廠系統來執行的,除了除污流徑中包含的系統外,還利用以下系統作為支援系統:

- 化學注入系統
- RHR 冷卻器的冷卻系統
- 冷卻液儲存系統
- 排氣系統
- 電廠排水系統
- 反應器爐水淨化系統(RWCU)的樹脂儲罐

安裝 AMDA 作為額外的外部除污設備以注入 HP,並作為純化及現場 UV 分解的

分流,沒有使用電廠的 RWCU 過濾器進行純化,這些過濾器是空的,是除污流徑的一部分,用過的離子交換樹脂會被運到電廠的樹脂儲罐中。

通過使用氦氣壓縮機將氦氣注入調壓槽中,以確保 RCP 的工作壓力至少達到 30 bar, 4 個 RCP 都在運作,並且透過運行兩個 RHR 冷卻器來消除餘熱,以確保過程中的溫度 維持在穩定狀態,電廠系統與 AMDA 之間的主要接口是安裝在 RHR 系統,在 RHR 系 統接口的下游會安裝減壓橇,以將 AMDA 除污流徑的工作壓力從 30 bar 降低到小於 6 bar,在 AMDA 流路末端的高壓泵橇,將以 30 bar 的壓力再次將除污溶劑送回 RHR 系 統中。

5.2.6 結果

總共進行了4個 HP/CORD UV 循環。其結果如表 1.2.17 所示。

| 活性釋放 | | |
|--------------------------------------|--|--|
| 42.51 | | |
| 435Kg | | |
| 2,7 E13 Bq (730 Ci) with > 90% Co 60 | | |
| 和活性釋放 | | |
| 58*) | | |
| 74*) | | |
| 160*) | | |
| 38*) | | |
| 75*) | | |
| 除污前後 1000-4000 | | |
| *)在沒有屏蔽裝置的情況下進行最終劑量率測量,實際的除污因子要高得多 | | |
| | | |

表 1.2. 17 Stade 核電廠的 FSD 結果

圖 1.2. 11 及圖 1.2. 12 係透過目視檢查蒸汽產生器以驗證除污後的成果。



圖 1.2.11 除污後帶有管板的蒸汽產生器水道蓋



圖 1.2.12 带有環狀線的蒸汽產生器水道蓋

溶解的陽離子及活性被固定在 15.4m³的離子交換樹脂上,樹脂被轉移到 RWCU 系統的用過樹脂儲罐中,離子交換樹脂總量的 70%以上是由一次廢棄物產生的,即由溶解的腐蝕產物產生的。

圖 1.2. 13 顯示與 NP 程序(使用過錳酸鉀和硝酸(如 LOMI 或 CanDerem)進行氧化) 產生的樹脂廢棄物進行比較,清楚地證明 HP/CORD UV 技術的巨大優勢。



圖 1.2.13 HP/CORD UV 和 NP 技術之廢棄物比較

5.2.6 結論

Stade 壓水式反應器的 FSD 顯示, HP/CORD UV 技術在主系統及輔助系統中均具 有出色的效果,材料表面所達到的除污因子(DF)以及環境劑量減少因子(DRF),達到了 5.2.5.1 節所定義的所有除污目標。特別的是,透過環境劑量減少因子(DRF)所代表的環 境劑量顯著減少為除污前的 75 分之一,將大幅降低 Stade 進一步除役作業的成本效益。 表 1.2. 17 中所列出的除污因子是根據非屏蔽測量計算得出的,這意味著剩餘的劑量主要來自較小管道的背景輻射,這些管道不是排污流徑的一部分,例如排污管或排氣管。

額外應該注意的是,只有在客戶與除污公司之間的良好合作下,才能成功地完成這 種複雜的除污。

結果顯示,除污流徑中主系統和輔助系統的集成對於除役極為重要。

無論如何,FSD應該在電廠關閉後儘快進行,以確保具有高水平系統知識的操作人員可使用,並確保電廠系統的使用及功能不受限制,以確保最大程度地減少檢查與維護 作業。

5.3 德國 Obrigheim(PWR)核電廠的全系統除污經驗[13]

最大限度地減少個人輻射曝露及自由外釋,是核能電廠除役的最高優先事項,這需 要一個最有效率的全系統除污。

Obrigheim 核能電廠在運轉 36 年後,於 2005 年 5 月永久關閉,整個主要迴路及輔助系統 RHR、CVCS 的除污工作已在 2007 年的第一季完成,系統總體積為 160 m³,而系統總表面積大約 8,100 m²。

除污採用全球核准的除污技術 HP/CORD DUV,使用核電廠本身的系統與 AREVA NP 的 AMDA 除污設備,以下將概述其除污的結果,大型組件上的劑量減少率(Dose Rate Reduction)對於是否進一步進行除役作業是重要的參考值,特別是在大型組件中平均除 污因子超過 600 的蒸汽產生器更是如此。

5.3.1 簡介

德國 Obrigheim 核能電廠運轉 36 年後,於 2005 年 5 月關閉,自 2004 年以來,對於 EnBW 而言,關閉及核能電廠除役一直是個問題,而拆除前的全系統除污也是核心議題之一。基於長期在 FSD 方面的經驗,以及在德國 Stade 核能電廠取得的傑出成果, AREVA NP GmbH 與 Obrigheim 簽訂了 FSD 應用的規劃和實施契約,使用 AREVA NP GmbH 的 CORD® 除污技術與 AMDA® 除污設備,CORD 代表化學除污技術,而 AMDA (Automated Mobile Decontamination Appliance)是 AREVA NP GmbH 的外部除污 設備。

5.3.2 HP/CORD® UV 概念

世界各地的除污任務對於除污技術的要求極為不同(如反應器類型、基礎材料、系統參數、除污目標),這些不同的需求,不可能僅靠單一個標準流程就達成,因此 AREVA NP GmbH 在早期開發了 CORD 系列概念,作為解決或覆蓋全球所有現有除污需求的邏 輯方法。一般來說,標準的除污系統是經過 HP/CORD UV 技術並使用 AREVA NP 的移 動式除污設備 AMDA 作為外部除污系統。

一般應用在:1)組件除污 2)系統或子系統除污 3)全系統除污

HP/CORD UV 技術可在混合不鏽鋼/碳鋼等基材的系統進行除污。

HP/CORD UV 技術也可調整成能在混合不鏽鋼/碳鋼等基材的系統進行除污。

HP/CORD UV 技術並沒有固定執行的循環次數,而是隨除污任務及目標的不同進行調整。特別是除役計畫中的 HP/CORD D UV(針對特定除役要求制定的技術) 最後一次循環,可用於去除滲入金屬基底的活性,這種活性的去除可藉由精度 0.1µm 的受控初始基材金屬 (Controlled initiated base metal)來達成,受控的基材金屬攻擊(Controlled base metal attack)只能通過去離子水的氧化還原電位,進行特定的還原,因此,HP/CORD UV 技術(像化學藥劑與步驟)可維持不變。(如圖 1.2.14 所示)



圖 1.2.14 HP/CORD UV - HP/CORD D UV 的原理

5.3.3 採用 HP/CORD UV 搭配 AMDA 技術的 FSD 參考資料

AREVANP 擁有在 FSD 方面的全球經驗,除了有仍在運轉的核能電廠(如表 1.2.13 所示),同時也有已永久關閉的核電廠,例如:德國壓水式反應器 Obrigheim,以及瑞典沸 水式反應器 Barsebäck 核能電廠的 1、2 號機組(如表 1.2.18)。歐洲的壓水式與沸水式反 應器的 FSD 除污,幾乎都是由 AREVA NP 所進行的,且所有計畫均順利完成。

| 核電廠/國家 | 年份 | 反應器類型/OEM | 系統(除污範圍) |
|------------------------|---------|--------------------|------------------------|
| FR2/德國 | 1986 | 壓水式反應器 /Siemens | 主要迴路 |
| | | / Stelliells | |
| Gundremmingen A/ 德國 | 1989 | 沸水式反應器/GE | Recirc |
| DD2 Mal/止利咗 | 1001 | 壓水式反應器 | 包括蒸汽產生器、反應器壓力槽 |
| DK3 WOI7 6L 不计 4寸 | 1991 | /Westinghouse | 及輔助系統的 FSD |
| VAK Kahl/法国 | 1002/02 | 沸水式反應器 | 包括過熱器(superheater)、反應器 |
| VAK Kalli/德國 | 1992/93 | /GE/AEG | 壓力槽及輔助系統的 FSD |

表 1.2.18 電廠拆除前應用 AREVA NPs 的 FSD 參考資料

| Rheinsberg/德國 | 1994 | 壓水式反應器/VVER | 蒸汽產生器 |
|-----------------|---------|--------------------------------|--|
| | | (俄維斯設計) | |
| M7FP/油 岡 | 1995 | 壓水式反應器,重水 | 包括蒸氣產生器和輔助系統的 |
| WIZFK/德國 | | /Siemens | FSD,5個系統 |
| Wijraassan/海网 | 1997/98 | 沸水式反應器 | 不包括反應器壓力槽的 FSD,11 |
| wurgassen/德國 | | /GE/AEG | 個系統 |
| Haddom Naak/USA | 1998 | 壓水式反應器 | て白北ら座空原力構めESD |
| Haddam Neck/USA | | /Westinghouse | 个巴格及應益壓力槽的F3D |
| Lingen/德國 | 2001 | 沸水式反應器 | 不包括反應器壓力槽的 FSD,7 |
| | | /GE/AEG | 個系統 |
| Caorso/義大利 | 2004 | 沸水式反應器/GE | FSD,2個系統 |
| Trino/義大利 | 2004 | 壓水式反應器 | 花汽本小婴马十西洄败 |
| | | /Westinghouse | <u> 然八座生命</u> 及王安坦路 |
| Stade/德國 | 2004/05 | 壓水式反應器 | 包括蒸汽產生器、反應器壓力槽 |
| | | /C: | THEN & ILL FOD |
| | | /Siemens | 及輔助系統的 FSD |
| Obrightim/法国 | 2006/07 | /Siemens 壓水式反應器 | 及輔助系統的FSD 包括蒸汽產生器、反應器壓力槽 |
| Obrigheim/德國 | 2006/07 | /Siemens 壓水式反應器 /Siemens | 及輔助系統的FSD 包括蒸汽產生器、反應器壓力槽 及輔助系統的FSD |

5.3.4 德國 Obrigheim 壓水式反應器的 FSD

5.3.4.1 除污目標

基於促進核能電廠系統的整體拆除作業為目的,Obrigheim 電廠的除污目標可概括如下:1.降低放射性存量(activity inventory),特別是蒸汽產生器,採取額外的拆卸措施,以節省劑量率,使材料自由外釋;2.降低工作區域的環境劑量率;3.Gamma/Alpha之比值無明顯變化;4.降低浪費產生。

因此, AREVA NP GmbH 以契約型式保證平均除污因子(Decontamination factor)大於 10, 但最大劑量的減少仍是 FSD 的主要目標。

5.3.4.2 技術說明

這個計畫分為三個階段,第一階段進行可行性的研究,依除污面積、工程、效率和 廢棄物等方面建立基本架構,第二階段包括細部設計及現場執行程序彙編,以及準備除 污計畫的相關文件供主管機關審查,這些任務是由 Obrigheim 電廠與 AREVA NP 團隊 密切合作下實現的,最後在 2007 年的第一季,現場作業(第三階段)如期結束。

5.3.4.3 除污面積及流徑

Obrigheim 核能電廠是一座 357MWe 的壓水式反應器,採用雙迴路設計,運行於 1969 年至 2005 年,除污流徑(如圖 1.2. 15)的系統總體積為 160 m³,而其系統表面積為 8,000 m²,FSD 包括以下系統與組件:(1)無燃料的反應器壓力槽(RPV)及內部組件、(2) 調壓槽、(3)主要迴路(兩個迴路),包括蒸汽產生器、(4)餘熱移除系統(RHR)、(5)化學體 積控制系統(CVCS)、(6)緊急注水系統、(7)化學淨化系統的機械過濾器



圖 1.2.15 Obrigheim 核電廠 FSD 的除污流徑

表 1.2.19 列出材料的表面積,其中 SG 約佔總表面積的 75%。

| 其局计判 | 金 姑 | 表面 | | |
|--------------------------|----------|-------|-----------------|--|
| 本 信 材 杆 | 不然 | m^2 | ft^2 | |
| Incoloy 800 | 蒸汽產生器的管線 | 6.2 | 65.66 | |
| Austenitic weld cladding | 主要迴路 | 1.1 | 11.84 | |
| Austenitic CrNi steel | 輔助系統 | 0.7 | 7.535 | |

表 1.2.19 除污流徑的材料及表面特性

5.3.4.4 除污工程

在外部除污設備 AMDA 設備的輔助下,FSD 主要在電廠內部進行使用,除了上述的整合式核能電廠系統外,輔助設備也應用於以下系統:(1)化學注入系統、(2)零件冷卻

系統、(3)冷卻劑儲藏室、(4)電廠排氣系統、(5)建築物排水溝、(6)廢樹脂槽

在除污流程中,AMDA 設備用於注入除污化學藥劑及通過離子交換樹脂進行旁路 清理,以及除污化學藥劑的 UV 分解。而除污過程中產生的廢棄樹脂,會從 AMDA 的 樹脂過濾器轉移到電廠內部的廢樹脂槽中,利用所有泵浦同時運轉以建立除污循環,並 藉由餘熱移除系統的熱交換器將多餘的熱能去除,以調節溶劑溫度。

5.3.5 成果

總共進行了四次 HP/CORD UV 循環,溶解的陽離子和活性,以及 75%的腐蝕產物 沈積在 6.7 m³ 的離子交換樹脂上,除污結果總結在表 1.2. 20,未檢測到明顯的 Gamma/Alpha 核種比率變化。

| 移除的陽離子及活度 | | | | |
|--------------------|--------------------------------------|--|--|--|
| 腐蝕產物總量 | 313kg | | | |
| 移除活度 | 5,6 E12 Bq (151 Ci) With > 95% Co-60 | | | |
| 平均除污因子 | | | | |
| 除污因子(總體) | 625 | | | |
| 主要系統的除污因子 | 736 | | | |
| 蒸汽產生器管線的除污因子 | 1409 | | | |
| 輔助系統的除污因子 | 29 | | | |
| Gamma/Alpha 核素比率變化 | 無明顯變化 | | | |

表 1.2. 20 Obrigheim 核電廠的 FSD 結果

除污後主要迴路與大型組件顯示低的接觸劑量率,導致不同系統的除污因子(DF)遠超出了預期。

圖 1.2. 16 說明了兩個蒸汽產生器除污前後空間劑量率顯著降低的極好成效,除污 後蒸汽產生器的平均劑量率為 1.6μSv/h,這使得蒸汽產生器的平均除污因子(DF)高於 1400。由於蒸汽產生器的空間劑量率極低,除污後的劑量率量測必須使用遮罩探測器進 行,在蒸汽產生器的選擇定點進行長時間的遮罩接觸劑量率量測。



圖 1.2.16 SG 除污前後的空間劑量率比較

蒸汽產生器通道頭內部的輻射劑量率大幅降低(見圖 1.2.17),這大量節省了進行拆除作業所需要的人-西弗(man-Sievert)。

除污後,蒸汽產生器通道頭的金屬表面十分乾淨,減少環境劑量率也是一個主要成 效,特別是餘熱移除系統的熱交換器與化學體積控制系統的復熱式熱交換器,這些地方 的環境劑量率降低了數十倍。



圖 1.2.17 SG 通道頭除污前後的劑量率

5.3.6 結論

在德國Obrigheim 壓水式反應器成功執行 FSD後,證明 HP/CORD UV 技術與 AMDA 互相配合,可在主系統及輔助系統中提供極好的劑量率降低效果,達到甚至是超過所有的除污目標,特別是實現了蒸汽產生器的極低接觸劑量率,使得拆卸及處置這些組件變得更加容易。

這些傑出的成果是因為 Obrigheim 和 AREVA NP GmbH 有良好的團隊合作。

將主要系統及輔助系統整合到除污流徑中,對於後續除役作業非常重要,在任何情況下,除役的 FSD 應在核能電廠關閉後直接進行,以確保具有對電廠系統及操作知識經驗豐富電廠的人員,仍可提供相關協助。

5.4 德國 ISAR 1 (KKI1)核電廠 1 號機除役前的全系統除污經驗[14]

ISAR1號機是發電量 912 MWe 的沸水式反應器電廠,該電廠從 1977 年 12 月開始 運轉,並在 2011 年 8 月結束營運。

2005年時,開始進行電廠的全系統除污計畫,除污範圍為反應器壓力槽、蒸汽乾燥 器及輔助系統,其內部組件大部分為混合材料(不鏽鋼、碳鋼等),通過汽水分離器調整 輔助系統的流量,或是調整反應器壓力槽內的水位,可使特定的全系統除污技術對蒸汽 乾燥器具有非常好的除污效果,以確保電廠結構的完整性,使電廠處於待命狀態,隨時 可恢復運轉。

本次的全系統除污計畫採用 AREVA 的 CORDP 技術,由 Areva 開發的 CORDP 是 一種用於移除表面污染物的除污技術,包括已經完成除污但殘留在表面上的任何錒系殘 留物,通常是作為 HP CORD UV 技術之後的額外處理方法。與 HP CORD UV 相比, CORD P 的效果並不是基於化學反應,而是基於物理化學間的相互作用與介面現象。

化學除污完成後,這些介面現象最終會以膠體或顆粒形式的少量放射性核種,鬆散的黏附在金屬表面上,為了破壞相互作用,使用 CORDP 技術後,膠體及顆粒會被活性成份(一種長鏈烷基膦酸)包裹住,使殘留的污染物克服表面附著的作用力,防止在別處重新沈積,經過活性成份處理後,沈澱物會結合在離子交換樹脂上,再通過除污溶液將 其移除,而在上游進行過濾可過濾掉特別大的顆粒。

CORD P 技術有以下特點:

- 能有效移除黏附在表面的粒子和錒系元素
- 可應用於移除氧化層後/移除基礎材料後
- 採用表面活性劑並在中性 pH 值下使用
- 高材料兼容性
- 低化學濃度
- 藉由過濾與離子交換進行溶液清洗
- 是 CORD 系列中唯一的非再生化學技術

CORD 系列移除污染層的主要差異如下:

• CORD P:移除鬆散黏附的粒子和錒系元素

- CORD D UV: 可移除基底金屬
- CORD UV: 只移除氧化層



圖 1.2. 18 CORD 系列移除污染層的主要差異

此次全系統除污的主要除污目標為:

- 移除氧化層及粒子
- 整體活度存量最小化
- 接觸劑量率最小化

除污系統及其體積如圖 1.2.22、圖 1.2.23 所示。



圖 1.2.19 ISAR 1 號機除污系統示意圖

| Decontamination Area | | | | |
|---|---------|--------|--------------------------------|--|
| System | Surface | Volume | Material of Construction | |
| Mainsteam system RA* | 120 m² | 10 m³ | 1.6310/1.6368 | |
| Feedwater system RL* | 111 m² | 9 m³ | 1.6368 | |
| Reactor Water Clean Up System TC | 324 m² | 7 m³ | 1.4550/1.4541 | |
| Residual Heat removal system TH10/20/40* | 1742 m² | 58 m³ | 1.4550/1.4541 | |
| Core Spray System TK* | 82 m² | 6 m³ | 1.4550/1.4541 | |
| RPV and Internals YD/YE | 7452 m² | 485 m³ | 1.4550/1.4551 1.4541/1.4571 | |

* partially included in Decontamination Area

圖 1.2. 20 ISAR 1 號機除污系統表面積與體積

在 2012 年進行全系統除污前,蒸汽乾燥器存放在水中的照片,如圖 1.2.24 所示。



圖 1.2. 21 ISAR 1 號機蒸汽乾燥器(除污前)

表 1.2.22 說明在經過 2012 年全系統除污後,蒸汽乾燥器除污前/後的劑量率比較。 除污後蒸汽乾燥器能放置於乾燥條件下的儲存室,KKI1 在乾式切割的狀態下,並未在 空氣中偵測到相關活度。



圖 1.2.22 蒸汽乾燥器除污前/後的劑量率比較

在 2012 年進行全系統除污前,汽水分離器存放在水中的照片,如圖 1.2.23 所示。



圖 1.2.23 ISAR 1 號機汽水分離器(除污前)

在全系統除污後,部分汽水分離器高於水位,如圖 1.2.24 所示,雖然水平表面有 黏附沈澱物,但並未在空氣中偵測到相關活度,而沈澱物也可以通過沖洗輕鬆移除。



圖 1.2. 24 ISAR 1 號機汽水分離器(除污後)

汽水分離器除污前、後之接觸劑量率比較表及整體除污成果,分別如表 1.2. 21 及表 1.2. 22 所示。

| Contact Dose Rate comparison water separator prior to and after FSD (measurement under water in mSv/h) | | | | | | | | |
|--|------------------|--------------|-----------------|--------------|-------------------|--------------|-----------------|--------------|
| | |)° | 90° | | 180° | | 270° | |
| MP Nr. | prior to FSD | after FSD | prior to FSD | after FSD | prior to FSD | after FSD | prior to FSD | after FSD |
| 1 | 64,1 | 0,20 | 82,1 | 0,18 | 69,5 | 0,20 | 76,7 | 0,2 |
| 2 | 82,7 | 0,14 | 70,8 | 0,18 | 94,5 | 0,14 | 76,4 | 0,2 |
| 3 | 128,8 | 0,10 | 180,0 | 0,16 | 141,1 | 0,10 | 162,8 | 0,16 |
| 4 | 74,7 | 0,09 | 92,0 | 0,11 | <mark>89,6</mark> | 0,07 | 81,1 | 0,08 |
| 5 | 54,2 | 0,33 | 50,8 | 0,26 | 61,6 | 0,025 | 52,6 | 0,56 |
| 6 | 47,7 | 0,25 | 31,8 | 0,03 | 51,8 | 0,34 | 31,1 | 0,42 |
| 7 | 40,7 | 0,68 | 17,8 | 1,3 | 43,9 | 0,60 | 19,0 | 1,45 |
| 8 | 49,7 | 5,9 | 21,0 | 13,6 | 53,1 | 5,9 | 22,9 | 15, 2 |
| 9 | 84,6 | 24,0 | 42,0 | 44,2 | 87,8 | 26,6 | 40,9 | 43,2 |
| 10 | <mark>8,8</mark> | 3,45 | 8,1 | 3,3 | 6,1 | 2,8 | 7,5 | 2,25 |
| 11 | 10,0 | 2,76 | 9,2 | 2,0 | 7,3 | 2,8 | 8,3 | 0,8 |
| 12 | 1,6 | 1,32 | 1,2 | 0,65 | <mark>0,9</mark> | 0,36 | 1,2 | 0,82 |

表 1.2.21 汽水分離器除污前、後之接觸劑量率比較表

area of activation

| 移除腐蝕和活度 | | | | |
|-------------------|---------------------|--|--|--|
| 腐蝕產物(Fe, Cr, Ni) | 337 kg | | | |
| 移除總活度(>99% Co-60) | 1.5 E13 Bq (405 Ci) | | | |
| 通過離子交換樹脂 | 1.2 E13 Bq (324 Ci) | | | |
| 通過過濾 | 3 E12 Bq (81 Ci) | | | |
| 所消耗的離子交換樹脂 | 9.8 m ³ | | | |
| | | | | |
| 無內部零件的除污區域 | 39 | | | |
| 蒸汽乾燥器 | 46 | | | |

表 1.2. 22 KKI 1 核電廠全系統除污成果

與 TÜV SÜD Germany 合作進行全系統除污後的結果,除污後的金屬表面非常乾淨, 且未檢測到對材料有不良的影響,如圖 1.2.25 所示。



圖 1.2.25 除污前/後的金屬表面

BWR KKI 1 的全系統除污計畫採用 CORD P 技術並應用於爐水淨化系統,並得到 非常不錯的效果。CORD P 技術是 CORD 系列中唯一的非再生化學技術,具有高材料兼 容性和低化學濃度的特色,用於移除氧化層後,或是移除基礎材料後,採用表面活性劑 並在中性 pH 值下使用,通過過濾和離子交換進行溶液清洗,達到移除表面粒子及錒系 元素的目的。經過 CORD P 應用前/後的塗抹試驗數據比對,如表 1.2.23 所示。

| Smeartests prior to and after CORD P application Contamination in Bq/cm ² | | | | |
|---|--------------------|-----------------|--|--|
| Smear Test Nr. | Prior to CORD P | after CORD P | | |
| 1 | 335 | 38 | | |
| 2 | 220 | 35 | | |
| 3 | 230 | 15 | | |
| 4 | 120 | 15 | | |
| 5 | 115 | 21 | | |
| 6 | 45 | 10 | | |
| 7 | 50 | 5 | | |
| 8 | 60 | 6 | | |
| 9 | 65 | 5 | | |
| 10 | 65 | 6 | | |

表 1.2.23 CORD P 應用前/後的塗抹試驗數據比對

爐水淨化系統的冷卻器內部,使用 CORD P 技術的前/後對照,如圖 1.2. 26 所示。


圖 1.2.26 ISAR 1 號機爐水淨化系統冷卻器內部(除污前/後)

AREVA 的除污技術是一項成熟、可靠且經過認證的技術,可以安全且有效率的完成除污目標,而全系統除污技術為目前全世界最廣泛使用的除役前除污方法,雖然單獨處理單一組件也是可行的,但直接進行全系統除污比較省時,而除污計畫所產生的廢棄物符合現場程序與最終儲存的要求。另外,強烈建議在核電廠停機後盡早進行除役前的除污計畫,並根據不同特殊需求制定除污方法。

5.5 韓國 Kori 1 號機(PWR)核電廠的全系統除污經驗[16]

Kori 1 號機是韓國第一座 PWR(壓水式反應器)電廠,自 1978 年開始商轉,並於 2017 年 6 月 18 日永久停機,在將用過燃料轉移到用過燃料池後,即準備進行完整的全 系統化學除污,以降低電廠內各種系統的輻射強度。本篇論文係結合國外電廠的除役經 驗,來說明 Kori 1 號機全系統化學除污的規劃理念。

5.5.1 前言

Kori 1 號機是韓國建造的 PWR(壓水式反應器)電廠,於 1977 年 6 月 19 日達到第 一次臨界,並於 1978 年 4 月 29 日開始商轉,截至 2007 年 6 月 18 日,已屆滿 30 年的 設計壽命,但於 2007 年 12 月 11 日重新取得延役 10 年的運轉執照。2015 年 6 月 16 日, 在準備再次申請繼續運轉 10 年的執照同時,最終決定不申請第二次延役,Kori 1 號機 正式開始準備除役。

在 Kori 1 號機中,在反應器永久停機並將用過燃料從反應器壓力槽轉移到用過燃 料池後,反應器冷卻水系統將首先使用化學技術進行系統除污。主要藉由操作電廠的機 組設施進行系統控制,並利用化學品移除反應器冷卻水系統中部分污染的氧化薄膜及基 底金屬,建立驅動策略也是一個重要因素。

5.5.2 國外案例分析

Kori1 號機結構材料表面所形成的氧化層,係由鐵、鉻、鎳等金屬氧化物組成,為 了有效移除這些氧化層,必須依序施加氧化劑及還原劑。截至目前為止,商用核電廠除 污方法大致分為兩種,一種是 AREVA 開發的 CORD(化學氧化還原除污)技術,另一種 由 EPRI 開發的 DFD(除役用除污)技術。

表 1.2. 24 簡要摘錄美國 Maine Yankee、Connecticut Yankee 電廠及西班牙 Jose Cabrera 電廠的系統除污方法。Maine Yankee 電廠的除污目標是反應器冷卻水系統、餘熱移除系 統(RHRS)及化學和體積控制系統(CVCS),反應器壓力槽及蒸汽產生器則被排除在外。 由於該電廠僅依賴除污公司提供的泵來提供除污溶劑及系統水的循環動力,其流量較小 (300~650 gpm);而 Connecticut Yankee 電廠則是利用電廠的餘熱移除泵(2,000 gpm),來 提供除污及系統水循環運行。在這兩個電廠中,反應器壓力槽內都安裝蜘蛛狀噴嘴組件 (Nozzle Dam Spider Assembly)(如圖 1.2. 27 所示),以便將反應器壓力槽排除在除污流徑 之外。不同於 Maine Yankee 及 Connecticut Yankee 電廠,西班牙的 Jose Cabrera 電廠使 用反應器冷卻水泵建立除污流徑,將反應器壓力槽及蒸汽產生器都包含在除污流徑內, 在 Jose Cabrera 電廠,氦氣被加壓到調壓槽內,以提供反應器冷卻水泵運作所需的最小 有效吸入壓力(約 430 psig),且通過密封的注水管單獨供應純水,以保護反應器冷卻水 泵密封。此外,由於使用反應器冷卻水泵,通過反應器低溫管主管的除污劑及循環液可 充分提供給蒸汽產生器,使其亦可被包含在除污流徑中。

| | 電廠名稱 | | | | | | |
|----------|------------------|---------------------|--------------------|--|--|--|--|
| | Maine Yankee | Connecticut Yankee | Jose Cabrera | | | | |
| 除污技術 | DFD | CORD | DFD | | | | |
| 除污範圍 | RCS/PZR/CVCS/RH | RCS/PZR/CVCS/RHR(RP | RCS/PZR/CVCS/RHR | | | | |
| | R(RPV/SG bypass) | V bypass) | | | | | |
| 推動力 | 供應商的 pump | RHR Pump | RCP | | | | |
| 流率(gpm) | 300/650 | 1,800 | NA | | | | |
| 淨化床 | 供應商的設備 | CVCS+SFP Bed | 供應商的設備 | | | | |
| 淨化率(gpm) | 250/350 | 140 | NA | | | | |
| 溫度/壓力 | 195±10°F / - | 195±10°F / - | 200°F / 430psig | | | | |
| 温度控制 | 供應商的設備 | PZR Heater | RCP/RHR, RHR Hx | | | | |
| 壓力控制 | - | - | PZR N2 Purge | | | | |
| RCP 軸封保 | 隔離 | 隔離 | DI Water Injection | | | | |
| 護 | | | | | | | |
| 充水泵 | Bypass | Bypass | In-Service | | | | |

表 1.2.24 國際全系統除污摘要



圖 1.2. 27 Maine Yankee 蜘蛛狀噴嘴組件(Nozzle Dam Spider Assembly)

Connecticut Yankee 電廠及西班牙 Jose Cabrera 電廠在全系統除污過程中移除的金屬 及放射性數量,以及據此所計算的放射性(mCi/g)濃度,如圖 1.2. 28 所示。Connecticut Yankee 電廠的案例顯示,第一次除污的比活度值高於第二次,故可由此判斷,氧化薄膜 主要是在除污作業開始時移除,在後續循環中則是移除金屬基材;另一方面,Jose Cabrera 電廠的比活度遠高於 Connecticut Yankee 電廠,這可以解釋為,因為 Jose Cabrera 電廠 的除污流徑中包含一個輻射強度相對較高的反應器壓力槽。Jose Cabrera 電廠的應用結 果還有一個值得注意的地方是,雖然二期及三期只針對化學與體積控制系統及餘熱移除 系統等輔助系統,而不是反應器冷卻水系統,但比活度仍然很高,這可以解釋為放射性 核種在第一階段運作時,因除污流量不足使循環流量降低,而沈積在輔助系統中,若要 將反應器壓力槽包含在除污流徑中,確保有足夠的除污流量,將視為全系統除污是否成 功執行的不可或缺因素



圖 1.2.28 金屬及放射性移除量

5.5.3 Kori 1 號機全系統除污實施策略

藉由前述對國外案例的分析結果,來決定是否運用 Kori 電廠的設施進行全系統除 污,其全系統除污的應用概念說明如下。

5.5.3.1 全系統除污目標系統選擇

Kori1 號機要決定要使用全系統除污時,首先要確定的第一個因素是選擇除污目標 系統。在本文中,儘管在大容量設施中存在除污流徑問題,但考慮到反應器壓力槽、包 括反應器壓力槽、蒸汽產生器及調壓槽在內的整個反應器冷卻水系統後續易於切割等問 題,故先設定除污目標系統包括化學及體積控制系統以及餘熱移除系統,但若因現場條 件使某些設施無法使用,則將重新選擇目標系統及除污流徑。

5.5.3.2 提供循環流量的措施

當選定要除污的系統時,下一個要決定的因素是提供除污劑及系統水循環的方式。 從以往的國際案例中可以看出,Connecticut Yankee 電廠或西班牙 Jose Cabrera 電廠,都 選用餘熱移除泵或反應器冷卻水泵,而不是使用供應商提供的泵。而 Maine Yankee 電 廠因為採用除污公司提供的泵,在提供循環流量方面存在限制,故 Kori 1 號機在除污 過程中,考慮使用反應器冷卻水泵或餘熱移除泵作為提供循環流的方法。

首先,若Kori1 號機若是採用反應器冷卻水泵(~89,000 gpm)來進行除污,好處是 能提供除污流徑具備足夠的流體動力,讓反應器壓力槽及蒸汽產生器都能被涵蓋在內, 而不會發生除污劑混合不充分而導致除污效果變差的問題。

此外,為了操作反應器冷卻水泵,Kori1 號機的系統必須至少加壓到 370-427 psig, 而反應器冷卻水系統通常會利用在調壓槽上部產生氣泡來加壓,但是當使用調壓槽加熱 器時,調壓槽的溫度明顯升高,如果調壓槽的溫度升高,預期會出現有機酸分解導致除 污劑過度消耗的副作用,最重要的是,調壓槽無法連續提供噴霧,將因此被排除在除污 流徑之外,因此,與其在調壓槽上部形成氣泡,不如考慮在調壓槽的氣相空間供應氮氣, 作為對反應器冷卻水系統加壓的方式。

另一方面,若改用餘熱移除泵提供循環流來進行除污,反應器冷卻水系統及蒸汽產 生器主管道中的流量及雷諾數,如表 1.2. 25 所示,由於蒸汽產生器的流量不足,其流 速很慢(約 0.05 ft/s),將形成雷諾數 865 的層流,而難以進行有效的除污。

| | 流率(ft/s) | 雷諾數 |
|-------|----------|---------|
| 冷端 | 0.151 | 102,982 |
| 熱端 | 0.136 | 97,656 |
| 交界端 | 0.119 | 90,355 |
| 蒸汽產生器 | 0.052 | 865 |

表 1.2.25 操作 RHR 泵浦的流率及雷諾數

如上所述,反應器冷卻水泵的運作,是對整個系統包括反應器壓力槽及蒸汽產生器 在內進行除污的必要因素,在僅運作餘熱移除泵的情況下,則可能要考慮將反應器壓力 槽及蒸汽產生器從除污流徑上排除,未來將制定反應器冷卻水泵運作的壓力及溫度控制 計劃,若 Kori 1 號機現場的反應器冷卻水泵無法運作,將另定餘熱移除泵運作的除污 流徑及溫度控制計劃。

5.5.3.3 系統除污配置

表 1.2. 26 總結 Maine Yankee、Connecticut Yankee 及 Jose Cabrera 電廠使用的除污 系統,從該表可以看出,除污劑注入設備是一個共同所需的裝置,由於 Kori 1 號機 CVCS 系統中安裝的化學品注入槽容量僅為 5 加侖,故研判需要單獨製造除污劑注入設施。

| 電廠 | 設備 | 裝接位置 |
|--------------|-------------------------------|---------------|
| Maine Yankee | 供應商提供的泵浦 | SG(#2) Manway |
| | 加熱器 | Bypass Line |
| | 離子交換床 | |
| | 臨時屏蔽 | |
| | 化學品注入系統 | |
| Connecticut | 600kW 加熱器 | RHR 出ロ |
| Yankee | UV 燃燒器(3 組) | |
| | 化學品注入系統 | |
| Jose Cabrera | 離子交換床(30 ft ³ × 4) | CVCS 充水泵吸水端 |
| | 臨時屏蔽(150 gals × 12) | |
| | 化學品注入系統(300gals) | |

表 1.2.26 除污技術的系統比較

Maine Yankee 及 Jose Cabrera 電廠使用除污廠商單獨製造的離子交換樹脂柱, Connecticut Yankee 則使用電廠的現有設施,故電廠的離子交換樹脂柱可維持原本的使 用方式,不需要單獨的屏蔽設施,更換樹脂時,亦可比照電廠既有的更換程序,但考量 到系統除污進行時會消耗樹脂,樹脂更換次數可能更頻繁,若在更換樹脂時,遇到要使 用電廠設施,則難以快速應變,從優化除污技術的角度來看,可能會出現意想不到的情 況;另一方面,若離子交換樹脂柱是單獨製造的,則需要額外的設施,例如安裝單獨的 屏蔽牆以防止除污工人的輻射曝露。

除了這些優缺點外,在決定是單獨製造離子交換樹脂柱或是利用電廠的既有設施時, 最重要的是淨化率。Maine Yankee 電廠的情況,雖然除污公司提供的泵是在除污操作使 用,但與 Connecticut Yankee 及 Jose Cabrera 電廠相比,其能確保有更高的淨化率,據信 是因為使用供應商的的離子交換樹脂柱。與電廠本身既有的離子交換樹脂柱相連的 CVCS 出口管,可提供的最大淨化率通常在 120 gpm 左右,而 Connecticut 電廠即使裝 了增壓泵來增加淨化率,也只有大約 140 gpm。如果淨化率小,則除污半衰期延長,在 流速減慢的輔助系統中,會發生顆粒狀核種或金屬元素沈澱,且可能會形成熱點,Jose Cabrera 的案例證實了這一點,故可判斷 Kori 1 號機,最好使用單獨製造的離子交換樹 脂柱。Kori 1 號機的除污流徑總體積預估為 7,700 ft³,優化除污技術所需的流量建議約 為 1,000~1,500 gpm,在此流量範圍內,99% 的核種或金屬元素可以在 5 小時內移除(如 圖 1.2. 29 所示),除污流量雖然可以大於建議值,但設備的規模將會隨之增加,最好保 持適當的流量,如果單獨製造離子交換樹脂柱並連接到除污流徑,則能提供 1,000~1,500 gpm 流量的位置,被認為是餘熱移除泵的末端,Kori 1 號機的餘熱移除泵可提供的最大 流量為 2,000 gpm。未來將對 Kori 1 號機 O/H 期間對電廠進行現場檢查,以確定全系統 除污安裝的管道位置及安裝點。



圖 1.2. 29 Kori 1 號機全系統除污的最佳淨化率

5.5.4 結論與建議

Kori1號機將對包括反應器壓力槽、蒸汽產生器及調壓槽在內的整個系統進行除污, 會優先考慮使用反應器冷卻水泵,而為了能推動該泵運作,需要施加一定的壓力,故規 劃在調壓槽的氣相空間中填充氮氣,並判斷需要單獨供應純水,以盡量減少反應器冷卻 水泵密封的惡化,KHNP (韓國水電與核電公司)已在 2016 年前確定調壓槽上部空間的 供氮量及方式,到 2016 年完成保護反應器冷卻水泵密封的純水供應量與方式的具體規 劃。

同時,Kori1號機計劃在餘熱移除泵下游的管道上連接一個系統除污裝置,以確保 其運作時有足夠的淨化率,雖然除污化學品及離子交換樹脂柱數量、有機廢棄物處理方 案尚未確定,但除污系統與電廠系統的連接點及安裝位置等均已確定,將在 2016 年 Kori1 號機 O/H 期間於現場進行。

5.6 日本 JPDR (Japan Power Demonstration Reactor, 日本動力展示反應器)[7]

其分別在 4 個封閉式系統進行除污,如圖 1.2. 30 所示。各系統所採用的除污技術 內容及其達成之除污成效如表 1.2. 27 所示。



圖 1.2.30 JPDR 全系統除污及其除污因子示意圖

| | CAN- | NP 改良(硝酸高錳酸 | | 過量酸- | 流動磨料 |
|-------|----------|-------------|--------|-------------------|--------|
| 方法 | DECON | 鹽)/NS-1 法 | | Ce(IV) | |
| | 還原 | 預處理 | 還原 | 氧化還原 | 機械 |
| 溶劑/顆粒 | LND-101A | NP | NS-1 | $H_2SO_4+Ce^{4+}$ | B4C 顆粒 |
| -濕度 | 0.1 % | 0.6 % | 0.7 % | 0.25 M | - |
| -溫度 | ∼120°C | ∼120°C | ∼120°C | 2mM | 室溫 |

表 1.2. 27 JPDR 全系統除污成效

| -耗時 | 24 h | 6 h | 24 h | 70∼80°C | 35 h |
|------|---------|-----------------|-------|-----------|-------------|
| -流量 | 1 m/s | 1 m/s | 1 m/s | 106 h | 4.8~6.7 m/s |
| | | | | 0.3 m/s | |
| 溶劑處理 | 陽離子樹脂 | 魚 | | 電解還原 | 無 |
| 廢棄物處 | 混合樹脂 | 反滲透 | | 電滲析 | 過濾 |
| 理 | | | | 混合樹脂 | |
| 除污因子 | 3~90 | 90 ~ 740 | | 300~1,200 | 200~1,660 |
| | (Ave.9) | (Ave.520) | | (Ave.900) | (Ave.1,100) |
| 廢棄物型 | 過濾樹脂 | 冷凝液 | | 冷凝液 | 研磨性污泥 |
| 式 | | (佔管道總容積的 15%) | | 離子交換薄膜 | 過濾器 |
| | | 反滲透薄膜 | 模組 | 過濾器 | |

5.7 濱岡核電廠 1 號機及 2 號機的系統除污案例(Hamaoka Nuclear Power Station)[7、17] 日本濱岡沸水式核電廠, 1 號機及 2 號機發電功率分別為 540MWe 與 840MWe, 雨部機組預計在 30 年間(2009-2036)分四個階段實施除役計畫(如圖 1.2. 31 所示)。



圖 1.2.31 濱岡核電廠除役計畫時程

各階段主要工作說明如下,目前已進入第二階段,正在進行「反應器周邊區域的拆 除及移除」。

- 5.7.1 第一階段主要工作(拆除作業準備期間)
 - 燃料排放:將所有燃料運出1號、2號機組建築物
 - 污染狀況調查:調查設備的放射性活度類別(污染狀態),以決定拆除時機、制 定拆除方法,並評估拆除會產生的廢棄物量
 - 系統除污:圖 1.2.32 顯示濱岡核電廠除役第一階段系統除污範圍,使用化學
 品清除附著在管道與及壓力槽上的放射性物質,要除污的系統包括
 - 反應器冷卻水再循環系統
 - 反應器冷卻水淨化系統
 - 反應器壓力槽
 - 餘熱移除系統



圖 1.2.32 濱岡核電廠除役第一階段系統除污範圍

• 在輻射控制區外,按順序拆除並移除設備

5.7.2 第二階段主要工作(反應器區外圍設備拆除並移除期間)

圖 1.2.33 及圖 1.2.34 顯示濱岡核電廠除役第二階段拆除範圍:

- 依序拆除並移除反應器區外圍的低放射性設備,包括汽機廠房內的設備及反應器廠房內的反應器冷卻系統設施。
- 廠房的拆除及移除作業包括:1號機惰性氣體滯留系統廠房及排氣煙囪



圖 1.2.33 濱岡核電廠除役第二階段拆除範圍(1/2)



圖 1.2.34 濱岡核電廠除役第二階段拆除範圍(2/2)

5.7.3 第三階段主要工作(反應器區拆除並移除期間)

要拆除並移除的反應器區域包含:反應器壓力槽及其周圍的輻射屏蔽。

5.7.4 第四階段主要工作(拆除並移除廠房期間)

拆除並移除所有因先前拆除或移除作業而停止運作的設備及廠房等:除役設施拆除 並移除後的空地,將繼續被管理以作為監視濱岡核電廠的區域。

5.7.5 除役期間的系統除污

系統除污的目的,係對圍阻體內的高劑量管道進行除污,以盡可能減少在其內部工 作期間的劑量曝露,這是在準備拆除作業期間進行污染狀況調查的一部分。圖 1.2.35 為 濱岡核電廠第一及第二階段除污系統示意圖:

第一階段(2010 年度)除污的系統包括:PLR、CUW、RHR



圖 1.2.35 濱岡核電廠第一及第二階段除污系統示意圖

- 圖 1.2.36 為再循環系統的一次側主迴路系統除污範例,其中:
 - (1) 管道部份:化學除污及噴射清洗
 - (2) 界面閥部份:機械除污



5.7.5 總結

濱岡核電廠的除役作業分為四個階段,第一階段系統除污的結果,經過除污的組件 的空間劑量率大幅下降,如圖 1.2. 37 所示。二期正在進行拆除及移除反應器區外圍設 備,並對反應器壓力槽(包括爐心內部組件)進行除污。



圖 1.2.37 第一階段系統除污成效

5.8 AREVA 除污技術應用實例[14]

AREVA 開發的 CORD 系列化學除污技術,可應用於 BWR 及 PWR 電廠,其典型的應用範圍,如表 1.2.28 所示。

| 應用類型 | BWR 電廠 | PWR 電廠 |
|----------|-------------------------|--------------------------------|
| | • RWCU | • RCS |
| 子系統/組件除污 | • RRS | • Regenerative Heat Exchangers |
| | Recirc pumps | • CVCS |
| | • RHR | • Pressurizer |
| | Spent Fuel Pool Cooling | Pressurizer Spraylines |
| | | • Steam Generator |
| 全系統除污 | • 除役的核電廠 | |
| | • 運轉中的電廠 | |

表 1.2. 28 AREVA 的化學除污技術應用範圍

其中,全系統除污是快速、大量減少主要及輔助系統與 D&D 計劃相關的劑量曝露,以便在除役作業期間能完美達到 ALARA 的目標,且經由離子交換樹脂管理的改

| PWR | | | | | | | | |
|-------------|--------------------|---------------|--------------|--------------|--|--|--|--|
| 雷应夕轮 | | UNTERWESER | NECKARWESTH | GRAFENRHEINF | | | | |
| 电敞石柟 | CHOOZ-A | (KKU) | EIM-1 (GKN1) | ELD (KKG) | | | | |
| 原始設備 | Westinghouse | SIEMENS KWU | SIEMENS KWU | SIEMENS KWU | | | | |
| 製造商 | westinghouse | (AREVA) | (AREVA) | (AREVA) | | | | |
| 類型 | PWR-4 迴路 | PWR-4迴路 | PWR - 3 LOOP | PWR - 4 LOOP | | | | |
| 领丛土 | 法国家力八司 | EON (PREUSSEN | EnDW | PREUSSEN- | | | | |
| 經宮有 | 法 國 电 月 公 可 | ELEKTRA) | LIID W | ELEKTRA | | | | |
| 容量 | 305 MWe | 1410 MWe | 860 MWe | 1275 MWe | | | | |
| 運轉期間 | 1967-1993 | 1979-2011 | 1976-2011 | 1975-2015 | | | | |
| D&D 規畫 | SAFSTOR-組件 | EARLY-FSD | EARLY-FSD | EARLY-FSD | | | | |
| | • SAFSTOR 後的 | • 德國除役電廠 | • 獲益於 KKU | • 德國第一個執 | | | | |
| | 除污 | 的第一個 FSD | 的應用經驗,使 | 行 2 項 FSD | | | | |
| | • 未操作主冷卻 | • 平均 DF>9 | 除污時間縮短 | 的電廠 | | | | |
| | 水迴路 | • 總劑量 75 mSv | 成 25 天(KKU | • 詳細結果尚未 | | | | |
| 除污計畫 | • 組件需要逐一 | | 為35天) | 公佈 | | | | |
| 重點 | 處理 | | • 離子交換樹脂 | | | | | |
| | • 進行氧化物及 | | 的廢棄物量節 | | | | | |
| | 基底金屬移除 | | 省 20% | | | | | |
| | | | • 平均 DF>80 | | | | | |
| | | | • 總劑量 61 mSv | | | | | |
| | | BWR | | | | | | |
| 雪麻夕稱 | ISAP 1 (KKII) | KRÜMMEL | | | | | | |
| 电敞石研 | ISAR-I (KKII) | (KKK) | | | | | | |
| 原始設備 | SIEMENS KWU | SIEMENS KWU | | | | | | |
| 製造商 | (AREVA) | (AREVA) | | | | | | |
| 類型 | BWR | BWR | | | | | | |
| 领丛女 | EON (PREUSSEN- | VATTENIEATI | | | | | | |
| 姓名 有 | ELEKTRA) | VALLENTALL | | | | | | |
| 容量 | 912 MWe | 1402 MWe | | | | | | |
| 運轉期間 | 1977 - 2011 | 1984 - 2011 | | | | | | |
| D&D 規畫 | EARLY - FSD | 目前處於停工狀態 | | | | | | |
| 除污計畫 | • 除役 BWR 的第 | • 德國最大的 | | | | | | |

表 1.2. 29 AREVA 的化學除污技術應用實蹟[15]

| 重點 | | 一個 FSD | | BWR 核電廠 | |
|----|---|-----------|---|----------|--|
| | • | 材料混合:不銹 | • | 材料混合:不銹 | |
| | | 鋼+碳鋼 | | 鋼+碳鋼 | |
| | • | 針對 RPV 內部 | • | RPV 內部組件 | |
| | | 組件的除污 | | 的除污非常成 | |
| | • | 因為蒸汽乾燥 | | 功 | |
| | | 器的高 DF,使 | • | 採用高容量樹 | |
| | | 乾式切割技術 | | 脂可顯著減少 | |
| | | 可行,而不是在 | | 廢棄物量 | |
| | | 水下切割 | | | |
| | • | 包含高容量樹 | | | |
| | | 脂認證在內的 | | | |
| | | 減容技術 | | | |
| | • | CORDP的應用 | | | |

UNTERWESER (KKU)及 NECKARWESTHEIM-1 (GKN1)核電廠,分別於 2012 與 2013 年進行全系統除污,其除污的基本資料,如表 1.2.30 所示。其 FSD 整體成效,如 表 1.2.31 所示。

| 基本數據 | NPP Unterweser | NPP Neckarwestheim-1 |
|-------------|---|---|
| 反應器類型 | PWR, 4 Loop, 1410 MWe | PWR, 3 Loop, 840 MWe |
| 除污範圍 | Primary Circuit / 4 RHR Systems / CVC System | Primary Circuit / 2 RHR Systems / CVC System / RWCU System |
| 輔助系統 | RCS / WWTS / NES / RWCU | RCS / WWTS / NES / RWCU |
| 總表面積 | 22.500 m ² (~ 278000 ft ²) | 18.000 m ² (~ 194000 ft ²) |
| 系統總體積 | 540 m ³ (~ 142000 gal) | 360 m ³ (~ 95100 gal) |
| 反應器冷卻劑泵供應商 | KSB | Andritz |
| 經營壓力 | ~ 21 bar (~ 300 psi) | ~ 26 bar (~ 375 psi) |
| 工作溫度 | 60 - 95 °C (140 - 200 °F) | 60 - 95 °C (140 - 200 °F) |
| AMDA 連接點 | RHR 30 / 40 | RHR 10 / 20 |
| 申請時間 | 35 days | 25 days |
| 現場活動的集體輻射暴露 | 70 mSv | 61 mSv |

表 1.2. 30 KKU 及 GKN1 核電廠 FSD 基本資料說明

| | NPP | NPP Neckarweetheim 4 |
|----------------------|--------------------------|--------------------------|
| 活性和腐蝕產品已移除 | (KKU) | (GKN1) |
| 腐蝕產物 (Fe, Cr, Ni) | 459 kg | 260 kg |
| 移除活度總量 (> 99% Co-60) | 9.1 E+13 Bq (2,460 Ci) | 1.1 E+13 Bq (297 Ci) |
| | | |
| 整體除污因子 | 94.5 (83 MP) | 81 (66 MP) |
| 一次側迴路DF (Loop & PZR) | 158 (26 MP) | 31 (20 MP) |
| 蒸汽產生器的汽渦輪區DF | 147 (16 MP) | 224 (15 MP) |
| 輔助系統DF (RHR / CVCS) | 35 (41 MP) | 44 (31 MP) |
| 廢棄物 | | |
| 離子交換樹脂 | 21 m³ (planned 23 m³) | 11 m³ (planned 15 m³) |

表 1.2. 31 KKU 及 GKN1 核電廠的 FDS 應用成果

MP = measuring point

(六)研究成果及管制相關建議

本子項主要彙整核電廠除役時的典型除污工作項目(封閉式系統與開放式系統)所 採取之除污技術及廢棄物管理方面的考量,並持續蒐集各國除役核電廠之相關應用實例, 綜合整合研析,相關重點成果及管制建議如下。

6.1 除污技術方面

由於使用某些化學除污技術時可能有氣體副產物生成,在封閉系統除污使用時需前 置考慮,避免過量氣體壓力累積超過除役中系統結構體的承受度;選用在封閉系統內製 備泡沫的技術時,應格外小心,因系統受到加壓,使得反應速率不斷提高,一旦產生的 氣體量大於洩壓設定點,將使系統因壓力過高而破裂,或應在設備加裝洩壓閥,以避免 發生意外。

針對除役,所需的額外技術指引建議還包括[3]:

- 拆除前為了降低劑量率-採用全系統除污
- 處理形狀複雜的組件-採用化學除污
- 處理形狀簡單的組件-採用磨料/砂礫噴射或電化學除污
- 進行工具或輕微污染零件除污-採用高壓水噴射、人工清潔或其他機械技術
- 除污後移除殘餘的"熱點"-採用:研磨或刷洗等機械技術
- 有助於物料的疏散路徑-將金屬融化

實施除污技術所獲取的經驗,涉及以下觀點:

通常必須結合數種除污技術,而非僅只用一種特定技術。

 必須事先評估,以優化計畫所需的除污需求,像是劑量吸收、二次廢棄物的產 生與處置等問題,都可能會造成影響。

- 如果不與劑量吸收、成本及廢棄物處理路線的優化衝突,則首選現場除污。
- 目前化學除污技術仍用於特定案例,應努力擴大現有技術的直接適用性。
- 用於除污的絕大多數技術都是專有的,在此情況下,在選定某種除污技術前, 必須特別留意該特定化學溶液的性能及其廢棄物的分析結果。
- 對於封閉式系統,一階段除污及處理技術,通常產生的二次廢棄物數量最少。
- 6.2 廢棄物管理方面

在選擇除污方法時,安全性、輻射防護、產生的廢棄物與廢液,以及整體效率等方 面至關重要,在處理這些二次廢棄物[3]時,必須確認是否具備處理除污後產生的化學溶 劑、氣溶膠、殘渣等二次廢棄物的設施,且最終產物(例如包裝、除污的廢水等)必須符 合最終處置要求。特別值得注意的是,由於除污技術中,會將最終廢棄物集中,而成為 重要的輻射源。運用適當的管理策略及使用機器人,可以將放射性較高的部份分離出來, 廢棄物數量可大幅減少。

所有廢棄物管理過程中,遵守適用的安全與放射防護法規,是必須考慮的最主要因 素,次要目標則是盡可能使需要處置的材料數量降低,才能讓放射性核種的遷移率最小 化,並依照所具有的放射性類型(含α、不含α、低、中或高放射性強度),最小化廢棄 物數量及其流動性,並對廢棄物進行隔離,以達到安全性與經濟處置的最佳組合。

許多電廠會同時產生放射性廢棄物及其他危險性廢棄物,制定有害物質特徵計劃, 能提供影響這些材料在處理、調理、包裝、儲存及最終處置的重要見解。如果要在現場 臨時存儲放射性廢棄物,則應規定廢棄物的數量、預計的儲存時間、儲存區的位置,出 入口的輻射強度,以及管制的方式。除役期間管理放射性廢棄物的方法,通常與電廠在 運轉、維護及翻新期間所採用的方法類似,但所採用的方法,可能要因應廢棄物流的龐 大數量及特性,而必須作一些調整。

6.3 國外電廠經驗回饋方面

德國 Stade 之經驗顯示[12]在某些情境下,二次廢棄物量很大,因此,除污並非愈 乾淨越好,宜視最終之使用目的,在除污效果與廢棄物產量之間取得平衡。德國 Stade 核電廠的除污經驗顯示使用 NP 技術進行全系統化學除污,但沒有進行 UV 分解化學藥 劑,最終廢棄物量將達 60 m³。因此,除污技術之使用需確知處理及調節二次廢棄物的 能力,除污化學藥劑之再生或分解可減少二次廢棄物的產量。

除役的 FSD 應在核能電廠關閉後直接進行,以確保電廠內仍有熟悉系統與操作知 識經驗豐富的人員,及維持電廠所有系統的功能及可用性。

進行全系統化學除污所涵蓋的系統,必須考量驅動化學試劑的動力是否足夠,韓國 Kori核電廠的除污經驗顯示,反應器冷卻水泵的運作,是對整個系統包括反應器壓力槽 及蒸汽產生器在內進行除污的必要因素,在僅運作餘熱移除泵的情況下,可能要考慮將 反應器壓力槽及蒸汽產生器從除污流徑上排除。

決定是單獨製造離子交換樹脂柱還是利用電廠的既有設施時,最重要的是淨化率, 如果淨化率小,則除污耗時長,在流速減慢的輔助系統中,會發生顆粒狀核種或金屬元 素沈澱,且可能會形成熱點。

參考文獻

- "110 年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全評估及相關特性分析",券務 採購案服務建議書,行政院原子能委員會,110年4月。
- 2. "核一廠除役計畫",行政院原子能委員會,2019年9月。
- 3. Lawrence E. Boing, Manila, Philippines, "Decommissioning of Nuclear Facilities Decontamination Technologies," IAEA, Oct. 2006.
- 4. Dismantling Techniques, Decontamination Techniques, Dissemination of Best Practice, Experience and Know-how | Final Report, June 2009
- "核電廠除役管制各階段工程技術與分析應用研究-子項計畫三:除污策略和技術彙 整",行政院原子能委員會委託研究計畫期末報告,108年12月。
- "109 年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全評估及相關特性分析-子項計畫
 一:核電廠除役期間除污策略和技術彙整",行政院原子能委員會委託研究計畫期
 末報告,109年12月。
- Satoshi Yanagihara, "Planning, Technical Issues, and Practical Experiences of Decontamination Activities," 2018 Sino-Japanese Workshop on NPP Decommissioning Technology, Sep. 12, 2018
- Maurizio Cumo, "Decommissioning of Nuclear Plants," Handbook of Nuclear Engineering, Volume 5 Fuel Cycles, Decommissioning, Waste Disposal and Safeguards, Aug. 2010.
- 9. Samson Hettiarachchi, Menlo Park, "BWR Decommissioning General Information and Experiences," Advanced Nuclear Technology International, Dec. , 2017
- "除役核電廠低放射性廢棄物安全管制之審查技術研究",行政院原子能委員會放射 性物料管理局委託研究計畫期末報告(修訂版),107年6月。
- 11. Dr. C. Stiepani, Full System Decontamination of the PWR Stade prior to Decommissioning, Wolfgang Schappert, 2006
- Full System Decontamination with HP/CORD® UV for Decommissioning of the German PWR Stade, 18th International Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology (SMiRT 18), Beijing, China, Aug. 7-12, 2005
- Full System Decontamination(FSD) with the CORD® Family prior to Decommissioning
 Experiences at the German NPP Obrigheim 2007, Interlaken, Switzerland, 20-26 Sep., 2008, Paper No. 219
- 14. Dr. Christian Topf, Kayla Harper, "Full System Decontamination Prior to Decommissioning," ISOE ALARA Symposium, Jan. 11-13, 2016, Restricted AREVA.
- 15. Luis SEMPERE BELDA, "Decontamination in Preparation for Dismantlement," Sarpsborg, February 8th 2017.
- Full System Chemical Decontamination Concept for Kori Unit 1 Decommissioning, Doo Ho Lee, Hyuk Chul Kwon, and Deok Ki Kim, Journal of Nuclear Fuel Cycle and Waste Technology Vol.14 No.3 pp.289-295, Mar. 29, 2016

17. Radiation Control in the Decommissioning Work at Hamaoka Nuclear Power Station, CHUBU Electric Power, Oct. 25, 2018.

三、電化學技術應用於沸水式反應器(Boiling Water Reactor, BWR)環境下 不銹鋼表面的除污研究開發。

(一) 前言

據全球知名市調研究機構 Markets & Markets 的研究報告顯示全球核電廠除役市場 規模預估到了 2021 年會成長至 85.5 億,從 2016 年至 2021 年年均複合成長率(Compound Annual Growth Rate, CAGR)成長了12.1%。美、日、歐盟等國隨著除役機組逐年增加, 核能業者逐步發展出核能除役產業,並且跨國合作提供除役服務。台灣隨著核電機組陸 續停止運轉,如能開發除役相關技術,再加上經驗累積,也將有機會協助他國核電廠除 役,拓展國際貿易。其中的除污(decontamination)技術是電廠除役過程中最重要的工作, 污染物的特性與污染體本身與表面性質相關,在反應器內部表面的放射性污染通常是來 自爐水中被活化的粒子與溶解的元素、分裂產物以及從失效的燃料護套釋出的超鈾元素, 隨著水流沉積於管件內部表面後變成氧化層的一部分。污染層的複雜結構,取決於冷卻 水化學、形成的溫度、系統材料與運轉時間等因素。在長時間的運轉下,污染層的放射 性元素可能擴散至基材或是沿著晶界穿透管件。輕水式反應器除了接近爐心區域有組件 活化的問題外,管件內部表面形成兩種形態的氧化層,一是基材本身腐蝕產生的內部氧 化層,另一種是透過爐水沉積或沉澱的 CRUD,較為鬆散的外部氧化層。大部分的核種 都是存在於管件/設備內部的氧化層中,除污時通常是連同氧化層一同溶解或是移除放 射性物質,可利用化學、物理或是其他方法去除組件、系統與結構內外的表面放射性物 質,依據除污表面的特性進行選擇。

除污技術根據原理可分為化學除污、電化學除污、機械除污、熔融除污、生物除污 等方式。近年來除污技術發展方向希望可以縮短除污時間、提高除污效果與減少廢料與 廢棄物含量。在上述除污技術中,電解拋光技術是一項成熟的工業技術,表面粗糙度可 維持在 0.02~0.03 mm 之間,可用於除污上,核能工業因此開始發展電化學除污技術。 電化學除污是基於電解拋光的原理,將金屬組件浸沒在具有腐蝕性的化學電解液中並借 助電場幫助,待除污物件作為陽極,透過電解反應,使待除污表面均勻溶解,可以快速 且均勻地清除金屬組件的放射性污染物,除污所需時間較短且其除污因子相對較高,電 解質可透過重複使用或是透過其他技術再生使用,因此產生的二次廢棄物較少。

108年的除污技術研析主要針對化學除污的部分進行探討,化學除污通常是對無孔 隙表面最有效,化學溶液的選擇會與基材/污染物的化學性質、處理過程產生的廢棄物 處理有關。針對 LOMI Family、CORD、CAN-DECON、CITROX 等的 Multiphase treatment processes 除污技術。109年主要針對機械除污、熔融除污、生物除污與複合技術等進行 研析。110年主要希望透過模擬 BWR 電廠運轉環境下形成的氧化層,包含基材本身腐 蝕產生的內部氧化層與透過爐水沉積的 CRUD 外部氧化層來進行電化學除污技術的研 究,包含電解條件的控制、電解液的種類與材料的差異等因子。 (二) 研究方法

本研究希望透過模擬 BWR 電廠運轉環境下形成的氧化層,包含基材本身腐蝕產 生的內部氧化層與透過爐水沉積的 CRUD 外部氧化層來進行電化學除污技術的研究, 針對不同的材料進行電化學除污技術的初步測試。

2.1 試片

本實驗所使用材料是沃斯田鐵系 304 不銹鋼平板試片,尺寸為 20×20×2 mm,以及 母材 304 不銹鋼與銲材 82 鎳基合金的異材銲件,尺寸為 20×20×2 mm。另外,也包含碳 鋼試片,尺寸為 20×20×2 mm。試片成分分析如表 1.3.1~表 1.3.4。

異材銲件製備方式為一厚度為 16 mm 的 304 不銹鋼板材作為母材,在板材中央切 出雙Ⅴ凹槽銲接填入 82 鎳基合金,銲接完成後裁成長 25 mm,寬 16 mm,厚度為 2 mm 的異材銲件作為實驗試片,如圖 1.3.1 所示。

| 表 1.3.1 304 个鎊鋼平板試片的組成成分 | | | | | | | | | |
|--------------------------|------|-------|-------|------|------|------|------|------|-------|
| Element | Fe | С | Cr | Ni | Mn | Si | Р | Ν | S |
| Mass% | Bal. | 0.016 | 18.24 | 8.03 | 1.35 | 0.49 | 0.01 | 0.06 | 0.004 |

表 1.3.1 304 不銹鋼平板試片的組成成分

| Element | Fe | С | Cr | Ni | Mn | Si | Р | Ν | S |
|---------|------|------|-------|------|------|------|------|------|------|
| Mass% | Bal. | 0.02 | 18.28 | 8.16 | 1.47 | 0.49 | 0.01 | 0.05 | 0.01 |

表 1.3.2 異材銲件之母材 304 不銹鋼的組成成分

表 1.3.3 異材銲件之銲材 82 鎳基合金的組成成分

| Element | Ni | Fe | Cr | Mn | Si | Cu | Ti | Nb | Со |
|---------|------|------|-------|------|------|------|------|------|------|
| Mass% | Bal. | 1.41 | 20.50 | 3.12 | 0.13 | 0.11 | 0.36 | 2.01 | 0.04 |

| Element | Fe | С | Cr | Ni | Mn | Si | Р | Ν | S | |
|---------|------|-------|----|----|------|----|-------|---|-------|--|
| Mass% | Bal. | 0.010 | - | - | 0.40 | - | 0.030 | - | 0.020 | |

表 1.3.4 碳鋼平板試片的組成成分



圖 1.3.1 異材銲件製備示意圖

2.2 試片熱處理

304 不銹鋼平板試片封於石英管內以避免與空氣接觸造成快速氧化,接著放進高溫 爐內進行固溶熱處理,熱處理溫度為 1050 ℃,持溫 40 分鐘後以水淬方式快速降至常 溫,此目的為消除冷加工應力與元素均質化。後續再依需求進行敏化處理,敏化熱處理 溫度為 650 ℃,持溫 24 小時後以爐冷方式緩慢冷卻降至常溫。

試片在熱處理後或是高溫氧化處理前,利用碳化矽砂紙磨除表面氧化層,砂紙尺寸從80號磨至2500號,使表面研磨均勻,後續進行電化學除污或預長氧化層之步驟。

2.3 預長氧化層

進行電化學除污前,因試片透過模擬輕水式反應器環境來預長氧化層,其氧化層厚 度約在 1µm 左右,不適合用於後續電解實驗,於是採用高溫爐管來模擬金屬材料形成 緻密氧化層的結構,後續利用電鍍方式長成鬆散結構的氧化層,以模擬管件表面具有雙 層結構的氧化膜試片。本研究之預長氧化層分為高溫氧化層與電鍍氧化層兩種方式,以 下將個別介紹其製備方法:

2.3.1 高溫氧化層

模擬基材本身腐蝕的氧化層是利用高溫爐與其前端的三口燒瓶配合加熱包組成的 水氣加濕裝置,如圖 1.3.2 所示,其中水氣加濕裝置中的水加熱至 97.5 ℃,並透過高壓 純氧氣瓶經由流量控制器以流量 60 cc/min 將氧氣打入三口燒瓶中的水中,讓濕氧氣通 入高溫爐中,讓 304 不鏽鋼試片在置於 750 ℃濕氧環境下 24 小時,在此環境下除了基 材表面生成氧化層外,基材也同時被敏化,碳鋼試片則是在純氧 700℃、200cc/min 環境 下生長1小時。



圖 1.3.2 高溫爐管裝置示意圖

2.3.2 電鍍氧化層

模擬沉積氧化層是透過電鍍方式,將氧化層電鍍到試片上,電鍍參數與電解液製備 是根據電鍍磁鐵礦(Magnetite)之相關文獻,此電鍍法適用於電鍍在不銹鋼[1]、鎳基[2]、 碳鋼[3]基材上,其中電鍍於鎳基上文獻中,有提到電鍍至鎳基上之磁鐵礦可以透過在鹼 性溶液中浸沒 50 天,模擬出類似核電廠組件之多孔隙氧化層,但本實驗並未在電鍍後進行此步驟。

試片透過電化學儀器(CH Instruments 1140A)之三極式系統,對試片施予-1.05 Vsce 之恆電位電鍍2小時,電鍍配置如圖 1.3.3 所示。參考電極採用飽和甘汞電極。以白金 網作為輔助電極。電鍍液製備與電鍍步驟如下:

1. 將 5.16 g 硫酸鐵(III)水合物溶解在 30 ml 的 1 M TEA(三乙醇胺)水溶液中

2. 上述溶液均匀混合後, 加 100 ml 水稀釋

3. 將上述 130 ml 之稀釋溶液滴入 2 M NaOH 170 ml 水溶液中

 電鍍前將此 0.043 M Fe₂(SO₄)₃, 0.1 M TEA, and 2 M NaOH 濃度之 300 ml 溶液 加熱至 84 ℃,完成電鍍液製備

 電鍍參數以-1.05 Vsce之恆電位模式電鍍2小時,過程中電解液維持在84℃, 並用磁石均勻攪拌(300 rpm)。

化學反應式如下:

電化學還原反應: $Fe(OH)_4TEA_2^- + e^- \rightarrow Fe(TEA)_2^{2+} + 4OH^-$ 化學還原反應: $2Fe(OH)_4TEA_2^- + Fe(TEA)_2^{2+} \leftrightarrow Fe_3O_4 + 6TEA + 4H_2O$ 總反應: $3Fe(OH)_4TEA_2^- + e^- \rightarrow Fe_3O_4 + 6TEA + 4H_2O + 4OH^-$



圖 1.3.3 電鍍配置圖

2.4 電化學除污槽設置

試片透過二極系統進行電解,以電源供應器之正極接上試片作為陽極,負極接上U 型白金網作為陰極,試片放置於U型白金網之凹槽正中央,且試片與白金網平行,此設 置是為了確保試片兩面蝕刻速率一致。將兩極放入電解槽中,以磷酸水溶液作為電解液, 並透過循環水浴使電解液溫度維持在 30℃或 60℃左右,進行 10 A 定電流模式的電解。 使用的直流電源供應器為 300 W 的 Gophert 3010,參數設定在 10 V 與 10 A,因為整體 迴路阻抗隨著試片電解產生變化,故電流維持在定電流 10A(電流密度:2.5 A/cm²), 電壓則介於 7~8 V 之間。另外,選擇電解液溫度 60 ℃以探討升溫對除污效益之影響。 電化學除污配置如圖 1.3.4 所示。



圖 1.3.4 電化學除污槽配置圖

2.5 試片表面分析

氧化層的性質與表面形貌將透過掃描式電子顯微鏡(Scanning Electron Microscope, SEM)、拉曼散射光譜、X 光繞射來進行分析。本研究藉由掃描電子顯微鏡對預長氧化 層與除污後試片表面形貌進行觀察,並搭配能量色散射 X 光(Energy-dispersive X-ray spectroscopy, EDX)分析氧化層含有的元素比例進行定性分析。此外,氧化層厚度分析 是將試片鑲埋進行剖面 SEM 與 EDX 分析,主要透過氧元素與鐵或銘元素分佈判斷氧 化層厚度。本研究使用的電子顯微鏡之規格為日本 JEOL 公司所生產之 JSM-7610F 熱 場發射電子顯微鏡。

本研究使用拉曼散射光譜分析氧化層組成結構,分析後的光譜與氧化層拉曼分析的 相關文獻[4][5][6]進行比對,推斷高溫氧化層與電鍍氧化層的組成結構。拉曼散射光譜 之配置為 632.8 nm 波長之激發雷射,輸出功率為 35 mW,物鏡聚光點尺寸(spot size)約 為 10.6 µm。

另外,利用 X 光繞射實驗分析得知繞射峰的位置(2θ),再經由 JCPDS 資料庫進行 比對,判斷高溫處理氧化層的結構。本研究使用國立清華大學貴重儀器的 X 光粉末繞 射儀,使用波長為 0.15406 nm 的 Cu-Kα X 光,掃描角度為 20°~80°。

2.6 重量與厚度分析

本研究以微量天秤量測電解過程中的試片重量變化,微量天秤之有效位數為小數點 後第四位(單位:公克)。在電解氧化層的過程中,每電解10秒量測一次重量,至少記錄 四次(包含電解前的重量)。為了比較基材與氧化層的重量變化差異,當試片表面的氧化 層全部去除後會再多進行電解 3 分鐘,每電解 1 分鐘量測一次重量,也是至少記錄四 次。電解 304 不銹鋼試片的每個條件會重複一次,確認其再現性,並將兩次的重量變化 取平均與標準差。

以厚度計量測電解過程中的試片厚度變化,厚度計測量方式為透過上下均為直徑3 mm之金屬半球以1.5N夾著試片,測量點面積略小於1mm²,厚度最小讀值為1µm, 精度為3µm,厚度計規格如圖1.3.5所示。測量位置為正中心、邊與角3個位置,量測 點之間最近距離約為5mm。異材銲件同樣也測量正中心位置(82合金),以及距離正中 心下方2mm的位置(304不銹鋼)與距離正中心下方5mm的位置(304不銹鋼),測量位 置為圖1.3.6中黃色圓圈。







圖 1.3.6 厚度測量位置(a)304 不銹鋼/碳鋼 (b)異材銲件

(三) 實驗結果與討論

本研究結果首先分析 304 不銹鋼與異材銲件 82 合金表面氧化物的性質,接著探討 因電解效應造成的影響。探討不同磷酸濃度對 304 不銹鋼電化學除污的影響。針對異材 銲件的部分,探討在 40wt%磷酸濃度對異材銲件除污的影響,不同的電解液溫度對於蝕 刻速率的影響。

3.1 試片氧化層表面分析

以下將個別針對 304 不銹鋼、82 鎳基合金與碳鋼的氧化層結構與氧化層厚度進行 分析結果的說明。

3.1.1 氧化層結構

3.1.1.1 304 不銹鋼

圖 1.3.7 為高溫氧化的 304 不銹鋼(模擬基材本身腐蝕的氧化層)表面形貌,由於試 片長時間處於高溫爐濕氧之氧化環境,試片表面有局部剝落情形。根據 EDX 分析,外 層為易剝落之鐵氧化物,內層為平坦且緻密的鐵鉻氧化物。



圖 1.3.7 高溫氧化 304 不銹鋼表面形貌 (a)大範圍區域(低倍率);(b)局部顆粒區域(高倍率);(c)局部平坦區域(高倍率);(a1~c3)各成分分佈情形

圖 1.3.8 為電鍍氧化層的 304 不銹鋼 (模擬沉積氧化層)表面形貌,表面均勻分佈著 緻密的鐵氧化物,且形貌與文獻之結果非常相似[1]。在高溫氧化處理的 304 不銹鋼上 電鍍氧化層以模擬複合氧化層結構的表面形貌也同樣觀察到相同氧化層結構,如圖 1.3. 9。

根據圖 1.3. 10 的拉曼分析結果與圖 1.3. 11 的 XRD 分析結果,高溫氧化 304 不銹 鋼的外層氧化層結構為 Fe₂O₃,內層結構為 FeCr₂O₄。電鍍氧化層 304 不銹鋼經圖 1.3. 10 拉曼分析結果,結構為 Fe₃O₄。



圖 1.3.8 電鍍氧化層 304 不銹鋼之表面形貌(a)大範圍區域(低倍率);(b)局部顆粒區域(高倍率);(b1 與 b2)氧與鐵元素分佈情形



圖 1.3.9 複合氧化層 304 不銹鋼之表面形貌 (a)大範圍區域(低倍率);(b)小範圍區域(高 倍率);(b1 與 b2)氧與鐵元素分佈情形



圖 1.3.10 304 不銹鋼拉曼分析結果



圖 1.3.11 304 不銹鋼 XRD 分析結果

3.1.1.2 82 合金

圖 1.3. 12 為高溫氧化的異材銲件在 82 合金區域的表面形貌,根據 EDX 分析,表面均勻分佈 O、Ni、Cr、Fe、Mn 元素訊號,表面也觀察到 Nb 和 Ti 的析出顆粒。根據圖 1.3. 13 的拉曼分析結果,高溫氧化的 82 合金氧化層結構為 Cr₂O3、FeCr₂O4、NiFe₂O4, 圖 1.3. 14 的 XRD 分析只能找出少數 Cr₂O3 與 FeCr₂O4 的繞射峰,代表氧化層主要以非 晶為主,但氧化層的訊號依然可以由拉曼分析獲得。

異材銲件上電鍍氧化層製備方式與 304 不銹鋼相同,表面形貌與圖 1.3.8、圖 1.3. 9一致。經圖 1.3.13 拉曼分析結果,異材銲件上的電鍍氧化層結構也屬於 Fe₃O₄。



圖 1.3.12 高溫氧化異材銲件之 82 合金區域表面形貌 (a)大範圍區域(低倍率);(b)局部 顆粒區域(高倍率);(b1~b5)各元素分佈情形



圖 1.3.13 82 合金拉曼分析結果



3.1.1.3 碳鋼

圖 1.3.15 為碳鋼的高溫氧化層拉曼分析結果,可以看到 α -Fe₂O₃ 與 Fe₃O₄ 的訊號峰為主,而圖 1.3.16 為碳鋼的電鍍氧化層拉曼分析結果,可以觀察到清楚地 Fe₃O₄ 訊號。



圖 1.3.15 碳鋼高溫氧化層拉曼分析結果



圖 1.3.16 碳鋼的電鍍氧化層拉曼分析結果

3.1.2 氧化層厚度分析

3.1.2.1 304 不銹鋼

圖 1.3.17 為高溫氧化 304 不銹鋼橫截面,根據 EDX 分析氧元素的分佈,表面約有 19~20.3 μm 的氧化層,不過在氧化層與基材之介面處,有局部區域氧化層較薄。根據 EDX 元素分析搭配拉曼分析與 XRD 分析結果,可斷定經過高溫氧化處理,可在 304 不 銹鋼上形成約 20 μm 的 FeCr₂O₄氧化層。由上述拉曼分析與 XRD 分析,高溫氧化 304 不銹鋼氧化層的最外層為 Fe₂O₃,但圖 1.3.17 的氧化層橫截面只觀察到 FeCr₂O₄氧化層, 表示最外層的 Fe₂O₃ 易剝落,可能在鑲埋試片製備過程造成剝落。

圖 1.3.18 為電鍍氧化層 304 不銹鋼 (模擬沉積氧化層)之橫截面,根據 EDX 分析氧 元素的分佈,表面約有 10μm 的氧化層,氧化層與基材界面平整,且整體氧化層厚度無 太大的變化。根據 EDX 元素分析與上述之拉曼分析結果,確認此電鍍條件可在 304 不 銹鋼上沉積形成約 10μm 之 Fe₃O₄氧化層。

圖 1.3.19 為複合氧化層 304 不銹鋼(電鍍氧化層 + 高溫氧化雙層結構)之橫截面,根 據 EDX 分析氧、鐵與鉻元素的分佈情形,可區分出外層之 Fe₃O₄氧化層與內層之 FeCr₂O₄ 氧化層。外層之 Fe₃O₄氧化層厚度約為 13 μm,內層之 FeCr₂O₄氧化層約為 17~18 μm。

實際上,氧化層之厚度不論外層 Fe₃O4或內層 FeCr₂O4都會有所變動,像是電鍍沉 積的 Fe₃O4厚度範圍落在 8~13 μm 之間,而高溫氧化生成的 FeCr₂O4厚度範圍落在 16~ 25 μm 之間,故以平均值與大部分區域之厚度為基準。因此,本研究模擬 304 不銹鋼的 複合氧化層結構最外層為 Fe₃O4 的電沉積氧化層,厚度以 10 μm 為基準,內層則為高溫 氧化處理生成的 FeCr₂O4氧化層,厚度以 20 μm 作為基準。



圖 1.3.17 高溫氧化 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f)各 元素分佈情形



圖 1.3.18 電鍍氧化層 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f) 各元素分佈情形



圖 1.3.19 複合氧化層 304 不銹鋼之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f) 各元素分佈情形

3.1.2.2 82 合金

圖 1.3. 20 為高溫氧化的異材銲件(模擬基材本身腐蝕的氧化層)橫截面,根據 EDX 分析氧元素的分佈,表面有 1±0.5 μm 的氧化層,根據 EDX 元素分析,表面主要為鉻的 訊號。

圖 1.3.21 為異材銲件上電鍍氧化層(模擬沉積氧化層)的橫截面,表面約有 10μm 的 氧化層,與 304 不銹鋼上電鍍氧化層使用相同的電鍍條件,因此電鍍氧化層的厚度與結 構均相同。根據 EDX 元素分析與拉曼分析結果,電鍍也可在 82 合金上沉積約 10μm 的 Fe₃O₄氧化層。

圖 1.3. 22 為高溫氧化的異材銲件上再行電鍍以模擬複合氧化層結構之橫截面,表 面約有 7μm 的電鍍氧化層,而高溫氧化生成的氧化層相當的薄,厚度約為 1μm 左右。

因此,本研究模擬 82 合金的複合氧化層結構最外層為 Fe₃O₄ 的電沉積氧化層,厚 度則以 10 µm 為基準,內層則為高溫氧化處理生成的 Cr₂O₃、FeCr₂O₄ 與 NiFe₂O₄ 混合 氧化層,厚度以 1 µm 作為基準。



圖 1.3.20 高溫氧化異材銲件(模擬基材本身腐蝕的氧化層)之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f)各元素分佈情形



10µm

10µm

10µm

圖 1.3.21 電鍍氧化層異材銲件 (模擬沉積氧化層)之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像 含厚度表示(c~f)各元素分佈情形



10µm

10µm

圖 1.3.22 複合氧化層異材銲件之橫截面(a)SEM 影像(b) SEM 影像含厚度表示(c~f)各元 素分佈情形

3.1.2.3 碳鋼

圖 1.3. 23 為碳鋼高溫氧化層之橫截面 SEM 影像;圖 1.3. 24 為碳鋼電鍍氧化層之 橫截面 SEM 影像。碳鋼的高溫氧化層的厚度在 10µm 至 15µm 之間,而電鍍氧化層的 部分則是因為與前述之 304 不鏽鋼電鍍過程相同,故其厚度也為 10µm。



圖 1.3.23 碳鋼高溫氧化層之橫截面 SEM 影像



圖 1.3.24 碳鋼電鍍氧化層之橫截面 SEM 影像

3.2 電解測試

3.2.1 磷酸水溶液濃度對除污效率之影響

比較 40wt%與 60wt%磷酸水溶液對電解 304 SS 與其氧化層的除污效益,分析結果 包含重量變化、厚度變化與除污後之微觀表面形貌。

3.2.1.1 重量變化

圖 1.3.25 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解 304 不銹鋼基材之重量變化,比較之下 60 wt%磷酸水溶液比 40 wt%磷酸水溶液具有更快的電解速率,結果與巨觀表面 觀察的結果一致。

圖 1.3. 26 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解表面為電鍍氧化層 304 不銹鋼 的重量變化。前段電解氧化層之部分,60 wt%磷酸水溶液在電解 Fe3O4 之電鍍氧化層略 快於 40 wt%磷酸水溶液。後段電解基材之部分, 60 wt%磷酸水溶液同樣有比 40 wt% 磷酸水溶液更快的電解速率,但值得注意的是比較圖 1.3. 25 及圖 1.3. 26 基材電解的部 份,若表面有氧化層存在時,電解基材的速率會大於直接電解基材的速率。
圖 1.3. 27 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化 304 不銹鋼的重量變 化,前段電解氧化層之部分,40 wt%磷酸水溶液在電解高溫氧化層略快於 60 wt%磷酸 水溶液。但後段電解基材的部分, 60 wt%磷酸水溶液的電解速率又比 40 wt%磷酸水溶 液還快。

圖 1.3. 28 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層結構 304 不銹鋼的 重量變化,可以發現在電解初期,重量變化與圖 1.3. 26 電解 Fe₃O₄ 電鍍氧化層的重量變 化類似。中段區域則類似於圖 1.3. 27 電解高溫氧化層的重量變化,同樣為 40 wt%磷酸 水溶液在電解高溫氧化氧化層略快於 60 wt%磷酸水溶液,但根據試片表面巨觀變化, 中段區域後半部已開始出現基材裸露現象,造成同時電解基材與氧化層過程中出現難以 掌握之非線性變化,直到氧化層所剩無幾,才再次回到較為線性的重量變化。後段電解 基材之部分,60 wt%磷酸水溶液的電解速率又比 40 wt%磷酸水溶液還快。



圖 1.3. 25 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解 304 不銹鋼基材之重量變化











圖 1.3. 28 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層結構 304 不銹鋼之重量變化

3.2.1.2 厚度變化

在厚度變化的結果中,40 wt%與60 wt%磷酸水溶液所造成的電解速率差異符合重 量變化趨勢。不同之處為幾乎所有氧化層厚度變化均大於基材,但在重量變化的結果中, 電解 Fe3O4 電鍍氧化層之重量變化小於基材,原因可能為電鍍沉積在304 不銹鋼表面的 Fe3O4氧化層密度小於基材所致,重量變化與厚度變化之結果總整理如表1.3.5 與表1.3. 6。

| | 敏化基材 | 電鍍氧化層 | | 高溫處理氧化層 | | 複合氧化層 | | |
|--------------------------------------|-------|-------|-------|---------|-------|-------|-------|-------|
| | | 氧化層 | 基材 | 氧化層 | 基材 | 外層 | 內層 | 基材 |
| 40wt% H ₃ PO ₄ | -0.31 | -0.16 | -0.45 | -2.01 | -0.30 | -0.17 | -2.14 | -0.36 |

表 1.3.5 304 不銹鋼平板試片重量變化結果總整理(單位:mg/sec)

| 60wt% H ₃ PO ₄ | -0.47 | -0.20 | -0.52 | -1.44 | -0.49 | -0.31 | -1.13 | -0.52 |
|--------------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| | | | | | | | | |

| | 幼儿甘井 | 電鍍氧化層 | | 高溫處理氧化層 | | 複合氧化層 | | |
|--------------------------------------|------------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|
| | 蚁 化 | 氧化層 | 基材 | 氧化層 | 基材 | 外層 | 內層 | 基材 |
| 40wt% H ₃ PO ₄ | -0.055 | -0.09 | -0.069 | -0.39 | -0.084 | -0.130 | -0.604 | -0.093 |
| 60wt% H ₃ PO ₄ | -0.086 | -0.105 | -0.109 | -0.185 | -0.117 | -0.142 | -0.295 | -0.096 |

表 1.3.6 304 不銹鋼平板試片厚度變化結果總整理(單位:µm/sec)

3.2.1.3 蝕刻後試片的微觀表面形貌

圖 1.3. 29 為電解結束後各試片的表面形貌,所有試片因為蝕刻的關係,晶界均清 楚可見,其中40 wt%磷酸水溶液都比60 wt%磷酸水溶液在晶界處具有更深的腐蝕深度, 尤其如圖 1.3. 29 (a)與(b),或是與圖 1.3.2 (c)與(d)比較,40 wt%磷酸水溶液在晶界處造 成的腐蝕深度都比60 wt%磷酸水溶液明顯。因此,根據重量與厚度變化結果都發現60 wt%磷酸水溶液對於基材蝕刻速率總是快於40 wt%磷酸水溶液,原因可能為60 wt%磷 酸水溶液提供更均匀的基材蝕刻,而40 wt%磷酸水溶液則傾向於晶界處的蝕刻。



圖 1.3. 29 電解後之表面形貌(a) 40wt%磷酸水溶液/304 不銹鋼基材 (b) 60wt%磷酸水溶 液/304 不銹鋼基材(c) 40wt%磷酸水溶液/高溫氧化 304 不銹鋼(d) 60wt%磷酸水溶液/高 溫氧化 304 不銹鋼(e) 40wt%磷酸水溶液電解/電鍍氧化層 304 不銹鋼 (f) 60wt%磷酸水 溶液/電鍍氧化層之 304 不銹鋼 (g) 40wt%磷酸水溶液/複合氧化層結構 304 不銹鋼(h) 60wt%磷酸水溶液/複合氧化層結構 304 不銹鋼

3.2.2 不同溫度對除污效率之影響

以 40 wt%磷酸水溶液電解 304 不銹鋼/82 合金的異材銲件,探討 82 合金、位於熱 影響區的 304 不銹鋼與遠離銲道的 304 不銹鋼進行厚度變化分析,以及除污後之微觀表 面形貌觀察。

電解異材銲件基材、電鍍氧化層之異材銲件與高溫氧化異材銲件的厚度變化結果分 別為圖 1.3.30、圖 1.3.31、圖 1.3.32,顯示蝕刻基材的部份均為 82 合金蝕刻速率大於 304 不銹鋼,而且 82 合金的厚度變化是母材 304 不銹鋼的兩倍以上。電解複合氧化層 結構的異材銲件(圖 1.3.33)並未量測 82 合金的厚度變化,原因為電解 82 合金上的複合 氧化層的蝕刻過程會產生局部氧化層殘留,因此無法量測銲道中心區域的厚度變化。

在溫度 30 ℃下,電解異材銲件上的 304 不銹鋼基材與電解 304 不銹鋼試片的厚度 變化結果差異不大,表示 304 不銹鋼上的熱影響區對電解蝕刻的影響並不明顯。

分別在溫度 30 ℃與 60℃下電解異材銲件基材與複合氧化層結構異材銲件,結果如 圖 1.3.30、圖 1.3.34,以及圖 1.3.33、圖 1.3.35,均可發現溫度升高,厚度變化的斜率 變大,表示溫度的升高,有助於提升蝕刻的速率。異材銲件重量變化總整理如表 1.3.7 所示。



圖 1.3.30 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件基材之厚度變化



圖 1.3.31 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解電鍍氧化層異材銲件之厚度變化



圖 1.3.32 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化異材銲件之厚度變化



圖 1.3.33 在溫度 30 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層異材銲件之厚度變化



圖 1.3.34 溫度 60 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件基材之厚度變化



圖 1.3.35 溫度 60 ℃下,40 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層異材銲件之厚度變化

| | | | | | 8 | | | |
|----------------|--------|-------|--------|-------|--------|--------|--------|--------|
| | | 電鍍氧化層 | | 高溫處王 | 里氧化層 | 複合氧化層 | | |
| | 敏化基材 | 氧化層 | 基材 | 氧化層 | 基材 | 外層 | 內層 | 基材 |
| 304 SS 熱影響區 | -0.058 | -0.08 | -0.052 | -0.43 | -0.081 | -0.100 | -0.631 | -0.093 |
| 304 SS 母材 | -0.061 | -0.08 | -0.061 | -0.44 | -0.082 | -0.100 | -0.663 | -0.097 |

表 1.3.7 在 30 ℃下異材銲件厚度變化結果總整理(單位:µm/sec)

|--|

3.2.3 磷酸水溶液濃度對碳鋼除污效率之影響

比較 40wt%與 60wt%磷酸水溶液對電解碳鋼與其氧化層的除污效益,分析結果包含重量變化、厚度變化。

3.2.3.1 重量變化

圖 1.3.36 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解碳鋼基材之重量變化,比較之下 60 wt%磷酸水溶液比 40 wt%磷酸水溶液具有更快的電解速率。

圖 1.3. 37 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解表面為電鍍氧化層碳鋼的重量 變化。前段電解氧化層之部分,60 wt%磷酸水溶液在電解 Fe₃O₄ 之電鍍氧化層略快於 40 wt%磷酸水溶液。後段電解基材之部分, 60 wt%磷酸水溶液同樣有比 40 wt%磷酸水溶 液更快的電解速率。

圖 1.3.38 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化層碳鋼的重量變化,前 段電解氧化層之部分,40 wt%磷酸水溶液在電解高溫氧化層略快於 60 wt%磷酸水溶液。 但後段電解基材的部分, 60 wt%磷酸水溶液的電解速率又比 40 wt%磷酸水溶液還快。

圖 1.3. 39 分別為 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解複合氧化層結構碳鋼的重量變 化,可以區分成三個階段的電解速率,分別是最外層的電鍍氧化曾,中層的高溫氧化層 與最下層的電解基材,可以發現複合氧化層的電解速率與分開電解時相近,對高溫氧化 層來說 40w%磷酸的電解速率較快,而對電鍍氧化層與基材來說 60w%磷酸的電解速率 較快。



圖 1.3.3640 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解碳鋼之重量變化



圖 1.3. 37 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解電鍍氧化層碳鋼之重量變化



圖 1.3. 38 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液電解高溫氧化碳鋼之重量變化



圖 1.3. 39 40 wt% 與 60 wt% 磷酸水溶液電解複合氧化層結構碳鋼之重量變化

3.2.3.1 厚度變化

在厚度變化的實驗中, 40 wt%與 60 wt%磷酸水溶液所造成的電解速率差異符合重 量變化趨勢。從厚度變化的角度討論,所有氧化層的電解速率皆比電解基材還要快速。 重量變化與厚度變化之結果總整理如表 1.3.8 錯誤! 找不到參照來源。與表 1.3.9。

| | 年 1-1- | 電鍍氧化層 | | 高溫處理氧化層 | | 複合氧化層 | | |
|--------------------------------------|--------|--------|--------|---------|--------|--------|-------|--------|
| | 举州 | 氧化層 | 基材 | 氧化層 | 基材 | 外層 | 內層 | 基材 |
| 40wt% H ₃ PO ₄ | -0.335 | -0.171 | -0.382 | -4.60 | -0.323 | -0.168 | -4.49 | -0.353 |
| 60wt% H3PO4 | -0.531 | -0.192 | -0.541 | -2.82 | -0.533 | -0.211 | -2.13 | -0.487 |

表 1.3.8 碳鋼平板試片重量變化結果總整理(單位:mg/sec)

表 1.3.9 碳鋼平板試片厚度變化結果總整理(單位: µm/sec)

| | # 11 | 電鍍氧化層 | | 高溫處理氧化層 | | 複合氧化層 | | |
|--------------------------------------|---------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|
| | | 氧化層 | 基材 | 氧化層 | 基材 | 外層 | 內層 | 基材 |
| 40wt% H ₃ PO ₄ | -0.059 | -0.10 | -0.063 | -1.07 | -0.088 | -0.11 | -0.84 | -0.071 |
| 60wt% H ₃ PO ₄ | -0.086 | -0.105 | -0.109 | -0.185 | -0.117 | -0.142 | -0.295 | -0.096 |

(四) 結論

本研究針對除役核電廠時 304 不銹鋼與 304 不銹鋼/82 合金異材銲件進行電化學除 污效益探討。本研究成果的分述如下:

- 在 30 ℃下,電解 304 不銹鋼基材、碳鋼基材與 Fe3O4 電鍍氧化層的結果為 60 wt%磷 酸水溶液的蝕刻速率優於 40 wt%磷酸水溶液。
- 在 30°C下,電解高溫處理 304 不銹鋼表面主要為 FeCr₂O₄ 的氧化層,結果為 40 wt% 磷酸水溶液的蝕刻速率優於 60 wt%磷酸水溶液;而電解碳鋼表面的 α-Fe₃O₄ 氧化層, 結果為 40 wt%磷酸水溶液的蝕刻速率優於 60 wt%磷酸水溶液。
- 3. 具有 Fe₃O₄ 電鍍氧化層 304 不銹鋼與 304 不銹鋼相比,具有電鍍氧化層的 304 不銹鋼 的基材蝕刻速率大於(無氧化層)304 不銹鋼,可能與晶粒內有許多孔蝕有關,推斷在 蝕刻氧化層的後期,因部分基材裸露導致晶粒內分佈均勻孔蝕,加速蝕刻基材。

- 4. 在 30 ℃下,以 40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件與 304 不銹鋼平板試片的結果中,異 材銲件上熱影響區的 304 不銹鋼、異材銲件上遠離銲道的 304 不銹鋼與 304 不銹鋼平 板試片相比,三者在基材與其氧化層蝕刻上,厚度變化沒有明顯的差異。
- 5. 在 30 ℃與 60 ℃下,以 40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件基材(無氧化層)的結果中,82 合金銲道的厚度變化量均為 304 不銹鋼母材的兩倍以上,表示 82 合金蝕刻速率遠快 於 304 不銹鋼。
- 6. 在 30 ℃下,以 40 wt%磷酸水溶液電解異材銲件 82 合金上的複合氧化層(內層為厚度 1±0.5 µm 的 Cr2O3、FeCr2O4 與 NiFe2O4 高溫處理氧化層,外層為厚度 10±3µm 的 Fe3O4),異材銲件 82 合金上會有局部的複合氧化層殘留。若電解液升溫至 60 ℃,除了加快異材銲件整體蝕刻速率外,可更均匀地去除複合氧化層。
- 在 30 ℃下,以 40 wt%磷酸水溶液電解基材 304 SS 與碳鋼,可以發現碳鋼蝕刻速率 大於 304 SS,且高溫處理氧化層,碳鋼蝕刻速率也是大於 304 SS。

參考文獻

- H. M. Kothari et al., "Electrochemical Deposition and Characterization of Fe3O4 Films Produced by the Reduction of Fe(III)- triethanolamine", Materials Research Society, 21(1), (2006) 293-301
- [2] Soon-Hyeok Jeon, Yeong-Ho Son, Won-Ik Choi, Geun Dong Song and Do Haeng Hur, "Simulating Porous Magnetite Layer Deposited on Alloy 690TT Steam Generator Tubes", Materials, 11, (2018) 62
- [3] Soon-Hyeok Jeon, Won-Ik Choi, Geun-Dong Song, Yeong-Ho Son and Do Haeng Hur,"Influence of Surface Roughness and Agitation on the Morphology of Magnetite Films Electrodeposited on Carbon Steel Substrates", Coatings, 6, (2016) 62
- [4] John Kirtley, Victoria Leichner, Hergen Eilers, "Raman spectroscopy of oxygen carrier particles in harsh environments", SPIE Proceedings, 10639, (2018)
- [5] Brian D. Hosterman, "Raman spectroscopic study of solid solution spinel oxides", Master of Science University of Nevada, Las Vegas, 2006
- [6] Ji Hyun Kim and Il Soon Hwang, "In-situ Raman Spectroscopic Study of Oxide Films on Alloy 600 in Simulated PWR Water", Proceedings of the Korean Nuclear Spring Meeting, Korea, 2003

行政院原子能委員會

委託研究計畫期末報告

計畫名稱:

110 年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全 評估及相關特性分析

子項計畫二-1:

核電廠除役期間安全評估技術強化

案號: AEC110030006L

執行單位: 國立清華大學

計畫主持人: 許文勝

報告作者: 許文勝、楊融華、陳玄哲

報告日期:中華民國 110年11月

摘要

本計畫目的為核電廠除役階段安全評估技術強化與應用,其研究工作項 目包含:1. 彙整國際核電廠衰變熱計算相關文獻並研析其不同衰變熱計算 模式之適用性與限制,以協助管制單位進行核電廠安全審查案之作業及參 考依據;2. 發展並建立核二廠除役階段用過燃料池安全分析模式,應用於 核二廠除役階段用過燃料池事故評估與驗證工作,以強化國內審查單位之 管制技術。研究中除了針對過核子燃料之衰變熱計算公式進行探討,也針 對關鍵因子特性進行靈敏度解析,並彙整研究結果以提供管制單位安全性 建議。

在用過燃料池發生破口且喪失冷卻水的安全評估中,參照 NUREG-2161 文獻的分析條件,評估燃料池底部發生直徑 11.4 公分(中破口)或直徑 4.4 公 分(小破口)之破口案例。評估結果可以看出,在用過燃料池破口發生後,盡 速備妥救援補水設備能有效地維持住用過燃料池之水位,避免水位低於燃 料頂端造成用過核子燃料裸露。

總結以上研究成果,本計畫成功建立核二廠除役階段用過燃料池安全分 析模式與發展獨立驗證評估技術,能有效提升核電廠除役階段熱流安全審 查能量,並且提供核電廠於除役階段意外事故發展時序與關鍵因子,能有 效協助管制單位執行審查作業與評估之佐證依據。

i

Abstract

The purpose of this project is to strengthen and apply the safety assessment technology of the Nuclear Power Plant(NPP) in the decommissioning phase. These projects include two parts: One is compiling the international decay heat calculation documents and analysing the applicability and limitations of different decay heat calculation modes. The other is developing and establishing a safety analysis model for the Spent Fuel Pool(SFP) during the decommissioning phase of the Kuosheng NPP, and apply it to the accident assessment and verification of the SFP during the decommissioning phase of the Kuosheng NPP. In addition to discussing the calculation formula for the decay heat of spent fuel, the research also conducted sensitivity analysis on the characteristics of key factors, and compiled the research results to provide safety recommendations for the regulatory agency.

In the safety assessment of the SFP with Loss of Cooling Accident(LOCA), evaluating the case of a 11.4 cm diameter or 4.4 cm diameter break which refer to the NUREG-2161 document. The evaluation result shows that after LOCA, preparing rescue water supply equipment as soon as possible can effectively maintain the water level of the SFP and prevent the water level from being lower than the top of the fuel to cause the spent fuel exposed.

Summarizing the above research results, this project has successfully established a safety analysis model and developed independent verification and evaluation technology for the SFP during the decommissioning phase of the Kuosheng NPP. It can not only effectively improve the safety review capability of thermal-hydraulic during the decommissioning phase of NPPs, but also provide the sequence and key factors of accidents during the decommissioning phase of NPPs. It can effectively assist the regulatory agency to perform the review works and the supporting for the safety assessment.

| 摘要 | i |
|------------------------|-----|
| 目錄 | iii |
| 圖目錄 | v |
| 表目錄 | vii |
| 壹、前言 | 1 |
| 貳、執行方法及研究步驟 | 2 |
| 参、主要發現與結果 | 5 |
| 一、用過核子燃料衰變熱計算之研析 | 5 |
| 二、核二廠除役期間用過核子燃料池安全分析模式 | 25 |
| (一) 熱水流分析程式與模式建立 | 25 |
| 1. TRACE 程式簡介 | 25 |
| 2. 核二廠用過燃料池簡介 | 26 |
| 3. 用過燃料池 TRACE 分析模式 | 27 |
| (二) 熱流計算模式 | |
| 1. 熱傳導模式 | |
| 2. 二維熱傳導 | 40 |
| 3. 降幅水位計算模型 | 42 |
| 4. 汽化反應(蒸發) | 43 |
| 5. 鋯-水反應 | 46 |
| (三) 國際文獻研析與驗證 | 53 |
| 三、評估案例與分析結果 | 61 |
| (一) 核二廠除役計畫分析結果比對與驗證 | 61 |
| 1. 核二廠除役計畫書之分析條件 | 61 |
| 2. TRACE 分析結果 | 64 |

| * T | ッ つ 人 | /昭/、 | | |
|------------|-------|------|--------------------|----|
| 肆、 | 杂老文 | 斟 | | 89 |
| 四 | 、研究 | 成果 | 與管制建議 | 86 |
| | (四) | LOC | A 事故下補水救援策略評估 | 80 |
| | (三) | 喪失 | 冷卻水事故評估 | 75 |
| | | | | |
| | | 2. | 分析結果 | |
| | | 1. | 分析說明 | 69 |
| | (二) | 事故 | 下護箱裝載池對用過燃料池系統之影響性 | 69 |
| | | | | |

圖目錄

| 圖 | 2.1 核電廠除役期間安全評估技術強化之研究流程圖。 | 4 |
|---|--|----|
| 圖 | 3.1.1 運轉中間使用不同功率運轉之靈敏度分析[2] | 22 |
| 圖 | 3.1.2 不同冷卻時間與燃耗之平均衰變熱[3] | 22 |
| 圖 | 3.1.3 NUREG-0800 所計算之衰變熱結果圖[5] | 23 |
| 圖 | 3.1.4 235U在 1979 年標準的 F (t,∞) 值與 1973 年標準草案的比較 | 24 |
| 圖 | 3.2.1.1 核二廠用過燃料池位置示意圖 | 31 |
| 圖 | 3.2.1.2 核二廠用過燃料池側視示意圖 | 31 |
| 圖 | 3.2.1.3 核二廠用過燃料池俯視示意圖 | 32 |
| 圖 | 3.2.1.4 核二廠用過燃料池 TRACE 模式建立 | 32 |
| 圖 | 3.2.1.5 核二廠用過燃料池每一節點體積分率設定頁面 | 33 |
| 圖 | 3.2.1.6 核二廠用過燃料池每一節點空泡分率設定頁面 | 33 |
| 圖 | 3.2.1.7 HTSTR 組件徑向設定頁面 | 34 |
| 圖 | 3.2.1.8 HTSTR 組件縱向設定頁面 | 34 |
| 圖 | 3.2.1.9 HTSTR 組件邊界條件設定頁面 | 35 |
| 圖 | 3.2.1. 10 POWER 組件參數設定頁面 | 36 |
| 圖 | 3.2.1.11 初始壓力設定頁面 | 36 |
| 圖 | 3.2.1.12 初始水溫設定頁面 | 37 |
| 圖 | 3.2.1.13 初始用過核燃料溫度設定頁面 | 37 |
| 圖 | 3.2.2.1 耦合流體力學與結構熱傳[21] | 49 |
| 圖 | 3.2.2.2 燃料棒網格與節點圖[21] | 50 |
| 圖 | 3.2.2.3 位於不同材料交界之節點[13] | 51 |
| 圖 | 3.2.2.4 水位示意圖 | 52 |
| 圖 | 3.2.3.1 S. Carlos 等人所建立之用過燃料池模型[24] | 56 |
| 圖 | 3.2.3.2 穩態分析之用過燃料池冷卻水平均溫度[24] | 57 |

| 圖 | 3.2.3.3 有無開啟輻射熱傳之燃料護套溫度[24] | 58 |
|---|--|----|
| 圖 | 3.2.3.4 啟用輻射熱傳對氧化層厚度之影響[24] | 58 |
| 圖 | 3.2.3.5 啟用輻射熱傳對氫氣產生量之影響[24] | 58 |
| 圖 | 3.2.3. 6 Zachary I. Franiewski 等人所建立之用過燃料束模型[26] | 59 |
| 圖 | 3.2.3.7 與 Sandia 國家實驗室點火實驗結果比較[26] | 60 |
| 圖 | 3.3.1.1 用過燃料池水溫上升示意圖 [22] | 63 |
| 圖 | 3.3.1.2 西池水位下降趨勢圖示意圖[22] | 63 |
| 圖 | 3.3.1.3 核二廠用過燃料池 (無護箱裝載池) 之 TRACE 模組 | 67 |
| 圖 | 3.3.1.4 TRACE 所計算不同衰變熱導致的升溫趨勢圖 | 67 |
| 圖 | 3.3.1.5 TRACE 所計算不同衰變熱西池水位下降趨勢圖 | 68 |
| 圖 | 3.3.1.6 TRACE 所計算不同衰變熱東池水位下降趨勢圖 | 68 |
| 圖 | 3.3.2.1 核二廠用過燃料池(有護箱裝載池)之 TRACE 模組 | 72 |
| 啚 | 3.3.2.2 有無護箱裝載池於停機7天後發生喪失冷卻事故之池水溫度升溫趨勢圖 | 73 |
| 圖 | 3.3.2.3 考慮護箱裝載池下水位下降趨勢圖 | 73 |
| 圖 | 3.3.2.4 比較有無考量護箱裝載池下西池水位變化示意圖 | 74 |
| 圖 | 3.3.3.1 小破口質量流率 | 78 |
| 圖 | 3.3.3.2 小破口事故下,東、西池之水位變化圖 | 78 |
| 圖 | 3.3.3.3 中破口質量流率 | 79 |
| 圖 | 3.3.3.4 中破口事故下,東、西池之水位變化圖 | 79 |
| 圖 | 3.3.4.1 NEI-0612 救援措施之決策流程圖[29] | 83 |
| 圖 | 3.3.4.2 事故發生9小時列置後,500gpm 補水水量進入 | 84 |
| 圖 | 3.3.4.3 小破口事故下,執行補水之用過燃料池水位變化 | 84 |
| 圖 | 3.3.4.4 事故發生1小時列置後,500gpm 補水水量進入 | 85 |
| 圖 | 3.3.4.5 中破口事故下,執行補水之用過燃料池水位變化 | 85 |

表目錄

| 表 3.1.1 BWR spent fuel heat generation rates, watts per kilogram U, for specific power = |
|---|
| 30 kW/kgU[2]17 |
| 表 3.1. 2 Summary of enrichment and burnup for each UO ₂ BWR and PWR group[4]18 |
| 表 3.1.3 燃耗對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]18 |
| 表 3.1.4 冷卻時間對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]19 |
| 表 3.1.5 初始燃料濃度對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]19 |
| 表 3.1.6 實驗之近似係數[5] |
| 表 3.1.7 ANS-5.1 標準之不確定度帶 |
| 表 3.2.1.1 核二廠用過燃料池幾何參數30 |
| 表 3.3.1.1 停機後不同時間用過核燃料衰變熱[22]62 |
| 表 3.3.1.2 用過燃料池於不同停機時間下發生喪失冷卻事件之重要時序[22]62 |
| 表 3.3.1.3 用過燃料池於不同停機時間下發生喪失冷卻事件之重要時序[22]62 |
| 表 3.3.1.4 東西池衰變熱分配 |
| 表 3.3.1. 5 TRACE 所計算不同衰變熱導致的升溫時序65 |
| 表 3.3.1.6 TRACE 所計算不同衰變熱導致的水位下降時序 |
| 表 3.3.2.1 有護箱裝載池情況下衰變熱分配71 |
| 表 3.3.2.2 考慮護箱裝載池情況下下水位下降時序71 |

壹、前言

核二廠一號機及二號機的運轉執照,分別將於 2021 年 12 月 27 日及 2023 年 3 月 14 日陸續到期,則將進入電廠除役階段。依核二廠除役計畫 之規劃,首先將反應器爐心中所有用過核子燃料移至用過核子燃料池貯存, 並建置用過核子燃料池島區後,開始進行非必要且可移除系統之除污;待 核二廠乾式貯存設施核准運轉後,將用過核子燃料由用過核子燃料池島區 移至乾式貯存設施,核二廠方可開始進行組件、系統與結構之拆除及除污, 並將拆除後之放射性廢棄物裝入低放射性廢棄物貯存容器中,運送至放射 性廢棄物貯存設施,最後再進行廠區內建物拆除。因此,當核電廠在除役 階段用過核子燃料還貯存於用過核子燃料池時,則需考量其在除役期間之 安全性並進行安全評估。核電廠在除役期間,其用過核子燃料池衰變熱仍 需藉由餘熱移除系統將熱排出,隨著電廠停機後,衰變熱數值大小也會隨 著時間而衰減,因此以核電廠除役期間用過核子燃料池之安全性為首要目 標,而評估用過核子燃料束之衰變熱多寡則是直接影響此安全性之關鍵因 子。因此本計畫彙整國際間不同文獻之衰變熱計算方式,以釐清用過核子 燃料衰變熱計算公式之適用性,並針對除役階段用過核子燃料池全黑事件 與喪失冷卻水事件進行研析,提出核二廠除役期間用過燃料池安全相關管 制建議。

貳、執行方法及研究步驟

核二廠將於運轉執照到期後,進入除役階段,其中由於用過核子燃料 束於除役階段仍存有衰變熱,短期內需放置在用過燃料池(Spent Fuel Pool, SFP)中,依靠冷卻系統移出用過核子燃料束之餘熱,否則仍然有可能因為 意外事件導致用過核子燃料束溫度升高,因此,在電廠除役階段前期中又 以用過燃料池之安全性尤為重要。本計畫將透過蒐集與研析國際間相關文 獻,並發展核二廠除役期間用過核子燃料池 TRACE 分析模式,以及執行用 過核子燃料池全黑事件與喪失冷卻水事件進行研析,並提出核二廠除役期 間用過燃料池安全相關管制建議以作為管制審查之參考依據,並強化國內 支援管制審查之技術能力。圖 2.1 為本研究之流程圖,主要架構為蒐集與研 析國際間用過核子燃料池衰變熱計算公式相關文獻與執行核二廠除役期間 用過核子燃料池安全評估,彙整用過核子燃料池暫態分析之關鍵時序與參 數因子,並提出核二廠除役期間用過燃料池安全相關管制建議事項。

本研究採用美國核管會所發展之先進熱水流分析程式 TRACE (TRAC/RELAP Advanced Computational Engine)進行核二廠除役期間用過核 子燃料池之安全性評估。TRACE 作為最佳化熱水流估算程式,最主要使用 於模擬反應器內部之熱水流現象,然而,其程式內包含 VESSEL 組件用以 模擬三維度之反應壓力槽,也因此特性,三維組件亦可勝任用過核子燃料 池之模擬分析,國際上亦有使用 TRACE 程式模擬用過核子燃料池細部之 熱水流現象,如S. Carlos【Use of TRACE best estimate code to analyze spent fuel storage pools safety】以及其研究團隊於近期發表許多使用 TRACE 程式 模擬用過核子燃料池之安全分析。而Zachary I. Franiewski 等人也有使用 TRACE 模擬用過核子燃料池,如其研究團隊所發表的【Spent Fuel Pool Analysis of a BWR-4 Fuel Bundle Under Loss of Coolant Conditions Using TRACE】,值得注意的是,該篇報告特別使用 TRACE 建立並探討了三種 單根用過核子燃料束以模擬空氣冷卻時的散熱現象,並評估每個模型在燃 料護套破裂的時間點(根據實驗數據,溫度約為 1100K),其模型之模擬結果 也與Sandia 國家實驗室之點火實驗做比對,其趨勢與實驗結果一致,證明 TRACE 不但能夠模擬用過核子燃料池之熱水流現象,也能完整模擬用過核 子燃料束在空氣冷卻下之溫升趨勢。



圖 2.1 核電廠除役期間安全評估技術強化之研究流程圖。

參、主要發現與結果

一、用過核子燃料衰變熱計算之研析

核電廠於安全停機並進入除役階段之後,其最大的風險因子在於用過 燃料池,因其用過核子燃料存在之衰變熱仍需持續藉由餘熱移除系統移出, 因此相關安全系統與設備仍需持續運作,雖然與運轉期間狀態相比,核電 廠相對風險明顯降低,但在用過核子燃料從用過燃料池移到乾式貯存系統 之前,為確保用過核子燃料之完整性與安全,仍需進行相關熱流安全評估 與確保核電廠除役安全無虞。

核電廠除役階段之用過燃料池其衰變熱變化為熱流分析最主要考量之 因素,且隨著停機時間越久,其衰變熱將持續降低,直到衰變熱降到僅靠 空氣冷卻就能移除其衰變熱之條件下,用過核子燃料則會移到乾式貯存系 統進行貯存。而衰變熱之計算主要考量因素許多,包含燃耗、運轉歷史功 率、燃料濃度等等,皆會影響用過核子燃料之衰變熱數值大小。美國核管 會(US NRC)於 2001 年發表 NUREG-1738 報告[1],主要為針對核電廠除役 期間用過燃料池事故風險評估提供技術資訊,而該文獻中採用之衰變熱計 算為依據 NUREG-5625[2],該報告為了更新並修訂美國核管會內用過燃料 貯存系統內衰變熱產生相關等參考文件和數據庫,使用 SCALE-4 系統下之 SAS2H 程式,詳細開發了不同條件下之用過燃料束衰變熱表格,如表 3.1.1 所式,並且為了讓此表可被廣泛使用,此報告亦開發出一套公式去探討不 同條件下之用過燃料束衰變熱,如公式 3.1.1 所示。

$$P_{\text{final}} = (1+0.01S)f_7 f_{N7} f_p f_e P_{\text{tab}}$$
 3.1.1

其中 S=Safety Factor, 沸水式反應器(BWR assemblies)其 S = 6.4 + 0.15 (B_{tot} - 20) + 0.044 (T_c - 1) ; 壓水式反應器(PWR assemblies)其 S = 6.2 + 0.06 (B_{tot} - 25) + 0.050 (T_c - 1)

 $B_{tot} = total operating history bumup$

 $T_c = Cooling Time$

 $f_7 \cdot f_{N7}$ =Short Cooling Time Factors

f_p=Excess Power Adjustment Factor

f_e=Enrichment Factor

其參數包含冷卻時間、運轉時間、燃耗、甚至亦包含運轉中間不同功率 的燃燒所造成的影響,如圖 3.1.1 便是探討運轉中若有變換功率時,所造成 之影響。除此之外,每項數值皆有其適用範圍,以此為基礎,根據不同狀況 去建立修正參數,其中包含功率過大以及燃燒功率不平均等狀況。NUREG-1738 報告中之衰變熱參考文獻即為 NUREG-5625,然而, NUREG-1738 假 設之燃耗遠超出 NUREG-5625 內設定值,雖 NUREG-1738 內文提出,若有 超出表格之條件,將使用外插法方式得到該值,但其仍然不符合 NUREG-5625 之使用規範,因此其衰變熱計算之適切性需進一步之討論。

美國核管會 2016 年發表一篇針對用過燃料棒束溫升計算文獻 NSIR 2015-001[3],其衰變熱計算之依據為 NUREG/CR-7227[4]所記錄美國商用 核電廠於 1968 年至 2013 年運轉之數據庫,NUREG/CR-7227 利用 GC-859 數據庫內所記錄美國商業運轉下的用過燃料束之組件,研究並回顧了過去 40 年之用過燃料束相關參數之分布與演變,其最終整理成一表格,如表 3.1.2 所示。以此為基礎,此研究擴建並提供了用過燃料束在長達兩百年以 及各種冷卻時間下之衰變熱及活度等相關參數。其使用了 ORIGEN 與 SCALE 為用過燃料束進行建模,並輸入收集到之燃料參數進行燃耗計算, 其計算結果包含總活度、衰變熱、光子量、中子通量、伽馬熱量,以及總計 115 種重要核種濃度。除此之外,此文獻亦更進一步針對燃耗、冷卻時間, 以及燃料初始濃度三項參數做靈敏度分析,如表 3.1.3 至表 3.1.5 所示。最 終,於 NSIR-2015-001 報告中,經過統計並整理後,將其化簡為圖 3.1.2。

根據美國核管會在核電廠安全分析報告標準審查方案(NUREG-0800) 文獻中所引用之衰變熱功率計算式為 ASB 9-2[5], ASB 9-2 將衰變熱計算 分為兩部分,分別是分裂產物衰變熱(Fission product decay heat)以及重元素 衰變熱(Heavy element Decay heat),其衰變熱公式以及說明如下: Fission product decay heat :

$$\frac{P}{P_0}(\infty, t_s) = \frac{1}{200} \sum_{n=1}^{n=11} A_n exp(-a_n t_s)$$
 3.1.2

$$\frac{P}{P_0}(t_0, t_s) = (1+K) \left[\frac{P}{P_0}(\infty, t_s) - \frac{P}{P_0}(\infty, t_0 + t_s) \right]$$
3.1.3

其中,P為衰變熱功率;P₀為衰變初始功率;t₀為運轉開始到停機歷經 的時間,單位為秒;t_s為停機到計算時間點歷經的時間,單位為秒;K為不 準度因子(Uncertainty factor),若 $0 \le t_s < 10^3$,則K=0.2;若 $10^3 \le t_s \le 10^7$,則 K=0.1;A_n和 a_n為實驗的近似係數,其對應之係數值如表 3.1.6。

Heavy element Decay heat :

$$\frac{P(U-239)}{P_0} = 2.28 \times 10^{-3} C \frac{\sigma_{25}}{\sigma_{f25}} (1 - e^{-4.91 \times 10^{-4} t_0}) \times e^{-4.91 \times 10^{-4} t_s}$$
3.1.4

$$\frac{P(Np-239)}{P_0} = 2.17 \times 10^{-3} C \frac{\sigma_{25}}{\sigma_{f25}} \left[1.007(1 - e^{-3.41 \times 10^{-6}t_0}) \right] \times e^{-3.41 \times 10^{-6}t_s} - 0.007(1 - e^{-4.91 \times 10^{-4}t_0}) \times e^{-4.91 \times 10^{-4}t_s}$$
3.1.5

其中,P(U-239)和 P(Np-239)分別代表 U-239 和 Np-239 之衰變熱功率; P₀ 為衰變初始功率; t₀ 為運轉開始到停機歷經的時間,單位為秒; t_s 為停機 到計算時間點歷經的時間,單位為秒; C為轉化比(Conversion ratio),當消耗 一個 U-235 原子時,可以產生的 Np-239 原子數; σ_{25} 為 U-235 之有效中子 吸收截面(Effective neutron absorption cross section); σ_{f25} 為 U-235 之有效中 子分裂截面(Effective neutron fission cross section); 根據 ASB 9-2 衰變熱功 率計算式, $C_{\sigma_{25}}^{\sigma_{25}}$ 項保守假設為 0.7。

ASB 9-2 衰變熱功率計算式考量條件包含運轉時間、運轉功率與冷卻時間等,此文獻最後亦有提供計算結果圖,代表在其假設之運轉時間與運轉功率條件下,使用此計算式時所得到之衰變熱曲線,如圖 3.1.3 所示。

此外,NUREG-0800 SRP 9.2.5 最新發布的版本中提到(2007 年發布之 第三版),除了衰變熱功率計算式為 ASB 9-2 之外,也採納 ANSI/ANS-5.1 衰變熱功率之計算式[6]。而 ANSI/ANS-5.1 衰變熱功率之計算式最初於 1971 年-1973 年開始發展[7], 1971 年 10 月美國國家標準(American National Standard, ANS)小組委員提出 5 個關於"鈾燃料反應器停機後之衰變能量釋 放率"之建議標準並送美國國家標準協會(American National Standard Institute, ANSI)審查,在1973年10月經過投票與意見修改後,雖然贊成票 數過門檻,但ANSI仍然提出質疑並做出行動,至此,該項目一直是提議之 ANS 標準, 而美國原子能委員會(現在的核管會)則使用此提議之標準(ANS-5.1 標準)作為審查之依據。 ANS-5.1 標準是基於 K. Shure 建議的曲線[8], 用於鈾燃料的無限照射和 0 至 10⁹秒的冷卻時間,該方法很簡單,因為選擇 了一條曲線來表示鈾燃料熱中子反應器的衰變熱功率,但由於此曲線忽略 其中許多現象造成衰變熱變化之情況,因此此方法具有較大的不準度帶,

ANS-5.1 工作小組根據當時可用數據的比較建立了 ANS-5.1 標準之不確定 度帶,如表 3.1.7。

1974 年,在能源研究與發展管理局(Energy Research and Development Administration, ERDA)、核管會和電力研究所(Electric Power Research Institute, EPRI)的支持下啟動了新研究計劃,以更好地量化衰變熱及其短停 機冷卻時間的不確定性。 ANS-5.1 工作小組經過重組,人員包括那些從事 核工領域和核管會的代表,藉此從這些工作人員專業角度來了解衰變熱功 率,該工作小組的第一個目標是修訂輕水式反應器(LWR)中喪失冷卻水事 故(LOCA)應用(停機冷卻時間達10⁴秒)的 ANS-5.1 標準。這項研究計畫 產生了 ANSI/ANS-5.1 標準的1979年修訂版,標題為"輕水反應器中的衰 變熱功率",該標準提供了更精確的結果和更詳細地評估了分裂產物之中 子捕獲現象在該停機冷卻時間範圍內的影響.此ANSI/ANS-5.1標準涵蓋了 長達 10⁹秒的停機冷卻時間範圍內的影響.此ANSI/ANS-5.1標準涵蓋了 長達 10⁹秒的停機冷卻時間。而1979年版本與1973年草稿版的差異,彙

- (a) 1979年版本多了反應器運轉時期分裂產物中子捕獲的影響。對於以 ²³⁵U為燃料的輕水式反應器,提出了中子捕獲的效應上限並以此給 出保守的衰變熱。
- (b)規定了在輕水式反應器主要的可分裂元素(²³⁵U、²³⁹Pu 的熱中子分裂及²³⁸U的快中子分裂)衰變熱功率數據,並從這些數據

中提出總分裂產物的衰變熱功率計算的方法。

- (c) 1979 年版本中提出不準度是常態分佈的一個標準差。
- (d)²³⁵U及²³⁹Pu是採用新的實驗數據與計算的統計評估。
- (e)由於缺乏相關時間範圍的直接實驗數據,²³⁸U採用的標準值僅基於 總和計算,其相應採用的不準度也基於總和計算。
- (f)在1979年的ANSI/ANS-5.1標準中,公式是基於每個放射性元素在 運行期間每次分裂釋放的能量 Qi 是與時間無關所假設的,在應用 1979年的ANSI/ANS-5.1標準時,使用者必須提供並證明 Qi 的值,

Qi的值越低導致對衰變熱功率的保守評估。

1979年所訂定的 ANSI/ANS-5.1 標準是依照 1971年 ANSI/ANS-5.1 標 準提出後的實驗數據所計算而來,此版本中提出了兩種輻照條件下的衰變 熱,1.分裂脈衝及 2.無限運轉的反應爐,其中無限的定義為 10¹³秒(約 3×10⁵ 年)。在分裂產物中沒有中子捕獲效應時,可以利用數學關係式獲得衰變熱 及不準度。圖 3.1.4 為²³⁵U在 1979年版本與 1973年的版本所計算的值與不 準度之差異性比較。

除了提供²³⁵U、²³⁹Pu和²³⁸U混合物衰變熱公式之外,1979年版本也提 供僅²³⁵U數據的簡化方法,倍增因子設定為1.02保守地解釋輕水式反應器 典型²³⁸U分裂速率下,²³⁸U所分裂出的²³⁵U衰變熱功率增加;而與²³⁵U相 比,簡化方法的保守性使²³⁹Pu的衰變熱功率較低。

1994 年標準委員會核准了 ANSI/ANS-5.1 的 1994 年修訂版,該修訂版 於 1995 年發布[9], 取代了 1979 年的版本, 1994 年的 ANSI/ANS-5.1 修 訂版納入了已發表的新衰變熱測量值,並使用更新的核數據庫做為衰變熱 評估總和計算。根據新的實驗數據和總和計算,對三種燃料同位素(²³⁵U、 ²³⁹Pu和²³⁸U) 重新評估了 1994 年修訂版中的 ANSI/ANS-5.1 標準衰變熱 數據表和相關不確定性,此外,同位素²⁴¹Pu的數據被添加到 1994 年修訂 版中。²³⁸U 採用的修訂標準值是基於對新實驗數據以及總和計算的評估, 並替換了 1979 年 ANSI/ANS-5.1 標準中²³⁸U的值。而根據於 Tobias [10] 對當時 23 年的所有可用實驗數據²³⁵U發表的評估,針對脈衝熱分裂 ²³⁵U 的標準值和不確定性針對反應器停機後的 1.0 秒、1.5 秒和 2.0 秒的時間進 行了修訂,這些停機冷卻時間變化將修訂後的衰變熱功率分別增加 16.2%、 8.0%和 3.3%。基於 Tobias 的評估,此版本與 1979 年 ANSI/ANS-5.1 標準 中給出的數據相比,這些停機冷卻時間的不確定性降低了。²³⁵U停機後冷 卻時間超過 1.5 x 10⁹ 秒的標準值和不確定性也進行了修訂,以反映改進的 核數據和用於長週期分裂產物 (主要是 ⁹⁹Tc和 ¹²⁶Sn) 總和計算的不確定 性。 根據 Tobias 對²³⁹Pu的所有可用實驗數據的評估,針對 ²³⁹Pu的 1.0 秒、1.5 秒 和 2.0 秒後以及 20 秒到 15,000 秒之間的停機冷卻時間進行 了不確定度修訂。也針對²³⁹Pu的標準值和不確定性在停機冷卻時間超過5 $x \ 10^9$ 秒的時間進行了修訂,反映了改進的核數據和用於長週期分裂產物

(主要是 ⁹⁹Tc和 ¹²⁶Sn)總和計算的不確定性。此外,也將整體停機冷卻 時間從 10⁹秒提升到 10¹⁰秒。

2005 年修訂的 ANSI/ANS-5.1 標準 [11] 保留了 1994 年版本的主要特 徵和分裂產物衰變熱功率數據,新數據被整合到 JENDL 文件中[12]。自從 1994 年 ANSI/ANS-5.1 標準發布以來,文獻中幾乎沒有新的衰變熱測量報 告。而使用更新的 JENDL 庫計算的衰變熱值與 1994 年和 2005 年 ANSI/ANS-5.1 標準中的衰變熱值進行了比較,發現在 ANSI/ANS-5.1 標準 中引用的不確定性範圍內是一致的。2005 年 ANSI/ANS-5.1 標準中報告的 分裂產物中子捕獲的校正因子使用修訂的 ENDF/B-VI 數據[13]重新計算, 取代了 1994 年 ANSI/ANS-5.1 標準中採用的 ENDF/B-IV 值。基於 1994 年 ANSI/ANS-5.1 標準中描述的²³⁵U 分裂產物數據的 "簡化方法",在 2005 年 ANSI/ANS-5.1 標準中進行了修改,以允許在指定條件下替換用戶提供的 簡化模型。

2014 年最新版本之 ANSI/ANS-5.1 標準修訂保留了 1994 年和 2005 年標準中衰變熱功率和分裂產物不準度的表格數據,而根據 Dickens 等人建議進行修訂[14],這些修訂包括:

(1)用更嚴格和準確的方法說明分裂產物中子捕獲的G_{max}(t)的方法,該方 法明確包括¹³⁴Cs的貢獻,並使用乘數因子對剩餘分裂產物進行中子 捕獲的校正; (2) 增加了計算²³⁹U和²³⁹Np以外錒系元素衰變熱功率的計算;

(3) ENDF/B-VII.1 標準[15]中使用的核衰變數據參數的修訂;

(4) 對於分裂產物衰變熱不準度新增加了分析方法來校正中子捕獲。

¹³⁴Cs的衰變熱功率貢獻開發的方法是使用在 ISO 1064 標準[16]中所開 發的分析式所算出,並使用 ENDF/B-VII.0 所提供¹³³Cs和¹³⁴Cs中子捕獲的 反應截面數據進行更新[17]。使用 OECD/NEA I-B 階段基準[18]中的規範, 基於 Calvert Cliffs 反應器組件的設計和運行條件[19],對壓水式反應器設計 有效反應截面進行加權。由分析表達式所計算出的¹³⁴Cs原子數已根據用過 燃料破壞性放射化學分析的測量結果進行了驗證[20]。

修訂後的 ANSI/ANS-5.1 標準更加強調計算分裂產物衰變熱功率的解析 方程式,而較少強調依賴於 ANSI/ANS-5.1 標準中表格數據內插的方法,除 2005 年 ANSI/ANS-5.1 標準採用修訂過計算分裂產物中子捕獲的方法外, 衰變熱功率的標準表格值與 2005 年版本相同便於電腦程式升級。修訂後的 ANSI/ANS-5.1 標準其他改變包括計算錒系元素對衰變熱功率的貢獻等新 方法,這些方法是以前沒有解決的問題。

2014 年最新版本之 ANSI/ANS-5.1 標準適用含有²³⁵U和²³⁸U的核燃料的 輕水式反應器分裂產物和錒系元素的衰變熱功率值,分裂產物的衰變熱功 率在表格中和等價分析表中給出,²³⁹U、²³⁹Np和其他錒系元素的衰變熱功率 值則分別表示,此方法描述了反應爐運行歷史、分裂產物中子捕獲的影響 以及評估衰變熱功率的不準度的方法,而新版的 ANSI/ANS-5.1 標準上限為 停機冷卻時間不超過 10¹⁰ 秒。此外, ANSI/ANS-5.1 標準不適用於再循環核 燃料,以及結構材料中活化產物的衰變熱功率和延遲中子誘發分裂的分裂 功率不包括在本 ANSI/ANS-5.1 標準考量中,因此使用者應評估並適當地包 括在任何衰變熱功率分析中。

ANSI/ANS-5.1 標準之衰變熱計算式為:

$$P_{T}(t,T) = P'_{d}(t,T) + P_{dC}(t,T) + P_{dHE}(t,T) + P_{dA}(t,T)$$
3.1.6

$$P_{dC}(t,T) = \begin{cases} P'_{d}(t,T)G(t), t \le 10^{4}s \\ P_{dCs}(t,T) + P_{dE}(t,T), t > 10^{4}s \end{cases}$$
3.1.7

其中

PT(t,T): 總衰變熱

P'd(t,T):第i個可分裂元素對 Pd(t,T)的分裂產物衰變熱功率的貢獻,未 針對分裂產物進行中子捕獲的校正(MeV/s)
Pdc(t,T):所有分裂產物中中子捕獲所貢獻的衰變熱(MeV/s)
PdHE(t,T):錒系元素中(²³⁹U和²³⁹Np所貢獻的衰變熱(MeV/s)
PdA(t,T):錒系元素中重元素(不包含²³⁹U和²³⁹Np)所貢獻的衰變熱

(MeV/s)

P_{dCs}(t,T):¹³⁴*Cs*所貢獻的衰變熱(MeV/s)

PdE(t,T):所有分裂產物中除了¹³⁴Cs,中子捕獲所貢獻的衰變熱(MeV/s)

G(t): 說明 t≤10⁴ 秒時分裂產物中中子捕獲的係數

T:總運轉期間,包含功率為0的時間

t:停機後經過的時間(冷卻時間)
| Cooling time, | | F | uel burnup, MW | /d/kgU | | |
|------------------|-------|-------|----------------|--------|--------|--------------|
| years | 20 | 25 | 30 | 35 | 40 | 45 |
| 1.0 | 6.809 | 7.786 | 8.551 | 9.337 | 10.010 | 10.706 |
| 1.4 | 4.939 | 5.721 | 6.357 | 7.006 | 7.579 | 8.169 |
| 2.0 | 3.368 | 3.958 | 4.463 | 4.979 | 5.453 | 5.938 |
| 2.8 | 2.211 | 2.651 | 3.050 | 3.460 | 3.855 | 4.256 |
| 4.0 | 1.381 | 1.705 | 2.016 | 2.339 | 2.663 | 2.991 |
| 5.0 | 1.063 | 1.335 | 1.605 | 1.885 | 2.172 | 2.462 |
| 7.0 | 0.797 | 1.015 | 1.239 | 1.471 | 1.713 | 1.958 |
| 10.0 | 0.666 | 0.850 | 1.039 | 1.237 | 1.443 | 1.653 |
| 15.0 | 0.579 | 0.737 | 0.898 | 1.067 | 1.242 | 1.422 |
| 20.0 | 0.525 | 0.667 | 0.811 | 0.962 | 1.117 | 1.276 |
| 25.0 | 0.482 | 0.611 | 0.741 | 0.877 | 1.017 | 1.160 |
| 30.0 | 0.445 | 0.563 | 0.681 | 0.805 | 0.931 | 1.061 |
| 40.0 | 0.382 | 0.482 | 0.581 | 0.685 | 0.790 | 0.898 |
| 50.0 | 0.332 | 0.418 | 0.502 | 0.589 | 0.678 | 0.769 |
| 60.0 | 0.292 | 0.366 | 0.438 | 0.513 | 0.589 | 0.666 |
| 70.0 | 0.259 | 0.323 | 0.386 | 0.451 | 0.517 | 0.584 |
| 80.0 | 0.232 | 0.289 | 0.344 | 0.401 | 0.459 | 0.517 |
| 90.0 | 0.210 | 0.261 | 0.310 | 0.361 | 0.411 | 0.463 |
| 100.0 | 0.192 | 0.238 | 0.282 | 0.327 | 0.372 | 0.418 |
| 110.0 | 0.177 | 0.219 | 0.259 | 0.300 | 0.340 | 0.382 |

表 3.1.1 BWR spent fuel heat generation rates, watts per kilogram U, for specific power = 30 kW/kgU[2]

| | | - | - | | • • | |
|---------|-------------|----------------------------|----------------|---------------------------------|--------------------|------------|
| Group | Discharge | Enrichment (%) | Enrichment (%) | Burnup (GWd/tU) | Burnup (GWd/tU) | Number of |
| ID | year range | [min, median, max] | [5%, 95%] | [min, median, max] | [5%, 95%] | assemblies |
| BWR-1 | 1968–1983 | [0.71, 2.33 , 3.94] | [1.11, 2.75] | [0.1, 21.7 , 40.5] | [9.2, 29.1] | 21,539 |
| BWR-2 | 1984–2002 | [0.71, 3.00 , 4.24] | [1.76, 3.76] | [1.6, 32.6 , 65.2] | [13.5, 43.2] | 68,087 |
| BWR-3 | 2003–2013 | [1.43, 3.99 , 4.43] | [3.31, 4.21] | [6.5, 44.1 , 54.0] | [34.4, 50.2] | 46,978 |
| Total # | of BWR asse | mblies: | | | | 136,604 |
| PWR-1 | 1968–1983 | [0.71, 2.94 , 4.94] | [1.95, 4.00] | [2.8, <mark>28.3</mark> , 55.4] | [13.5, 36.5] | 13,628 |
| PWR-2 | 1984–2002 | [0.71, 3.61 , 4.97] | [2.40, 4.46] | [2.4, 39.4 , 69.5] | [21.7, 50.1] | 56,293 |
| PWR-3 | 2003–2013 | [0.30, 4.28 , 4.96] | [3.96, 4.80] | [3.0, 47.1 , 69.7] | [35.7, 54.3] | 35,256 |
| Total # | of PWR asse | mblies: | | | | 105,177 |

表 3.1. 2 Summary of enrichment and burnup for each UO₂ BWR and PWR group[4]

表 3.1.3 燃耗對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]

| Burnup GWd/MTU | Total activity | Total gamma heat | Total decay heat | Total photon emission | Total neutron emission | Total Pu |
|-------------------|-------------------|---------------------|---------------------|-----------------------------|------------------------------|----------|
| GWG/MTO | (Curies) | (Watts) | (Watts) | (Photon/s) | (Neutron/s) | (Grams) |
| 5 | 9.26E+04 | 6.10E+01 | 2.45E+02 | 1.48E+15 | 3.55E+05 | 2.32E+03 |
| 15 | 2.82E+05 | 2.27E+02 | 7.49E+02 | 4.60E+15 | 5.31E+06 | 5.59E+03 |
| 25 | 4.61E+05 | 4.40E+02 | 1.28E+03 | 7.90E+15 | 5.11E+07 | 7.82E+03 |
| 35 | 6.22E+05 | 6.85E+02 | 1.87E+03 | 1.13E+16 | 2.40E+08 | 9.42E+03 |
| 45 | 7.65E+05 | 9.50E+02 | 2.53E+03 | 1.48E+16 | 7.19E+08 | 1.06E+04 |
| 55 | 8.93E+05 | 1.22E+03 | 3.28E+03 | 1.82E+16 | 1.62E+09 | 1.16E+04 |
| 60 | 9.54E+05 | 1.36E+03 | 3.69E+03 | 1.99E+16 | 2.26E+09 | 1.20E+04 |

| Cooling | Total activity | Total gamma heat | Total decay heat | Total photon emission | Total neutron emission | Total Pu |
|-----------|----------------|---------------------|---------------------|--------------------------|------------------------------|----------|
| ume | (Curies) | (Watts) | (Watts) | (Photon/s) | (Neutron/s) | (Grams) |
| 5 hours | 7.47E+07 | 1.67E+05 | 3.16E+05 | 3.39E+18 | 8.32E+08 | 1.01E+04 |
| 1 day | 5.57E+07 | 1.14E+05 | 2.12E+05 | 2.47E+18 | 8.32E+08 | 1.02E+04 |
| 3 months | 7.59E+06 | 1.21E+04 | 3.12E+04 | 2.09E+17 | 7.13E+08 | 1.02E+04 |
| 1 year | 2.78E+06 | 2.83E+03 | 1.16E+04 | 7.14E+16 | 5.27E+08 | 1.02E+04 |
| 5 years | 6.81E+05 | 7.89E+02 | 2.12E+03 | 1.27E+16 | 3.88E+08 | 9.94E+03 |
| 10 years | 4.64E+05 | 4.23E+02 | 1.33E+03 | 7.09E+15 | 3.22E+08 | 9.70E+03 |
| 25 years | 2.88E+05 | 2.43E+02 | 9.46E+02 | 4.41E+15 | 1.87E+08 | 9.23E+03 |
| 50 years | 1.51E+05 | 1.33E+02 | 6.28E+02 | 2.48E+15 | 7.95E+07 | 8.90E+03 |
| 200 years | 9.33E+03 | 4.80E+00 | 1.87E+02 | 1.74E+14 | 1.03E+07 | 8.64E+03 |

表 3.1.4 冷卻時間對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]

表 3.1.5 初始燃料濃度對衰變熱所造成之影響靈敏度分析[4]

| Enrichment | Total activity | Total gamma heat | Total decay heat | Total photon emission | Total neutron emission | Total Pu |
|------------|-------------------|---------------------|---------------------|--------------------------|---------------------------|----------|
| (%) | (Curies) | (Watts) | (Watts) | (Photon/s) | (Neutron/s) | (Grams) |
| 1.84 | 6.72E+05 | 8.66E+02 | 2.36E+03 | 1.33E+16 | 1.20E+09 | 1.03E+04 |
| 2.0 | 6.73E+05 | 8.59E+02 | 2.33E+03 | 1.32E+16 | 1.08E+09 | 1.03E+04 |
| 2.5 | 6.76E+05 | 8.37E+02 | 2.25E+03 | 1.31E+16 | 7.70E+08 | 1.01E+04 |
| 3.0 | 6.79E+05 | 8.15E+02 | 2.18E+03 | 1.29E+16 | 5.58E+08 | 1.00E+04 |
| 3.5 | 6.81E+05 | 7.94E+02 | 2.13E+03 | 1.28E+16 | 4.13E+08 | 9.95E+03 |
| 4.0 | 6.82E+05 | 7.74E+02 | 2.09E+03 | 1.26E+16 | 3.13E+08 | 9.91E+03 |
| 4.5 | 6.83E+05 | 7.57E+02 | 2.05E+03 | 1.25E+16 | 2.40E+08 | 9.88E+03 |
| 5.0 | 6.82E+05 | 7.42E+02 | 2.02E+03 | 1.23E+16 | 1.88E+08 | 9.86E+03 |

表 3.1.6 實驗之近似係數[5]

| n | An | an(sec-1) |
|----|--------|-------------------------|
| 1 | 0.5980 | 1.772 |
| 2 | 1.6500 | 5.774×10 ⁻¹ |
| 3 | 3.1000 | 6.743×10 ⁻² |
| 4 | 3.8700 | 6.214×10 ⁻³ |
| 5 | 2.3300 | 4.739×10 ⁻⁴ |
| 6 | 1.2900 | 4.810×10 ⁻⁵ |
| 7 | 0.4620 | 5.344×10 ⁻⁶ |
| 8 | 0.3280 | 5.716×10 ⁻⁷ |
| 9 | 0.1700 | 1.036×10 ⁻⁷ |
| 10 | 0.0865 | 2.959×10 ⁻⁸ |
| 11 | 0.1140 | 7.585×10 ⁻¹⁰ |

| 表 | 3.1.7 | 7 ANS | -5.1 | 標準 | 之不 | 確定 | 度 | 帶 |
|-------|-------------------------|-------|------|-------|----|----|---|---|
| · / · | U • 1 • • | | | 1/1/2 | | | ~ | |

| 冷卻時間 | 不準度 |
|--|-------------|
| $t_s^* < 10^3 s$ | +20% \ -40% |
| 10 ³ s < t _s < 10 ⁷ s | +10% \ -20% |
| $t_{s} > 10^{7} s$ | +25% ` -50% |

*ts是以秒為單位的冷卻時間



圖 3.1.1 運轉中間使用不同功率運轉之靈敏度分析[2]



圖 3.1.2 不同冷卻時間與燃耗之平均衰變熱[3]



圖 3.1.3 NUREG-0800 所計算之衰變熱結果圖[5]



圖 3.1.4²³⁵U在 1979 年標準的 F(t,∞) 值與 1973 年標準草案的比較

二、核二廠除役期間用過核子燃料池安全分析模式

核二廠即將運轉執照屆期並進入除役階段,最後一批用過核子燃料將 退出爐心並貯存於用過燃料池,因此核二廠除役期間用過核子燃料池之安 全性備受各界關注,用過燃料池之安全評估與確保用過燃料完整性實屬重 要之一環。本章節說明本計畫利用美國核管會所發展之先進熱水流分析程 式 TRACE 建立核二廠用過燃料池分析模式以及簡述相關熱流計算模式與 驗證文獻。

(一) 熱水流分析程式與模式建立

1. TRACE 程式簡介

TRACE (TRAC/RELAP Advanced Computational Engine)程式是由美國 核管會研發之最佳估算熱水流分析程式,可用於輕水式反應器,包含沸水 式與壓水式反應爐之安全分析模擬,其統合了四套熱水流程式的重要功能, 包含 TRAC-P、TRAC-B、RELAP5、以及 RAMONA,主要運用於輕水式核 電廠之模擬熱流分析,包含穩態與暫態現象。本程式被設計用於模擬並分 析輕水式反應器之熱水流現象,如喪失冷卻水事故、電廠全黑事故等暫態 分析。TRACE 程式其特色為具備模擬三維幾何模型之能力,在組件中藉由 設定,可將組件分隔成若干個小體積,以模擬更詳細之熱水流現象,也因 此 TRACE 能提供更為詳細有力的模擬結果。 TRACE 程式中擁有各種組件供使用者模擬[21],在本研究中主要使用 之組件包含: VESSEL(模擬用過燃料池之水池本體,具備三維模擬能力, 可切割成多個節點以探討細部區域之熱水流現象)、POWER(可為組件或系 統注入熱源,並可因應用過燃料束不同節點之功率比例進行調整以符合實 際狀況)、BREAK(主要用於提供邊界條件,包含系統壓力、冷卻水流量與 溫度等)、FILL(同 BREAK 組件,主要用於提供系統邊界條件,亦可藉由控 制邏輯,主動替組件注入冷卻水)、VALVE(在 TRACE 內主要用於模擬一閥 門,也擁有同 PIPE 之功能可用於模擬用過燃料池內各管路,並藉由控制邏 輯,將管路封閉或開啟,在本研究中主要用於模擬破口發生)、以及 HTSTR (用於模擬一個或多個用過燃料束)等組件。

2. 核二廠用過燃料池簡介

核二廠用過燃料池位於燃料廠房中,圖 3.2.1.1,主要區分為西池、燃 料傳送池、東池及護箱裝載池,其中西池與東池設計和計可裝載 4398 束 用過核子燃料,原先無貯存空間的護箱裝載池經過改建增設燃料格架後亦 可存放 440 束用過核子燃料,目前核二廠用過燃料池總計可貯存 4838 束 用過核子燃料。在除役過渡階段時,由於護箱裝載池可能存放用過核子燃 料,所以需考慮護箱裝載池之衰變熱與貯存水量,直到護箱裝載池復原為 止。

26

用過燃料池中西池、燃料傳送池、東池與護箱裝載池正常運轉時上方 為相互連通,距離水池頂端 6.82 m 處設有閘道分隔四池,其示意圖為圖 3.2.1.2 及圖 3.2.1.3。西池、東池及護箱裝載池具有格架及燃料等固體存放, 其固體所佔體積以截面積平均值為 42.7%;燃料傳送池中則無放置任何物 體,各池的幾何參數整理於表 3.2.1.1 中,其中西池、東池及護箱裝載池體 積已扣除固體所佔有的 42.7% 之空間[22]。

3. 用過燃料池 TRACE 分析模式

本研究利用 SNAP 圖形化介面程式編輯 TRACE 熱水流分析程式之輸 入檔,所使用之 SNAP 程式為 3.0.2 版本,TRACE 程式則為 TRACE version 5.0 patch 5 版本。本計畫建立之核二廠用過燃料池分析模式如圖 3.2.1.4 所 示,分析模式中包含用過燃料池及用過核燃料兩大部分,以直角座標分割 VESSEL 組件單元,其中紅色框起來部分為用過燃料池所在位置,藍色圈 起來部分則為與大氣銜接之緩衝區,其餘部分體積係數設為 0; VESSEL 上 方則利用 PIPE 連結 BREAK 模擬燃料池上方大氣環境;整體 VESSEL 於 X 方位(長)劃分成 7 個單元、Y 方位(寬)劃分成 5 個單元、Z 方位(高)劃分成 8 個單元;其中長度方向 7 個單元,由左至右分別為西池、連通道、燃料傳 送池、連通道、東池、連通道及護箱裝載池。

西池、東池及護箱裝載池由下而上分成7個單元,單元1為用過核燃

27

料格架下方空間,單元2、3為用過燃料格架及燃料放置區域,單元4為格 架頂部至閘道的空間,單元5、6則為閘道至用過燃料池頂部之空間,單元 7則為連接大氣邊界條件的緩衝空間。

燃料傳送池由下而上分成 8 個單元,其中單元 1 為較東西池及護箱裝載池較深之區域,單元 2 至單元 8 切齊東西池及護箱裝載池單元 1 至單元 7,其中單元 8 亦為連接大氣邊界條件的緩衝空間。

連結西池、燃料傳送池、東池及裝載池間之連通道由下而上分成3個 單元,單元1至3切齊東西池及護箱裝載池單元5至單元7,其中單元3亦 為連接大氣邊界條件的緩衝空間。

體積係數參考核二除役計畫書內容[22]燃料束與格架佔有 42.7%之空間, 故體積係數設定為 0.573,燃料池其餘地方皆設定為 1,而不屬於燃料池的 空間則設定為 0,其設定頁面如圖 3.2.1.5 所示。用過燃料池空泡分率設定 中,除了作為連接大氣邊界條件的緩衝空間外,其餘空間充滿液態水空泡 分率設為 0,其設定頁面如圖 3.2.1.6 所示。

分析模式將用過核燃料束區分為三個族群,並分別放置於西池、東池 及護箱裝載池中,再透過 HTSTR 組件及 POWER 組件模擬用過燃料束之 幾何形狀與衰變熱。核二廠核燃料束為 ATRIUM-10 燃料束,本研究根據 ATRIUM-10 之設計值[22]設定 HTSTR 組件,徑向為單一單元其設定為厚 度 1.21 mm 之鋯合金材料,縱向則將燃料棒高 3.796 m 平均分成 10 個單 元,其設定頁面如圖 3.2.1.7 與 3.2.1.8 所示。HTSTR 邊界條件部分設定頁 面如圖 3.2.1.9 所示,圖中左側設定內表面之邊界條件為絕熱,因此將熱通 量設定為 0;圖中右側設定外表面之邊界條件為 VESSEL 組件中相應的單 元,以此將 HTSTR 組件連結於 VESSEL 組件中相應的位置。衰變熱功率 則使用 POWER 組件來設定,將衰變熱輸入至組件中並將 POWER 組件連 結至相應的 HTSTR,其設定頁面如圖 3.2.1.10 所示。

用過燃料池初始條件壓力設定部分將其設定為 1 大氣壓,其設定頁面 如圖 3.2.1.11 所示。水溫及用過核燃料溫度則參考核二除役計畫書[22]內部 所提及 41℃做初始設定,其設定頁面如圖 3.2.1.12 及 3.2.1.13 所示。

| | 長(m) | 寬(m) | 高 (m) | 截面積 | 體積 |
|-------|---------|--------|-------|---------|---------|
| | | | | (m^2) | (m^3) |
| 西池 | 10.9728 | 5.2578 | 12.19 | 57.7 | 587.59 |
| 燃料傳送池 | 10.9728 | 2.1336 | 15 | 23. 37 | 350.49 |
| 東池 | 10.9728 | 5.8674 | 12.19 | 64.38 | 655.73 |
| 護箱裝載池 | 3.6576 | 3.9624 | 12.19 | 14.49 | 147.58 |

表 3.2.1.1 核二廠用過燃料池幾何參數



圖 3.2.1.1 核二廠用過燃料池位置示意圖



圖 3.2.1.2 核二廠用過燃料池側視示意圖

圖 3.2.1.3 核二廠用過燃料池俯視示意圖

圖 3.2.1.4 核二廠用過燃料池 TRACE 模式建立

| Toto Work Point Mode Point Mode <th>O Volumetric and Edge Data - Vessel 40</th> <th></th> <th>×</th> | O Volumetric and Edge Data - Vessel 40 | | | | | | | | | | | | | | | | | | × |
|---|--|-------------------------------|--------------------|-------|-------|-------|-------|----------|------|-----|------|------|-----|------|-----|-----|------|------|------|
| N Class A | Top Down View | Cells Edges | Display Mode | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1 | | Volume & Area Frac > 1.0 | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 13 24,35,4 53 34,75 14 15 16 | | Volume (m ⁵) | Levels | X: 1 | X 1 | X 1 | X; 1 | X: 1 | X.2 | X:2 | X:2 | X: 2 | X 2 | X: 3 | Х З | X 3 | х з | Х: З | x |
| Image: 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 | in induction and the | Volume Fraction ? | Levela | Y. 1 | Y:2 | Y: 3 | Y: 4 | Y.5 | Y: 1 | Y:2 | Y: 3 | Y: 4 | Y:5 | Y: 1 | ¥:2 | Y.3 | Y: 4 | Y:5 | Y: · |
| 1.1. 4.24.24.4.3. 5.4.2.7.1 isolar intervalue 0 0 1 0 | 1.0 2.4 0.0 4.4 0.0 10.4 1.0 | Void Fraction 1 | Level 8 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | |
| I.1. 242424 3.4 | | Initial Vapor Temperature (K) | Level 6 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | |
| 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 44 7.2 1.3. 2323/24 5.3. 42 7.2 1.4. 10. 10. 10. 10. 10. 10. 10. 10. 10. 10 | | mitial Liquid Temperature (K) | Level 5 Level 4 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | - |
| 12. 243/34 52. 24 / 22 13. 243/34 53. 24 / 22 13. 243/34 53. 24 / 22 14. Cherr Image 1 All Cherr Image 1 Levit 2 Image 1 Levit 3 Image 1 Levit 4 Image 1 Levit 4 Image 1 Levit 3 Image 1 Levit 4 Image 1 Levit 4 Image 1 Levit 3 Image 1 Levit 4 Image 1 Levit 5 Image 1 | 1,3 (2,13,3)4,1 5,3 (6,1 7,3 | Noncood Dartial Drozento (Da) | Level 3 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.573 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | |
| 11 22/31 % (51 % (71)) M Clear M Clear Ster Vew File fore in the one type of the file one | 1.2 2.43,24.4 6,2 6,4 7,2 | Boron to Coolant Mass Ratio | Level 1 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | |
| 11 22/35/4 51 X4 71 All Claw Table Scorety Table Scorety Table Scorety Table Scorety <td></td> <th>Plated-out Boron Density</th> <td></td> | | Plated-out Boron Density | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| A Clar A A Clar Sor Vew Loret 0 Loret 1 Loret 2 Loret 2 Loret 2 Loret 2 Loret 2 Loret 2 Loret 2 Loret 1 Loret 2 | 1.1 (2,1 3,1 4.1 5,1 (6,1 7,1 | Boron 10 Mass Fraction | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| A Char The Roots ? Hat Plate Sconstry ? Hat Plate Sconstry ? See Yew Norw Rectapting Constry ? Levit 8 See The Root ? Levit 4 See The Root ? Levit 4 See The Root ? Levit 2 See The Root ? Levit 1 See The Root ? | | Level Tracking | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Infelia Gonary If Falls Gonary New Yew Nnrve Reclassic Gonary If Falls Gonary Infelia Infelia Infelia Infelia Infelia Infelia < | All Clear | Tube Rows | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| See Yew See Yew Rectangular Gondrug T Level 8 Level 7 Level 7 L | | Flat Plate Geometry | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Level 9 | Side View | Narrow Rectangular Geometry | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Lenit 8 Image: Second seco | 1 | Short Dimension over Long | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Level 7 | Level: 8 | Long Dimension (m) | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Levit 6 | Level: 7 | Striace Area Kato | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Levit 0 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Level: 5 Level: 7 Lev | Level: 6 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Long 4 Long 4 <td< td=""><td>Loup! E</td><th></th><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td></td<> | Loup! E | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Lank 4 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Level 3 | Level: 4 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Levit 2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Lent 2 Lent 1 Al Char | Level: 3 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Level 1 | Level: 2 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Al Clear b | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | Level: 1 | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | All Clear | | | _ | _ | .1 | _ | | _ | | | | | | | | | | • |
| Ciose | | | | | | | Clos | He State | | | | | | | | | | | |

圖 3.2.1.5 核二廠用過燃料池每一節點體積分率設定頁面

| O Volumetric and Edge Data - Vessel 40 | | | | | | | | | | | | | | | × |
|--|--|--|---|--|--|--|--|--|--|--|---|--|--|--|---|
| O Voluments and Edge Data - Vessel 40 Top Down New 1.5 24.9244 1.6 2.43444 1.7 2.43444 1.8 2.43444 1.3 2.43444 1.4 2.43444 1.5 2.63244 | Cells Edges Volume & Area Frac > 1.0 Y Volume fraction Y Volume fraction Y Notal Vacor Temperature (PQ Y Initial Liquid Temperature (PQ Y Pressure (Pa) Neaconf, Partial Pressure (Pa) | Display Mode All X All Levels X,1 Y,1 Levels Y,1 Y,0 Lower,7 0.0 0.0 Lower,5 0.0 0.0 Lower,3 0.0 0.0 | * * * * X 1 X 1 Y 2 Y 3 10 00 00 00 00 00 00 00 00 00 | X: 1 Y: 4 1.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 | X 1 Y 5 10 00 00 00 00 00 00 | x 2 Y 1 10 10 10 10 10 10 10 | X 2 Y 2 10 10 10 10 10 10 10 10 | X.2 Y.3 1.0 0.0 0.0 1.0 1.0 1.0 | X 2 Y 4 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 | X 2 Y 5 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 1.0 | X: 3 Y: 1 1.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 | X 3 Y 2 10 00 00 00 00 00 00 00 | X 3 Y 3 10 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 | X 3 Y 4 10 00 00 00 00 00 00 00 | X:3 X:4 Y:5 Y: 00 00 00 00 00 00 00 00 00 |
| 1.3 2.4 5.4 5.5 3.6 7.7 AB Clear Side View Level. 8 Level. 8 | Boron to Coolant Mass Ratio ? Plated out Boron Density ? Boron 10 Mass Fraction ? Level Tracking ? Tabe Rove ? Narrow Rectangular Geometry ? Norrow Rectangular Geometry ? Leng Dimension (m) ? | Lovet: 1 1.0 | 10 | 1.0 1.0 | 10 | 1.0 | 10 | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 0.0] | | 0.0 | 0.0 | 0.0 |
| Lavet: 7 Lavet: 6 Lavet: 5 Lavet: 4 Lavet: 3 | | | | | | | | | | | | | | | |
| Lavel. 2 Lavel. 1 All Clear | | 4 | | Cior | e | | | | | | | | | | • |

圖 3.2.1.6 核二廠用過燃料池每一節點空泡分率設定頁面

| Mesh Options Standard Mesh Finite Element Lumped Parameter Material Regions Add Material Regions Add Material Regions Calculation Node Count Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 1.21E-3 Manual 3 Split Interval Number Material Inner Radius (m) Relative Relative Outside (-) 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | | | | | | | | |
|---|----------------------------------|---------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|---------|----------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| Standard Mesh Finite Element Lumped Parameter Material Regions Add Material Inner Radius (m) Outer Radius (m) Thickness (m) Calculation Node Count Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 1.21E-3 Manual 3 Radial Intervals Split Interval Material Inner Outer Relative Relative Number Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | Options | | | | | | | |
| Add Add Material Regions Inner Radius (m) Outer Radius (m) Thickness (m) Calculation Node Count Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 1.21E-3 Manual 3 Add Radial Intervals Interval Number Material Inner Radius (m) Outer Radius (m) Relative Inside (-) Outside (-) 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | andard Me | sh 💿 Finite Eleme | ent O Lumped F | Parameter | | | | |
| Material Inner Radius (m) Outer Radius (m) Thickness (m) Calculation Node Count Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 1.21E-3 Manual 3 Radial Intervals Interval Number Material Inner Radius (m) Outer Radius (m) Relative Inside (-) Relative Outside (-) 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | al Regions | | | | | | Add | Remove |
| Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 1.21E-3 Manual 3 tadial Intervals Interval Material Inner Outer Relative Relative Interval Material Inner Outer Relative Outside (-) Outside (-) 1.0 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | Material | Inner Radius | (m) Outer Radius | s (m) Thickn | ess (m) | Calculation | Node Count | Start Node (n |
| Intervals Split Interval Material Inner Outer Relative Relative Number Material Radius (m) Radius (m) Inside (-) Outside (-) 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | ial 2 (Zirca | loy) 8.84 | 4E-3 0.0 | 1005 | 1.21E-3 | Manual | 3 | |
| 1 Material 2 (Zircaloy) 8.84E-3 0.01005 0.0 1.0 | Intervals | | | | | | Split | Merge |
| | Intervals erval mber | Material | Inner Radius (m) | Outer Radius (m) | R | elative side (-) | Relative Outside (-) | Merge Thickness (m |
| | Intervals erval mber Ma | Material terial 2 (Zircaloy) | Inner Radius (m) 8.84E-3 | Outer Radius (m) 0.0100 | R In | elative side (-) 0.0 | Relative Outside (-) 1.0 | Merge Thickness (n 1.21E |

圖 3.2.1.7 HTSTR 組件徑向設定頁面

| Axial Properties | Cell | Axial |
|-------------------------|-------|--------|
| Axial Length | Index | Length |
| Fine Mesh Count | 1 | 0.379 |
| CRAV Term | 3 | 0.379 |
| | 4 | 0.379 |
| Bumup (MWD/MTO) | 5 | 0.379 |
| Gadolinia Concentration | 7 | 0.375 |
| Oxide Thickness (m) | 8 | 0.379 |
| Creepdown (m) | 9 | 0.379 |
| Fuel Swelling (m) | 10 | 0.379 |
| Fuel Densification (m) | | |
| Inside Crud (m) | | |
| Outside Crud (m) | | |
| Hydrogen Concentration | | |
| Spacer Grids | | |

圖 3.2.1.8 HTSTR 組件縱向設定頁面

| Boundary Conditions Cell Boundary Conditions 0] Flux: 0.0 1 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 2 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 3 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 4 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Merge No Properties Available | Inner Surface | Axial | Oute | er Surface | | | | | |
|--|--------------------------|-----------------|------------------------|------------|------------------------|--|--|--|--|
| 0) Flux: 0.0 1 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0) Flux: 0.0 2 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0) Flux: 0.0 3 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0) Flux: 0.0 4 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0) Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0) Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0) Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Merge Add No Properties Available | Boundary Conditions | Cell | Boundary Conditions | | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 2 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 3 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 4 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Morge Vessel: Available | [0] Flux: 0.0 | 1 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][3] | | | | | |
| 0) Flux: 0.0 3 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 4 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove | [0] Flux: 0.0 | 2 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][3] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 4 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][3] 0] Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Merge Add No Properties Available | 0] Flux: 0.0 | 3 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][3] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 5 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Merge Add Remove Split Merge No Properties Available | 0] Flux: 0.0 | 4 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][3] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 6 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Add Remove Split Merge Add Remove Split Merge No Properfies Available | 0] Flux: 0.0 | 5 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][3] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 7 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Split Merge Add Remove • General Show Disable No Properties Available | 0] Flux: 0.0 | 6 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][4] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 8 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Split Merge Add Remove General Show Disable | 0] Flux: 0.0 | 7 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][4] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 9 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Split Merge Add Remove • General Show Disable No Properties Available | 0] Flux: 0.0 | 8 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][4] | | | | | |
| 0] Flux: 0.0 10 [2] Vessel: 40 Cell: [1][3][4] Split Merge Add Remove • General Show Disable No Properties Available | (0) Flux: 0.0 | 9 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][4] | | | | | |
| Split Merge Add Remove • General Show Disable No Properties Available | [0] Flux: 0.0 | 10 | [2] Vessel: 40 Cell: [| 1][3][4] | | | | | |
| No Properties Available | Split Merge | | | Add | Remove | | | | |
| | Split Merge • General | lo Properties A | wailable | Add | Remove Show Disable | | | | |
| | Split Merge General | lo Properties A | wailable | Add | Remove | | | | |

圖 3.2.1.9 HTSTR 組件邊界條件設定頁面

| Power 80 | | 50010 | |
|-------------------------------|---------------------|--------------------------------|-------|
| ✓ General | Show | / Dis | abled |
| Component Name | unnamed | $\triangleleft \triangleright$ | 29 |
| Component Number | | 80 | 29 |
| Description | <none></none> | E٩ | 29 |
| Power Option | [5] Constant Power | - | 29 |
| Powered Components | 1 Powered: 60 | E* | 29 |
| Include Reactivity Feedback | 🔾 True 🔘 False | | 29 |
| Target Component Type | [0] Heat Structures | - | 2 ? |
| Edit Frequency (in timesteps) | 1 | 00 | 29 |
| Prompt DMH | 0.0 (-) | 40 | 2 8 |
| Bypass DMH | 0.0 (-) | \triangleleft | 2 ? |
| Programmed Reactivity | 0.0 (-) | $^{(b)}$ | 29 |
| Neutron Lifetime | 0.0 (s) | 44 | 2 ? |
| Max Power Change | 1.0E20 (W/s) | 40 | 29 |
| Reactivity Scale Factor | 1.0 (-) | 0 | 29 |
| Initial Power | 1.129071E6 (W) | $\langle \rangle$ | 28 |
| Pellet-dish Radius | 0.0 (m) | 41 | 28 |
| Pitch Ratio | 1.0 (-) | 44 | 2 8 |
| Uncracked Fraction | 1.0 (-) | 40 | 29 |
| | | | in m |

圖 3.2.1. 10 POWER 組件參數設定頁面

| O Volumetric and Edge Data - Vessel 40 | | | | | | | | | | | | | | | | | | × |
|--|---|--|--|---|---|--|--|--|---|---|--|---|--|---|--|---|---|---|
| Top Down View | Cells Edges | Display Mode | | - 7 | | | | | | | | | | | | | | |
| | Volume & Area Frac > 1.0 | Levels | X1 Y1 | X 1 Y 2 | X 1 Y 3 | X 1 Y 4 | X.1 Y.5 | X 2 X 1 | X 2 Y 2 | X 2 X 3 | X 2 Y 4 | X 2 Y 5 | X 3 Y 1 | X 3 Y 2 | X 3 Y 3 | X 3 Y 4 | X 3 X 5 | X |
| 1.5 243344 55 84 75 7.4 243444 54 74 1.3 243444 55 84 74 1.2 243444 55 84 72 1.3 243444 55 84 73 1.2 243444 55 84 73 1.4 243444 55 84 73 1.4 Char | Volume Fraction T Volati Fraction T Initial Vapor Temperature (K) T Initial Vapor Temperature (K) T Pressure (Fa) T Borroin to Colati Mass Ratio Plattad-out Deres Density T Dates (Tradiant Mass Ratio Deres (Tradiant Mass Ratio Deres (Tradiant Mass Ratio Deres (Tradiant Mass Ratio Table Iones Table Iones Table Iones | Level: 8 Level: 7 Level: 5 Level: 4 Level: 4 Level: 2 Level: 1 | Y: 1 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 | Y 2 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 | Y:3 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 | Y. 4 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 | Y: 5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 | Y: 1 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 | Y 2 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 | Y 3 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 | Y: 4 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 1.01365 | Y 5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 | Y: 1 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 | Y 2 101365 101365 101365 101365 101365 101365 101365 101365 | Y 3 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 | Y:4 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 1013E5 | Y 5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 1.013E5 | Y: 10 10 10 10 10 10 10 10 |
| Edeb Weaw LLwet: 0 LLwet: 0 LLwet: 7 LLwet: 6 LLwet: 5 LLwet: 4 LLwet: 4 LLwet: 2 LLwet: 4 LLwet: 2 Ll | Nerrow Rectanguter Geometry 🔮 Barc Dammano over Long V Long Ormeshon (m) V Serface Area Ratio V Serface Area Ratio | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| All Clear | | | | | | 10) 100 | | | _ | | | | | | | | | |

| O Volumetric and Edge Data - Vessel 40 | | | | | | | | | | | | | | | | | | × |
|---|---|--------------|---------------------------------------|---------------------------------------|--|---|---|---|---|--|--|--|--|--|--|---|--|------------|
| Top Down View | Cells Edges | Display Mode | | | | | | | | | | | | | | | | |
| 1.5 2.433.64 5.5 3.4 7.5 1.5 2.433.64 5.5 3.4 7.5 1.4 2.433.64 5.5 3.4 7.5 1.2 2.33.64 5.5 3.4 7.5 1.2 2.33.64 5.5 3.4 7.5 1.2 2.33.64 5.5 3.4 7.5 1.2 2.33.64 5.5 3.4 7.5 1.2 2.33.64 5.5 3.4 7.5 1.1 2.43.74 5.5 3.4 7.7 1.1 2.43.74 5.5 3.4 7.7 1.1 2.43.74 5.5 3.4 7.7 1.1 Cherc 1.5 1.5 1.5 1.5 1.2 1.2 1.3 1.5 1.5 1.5 1.5 1.2 1.2 1.3 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.2 1.3 1.5 1.5 1.5 1.5 <th>Volamie & Aras frac > 1.0 Y Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Microsoft (m) Pressure (h) Nonconf, Parida Pressure (h) Pressure (h) Pres</th> <th>Display Mode</th> <th>A A A A A A A A A A A A A A A A A A A</th> <th>1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1</th> <th>X 1 Y.3 3440 3540 3540 3540 3540 3540</th> <th>X 1 Y 4 314 0 314 0 314 0 314 0 314 0</th> <th>X 1 Y 5 0 140 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>8.7 91 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>8,7 Y2 3140 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>82 93 140 150 150 150 150 150 150 150 150 150 15</th> <th>X2 Y4 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>X3 Y5 3140 3140 3140 3140</th> <th>X 3 Y 1 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>X 3 Y 2 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0</th> <th>8.3 9.3 9.166 9.166 9.166 9.166 9.166 9.166</th> <th>X 3 Y 4 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0</th> <th>3,3 945 3140 3140 3140 3140 3140</th> <th>X:+ Y:-</th> | Volamie & Aras frac > 1.0 Y Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Volamie (m) Microsoft (m) Pressure (h) Nonconf, Parida Pressure (h) Pressure (h) Pres | Display Mode | A A A A A A A A A A A A A A A A A A A | 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 | X 1 Y.3 3440 3540 3540 3540 3540 3540 | X 1 Y 4 314 0 314 0 314 0 314 0 314 0 | X 1 Y 5 0 140 3140 3140 3140 3140 3140 | 8.7 91 3140 3140 3140 3140 3140 | 8,7 Y2 3140 3140 3140 3140 3140 3140 | 82 93 140 150 150 150 150 150 150 150 150 150 15 | X2 Y4 3140 3140 3140 3140 3140 | X3 Y5 3140 3140 3140 3140 | X 3 Y 1 3140 3140 3140 3140 3140 | X 3 Y 2 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 316 0 | 8.3 9.3 9.166 9.166 9.166 9.166 9.166 9.166 | X 3 Y 4 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 314.0 | 3,3 945 3140 3140 3140 3140 3140 | X:+ Y:- |
| All Clear | | 4 | | | | | | | - | | | | | | | | | 18 |

圖 3.2.1.12 初始水溫設定頁面

| Axial | Radial Node 1 | Radial Node 2 | Radial Node 3 |
|-------|------------------|------------------|------------------|
| 1 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 2 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 3 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 4 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 5 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 6 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 7 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 8 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 9 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |
| 10 | 314.0 | 314.0 | 314.0 |

圖 3.2.1.13 初始用過核燃料溫度設定頁面

(二) 熱流計算模式

用過燃料池若發生喪失冷卻事故,事故發展大致可歸納為三個階段:1. 沸騰現象發生前的單向升溫;2. 水位因蒸發現象而下降至燃料頂端;3.燃 料裸露, 護套溫度上升。第1 階段"沸騰現象發生前的單相升溫", 顧名 思義此階段意指事件初期,用過燃料池剛失去長期冷卻能力時,池內水溫 因為衰變熱釋放而升溫至飽和溫度;階段2是"水位因蒸發現象而下降至 燃料頂端",此時隨著溫度上升,水溫最終達到飽和溫度,由於溫度差異 導致的自然循環以及液態水在將近水池表面達到飽和溫度而發生汽化(蒸 發),直到水位降至燃料頂端下約1公尺後,用過燃料束內部才開始產生蒸 氣,此階段的水位將隨著液態水蒸發而逐漸下降;階段3為"燃料裸露, 護套溫度上升",由於池中液態水持續蒸發,最終導致水位低於燃料束頂 部,並造成燃料護套的溫升,此階段中因為流動區域面積下降,因此用過 燃料池水位下降速率上升。以上所涉及到的熱流現象部分,包含熱傳導模 式、二維熱傳導、水位計算、汽化反應、鋯-水反應等,將逐一說明。

1. 熱傳導模式

由於用過核子燃料內具有衰變熱且在燃料內部產生熱量,藉由各種熱傳 導將熱量傳至流體內,使流體藉由熱交換將熱傳導出去。因此 TRACE 程式 必須正確計算傳熱之多寡以及傳熱路徑,以模擬真實狀況下燃料與冷卻水 之間之傳熱行為。除此之外,所有結構如池壁、格架、各項內部容器等金屬 或其餘材料所組成,這些結構體皆有其基本性質,將根據其熱水流邊界條 件等儲存或釋放大量熱能。

為了計算模型內之熱傳多寡以及路徑,其所使用之熱傳方程式如公式 3.2.1 所示[21]。其中*c*_p= 比熱;*k*= 熱傳係數;**q**= 熱通量向量;*q*^{'''}= 單位 體積產生的熱;*p*= 密度

$$\rho c_p \frac{DT}{Dt} + \nabla \vec{q} = q^{\prime\prime\prime}$$

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla (k \nabla T) + q^{\prime\prime\prime} \frac{\partial \left[\alpha \overline{\rho_g} \overrightarrow{\nabla_g} \right]}{\partial t} + \nabla \left[\alpha \overline{\rho_g} \overrightarrow{\nabla_g} \overrightarrow{V_g} \right] = \nabla \left[\alpha \overline{T_g} \right] + \alpha \overline{\rho_g} \vec{g} + \overrightarrow{M_1}$$
3.2.1

然而,在各個時間點內之流場狀況與熱傳計算息息相關,因此TRACE 在計算時會在每一個新的時間節點開始前,利用上一個時間節點之表面溫 度以及流體情況來給定一新的熱傳係數,並藉由此新熱傳係數來代入方程 式以計算此時間節點之流場與熱傳狀況,其計算之流程圖如圖 3.2.2.1 所示。 其公式如下所示:

$$q_{total}^{n+1} = h_l^m (T_w^{n+1} - T_l^{n+1}) + h_g^m (T_w^{n+1} - T_g^{n+1}) + h_{sat}^m (T_w^{n+1} - T_{sat}^{n+1})$$

$$- T_{sat}^{n+1})$$
3.2.2

其中, $h_{sat}^m(T_w^{n+1} - T_{sat}^{n+1})$ 代表傳到液體的熱通量直接導致沸騰; $h_l^m(T_w^{n+1} - T_{sat}^{n+1})$ 代表傳到液體的熱通量直接導致沸騰;

T_lⁿ⁺¹)代表傳到液體熱通量加熱液體,在任一時間節點中,熱結構與流體單 元共用熱通量項,因此可以由能量守恆來耦合熱傳與熱流現象。

2. 二維熱傳導

TRACE 程式內部具備一維與二維熱傳導計算方式,在模擬較複雜的熱水流現象時需要採用二維熱傳導計算,以獲取較準確之結果,如遭遇喪失冷卻水事故時,爐心燃料部分裸露後需要同時計算徑向熱傳與軸向熱傳, 包含衰變熱由燃料往護套傳遞之徑向熱傳與由裸露區域往被冷卻水覆蓋區 域傳遞之軸向熱傳等。以圓柱座標為例,二維熱傳導公式如式 3.2.3[21]所示。

$$\rho C_P \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(r k \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) + q^{\prime \prime \prime} \qquad 3.2.3$$

TRACE 程式使用有限體積法求解式 3.2.3 之偏微分公式,以多個網格 或節點重現進行分析之區域,以燃料棒為例,圖 3.2.2.2 為部分燃料棒之網 格與節點圖,圖中標示O處為傳導之節點、X 處為流體動態之節點,考慮 其中一個控制體積 i,j,其徑向與軸向熱傳導可表示為式 3.2.4。

$$\begin{cases} \left(\rho c_{p}\right)_{ij} \frac{T_{ij}^{n+1} - T_{ij}^{n}}{\Delta t} - q_{ij}^{\prime\prime\prime} \right\} \frac{1}{2} \left[\left(r_{i} \Delta r_{i} + \frac{\Delta r_{i}^{2}}{4}\right) + \left(r_{i} \Delta r_{i-1} - \frac{\Delta r_{i-1}^{2}}{4}\right) \right] \left[\frac{\Delta z_{j} + \Delta z_{j-1}}{2} \right] \\ = \left\{ r_{i+1/2} k_{i+1/2,j} \left(\frac{T_{i+1,j}^{n+1} - T_{ij}^{n+1}}{\Delta r_{i}} \right) + r_{i-1/2} k_{i-1/2,j} \left(\frac{T_{i-1,j}^{n+1} - T_{ij}^{n+1}}{\Delta r_{i-1}} \right) \right\} \\ \times \left[\frac{\Delta z_{j} + \Delta z_{j-1}}{2} \right] + \left\{ k_{i,j+1/2} \left(\frac{T_{i,j+1}^{n} - T_{ij}^{n}}{\Delta z_{j}} \right) + k_{i,j-1/2} \left(\frac{T_{i,j-1}^{n} - T_{ij}^{n}}{\Delta z_{j-1}} \right) \right\} \\ \times \frac{1}{2} \left[\left(r_{i} \Delta r_{i} + \frac{\Delta r_{i}^{2}}{4} \right) + \left(r_{i} \Delta r_{i-1} - \frac{\Delta r_{i-1}^{2}}{4} \right) \right] \end{cases}$$

$$3.2.4$$

用於求解數值之條件通常包含燃料棒頂部與底部絕熱(公式 3.2.5)、以燃 料棒之中心軸(r = 0)對稱(公式 3.2.6)、以牛頓定律(Newton's Law)表示燃料 丸至護套間隙內外表面(r = r-gap, r+gap)與護套表面(r = ro)之熱傳現象(公式 3.2.7)

$$k\frac{\partial T}{\partial z}|_{z=z_b, z_u} = 0 3.2.5$$

$$\frac{\partial T}{\partial r}|_{r=0} = 0 3.2.6$$

$$k \frac{\partial T}{\partial r}|_{r=r_{gap}^{\pm}} = -h_{gap}^{\pm} \left(T_{r_{gap}}^{-} - T_{r_{gap}^{+}} \right)$$
$$k \frac{\partial T}{\partial r}|_{r=r_{o}} = -h_{fluid} \left(T_{r_{o}}^{-} - T_{fluid}^{-} \right)$$
3.2.7

方程式中密度、比熱、熱傳係數等各項參數值皆儲存於有限體積單元內 部的節點中,因此需要透過線性插值法求取有限體積單元表面之數值,當 節點位在不同材料之交界時(圖 3.2.2.3),便需要同時透過兩側之參數值決定 此處之數值,如式 3.2.8 所示,再將交界面上各項參數值帶入熱傳導公式中, 計算不同材料間之熱傳遞(公式 3.2.9)。

$$\overline{\left(\rho c_{p}\right)_{ij}} \equiv \frac{\left[\left(\rho c_{p}\right)_{i^{+},j}R^{+}+\left(\rho c_{p}\right)_{i^{-},j}R^{-}\right]\right]}{R^{+}+R^{-}}$$

$$\overline{k_{i,j+1/2}} \equiv \frac{\left[k_{i^{+},j+1/2}R^{+}+k_{i^{-},j+1/2}R^{-}\right]}{R^{+}+R^{-}}$$

$$R^{+} \equiv \left(r_{i} + \frac{\Delta r_{i}}{4}\right)\frac{\Delta r_{i}}{2}$$

$$R^{-} \equiv \left(r_{i} - \frac{\Delta r_{i-1}}{4}\right)\frac{\Delta r_{i-1}}{2}$$

$$3.2.8$$

$$\overline{\left(\rho c_{p}\right)_{ij}}\left(\frac{T_{ij}^{n+1}-T_{ij}^{n}}{\Delta t}\right) - q_{ij}^{\prime\prime\prime} =$$

$$\frac{\left\{r_{i+1/2}k_{i+1/2,j}\left(\frac{T_{i+1,j}^{n+1}-T_{ij}^{n+1}}{\Delta r_{i}}\right)+r_{i-1/2}k_{i-1/2,j}\left(\frac{T_{i-1,j}^{n+1}-T_{ij}^{n+1}}{\Delta r_{i-1}}\right)\right\}}{\left[\frac{\left(r_{i}\Delta r_{i}+\frac{\Delta r_{i}^{2}}{4}\right)+\left(r_{i}\Delta r_{i-1}-\frac{\Delta r_{i-1}^{2}}{4}\right)\right]}{2}\right]}{2}$$

$$+\frac{\left\{\overline{k_{i,j+1/2}}\left(\frac{T_{i,j+1}^{n}-T_{ij}^{n}}{\Delta z_{j}}\right)+\overline{k_{i,j-1/2}}\left(\frac{T_{i,j-1}^{n}-T_{ij}^{n}}{\Delta z_{j-1}}\right)\right\}}{\left[\frac{\Delta z_{j}+\Delta z_{j-1}}{2}\right]}$$
3.2.9

3. 降幅水位計算模型

在模擬用過核子燃料池時,有許多組件是長期有大量的液態水處於內部, 此時該部件之降幅水位(Collapsed Water Level)高低將可能嚴重影響方程式 的標準求解,若使用簡單計算的組件內部之平均水位或平均空泡分率作為 求解條件的話,將可能導致 TRACE 對於該空間計算時有錯誤的估計。對於 此種狀況時,TRACE 模擬中將部件內部分為兩個子體積,分別是介面上方 的分散液滴,以及界面下方的液態水,並個別計算其單獨的空泡分率,以 更準確地描述這些空間內部的狀態。下面將介紹 TRACE 如何定義及追蹤 部件內的水位。

TRACE 內的水位追蹤方法主要分為三步驟,1.首先必須先定位某一組 件內部之水位位置,也就是液態與氣態間的界面位置,由於組件內可能有 分離液滴之狀況,因此 TRACE 內部使用空泡分率作為判別方式,其判別式 如公式 3.2.10 所示。在圖 3.2.2.4 代表著一個包含著液-氣介面的部件水位 圖,其四個區塊之空泡分率皆須滿足 TRACE 內部之建議值,才能符合水位 介面之定義。其中 A 代表著空泡分率。而 TRACE 內部之建議值分別是α cut 為 0.2、δ α 為 0.005、α lev 為 0.7;2.此時,由於上方的分散液滴,若 單純使用該部件內的液態水體積作為求解條件時,其水量以及正確水位高 度將出現錯誤,因此 TRACE 內部便依照上述之定義,列出修改式,如公式 3.2.11 所示。藉由這幾項修改式,便可得出正確的水位高度;3.求出正確之 參數後,便可代入場方程式。

$$(\alpha_{j} - \alpha_{j-1} > \delta\alpha) \land (\alpha_{j+1} - \alpha_{j} > \Delta\alpha_{\text{cut}}) \land (\alpha_{j+1} > \alpha_{\text{lev}})$$

$$3.2.10$$

$$(\alpha_{j} - \alpha_{j-1} > \Delta \alpha_{\text{cut}}) \land (\alpha_{j+1} - \alpha_{j} > \delta \alpha) \land (\alpha_{j+1} > \alpha_{\text{lev}})$$

$$\operatorname{Vol}_{j} = \operatorname{Vol}_{j}^{-} + \operatorname{Vol}_{j}^{+}$$

$$3.2.11$$

$$\operatorname{Vol}_{j}\alpha_{j} = \operatorname{Vol}_{j}^{-}\alpha_{j}^{-} + \operatorname{Vol}_{j}^{+}\alpha_{j}^{+}$$

$$\operatorname{Vol}_{j}^{-} = \frac{\alpha_{j}^{+} - \alpha_{j}}{\alpha_{j}^{+} - \alpha_{j}} \operatorname{Vol}_{j} \qquad L_{j} = \frac{\alpha_{j}^{+} - \alpha_{j}}{\alpha_{j}^{+} - \alpha_{j}} \Delta x_{j}$$

$$\ddagger \Psi$$

4. 汽化反應(蒸發)

TRACE 程式在計算液體水蒸發時,會考量不可壓縮空氣的存在,當不 可壓縮空氣存在時,T_{sv}<T_{sat},並且由於界面熱傳發生在 T_{sv}≥T_{sat}時會發生蒸 發。在這情況下蒸氣的產生造成界面處蒸氣濃度的提升,進而提升界面溫 度降低蒸發速率,當存在很大一部份不可壓縮氣體時,蒸發速率可以藉由 不可壓縮氣體向界面擴散的速率控制,在 TRACE 中透過將與這種擴散相關的傳熱阻力添加到液態的傳熱阻力中來建模的。

$$h_{li,NC} = \left[\frac{1}{h_{li}} + \frac{1}{h_{evap}}\right]^{-1}$$
 3.2.12

1 hevap 提供 hevap 合理的假設。質量傳遞係數可以透過式子 3.2.13 獲得

$$S_{h} = \begin{cases} 3.66 ; Re_{g} \leq 2300 \\ 0.023 \cdot Re_{g}^{0.8} \cdot Sc_{g}^{\frac{1}{3}} ; Re_{g} > 2300 \end{cases}$$
 3.2.13

其中 Sherwood、Schmidt 和 Reynolds 數可以用式子 3.2.14 做定義

$$S_h = \frac{h_m D_h}{D_0} \cdot Sc_g = \frac{\mu_g}{\rho_g D_0} \cdot Re_g = \frac{G_g D_h}{\mu_g} \qquad 3.2.14$$

式子 3.2.13 是由 Skelland 所提出的質量傳遞係數 h_M,在完整發展的管流中 假設壁面上的濃度保持恆定。

擴散係數 D_0 是透過擬合空氣中蒸汽擴散理論方程的曲線獲得,其曲線 由式子 3.2.15 給出,擴散係數單位為 m/s、氣體溫度為單位為 K,總壓單位 為 Pa。擬合曲是在 273 $\leq T_g \leq 600$ K下獲得。

$$D_0 = \frac{1 \times 10^{-3}}{P} \cdot \left[-699.2438 + 4.9249 \cdot T_g + 0.0171 \cdot T_g^2 \right]$$
 3.2.15

由式子 3.2.13 所給出的質量傳遞係數,蒸發質量通量透過式子 3.2.16 獲得

$$\Gamma_{evap}^{\prime\prime} = h_M(C_i - C_\infty) \qquad \qquad 3.2.16$$

其中C_i和C_∞分別是界面處和自由流體的蒸氣濃度。我們假設界面溫度等於 液體的溫度,因此界面濃度是純蒸汽的密度與蒸氣壓對應於液體的飽和度 溫度,即式子 3.2.17 所示。

$$P_{\nu} = P_{\nu,sat}(T_l) \tag{3.2.17}$$

使用氣態的理想氣體近似值,界面濃度為

$$C_i = P_{\nu,i} \approx \frac{P_{\nu,sat}(T_l)}{R_s \cdot T_l}$$
 3.2.18

其中R_s是理想氣體係數 462 (J/Kg-K)。對於自由流條件,蒸汽密度只是為計算體積中的整體條件計算的,因此

$$C_{\infty} = \rho_g - \rho_{NC} \qquad \qquad 3.2.19$$

ρg和ρ_{NC}分別代表混合及不可壓縮氣體的密度,將他帶入式子 3.2.16 後可以 得到

$$\Gamma_{evap}^{\prime\prime} = h_M(\rho_{\nu,i} - \rho_g + \rho_{NC}) \qquad 3.2.20$$

然而熱傳阻力將為

$$\frac{1}{h_{evap}} = \frac{(T_l - T_{sv})}{h_{fg} \cdot h_M(\rho_{v,i} - \rho_g + \rho_{NC})}$$
 3.2.21

除了該模型中蒸汽在空氣中的擴散係數之外,該模型還受到其使用 Sherwoodno的進一步限制不適用於管道中充分發展的流動。

5. 鋯-水反應

當水位低於燃料頂端後,燃料開始裸露,此時燃料護套溫度可能會上升, 當鋯合金在蒸汽環境中達到足夠高的溫度時,可能會發生放熱反應,從而 影響燃料護套的延展性和峰值溫度。這種放熱反應稱為鋯-水反應,反應式 如下:

$$Zr+2H_2O \rightarrow ZrO_2+2H_2+heat$$
 3.2.22

TRACE 中錯-水反應模型的目標是提供對燃料護套局部總氧化的預測,以 便與 10CFR50.46(b)比較,並確定反應到燃料棒溫度計算中的能源項。

鋯合金在 1000℃上下時氧化速率與時間的平方根呈正比,這種關係以拋物 線的斜率表示如下:

$$\tau \frac{d\tau}{dt} = \kappa' \qquad \qquad 3.2.23$$

T是動力學參數, κ'是拋物線速率常數。在這一點上, τ可以代表氧化反應的 許多相關量中的任何一個,例如氧化層的深度、反應的金屬深度、反應的 金屬質量或消耗的氧氣質量等。在時間範圍內(時間級別n到時間級別n+1) 對等式的兩邊進行積分,並求解rn+1得出:

$$\int_{\tau^n}^{\tau^{n+1}} \tau d\tau = \int_{t^n}^{t^{n+1}} \kappa' dt \quad \rightarrow \quad \tau^{n+1} = \sqrt{(\tau^n)^2 + 2\kappa' \Delta t}$$
3.2.24

其中 $\Delta t = t^{n+1}-t^n$,動力學速率常數 κ' 通常由以下形式的 Arrhenius 方程式 表示

$$\kappa' = A e^{-E_a/RT} \qquad 3.2.25$$

其中A是經驗常數(代表每秒碰撞的次數), Ea是活化能(也是經驗常數) R是理想氣體常數, T是溫度。結合式子 3.2.24 和 3.2.25 可以得出 3.2.26

$$\tau^{n+1} = \sqrt{(\tau^n)^2 + 2Ae^{-E_a/RT}\Delta t}$$
 3.2.26

TRACE 提供了使用兩種不同的既定模型 Cathcart-Pawel 或 Baker-Just 來確 定κ'值的可能性。對於 Cathcart-Pawel, κ'與消耗的氧氣總質量(以克為單 位)根據以下關係相關聯:

$$\kappa' = 0.1811exp(-39940/RT) (g/cm^2)^2/s \text{ (of oxygen)} 3.2.27$$
對於 Baker-Just, κ' 與消耗的錯質量(以毫克為單位)

 $\kappa' = 16.65 \times 10^6 exp(-45500/RT) (mg/cm^2)^2/s \text{ (of zirconium)}$
3.2.28

原始 Baker-Just 的報告中 A 的常數是 33.3×10⁶,而不是 16.65×10⁶。差異 的原因是因為 Baker 和 Just 以這樣一種方式呈現了他們的結果,在式子 (3.2.26)中看到的因子 2 被內置到 A 常數中。當我們在這裡顯示的κ'變量 時,我們必須將該因子除以二。

將式子 3.2.27 及 3.2.28 代入 3.2.26 中,得到下列兩種表達T:

$$\tau^{n+1} = \sqrt{(\tau^n)^2 + 0.3622e^{-20100.7/T}\Delta t}$$
g/cm² of oxygen 消耗 (Cathcart-
Pawel) 3.2.29

 $\tau^{n+1} = \sqrt{(\tau^n)^2 + 33.3 \times 10^6 e^{-22898.8/T} \Delta t}$ mg/cm² of Zr 消耗 (Baker-Just) 3.2.30

在每個式子中,活化能除以氣體常數 R=1.987 cal/(gram-mole)-K。

圖 3.2.2.1 耦合流體力學與結構熱傳[21]

圖 3.2.2.2 燃料棒網格與節點圖[21]

圖 3.2.2.3 位於不同材料交界之節點[13]

圖 3.2.2.4 水位示意圖
(三) 國際文獻研析與驗證

TRACE 程式設計之初主要為針對輕水式核電廠運轉安全分析以及暫態 事故評估,尤其是喪失冷卻水事故(LOCA)評估,作為先進熱水流估算程式, TRACE 有能力使用於模擬反應器內部之熱水流等現象,然而, TRACE 程 式具有 3D-VESSEL 組件用以模擬三維度之反應壓力槽,能更加模擬爐心 熱流之計算,也因此特性,三維組件亦可勝任於用過燃料池水池之模擬分 析。國際上亦有使用 TRACE 程式模擬用過燃料池細部之熱水流現象,如 S. Carlos 與其團隊分別於 2012 年發表一篇利用 TRACE 程式分析用過燃料池 [23]報告、2014 年發表利用 TRACE 評估用過燃料池之安全性[24],以及利 用 TRACE 進行用過燃料池之不準度分析[25]。S. Carlos 與其團隊使用 VESSEL 組件模擬水池本體,並在左右方分別接上循環冷卻系統之進水口 與出水口;在水池上方連接一 BREAK 組件作為與大氣連接之邊界條件, 該文獻所建立之 TRACE 用過燃料池分析模式如圖 3.2.3.1 所示,圖中綠色 區域為具備三維熱水流模擬能力之 VESSEL 組件,X 與 Y 方向皆分割為 10 個節點,而Z方向分割為15個節點,用過燃料放置於Z方向節點2至節 點 6,並扣除燃料束所佔之體積,另一方面 Z 方向節點 15 用於模擬用過燃 料池之建築物,其內部皆為空氣。此篇研究利用 TRACE 程式內部之 HTSTR 組件與 POWER 組件模擬用過燃料束與衰變熱,並將 HTSTR 組件分為5個

節點且衰變熱設定為均勻分分佈。其研究目的主要為利用 TRACE 先進熱 水流分析程式建立美國 Maine Yankee 電廠之用過燃料池分析模式,藉由比 對穩態模擬之結果與實際電廠之數據做為驗證。而根據其分析結果, TRACE 程式之溫度分析與量測數據幾乎相近,而分析數值最大差異發生於 冷卻水進水口,其溫度差異為0.76%,平均差異為0.21%,各高程之分析與 量測之平均水溫如圖 3.2.3.2 所示,其顯示分析結果與量測結果具有良好的 一致性,由此可知,TRACE 程式在模擬用過核子燃料池上亦具有一定可信 度。除此之外,該篇報告詳細探討了 TRACE 內之 Radiation 模型適用於何 種狀況,並將其應用至用過燃料池模型中,成功模擬用過燃料池在嚴重事 故下之暫態分析。暫態模擬分析中,假設燃料傳送通道發生破口,且喪失 所有冷卻系統等條件下,分析燃料束之輻射熱傳對護套溫度、氧化層厚度 與氫氣產生量之影響,其分析結果顯示考慮輻射熱傳可提高由燃料束傳遞 至冷卻水之熱量,延緩護套溫度上升至法規限值(圖 3.2.3.3),而護套溫度上 升較緩和隨之減緩護套氧化(圖 3.2.3.4)及氫氣生成圖 3.2.3.5)。S. Carlos 與 其團隊在 ScienceDirect 期刊上亦有發表一篇使用 TRACE 程式件進行用過 燃料池之不準度評估[25], 在該篇報告中, S. Carlos 與其團隊延續過去之研 究,利用 TRACE 進行用過燃料池之安全分析,並更進一步使用 Best Estimate Plus Uncertainty (BEPU)方法論下進行不準度分析,並使用 Wilks 與 surrogate 模型,尤其是 Elastic Net surrogate 模型,可以使用比 Wilks 更低的計算量得 到更適當的因數變化。作為結論,無論使用 Wilks 或 surrogate 模型,其對於 95%信任區間之結果皆非常相近,在其假設條件下,氧化層厚度達到為氧化前厚度之 0.17 倍時之時間點,範圍落於 30.432 至 30.461 小時。以上文獻皆說明 TRACE 程式有能力執行用過燃料池之穩態分析與暫態評估工作。

其他研究團隊如 Zachary I. Franiewski 等人也使用 TRACE 程式進行用 過燃料池之評估,如2013年所發表之文獻中(Spent Fuel Pool Analysis of a BWR-4 Fuel Bundle Under Loss of Coolant Conditions Using TRACE[26]), 使 用 TRACE 建立並探討了三種單根用過燃料束以模擬用過燃料束在空氣冷 卻時的散熱現象與溫升行為,並評估每個模式在燃料護套破裂的時間點(根 據實驗數據,溫度約為1100K),其 TRACE 模型圖如圖 3.2.3.6 所示,其模 型之模擬結果也與 Sandia 國家實驗室之點火實驗做比對,如圖 3.2.3.7 所 示,其趨勢與實驗結果一致,證明 TRACE 不但能夠模擬用過燃料池之熱水 流現象,也能完整模擬用過燃料束在空氣冷卻下之溫升趨勢。除此之外, 此篇文獻針對喪失冷卻水事故(LOCA)案例的兩種情景探討其維持安全溫 度的傳熱能力,分別是完全 LOCA 與局部 LOCA,前者定義為用過燃料池 完全並幾乎瞬間失水,而後者則是用過燃料池中的水位降低至用過燃料束 以下,也就是僅低於用過燃料頂端[27]。直觀上可能認為前者的完全 LOCA 將會是最糟的情況,但此篇文獻便特別提出,其實在這種狀況下,由於空

氣的自然對流能夠完整地從用過燃料束底部噴嘴進入,再從用過燃料束之 頂部流出,雖然因用過燃料束的完全裸露可能構成重大的威脅,但最糟糕 的情況應為,當用過燃料束底部存有少量液態水時,不僅有大量面積裸露 在外,此時因為液態水的阻擋,將阻礙空氣的自然對流,將大大地減少用 過燃料束向外傳熱的效率。



圖 3.2.3.1 S. Carlos 等人所建立之用過燃料池模型[24]



圖 3.2.3.2 穩態分析之用過燃料池冷卻水平均溫度[24]



圖 3.2.3.3 有無開啟輻射熱傳之燃料護套溫度[24]



圖 3.2.3.4 啟用輻射熱傳對氧化層厚度之影響[24]



圖 3.2.3.5 啟用輻射熱傳對氫氣產生量之影響[24]



圖 3.2.3. 6 Zachary I. Franiewski 等人所建立之用過燃料束模型[26]



三、評估案例與分析結果

(一) 核二廠除役計畫分析結果比對與驗證

1. 核二廠除役計畫書之分析條件

本章節進行核二廠用過燃料池喪失冷卻事件安全評估,並且與核二廠 除役計畫書分析之案例進行比對與驗證[22]。核二廠除役計畫書內採用能 量守恆公式,配合用過燃料池水池水量來計算水溫達到飽和溫度及水位下 降至閘道或燃料頂端的重要時序,用過燃料池於發生喪失冷卻事故當下之 水溫為41℃(314K)。

用過核燃料衰變熱計算採用美國核管會標準審查方案 NUREG-0800 之 ASB 9-2 衰變熱功率計算式,來計算用過核燃料在停機後不同時間的衰變 熱,其結果列於表 3.3.1.1。

由於全新退出之用過核燃料有較高的衰變熱,故將該批 624 束燃料全 數置放於西池或東池兩池其一,當水位降至開道底端時水位下降趨勢分成 東西池個別計算。經過評估新退出之用過核燃料全數放置於西池時水位下 降有較快之趨勢,其水溫到達飽和溫度(373K)之時序整理於表 3. 3.1.2,水溫上升趨勢圖如圖 3.3.1.1 所示;達到飽和溫度後水位下降至開 道、燃料頂端之時序整理於表 3.3.1.3 中,西池水位下降趨勢圖如圖 3.3.1.2 所示。

| 距離停機 | 舊燃料束衰變熱 | 新退出燃料衰變熱 | 衰變熱總 |
|------|-------------------|------------|---------|
| 時間 | [4398-624=3774 束] | [全爐 624 束] | 和(MW) |
| (d) | (MW) | (MW) | |
| 7 | 1.9225 | 9.1141 | 11.037 |
| 30 | 1.8865 | 5.0586 | 6.9451 |
| 60 | 1.8455 | 3.5043 | 5.3498 |
| 90 | 1.8102 | 2.8115 | 4.6217 |
| 180 | 1.7283 | 1.8215 | 3. 5498 |
| 365 | 1.6229 | 1.026 | 2.6489 |

表 3.3.1.1 停機後不同時間用過核燃料衰變熱[22]

表 3.3.1.2 用過燃料池於不同停機時間下發生喪失冷卻事件重要時序[22]

| 距離停機時間 (d) | 喪失冷卻後到達飽和溫度所 需時間(h) | 平均升溫率(°C/h) |
|---------------|------------------------|-------------|
| 7 | 9.69 | 6.09 |
| 30 | 15.32 | 3. 85 |
| 60 | 19.86 | 2.97 |
| 90 | 22.97 | 2.57 |
| 180 | 29.9 | 1.97 |
| 365 | 40.05 | 1.47 |

表 3.3.1.3 用過燃料池於不同停機時間下發生喪失冷卻事件重要時序[22]

| 距離停機時 | 喪失冷卻後水位降 | 喪失冷卻後水位降 | 喪失冷卻後水位降 |
|-------|----------|-----------|-----------|
| 間 (d) | 至閘道高度所需時 | 至西池燃料頂端所 | 至東池燃料頂端所 |
| | 間 (h) | 需時間 (h) | 需時間 (h) |
| | | [假設新退出用過核 | [假設新退出用過核 |
| | | 燃料接置放於西池] | 燃料接置放於東池] |
| 7 | 68.21 | 70.7 | 70.99 |
| 30 | 104.97 | 108.99 | 109.34 |
| 60 | 135.06 | 140.39 | 140.8 |
| 90 | 155.69 | 162.07 | 162.49 |
| 180 | 202.08 | 210.65 | 211.14 |
| 365 | 269.85 | 282.88 | 283.11 |



圖 3.3.1.1 用過燃料池水溫上升示意圖 [22]



圖 3.3.1.2 西池水位下降趨勢圖示意圖[22]

2. TRACE 分析結果

此次研究為對比除役計畫書所載內容,利用 TRACE 建立用過燃料池模型,並將其區分成西池、連通道、燃料傳送池、連通道及東池五部分,無護 箱裝載池之設計,其 TRACE 模式建立如圖 3.3 所示。

本次研究參考核二廠除役計畫書所載內容,將最新一批退出的用過核燃 料放置於西池中做評估。西池貯存空間除最新一批退出的用過燃料外,亦 有舊有的用過核燃料,故衰變熱除了最新一批用過核燃料的衰變熱外還需 要按比例加上表 3.3.1.1 中的舊燃料束衰變熱;東池則全數貯存舊有的用過 核燃料,其衰變一樣按比例分配表 3.3.1.1 中的舊燃料束衰變熱;東西池衰 變熱如表 3.3.1.4 所示。

在用過燃料池喪失冷卻後,用過核燃料之衰變熱開始加熱水溫使水溫 從初始的314K上升至飽和溫度373K,其用過核燃料不同衰變熱所導致的 升溫時序列於表3.3.1.5,升溫趨勢如圖3.3.1.4所示。

水溫達到飽和溫度後,池水開始利用蒸發來帶走用過核燃料所釋放出的 衰變熱,在燃料裸露前可以藉由此方式使用過核燃料及燃料護套溫度維持 飽和溫度附近不再往上升。TRACE所計算出水位下降至開道及東西池燃料 頂端之時序整理於表 3.3.1.6,其水位變化趨勢圖整理於圖 3.3.1.5 及圖 3.3.1.6,其中圖 3.3.1.6 中7天和 30天水位變化由於西池燃料護套溫度過高 導致程式終止運算,故數據停在該點位置。

| 停機天數 (d) | 西池衰變熱 (MW) | 東池衰變熱 (MW) | 總衰變熱(MW) |
|----------|---------------|---------------|----------|
| 7 | 9.907529 | 1.129071 | 11.0366 |
| 30 | 5. 837172 | 1.107928 | 6.9451 |
| 60 | 4. 265951 | 1.083849 | 5. 3498 |
| 90 | 3. 558582 | 1.063118 | 4.6217 |
| 180 | 2. 534781 | 1.015019 | 3. 5498 |
| 365 | 1.695782 | 0.953118 | 2.6489 |

表 3.3.1.4 東西池衰變熱分配

表 3.3.1.5 TRACE 所計算不同衰變熱導致的升溫時序

| 停機天數 (d) | 總衰變熱(MW) | 喪失冷卻後到達 飽和溫度所需時 間(h) | 平均升溫率 (℃/h) |
|----------|----------|----------------------------|----------------|
| 7 | 11.0366 | 9.45 | 6.243 |
| 30 | 6.9451 | 16.26 | 3.629 |
| 60 | 5.3498 | 19.87 | 2.969 |
| 90 | 4.6217 | 23.35 | 2.527 |
| 180 | 3. 5498 | 29.6 | 1.993 |
| 365 | 2.6489 | 39.17 | 1.506 |

| 停機天數 (d) | 喪失冷卻後水位降 至閘道高度所需時 間(h) | 喪失冷卻後水位 降至西池燃料頂 端所需時間(h) | 喪失冷卻後水位 降至東池燃料頂 端所需時間(h) |
|----------|------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| 7 | 64.18 | 66.12 | 71.54 |
| 30 | 106.8 | 110.99 | 126.27 |
| 60 | 130.72 | 135.72 | 148.64 |
| 90 | 145.87 | 155.59 | 163.09 |
| 180 | 187.97 | 199.21 | 211.58 |
| 365 | 249.47 | 265.3 | 317.53 |

表 3.3.1.6 TRACE 所計算不同衰變熱導致的水位下降時序



圖 3.3.1.3 核二廠用過燃料池 (無護箱裝載池)之 TRACE 模組



圖 3.3.1.4 TRACE 所計算不同衰變熱導致的升溫趨勢圖



圖 3.3.1.5 TRACE 所計算不同衰變熱西池水位下降趨勢圖



圖 3.3.1.6 TRACE 所計算不同衰變熱東池水位下降趨勢圖

(二) 事故下護箱裝載池對用過燃料池系統之影響性

1. 分析說明

由於台電公司核二廠除役計畫安全分析未考量到護箱裝載池,因此本 研究探討在停機7天之案例下,是否考量護箱裝載池對喪失冷卻事故時序 發展之影響性做分析與比較。

本研究利用 TRACE 建立用過燃料池模型,並將其區分成西池、連通道、 燃料傳送池、連通道、東池、連通道及護箱裝載池七個部分,其 TRACE 模 式建立如圖 3.3.2.1 所示。

西池與東池所置放之用過核燃料其衰變熱參考上述表 3.3.2.1 中停機 7 天時用過核燃料衰變熱。然而護箱裝載池僅有 440 東空間且水池冷卻水水 量也較少,故護箱裝載池放置應為退出較久衰變熱較低之用過核燃料,其 衰變熱假設為 0.0908 MW。

2. 分析結果

考量有護箱裝載池的情況下,用過燃料池喪失冷卻後用過核燃料之衰變 熱開始加熱水溫使水溫從初始的 314K 上升約花費 10.5 小時上升至飽和溫 度 373K,比無護箱裝載池的情況多了 1.05 小時 (10.5 扣除 9.45),其升溫 示意圖如圖 3.3.2.2 所示。

水温達到飽和溫度後,池水開始利用蒸發來帶走用過核燃料所釋放出的

衰變熱,在燃料裸露前可以藉由此方式使用過核燃料及燃料護套溫度維持 飽和溫度附近不再往上升。TRACE所計算出水位下降至開道及東西池燃料 頂端之時序整理於表 3.3.2.2,其水位變化趨勢圖整理於圖 3.3.2.3,其中圖 3.3.2.3 中東池及護箱裝載池水位變化由於西池燃料護套溫度過高導致程式 終止運算,故數據停在該點位置。圖 3.3.2.4 為比較有無考量護箱裝載池下 西池水位變化示意圖。

由分析結果可以得知,在核二廠用過燃料池發生全黑事故時,考量護箱 裝載池將使分析之系統提供更多的水存量,儘管護箱裝載池存放的燃料具 有衰變熱,但因其衰變熱數值較低,因此綜合效應下對整體系統熱流分析 是有助益的。而在核二廠除役計畫用過燃料池安全評估中未考量護箱裝載 池之分析結果,認為是相對保守且可接受的。

停機天數
(d)西池衰變熱
(MW)東池衰變熱
(MW)護箱裝載池衰
變熱 (MW)總衰變熱
(MW)79.9075291.1290710.090811.1274

表 3.3.2.1 有護箱裝載池情況下衰變熱分配

表 3.3.2.2 考慮護箱裝載池情況下下水位下降時序

| | 喪失冷卻後水位降至閘道高 度所需時間(h) | 喪失冷卻後水位降至燃料 頂端所需時間(h) |
|-------|--------------------------|--------------------------|
| 西池 | | 71.4 |
| 東池 | 69.17 | 78.6 |
| 護箱裝載池 | | NA |



圖 3.3.2.1 核二廠用過燃料池 (有護箱裝載池)之 TRACE 模組



圖 3.3.2.2 有無護箱裝載池於停機 7 天後發生喪失冷卻事故之池水溫度升

温趨勢圖



圖 3.3.2.3 考慮護箱裝載池下水位下降趨勢圖



圖 3.3.2.4 比較有無考量護箱裝載池下西池水位變化示意圖

(三) 喪失冷卻水事故評估

本計畫先期研究已蒐集國際相關用過燃料池破口文獻,彙整出用過燃料 池發生破口且喪失冷卻水的機率很低,根據美國核管會相關文獻所述,用 過燃料池發生嚴重事故的風險,包括內部事件和外部事件,美國核管會得 出的結論是:「用過燃料池發生嚴重事故之風險非常小」,其中用過燃料池因 為外電喪失所導致的用過燃料束未被液態水所包覆之意外發生率落在 1.1x10⁻⁷到 2.9x10⁻⁸之間,分別是因為惡劣天氣和電廠相關或電網相關事故 所造成;而因為嚴重的地震事件所造成的用過燃料束暴露在空氣中之機率 非常小,介於 5.8x10⁻⁷和 2.4x10⁻⁶/yr 之間。然而,研究之目的是"預測事故 發生時序"並做好規劃,以防範未來非預期事故之發生,因此本研究參照 NUREG-2161 文獻中的用過燃料池破口事故[28],作為核二廠假想發生破口 喪失冷卻水事故之情境,用以評估核二廠在除役階段若發生破口事故時, 核二廠有多少應變與救援設備列置時間,並將事故關鍵時序彙整,以供管 制單位參考之依據。

根據 NUREG-2161 文獻中針對用過燃料池評估遭受地震後之外釋情節, 該文獻假設用過燃料池底部發生直徑 11.4 公分(中破口)或直徑 4.4 公分(小 破口)之破口,本研究參考 NUREG-2161 之假設條件,針對核二廠用過燃料 池進行喪失冷卻水事件之評估,以得出核二廠於該意外事件下之關鍵時序。 分析假設條件與設定:

- 1. 用過燃料池幾何結構與邊界條件依照核二廠除役計畫書內容設定;
- 停機冷卻時間(衰變熱)保守採用7天之案例,亦及用過燃料池總衰變 熱為11.037MW;
- 地震發生導致混凝土及鋼襯不銹鋼板之拉伸應變形成裂縫,洩漏位置 假設位於用過燃料池地板內襯靠近牆壁的位置;
- 4.破口大小依內襯裂縫大小決定,NUREG-2161 文獻分為小破口洩漏與
 中破口洩漏兩種情形,洩漏尺寸分別為直徑 4.4cm 與直徑 11.4cm;
- 5. 破口假設位於西池池底(剛退出之用過燃料束擺放至西池)。

分析結果顯示,在發生用過燃料池破口意外事故後,冷卻水開始流失 導致池水開始下降。在用過燃料池西池底部出現直徑為4.4 cm 之破口時, 初期該破口以每秒約18公斤的水量流失,隨著水壓下降破口流量開始變小 直到事故發生20小時候不再有冷卻水流失。在用過燃料池西池底部出現直 徑為11.4 cm 之破口時,初期該破口以每秒約125公斤的水量流失,隨著 水壓下降破口流量開始變小,事故發生後約3.6小時候不再有冷卻水流失。

在小破口的案例下用過燃料池池水約於事故後 15.6 小時降至閘道頂 端;西池水位約於事故後 16.39 小時降至西池燃料頂端;東池水位約於事 故後 21.11 小時降至東池燃料頂端。

在中破口的案例下用過燃料池池水約於事故後2.5小時降至閘道頂端;

西池水位約於事故後 2.78 小時降至西池燃料頂端;東池水位約於事故後 8.89 小時降至東池燃料頂端。



圖 3.3.3.1 小破口質量流率



圖 3.3.3.2 小破口事故下,東、西池之水位變化圖



圖 3.3.3.3 中破口質量流率



圖 3.3.3.4 中破口事故下,東、西池之水位變化圖

(四) LOCA 事故下補水救援策略評估

NEI06-12為美國核管會所公布之建議救援措施報告[29],報告中包含反應器與用過燃料池兩部分,且詳盡敘述了各類況下應採取的救援措施,亦 針對各項救援措施所需之設備能力給予實質數字上之建議。

NEI 06-12包含用過燃料池以及電廠與圍阻體之救援策略,在此篇研究 僅探討用過燃料池之救援策略,其主要分為內部策略以及外部策略兩部分。 在內部策略中,其主要理念同電廠安全設計,注重於多樣性。運轉方應準 備多種補充冷卻水之設備與系統,補充之冷卻水水源亦應有不同來源。然 而,且最終之注水能力總和應該至少達到500gpm,若該電廠之補水能力低 於此值,則此篇報告強烈建議,應該準備其他緩解策略。外部策略則包含 移動式(便攜式)的用過燃料池之補水以及噴灑能力。

外部策略則主要分為補水策略以及灑水策略。補水策略中,文獻建議 運轉方應準備可移動式補水設備及水源,以防內部設施皆不可使用之情況, 且其補水能力也應達到至少500gpm。其中,移動式設備之燃料以及補充水 源須提前準備好,以確保此策略能夠連續12小時運作而不中斷。等同於須 事先準備相當於360000加侖之冷卻水;灑水策略又分為局部噴灑以及外部 噴灑。局部噴灑適用於當用過燃料池發生冷卻水流失事件,且其破口流量 大於500gpm時,此時運轉方之救援目的應該從維持用過燃料池水位,轉變 成降低用過燃料束之溫度,若進行補水,冷卻水很快便會流失,對該現況

無太大幫助,用過燃料束裸露幾乎是必定發生的事情。因此,此時便建議 直接採取局部噴灑策略,從用過燃料池上方,利用外部的獨立移動式灑水 設備進行灑水,讓液態水直接碰觸用過燃料束,快速帶走衰變熱,以控制 溫度。此文獻報告建議,其移動式灑水設備之工作能力,必須達到200gpm 且應至少能連續工作12小時而不停止。且在運作員判斷需要進行局部噴灑 策略時,相關設備以及灑水路徑須在五小時內設置完成(若用過燃料束沒有 採取分散式配置貯存時,則需在兩小時內設置完成)。若現場狀況不允許運 轉方進行局部噴灑時,應使用移動式灑水設備,用所有可利用之冷卻水源, 於用過燃料池之結構外進行噴灑,藉由冷卻用過燃料池結構,盡可能減緩 用過燃料束之溫度,減少放射性核種之釋放。若已進入到噴灑階段,恢復 水位已然不是運轉方之首要目標,而是應該考慮洩露控制策略。依照事故 不同,由現場工作人員判斷,利用現有資源,優先減少用過燃料池之洩漏 量。

救援策略之決策步驟第一步,需先確認用過燃料池周圍區域是否可以 進入(其可接近性與損壞之條件和事故之嚴重程度有關),若能進入用過燃料 池周圍,便可初步評估燃料池破口之洩漏率,判斷該洩漏率是否大於 500gpm,若超出此流量,則稱之為大破口事件,在此時應放棄恢復用過燃 料池水位,直接開始執行局部噴灑以降低用過燃料束之溫度,若局部噴灑 無法進行或成效不彰,則執行外部噴灑;若該區域無法進入,則直接使用

81

所有可用水源進行補水,若水位無明顯上升,或無法恢復,便開始考慮實施局部噴灑策略,避免用過燃料束溫度過高。若局部噴灑無法進行或是成 效不彰,則著手進行外部噴灑,盡可能減緩事故之嚴重性。其決策之流程 圖如圖 3.3.4.1 所示。

本研究根據 NEI 06-12 之建議,核二廠用過燃料池喪失冷卻水事故後補 水策略注水量至少 500gpm,本研究保守採用 500gpm 做為注水條件,於小 破口分析案例中,參照 NUREG-2161 時序在 9 小時列置完補水救援設備與 管線並進行補水;中破口案例,則假設事故發生後 1 小時列置完補水救援 設備與管線並進行補水,其他分析條件沿用上一章節 3.3.3 所述。

分析結果顯示,在用過燃料池西池底部出現直徑為4.4 cm 之破口時, 救援設備及管線於9小時鋪設完畢進行補水策略,此時用過燃料池水位降 至約8.7 m。在500gpm的補水策略下,水位事故發生後約11.7小時(補水 後2.7小時)回到初始的12.19 m。

在用過燃料池西池底部出現直徑為 11.4 cm 之破口時,救援設備及管線於1小時鋪設完畢進行補水策略,此時用過燃料池水位降至約9.7 m。在 500gpm 的補水策略下,補水量與底部破口流失量約於事故發生後約7小時 (補水後6小時)達到平衡,水位維持在8m 左右。



圖 3.3.4.1 NEI-0612 救援措施之決策流程圖[29]



圖 3.3.4.2 事故發生9小時列置後,500gpm 補水水量進入



圖 3.3.4.3 小破口事故下,執行補水之用過燃料池水位變化



圖 3.3.4.4 事故發生1小時列置後,500gpm 補水水量進入



圖 3.3.4.5 中破口事故下,執行補水之用過燃料池水位變化

四、研究成果與管制建議

核電廠在除役期間,其用過核子燃料池衰變熱仍需藉由餘熱移除系統將 熱排出,隨著電廠停機後,衰變熱數值大小也會隨著時間而衰減,因此以 核電廠除役期間用過核子燃料池之安全性為首要目標,而評估用過核子燃 料束之衰變熱多寡則是直接影響此安全性之關鍵因子。本研究彙整國際核 電廠衰變熱計算相關文獻並研析其不同衰變熱計算模式之適用性與限制, 以協助管制單位進行核電廠安全審查案之作業及參考依據。台電公司於國 內核電廠除役計畫書中採用的是核電廠安全分析報告標準審查方案 (NUREG-0800)文獻中所引用之衰變熱功率計算式為 ASB 9-2, NUREG-0800 SRP 9.2.5 最新發布的版本中提到(2007 年發布之第三版),除了衰變熱 功率計算式為 ASB 9-2 之外, 也採納 ANSI/ANS-5.1 衰變熱功率之計算式, 本研究探討兩個衰變熱計算式差異性與適用性之結果得知, ASB 9-2 計算 式將衰變熱計算分為兩部分,分別是分裂產物衰變熱以及重元素衰變熱; 而 ANSI/ANS-5.1 衰變熱功率計算式除了考量分裂產物衰變熱以外,還考量 了反應器運轉歷史、分裂產物中子捕獲的影響、以及錒系元素衰變熱等, 因 ANSI/ANS-5.1 計算式考量較多因子,其不準度範圍較小,相較於 ASB 9-2 計算式其在初始假設時,就已經把不確定因子保守度給含括進去,因此 ASB 9-2 計算式之結果在"短"停機冷卻時間範圍中,所計算出來的衰變熱值 較保守,但文獻中說明保守分析的衰變熱仍保持在 10%以內的誤差。這裡 提到"短"停機冷卻時間,是因為ASB9-2計算式有其建議的停機冷卻時間, 其適用之停機冷卻時間範圍需小於10⁷秒,而ANSI/ANS-5.1計算式,則適 用之停機冷卻時間範圍上限為不超過10¹⁰秒,因此建議用過核子燃料冷卻 時間越長,則須採用ANSI/ANS-5.1計算式來評估其衰變熱(未來適用於乾 式貯存分析)。值得一提的是,若採用ANSI/ANS-5.1計算式來估算衰變熱 功率,使用者(或業主)需詳細的說明使用各項之條件與假設,合理的條件才 會使估算之衰變熱值合理,並且其不準度越低。

而在核電廠除役審查技術強化部分,本研究發展並建立核二廠除役階段 用過燃料池安全分析模式,分析模式參照核二廠用過燃料池實際尺寸及熱 流條件建立,並用以跟核二廠除役計畫書之分析結果做一比較與驗證。全 黑事故發生後,池水單向升溫至飽和溫度,TRACE分析結果與核二除役計 畫書之差異度不到 3%,於停機後 7 天之案例差異較多(2.47%),其平均升 溫率兩個比較結果為相近,而在水位降至燃料頂端之時間點,則 TRACE 計 算出的結果稍快,最大差異發生在 365 天之案例,達 11%,也就是說,隨 著停機冷卻時間越長,衰變熱越來越低,而 TRACE 程式計算出的結果較為 保守。

由於台電公司核二廠除役計畫安全分析未考量到護箱裝載池,因此本研 究探討在停機7天之案例下,是否考量護箱裝載池對喪失冷卻事故時序發 展之影響性做分析與比較。其分析結果得知,在核二廠用過燃料池發生全 黑事故時,考量護箱裝載池將使分析之系統提供更多的水存量,儘管護箱 裝載池存放的燃料具有衰變熱,但因其衰變熱數值較低,因此綜合效應下 對整體系統熱流分析是有助益的。而在核二廠除役計畫用過燃料池安全評 估中未考量護箱裝載池之分析結果,認為是相對保守且可接受的。

而在用過燃料池發生破口且喪失冷卻水的安全評估中,參照 NUREG-2161 文獻的分析條件,評估燃料池底部發生直徑 11.4 公分(中破口)或直徑 4.4 公分(小破口)之破口案例。分析結果得知,小破口案例約於事故發生後 16.39 個小時,水位低於燃料頂端,而在中破口案例則因為破口較大且流出 去之冷卻水較多,因此事故後約 2.78 小時水位會低於燃料頂端。根據 NEI 06-12 建議之補水策略,本研究評估最小注水量 500gpm 流量之策略,是否 能有效減緩以上兩種破口之案例。評估結果可以看出,在用過燃料池破口 發生後,盡速備妥救援補水設備能有效地維持住用過燃料池之水位,避免 水位低於燃料頂端造成用過核子燃料裸露。

總結以上研究成果,本計畫成功建立核二廠除役階段用過燃料池安全分 析模式與發展獨立驗證評估技術,能有效提升核電廠除役階段熱流安全審 查能量,並且提供核電廠於除役階段意外事故發展時序與關鍵因子,能有 效協助管制單位執行審查作業與評估之佐證依據。

88
肆、 參考文獻

- U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Technical Study of Spent Fuel Pool Accident Risk at Decommissioning Nuclear Power Plants," NUREG1738, February 2001.
- 2. Oak Ride National Laboratory, "Technical Support for a Proposed Decay Heat Guide Using SAS2H/ORIGEN-S Data", NUREG-5625, July 1994.
- U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Spent Fuel Assembly Heat Up Calculations In Support Of Task 2 Of User Need NSIR-2015-001", April 2016.
- 4. U.S. Nuclear Regulatory Commission, "US Commercial Spent Nuclear Fuel Assembly Characteristics: 1968-2013.", NUREG/CR-7227, September 2016.
- U.S. Nuclear Regulatory Commission, "Standard Review Plan for the Review of Safety Analysis Reports for Nuclear Power Plants: LWR Edition-Auxiliary Systems", NUREG-0800, Chapter 9. July 1981.
- American Nation Standard, ANSI/ANS-5.1-2014 (R2019), Decay Heat Power in Light Water Reactors
- American Nuclear Society Proposed Standard, ANS-5.1 "Decay Energy Release Rates Following Shutdown of Uranium-Fueled Thermal Reactors," October (1971), Revised October (1973).
- K. Shure, "Fission-Product Decay Energy," In USAEC Report WAPD-BT-24, pp. 1-17, December 1961.
- ANSI/ANS-5.1-1994, "Decay Heat Power in Light Water Reactors," American Nuclear Society (1994).
- 10. A. Tobias, "Derivation of Decay Heat Benchmarks for ^{235}U and ^{239}Pu by a Least Squares Fit to Measured Data," CEGB-RD-B-621089 [DIDSG-P-

(88)388], Central Electricity Generating Board, Berkeley Nuclear Laborato1ies (UK) (1989).

- 11. ANSI/ANS-5.1-2005, "Decay Heat Power in Light Water Reactors," American Nuclear Society (2005).
- J. Katakura, T. Yoshida, K. Oyamatsu, and T. Tachibana, "JENDL FP Decay Data File 2000," JAERI 1343, Japan Atomic Energy Research Institute (July 2001).
- H. R. Trellue and W. B. Wilson, "Calculation of Decay Heat from a Light-Water Reactor with and vvithout Fission Product Absorption as a Function of Time," LA-UR-03-6384, Los Alamos National Laboratory (Sep. 2003).
- 14. J. K. Dickens, T. R. England, and R. E. Schenter, "Current Status and Proposed Improvements to the ANSI/ANS-5.1 American National Standard for Decay Heat Power in Light Water Reactors," Nucl. Safety, 32, 209 (1991).
- M. B. Chadwick et al., "ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data," Nucl. Data Sheets, 112, 2887-2996 (2011).
- ISO 10645:1992(E), "Nuclear Energy-Light Water Reactors- Calculation of the Decay Heat Power in Nuclear Fuels," International Standard, International Organization for Standardization (1992).
- M. B. Chadwick et al., "ENDF/B-VII.O: Next Generation Evaluated Nuclear Data Library for Nuclear Science and Technology," Nucl. Data Sheets, 107, 2931 (2006).
- M. D. DeHart, M. C. Brady, and C. V. Parks, "OECD/NEA Burnup Credit Calculational Criticality Benchmark Phase I-B Results,"

NEA/NSC/DOC(96)-06, ORNL-6901, Oak Ridge National Laboratory (1996).

- R. J. Guenther et al., "Characterization of Spent Fuel Approved Testing Material – ATM104," PNL-5109-104, Pacific Northwest Laboratory (1991).
- 20. F. Michel-Sendis, M. Bossant, N. Soppera, I. Gauld, "A New OECD/NEA Database of Nuclide Compositions of Spent Nuclear Fuel," P roceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Reactor Physics, PHYSOR 2014, Kyoto, Japan, September 28 - October 3 (2014).
- Division of Safety Analysis, Office of Nuclear Regulatory Research, U.S. Nuclear Regulatory Commission, "TRACE V5.0 USER'S MANUAL Volume 1.
- 22. "核二廠除役計畫",行政院原子能委員會,2010。
- 23. Sofia Carlos, F. Sanchez-Saez, Jose F. Villanueva, Sebastian Martorell,"Spent fuel pool analysis using TRACE code", January 2012.
- 24. Sofia Carlos, F. Sanchez-Saez, S.Martorell, "Use of TRACE best estimate code to analyze spent fuel storage pools safety", November 2014.
- Sofia Carlos, F. Sanchez-Saez, S.Martorell, "Uncertainty analysis of a loss of cooling and loss of coolant accident in a spent fuel pool using TRACE", April 2020.
- 26. The Pennsylvania State University Department of Mechanical and Nuclear Engineering, "Spent Fuel Pool Analysis of a BWR-4 Fuel Bundle Under Loss of Coolant Conditions Using TRACE.", May 2013.
- 27. United States Nuclear Regulatory Comission, Division of System Analysis, Office of Nuclear Regulatory Research, Investigations of Zirconium Fires during Spent Fuel Pool LOCAs, Washington D.C., 2013.

- 28. United States Nuclear Regulatory Comission, "Consequence study of a Beyond Design Earthquake Affecting the Spent Fuel Pool for a U.S. Mark I Boiling Water Reactor," NUREG-2161, 2014.
- 29. NEI, "B.5.b Phase 2&3 Submittal Guideline", NEI 06-12 Rev. 2, Dec 2006.

行政院原子能委員會

委託研究計畫期末報告

計畫名稱:

110年度核電廠除役期間除污策略技術彙整與安全評估及相關特 性分析

子項計畫二-分項2:

核電廠除役期間廠址取樣方法品質研析

案號:AEC10903011L

執行單位:國立清華大學

計畫主持人:許文勝

子項計畫二主持人:許文勝

報告作者:陳韶萱

報告日期:中華民國 110年11月

摘要

本子項計畫 110 年度的重點為研究核電廠除役輻射偵檢作業如何規劃 符合數據品質目標(DQO)之取樣設計以及如何進行幅數據品質評估(DQA) 程序之統計分析。

MARSSIM 手冊(Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual, NUREG-1575, Rev1)是由美國多個部會共同制定,提供電廠除役時, 所應進行之各項廠址輻射偵檢與廠址調查的指引。VSP(Virtual Sample Plan) 軟體工具由美國太平洋西北實驗室開發,可用於協助規劃取樣設計以及分析取樣結果,該軟體中內建了專門用於電廠除役輻射偵檢之 MARSSIM 模組。

本計畫透過研讀 MARSSIM 手冊中有關取樣設計及統計分析方法之內 容、研究 VSP 軟體工具於核電廠輻射偵檢之使用方法,並蒐集研析國際間 應用 VSP 進行取樣設計及統計分析之相關文獻,以及美國 NRC 有關核電 廠輻射偵檢數據品質評估之文獻,提出與輻射偵檢數據品質相關之管制建 議。 Abstract

The focus of this project for the 110th year is to study how to plan the sampling design that meets the data quality objective (DQO) and how to carry out the statistical analysis of the data quality assessment (DQA) program for nuclear power plant decommissioning radiation detection operations.

The MARSSIM manual (Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual, NUREG-1575, Rev1) is jointly developed by multiple ministries in the United States and provides guidelines for various site radiation inspections and site investigations that should be carried out when power plants are decommissioned . The VSP (Virtual Sample Plan) software tool was developed by Pacific Northwest Laboratories in the United States and can be used to assist in planning sampling design and analysis of sampling results. The software has built-in MARSSIM modules specifically for power plant decommissioning radiation detection.

This project is based on studying the contents of sampling design and statistical analysis methods in the MARSSIM manual, studying the use of VSP software tools in nuclear power plant radiation detection, and collecting and analyzing relevant documents on the international application of VSP for sampling design and statistical analysis. As well as the United States NRC's literature on the quality evaluation of nuclear power plant radiation detection data, it proposes control recommendations related to the quality of radiation detection data.

目錄

| 摘 | 要 | •••• | •••• | | I |
|----|----------|------|--------|------------------------------|----|
| Ał | ostr | act | t | | II |
| 圖 | 目釒 | 录 | •••• | | V |
| 壹 | • | 肓 | 介言 | 言 | 1 |
| 濆 | • | 石 | ዋን | 究方法 | 3 |
| 爹 | • | N | 1A | ARSSIM 手冊中有關取樣設計及統計分析之相關內容摘述 | 4 |
| | _ | | Ν | MARSSIM 手冊簡介 | 4 |
| | - | . ` | 車 | 輻射偵檢與廠址調查(RSSI)程序簡介 | 4 |
| | 1-1 | . ` | ۳ ۳ | 最終狀態偵檢之取樣設計和統計分析 | 11 |
| 肆 | • | V | 'SI | P 軟體介紹 | 26 |
| | _ | | V | VSP 軟體概述 | 26 |
| | <i>–</i> | . ` | X | 匯入或繪製地圖並設定取樣區域 | 29 |

| | Ξ | 、建立取樣計畫 | 36 |
|---|-----|-------------------------------|----|
| | 四 | · 評估取樣計畫 | 52 |
| 伍 | • | VSP 軟體應用於除役電廠輻射偵檢之實例 | 63 |
| | 1 | 、 偵檢單元最終偵檢計畫內容之規範 | 64 |
| | - | 、 錫安核電廠應用 VSP 之實例 | 74 |
| 陸 | • | 美國 NRC 有關核電廠輻射偵檢數據品質審查文獻 | 79 |
| 柒 | ` | 數據品質相關管制建議 | 80 |
| | - | 、 電廠執照終止計畫(LTP)之最終輻射偵檢計畫審查 | 80 |
| | - | 、 電廠輻射偵檢指引文件規範 | 80 |
| | 1.1 | · | 80 |
| | 四 | 、 VSP 軟體工具運用 | 80 |
| 挒 | • | 結論 | 81 |
| 玖 | | 參考資料 | 82 |

圖目錄

| 圖 | 1 | DQO(數據品質目標)七步驟2 |
|----|----|----------------------------|
| 圖 | 2 | 核電廠除役期間廠址取樣方法品質研析計畫研究方法3 |
| 日 | 3 | 廠址歷史評估流程圖 |
| 圖 | 4 | 範圍偵檢流程圖7 |
| 圖 | 5 | 特性偵檢及整治行動輔助偵檢流程圖8 |
| 圖 | 6 | 最終狀態偵檢流程圖9 |
| 圖 | 7 | 數據生命週期 (Data Life Cycle)10 |
| Be | 8 | 最終狀態偵檢規劃流程圖14 |
| 日 | 9 | MARSSIM 建議之區域分級流程圖15 |
| Be | 1(|) 參考座標系統-地面範例(使用羅盤方向)20 |
| 圖 | 11 | 參考座標系統-地面範例(使用相對基準線)21 |
| 圖 | 12 | 2 參考座標系統-室內房間範例22 |
| 圖 | 13 | 3 數據生命週期之評估階段23 |
| 圖 | 14 | 4 VSP版本選擇視窗畫面 |

| 圖 | 15 | VSP 範例地圖 |
|---|----|-----------------------------|
| 圖 | 16 | 核二廠廠區圖和地圖座標等資訊設定視窗31 |
| 圖 | 17 | 房間透視圖/牆面圖/展開圖31 |
| 圖 | 18 | 地圖視角 |
| 圖 | 19 | 房間視角 |
| 圖 | 20 | 房間特徵編輯設定功能 |
| 圖 | 21 | 房間物件資訊編輯視窗34 |
| 圖 | 22 | 開放型取樣區域(紅色線)及封閉型區樣區域(橘黃色區域) |
| 圖 | 23 | 核二除役計畫中R類偵檢包土樣取樣點分布圖35 |
| 圖 | 24 | 核二生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域作為取樣區域範例圖 |
| 圖 | 25 | 「比較平均值與某個限制值」相關參數設定視窗 |
| 圖 | 26 | 「比較平均值與參考區域平均值」相關參數設定視窗 |
| 圖 | 27 | 「預設取樣數」相關參數設定視窗40 |
| 圖 | 28 | 「取樣點資訊」相關參數設定視窗41 |
| 圖 | 29 | 灰色區間示意圖 |

| 圖 | 30 | 取樣位置模式選擇視窗(選擇簡單隨機取樣)47 |
|---|----|-------------------------------|
| 圖 | 31 | 系統性網格採樣-正方形 |
| 圖 | 32 | 系統性網格採樣-三角形 |
| 圖 | 33 | 系統性網格採樣-長方形 |
| 圖 | 34 | 網格內隨機取樣 |
| 圖 | 35 | 網格內取樣-三角形 |
| 圖 | 36 | 網格內取樣-長方形 |
| 圖 | 37 | VSP 視覺化呈現取樣點位置 |
| 圖 | 38 | 取樣點座標資訊表格 |
| 圖 | 39 | 成本估算視窗介面 |
| 圖 | 40 | 決策效能目標圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值)54 |
| 圖 | 41 | 決策效能目標圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值)55 |
| 圖 | 42 | 決策正確機率圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值)56 |
| 圖 | 43 | 決策正確機率圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值)57 |
| 圖 | 44 | 預期檢定力圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值) |

| 圖 | 45 | 預期檢定力圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值)59 |
|---|----|--------------------------------|
| 圖 | 46 | 預期檢定力/回溯檢定力圖59 |
| 圖 | 47 | 取樣設計摘要 |
| 圖 | 48 | 取樣結果統計摘要62 |
| 圖 | 49 | 取樣結果統計圖(長條圖、箱型圖,以及分位數-分位數圖)62 |
| 圖 | 50 | 取樣資料統計檢定結果63 |
| 圖 | 51 | 偵檢單元最終輻射偵檢計畫封面69 |
| 圖 | 52 | 區域預備完成確認和管控清單70 |
| 圖 | 53 | 區域預備完成前確認 |
| 圖 | 54 | 偵檢單元分級工作表 |
| 圖 | 55 | 最終輻射偵檢數據品質目標(DQOs)和偵檢設計73 |
| 圖 | 57 | 錫安核電廠最終偵檢貨檢單元 10208 75 |
| 圖 | 58 | 偵檢單元 10208 因區域分及改變切割為 4 個偵檢單元 |
| 圖 | 59 | 偵檢單元 10208 之 Posting Plot 圖 77 |
| 圖 | 60 | 預期檢定力/回溯檢定力圖 |

表目錄

| 表 | 1 | MARSSIM 內容範疇(與取樣設計及統計分析相關)1 | 1 |
|---|---|-----------------------------|---|
| 表 | 2 | 不同區域分級之區域大小建議10 | 6 |
| 表 | 3 | 不同區域分級之偵檢涵蓋範圍建議1 | 7 |
| 表 | 4 | MARSSIM 建議之調查基準設定2 | 5 |
| 表 | 5 | 是否符合外釋規範判斷標準(無背景污染)2 | 5 |
| 表 | 6 | 是否符合外釋規範判斷標準(有背景污染)20 | 6 |

壹、 前言

核能電廠完成除役前須透過最終狀態偵檢調查來證明廠址的殘餘輻射 量符合外釋法規之規範。最終狀態偵檢所得到的數據將做為廠址可否外釋 之決策的依據,因此必須以科學和統計的方法來確保輻射偵檢所得數據品 質符合定性和定量之要求,因而從偵檢規劃階段就必須透過合宜的取樣設 計來達成此目標。取樣代表以從取樣對象(又稱母體)所抽取的樣本來代表取 樣對象,因為自然誤差的原因,取樣樣本與取樣對象實際的情況,必定有 所差異。因此,根據取樣結果所作出的決策,無法避免發生決策錯誤的可 能性。所謂的數據品質,也就是透過統計的科學方法,將發生決策錯誤的可 能性。所謂的數據品質,也就是透過統計的科學方法,將發生決策錯誤的可 能性。所謂的數據品質,也就是透過統計的科學方法,將發生決策錯誤的 鍵目標為:以最經濟的方式達成所期望的數據品質。取樣成本通常與取樣 數有關,因此,取樣設計規劃者須計算要達成所期望之數據品質所需之最

VSP(Virtual Sample Plan)是一套設計給非統計專業人員使用的免費軟 體工具,由美國和英國政府相關單位贊助,美國太平洋西北實驗室開發, 用於協助取樣設計及統計分析。

MARSSIM(Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual)[1]手冊由美國多個部會共同制定,目的是提供電廠有關如何透過一系列的偵檢規劃及措施,來確保最終狀態偵檢結果能夠符合電廠外釋的法規規範,以順利達成電廠除役及廠址外釋再利用目標的指引。在 MARSSIM 手冊中規範,輻射偵檢的規劃必須依照美國環保署所制定的數據品質目標 (DQO, Data Quality Objectives)程序[2]進行規劃,偵檢結果的評估須依照美國環保署所制定的數據品質評估(DQA, Data Quality Assessment)程序指引[3] 進行評估。在 DQO 指引文件中,推薦使用 VSP 軟體作為選擇合適樣本數 及取樣位置以達成確保數據品質與信賴度之工具。

1

DQO 程序是一套系統性規劃指引,運用於協助制定有關蒐集環境數據 以做出決策(例如,符合/不符合標準)或估計(例如,確定污染物的平均 濃度水平)之計畫。DQO 共有七個步驟,每個步驟之產出稱為 DQOs,其 中,步驟六的產出會依據計畫目標而不同,除役核能電廠偵檢計畫之計畫 目標屬於根據環境蒐集資料做出決策。DQO 七個步驟要進行之工作簡要說 明如圖 1:



圖 1 DQO(數據品質目標)七步驟

貳、 研究方法

本子項計畫的研究進行包含資料蒐集、資料研讀以及資料彙整與產出 報告三部分如圖 2。資料蒐集方面,主要蒐集美國 NRC 著作有關核電廠輻 射偵檢數據品質評估相關之文獻以及國際間有關應用 VSP 進行取樣設計和 統計分析之相關文獻;資料研讀部分,除了所蒐集到的文獻,亦會研析 MARSSIM 文件中有關取樣設計及統計分析方法之相關內容和 VSP 使用相 關說明文件。透過資料蒐集和研析,整理彙整有關如何應用 VSP 於核能電 廠輻射偵檢與廠址調查之取樣設計及統計分析,以及提出與輻射偵檢數據 品質相關之管制建議。



圖 2 核電廠除役期間廠址取樣方法品質研析計畫研究方法

參、 MARSSIM 手冊中有關取樣設計及統計分析之相關內容摘述

一、 MARSSIM 手冊簡介

機構輻射偵查和廠址調查手冊(MARSSIM)提供電廠除役時為證明符 合法規規範而須進行之廠址輻射偵檢的指引,包含環境和設備輻射偵檢之 規劃、執行和評估等。MARSSIM 建議的輻射偵檢和廠址調查(Radiation Survey and Site Investigation,簡稱 RSSI)有六個程序:廠址識別、廠址歷史 評估、範圍偵檢、特性偵檢、整治行動輔助偵檢以及最終狀態偵檢。其中, 最終狀態偵檢的結果將決定偵檢單元是否符合外釋法規規範。MARSSIM 建議採用這一系列 RSSI 程序之目的,即是為了協助電廠在進行最終狀態偵 檢能夠確保偵檢結果可以符合法規規範,因此,最終狀態偵前所進行的 RSSI 程序之目的,都是為了提供最終狀態偵檢所需要的資訊或能讓最終狀 態偵檢的結果可以符合外釋條件而設計的。MARSSIM 所建議的程序並非 硬性規定,核電廠可以依據其個別狀況選擇適合的程序進行採用。

二、 輻射偵檢與廠址調查(RSSI)程序簡介

MARSSIM 手冊中所建議的六個 RSSI 程序目的說明如下:

- 廠址識別:識別確認廠址名稱、位置、範圍等資訊。
- 廠址歷史評估:蒐集與評估廠址歷史資料,評估後將廠區劃分為受 輻射影響區域和不受輻射影響區域。評估結果若為不受輻射影響區 域代表該區域後續不需進行輻射偵檢可直接釋出,評估結果若為受 輻射影響區域,則需進行必要之輻射偵檢或進行除污活動。廠址歷 史評估流程圖請參考圖 3。
- 範圍偵檢:評估是否同意將全部或部分廠區分為第三級。所蒐集的 資料數據可供後續偵檢調查時使用。範圍偵檢流程圖請參考圖 4。
- 特性偵檢:評估污染的性質和程度,以及判斷是否需要進行除污整

治。所蒐集的資料數據可供後續偵檢調查時使用。特性偵檢流程圖 請參考圖 5。

- 整治行動輔助偵檢:確認整治是否有達成目的。整治行動輔助偵檢
 是特性偵檢流程圖中的一部分,請參考圖 5。
- 最終狀態偵檢:確認證明每一個偵檢單元的殘餘輻射是否符合外釋
 標準。最終狀態偵檢流程圖請參考圖 6。

輻射偵檢包含規劃、執行、評估以及決策等四個階段(圖 7),這四個階 段稱為數據生命週期(Data Life Cycle),為確保數據之品質且能夠禁得起考 驗(defensible),須自規劃階段起依據統計科學進行取樣設計規劃。數據品質 目標(Data Quality Object, DQO)程序為美國環境保護署(EPA)所制訂開 發,其目的為提供當需要依據環境數據資料作出在 1. 兩個選項中擇一的 決策(如:符合/不符合標準),或2.估算環境參數(如:確定污染物的平 均濃度水平)時,有關進行系統性的規劃之指引。DQO程序總共有7個步 驟如圖 1, DQOs 為偵檢規劃階段時,依據 DQO 程序所產出之內容項目。 最終狀態偵檢規劃時產出的 DOOs 應包含攸關數據品質的指標,如: 偵檢 單元分級、取樣位置、取樣點及取樣數、可容許的決策錯誤率...等。在執行 階段應依據偵檢規劃執行偵檢。MARSSIM 手冊中並提及,所有的偵檢都應 將部分的量測值用於品質管控(QC)。品質管控可有助於數據使用著了解數 據不確定性的程度,並減少做出錯誤的機會。在評估階段,必須先進行驗 證和確認,評估確認是否有依照規畫階段規定有關品質保證相關計畫執行, 而後再採用 DQA 程序來評估數據是否有符合數據品質目標(DQO)。最後的 决策階段,決策者將依據評估階段的評估結果做出決策。

5

廠址歷史評估流程圖



圖 3 廠址歷史評估流程圖

範圍偵檢流程圖



圖 4 範圍偵檢流程圖

特性偵檢及整治行動輔助偵檢流程圖



^{*}在[最終狀態偵檢]流程圖中未能證明符合法規規範之標準時重新進入此流程之進入點

圖 5 特性偵檢及整治行動輔助偵檢流程圖

最終狀態偵檢流程圖



連結至[特性偵檢及整治行董輔助偵檢]流程圖中[從最終狀態偵檢]進入點

圖 6 最終狀態偵檢流程圖



圖 7 數據生命週期(Data Life Cycle)

三、 最終狀態偵檢之取樣設計和統計分析

MARSSIM 的指引聚焦於最終狀態偵檢,因此,本節將介紹 MARSSIM 手冊有關最終狀態偵檢之取樣設計及統計分析內容。圖 8 為 MARSSIM 所 建議之最終狀態偵檢規劃流程圖。

表 1 說明了 MARSSIM 手冊中有關偵檢調查之取樣設計和統計分析的 指引內容範疇,透過此表可以了解 MARSSIM 手冊並未嚴格規範偵檢的每 一個細節。

| 項目 | 涵蓋範疇 | 不涵蓋範疇 |
|-----------|---------------------------------------|---|
| 量測 | 數據達到所需效能之指 引 | 未限定要使用的 技術,如量測技 術、樣本蒐集方 法、樣本貯存與 丟棄方法等 |
| DQO 程序 | 介紹一系統性偵檢設計 方法 | 未規定或預設 DQOs |
| DQA 程序 | 提供評估數據會用到的 統計檢定以及特定廠址 可能用到的統計檢定 | 並未規定所有廠 址都要使用的統 計檢定 |

表 1 MARSSIM 內容範疇(與取樣設計及統計分析相關)

(一)、 相關術語說明

- DCGL(Derived Concentration Guideline Level):導出濃度指引水平。 依據法規導出之放射性核種活度限值。
- DCGLw:大區域平均濃度的 DCGL 值,使用於統計檢定。
- DCGL_{EMC}:存在較高污染濃度的小區域時,針對小區域之 DCGL 值,使用於 EMC。

- DCGLs: DCGL 的複數。
- EMC (Elevated Measurement Comparison) :當存在較高量污染濃度 的小區域時,將小區域的污染濃度與 DCGL_{EMC} 值進行比較。
- 調查基準(Investigation Level):量測值、取樣樣本或掃描處的偵檢 結果若超過調查基準,需進行進一步的調查。

(二)、 量測方式

在 MARSSIM 內容中,量測的方式有三種:

1. 直接量測(Direct Meaurements)

使用偵檢器量測表面或取出樣本的輻射量或輻射程度。

2. 掃描(Scanning)

使用可移動性輻射偵檢器,以穩定的速度在表面上方移動檢測是 否有有較高活度的區域。

3. 取樣(Sampling)

蒐集取自環境的一部分物質,取樣所得的樣本經過分析後,其所 含放射性物質濃度用以代表取樣附近區域的輻射污染狀況。

(三)、 偵檢單元分級

為了資源的有效運用,進行最終狀態偵檢時,各偵檢單元的偵檢規劃 應依據偵檢單元區域內的污染可能性而有所不同,污染可能性愈高,偵檢 的強度和投入的偵檢資源也應愈多。MARSSIM 建議依據偵檢單元的污染 可能性,進行分級,其中污染可能性最高的為分為第一級,最低的則分為 第三級。MARSSIM 所建議的區域分級流程如圖 9。 最終狀態偵檢時的偵檢單元分級至關重要,因和取樣規劃時要投入的 偵檢資源息息相關。區域分級的標準一般是依據污染可能性相對 DCGLw之 大小,但若存在小區域較高濃度的狀況時,亦可透過 EMC(將小區域的污染 濃度與 DCGL_{EMC} 值進行比較)來進行偵檢單元的區域分級,電廠應建立其 區域分級的標準及流程:

- 第一級區域(Class 1 areas):除污前預期污染濃度大於 DCGLw之受影響區域。
- 第二級區域(Class 2 areas):除污前預期污染濃度不大於 DCGLw之 受影響區域。
- · 第三級區域(Class 3 areas):含殘餘輻射機率很小的受影響區域。

污染可能性愈大時,需要進行愈詳細的偵檢,為有效利用資源,污染可 能性大的偵檢單元,區域面積應較小。

最終狀態偵檢設計流程圖



圖 8 最終狀態偵檢規劃流程圖



輻射偵檢和廠址調查流程之區域分級流程圖

圖 9 MARSSIM 建議之區域分級流程圖

(四)、 規劃階段

1. 訂定適用於整個廠區的偵檢規劃原則

在進行除役電廠每一個偵檢單元獨立的偵檢規劃前可先訂定適 用於整個廠區的偵檢規劃原則,內容包含不同區域分級的偵檢規劃方 式、偵檢涵蓋範圍、可以接受的決策錯誤率,以及使用的偵檢方式等 等。個別偵檢單元的規劃再參照適用於整個廠區的偵檢規劃原則進行 規劃設計。MARSSIM 手冊中建議各區域分級之偵檢單元區域大小建 議如表 2,建議各區域分級之偵檢涵蓋範圍如表 3。

| 偵檢單元 區域分級 | 偵檢對象類別 | 偵檢單元區域大 小建議 | | |
|--------------|------------------------------------|---|--|--|
| 第一級 | 結構(Structure) 地面(Land Areas) | 最大至 100 m ² 最大至 2,000 m ² | | |
| 第二級 | 結構(Structure) 地面(Land Areas) | $100 \sim 1,000 \text{ m}^2$ 2,000 ~ 10,000 m ² | | |
| 第三級 | 結構(Structure) 地面(Land Areas) | 沒有限制 沒有限制 | | |

表 2 不同區域分級之區域大小建議

| 偵 | ķ | 吉構 | 地 | 面區域 |
|---------|----------|----------------------------------|----------|----------------------------------|
| 低單元區域分級 | 表面掃 描 | 表面活度量测 | 表面掃 描 | 表面土壤量测 |
| 第一級 | 100% | · 透過統計檢定決定取樣數 若小區域有較高量測值時,可能需 | 100% | · 透過統計檢定決定取樣數 若小區域有較高量測值時,可能需 |

表 3 不同區域分級之偵檢涵蓋範圍建議

| | | 增 | | 增 |
|-----|---------|---|-------|---|
| | | 加 | | 加 |
| | | 額 | | 額 |
| | | 外 | | 外 |
| | | 的 | | 的 |
| | | 直 | | 直 |
| | | 接 | | 接 |
| | | 量 | | 量 |
| | | 測 | | 測 |
| | | 或 | | 或 |
| | | 取 | | 取 |
| | | 樣 | | 樣 |
| | | | | |
| | | 透 | 0~100 | 透 |
| 第 | 10~100 | 過 | % | 過 |
| | % | 統 | 系統性 | 統 |
| 級 | 系統性 | 計 | 和判斷 | 計 |
| | 11.001- | 檢 | | 檢 |
| | | 定 | | 定 |
| | | 決 | | 決 |
| 第 | | 定 | | 定 |
| II. | 判斷性 | 取 | 判斷性 | 取 |
| 級 | | 樣 | | 樣 |
| | | 數 | | 數 |
| | | | | |

2. 決定取樣數

透過統計檢定決定偵檢單元之取樣數的計算公式中,會影響所需 最少取樣數的因子包含可接受的型Ι決策錯誤率(α)、可接受的型Ⅱ決 策錯誤率(β),以及統計檢定標的預測標準差。

3. 統計檢定

根據 MARSSIM 手冊建議,輻射偵檢使用的統計檢定和是廠區是 否存在背景污染相關。若廠區不存在背景污染,應使用符號檢定(Sign Test),此檢定目的為判斷取樣結果是否超過劑量或放射性核種活度限 值(也就是導出濃度指引水平,DCGL);若廠區存在背景污染,則使用 WRS 檢定(WRS Test),檢定目的為判斷取樣結果和背景污染區域的差 異是否超過劑量或放射性核種活度限值。

4. 取樣參考座標系統

偵檢規劃中應建立取樣的參考座標系統,目的是方便選擇量測和 取樣位置,並提供將量測值參照到特定位置的機制。MARSSIM 建議 之隔點間格距離如下:

- 區域分級為第一級及第二級區域:結構物 1~2 公尺,地面 10~20 公尺。
- ・ 區域分級為第三級區域:結構物 5~10 公尺,地面 20~50 公

 尺。

圖 10~圖 12 為 MARSSIM 有關規畫參考座標的範例,圖 10 和圖 11 為地面範例,圖 12 為房間範例。



圖 10 參考座標系統-地面範例(使用羅盤方向)



POINT A GRID COORDINATES 100R, 2+00 POINT B GRID COORDINATES 25R, 1+30 SHADED BLOCK GRID COORDINATES 200L, 2+00

圖 11 參考座標系統-地面範例(使用相對基準線)




圖 12 參考座標系統-室內房間範例

5. 偵檢設備和偵檢技術

MARSSIM 中並未規定應使用何種儀器和技術進行量測偵檢,但 針對偵檢設備和偵檢技術有以下幾點規範:

- 應確認及記錄偵檢量測(掃描、直接量測、實驗室樣本分析)所
 使用的的儀器設備及其檢測敏感度。
- 應建立及記錄量測設備的標準操作程序(SOPs)。
- · 量測設備最小可檢測濃度(MDCs)一般建議值為 DCGL 的

(五)、 評估階段

圖 13 中的右半部為偵檢的評估階段之進行流程,從圖中我們可以看 到,進入評估程序後,要針對例行資料以及 QC/效能評估資料依序進行數 據確認和驗證以及數據品質評估(DQA)程序,最後才能依據數據做出結論。



圖 13 數據生命週期之評估階段

1. 驗證(Verification)和確認(Validation)

驗證和驗證要做的工作如下:

- · 驗證是否有依照偵檢設計的 SOPs 進行。
- 驗證量測系統是否依照品質保證規劃規範的標準進行。
- 確認數據是否支持保證規劃規範中所列之偵檢目的。

2. 數據品質評估(Data Quality Assessment, DQA)程序

DQA 程序總共有 5 個步驟,包含 1. (Data Quality Obejectives, DQOs)和取樣設計,2. 進行初步數據審查,3. 選擇統計檢定,4. 驗 證統計檢定的假設,和5. 從數據得出結論。簡單說明如下:

步驟1:檢視DQOs和取樣設計

檢視規劃階段所產出的 DQOs,也就是有關數據品質的指標如統 計假設及決策錯誤的容忍上限,以及取樣設計。

步驟2:進行初步數據審查

透過繪製可代表及描述數據的基本統計量和統計圖,來了解數據 的結構並辨認數據的趨勢及關連性。此步驟可應用下一章所介紹的 VSP軟體來完成。包含透過取樣結果空間分佈狀況來是否有污染濃度 較高區域以及透過取樣設計效能圖,來判斷檢定力是否足夠。

步驟3:選擇統計檢定

MARSSIM 手冊中已建議了不同情況適用的統計檢定。當廠區不存在背景污染,應使用符號檢定(Sign Test),此檢定目的為判斷取樣結果是否超過劑量或放射性核種活度限值(也就是導出濃度指引水平, DCGL);當廠區存在背景污染,則應使用 WRS 檢定(WRS Test),檢 定目的為判斷取樣結果和背景污染區域的差異是否超過劑量或放射 性核種活度限值。

步驟4:驗證統計檢定的假定

MARSSIM 手冊中建議使用的統計檢定為無母數檢定,也就是未 假定資料來源母體有符合某分佈。因此,此步驟僅需進行獨立性驗證, 可透過檢查取樣設計,來確認取樣位置是否有足夠的獨立性。

24

步驟5:從數據得出結論

表 4 到表 6為MARSSIM 中有關評估階段進行評估之建議準則。 表 4 是評估是否要進行進一步調查之調查基準,依據偵檢單元 區域分級,有不同的調查基準設定。表 5 及表 6 則分別為無背 景污染和有背景污染時,判斷偵檢單元是否符合外釋標準之判斷 標準。

| 偵檢單元 區域分級 | 直接量測或取 樣結果之調查 基準 | 掃描之調查 基準 |
|--------------|--|------------------------------|
| 第一級 | >DCGL _{EMC} 或 >DCGL _W | >DCGL _{EMC} |
| 第二級 | >DCGL _w | >DCGLw 或 >MDC |
| 第三級 | >DCGL _W 的 某百分比 | >DCGL _w 或 >MDC |

表 4 MARSSIM 建議之調查基準設定

表 5 是否符合外釋規範判斷標準(無背景污染)

| 偵檢結果 | 是否符合外釋標準之 判斷 |
|--------------|-----------------|
| 所有量測值小於 | 偵檢單元符合外釋標 |
| DCGLw | 準 |
| 平均值大於 DCGLw | 偵檢單元不符合外釋 標準 |
| 任一量測值大於 | 執行 EMC(較高量測值 |
| DCGLw,但平均值小於 | 比較)和符號檢定後判 |

| DCGLw | 定 |
|-------|---|
| | |

| 表 | 6 | 是召 | 5符 | 合外 | 釋規 | 範判 | 斷標 | 準(7 | 旨背 | 景污氵 | 杂) |
|---|---|----|----|----|----|----|----|-----|----|-----|----|
|---|---|----|----|----|----|----|----|-----|----|-----|----|

| 偵檢結果 | 判斷是否符合外釋標 準 |
|---|------------------------------------|
| 偵檢單元的最大量測值 和參考區域的最小量測 值的差小於 DCGL | 偵檢單元符合釋出標 準 |
| 偵檢單元和參考區域的 平均值的差大於 DCGL | 偵檢單元不符合釋出 標準 |
| 任一偵檢單元和參考區 域量測值的差大於 DCGLw,但偵檢單元和 參考區域平均值的差小 於 DCGLw | 執行 EMC(較高量測值 比較)和 WRS 檢定後 判定 |

肆、 VSP 軟體介紹

一、 VSP 軟體概述

VSP 軟體的目的為依據統計理論和統計分析方法,協助使用者制定可 靠的取樣計畫,以增進決策之信賴度,目前最新的版本為 2021 年所釋出的 7.15 版。VSP 由美國太平洋西北國家實驗室開發,贊助單位包含美國多個 政府單位,如能源局、國防部、環保署、國土安全部、職業安全與健康國家 研究所、疾病控制預防中心,以及英國核子武器學會等。VSP 可提供使用 者以下問題的答案:

- 達成所需信賴度需要多少樣本?
- 要於那些位置取樣?
- 根據資料,應做出什麼決策?

VSP 針對不同取樣目的提供不同的取樣設計和樣本數公式,也以下為 VSP 最新版可以支援的取樣目的項目:

- 比較平均值與某個限制值
- 比較平均值與參考區域平均值
- 估算平均值
- 建立平均值的信賴區間
- 定位熱點
- 呈現取樣區域至少多少比例是可被接受的
- 找出不能被接受的區域
- 結合平均值和個別量測值之限值
- 偵測趨勢
- 識別多餘的取樣
- 增加取樣位置
- 比較比例與某固定值
- 比較比例與參考區域比例
- 建立比例的信賴區間
- 估算比例
- 評估污染的邊界
- 未爆彈指引
- 找尋未爆彈標的區域

- 未爆彈處理後驗證取樣
- 未爆彈補救調查
- 建築物內部取樣
- 放射性截面調查
- 項目取樣
- 非統計性取樣

啟動 VSP 後,先依所要進行取樣之領域,選擇 VSP 版本(參考圖 14), VSP 針對不同應用,提供 6 種不同的版本讓使用者選擇,其中,包含專門 用於電廠除役輻射偵檢之 MARSSIM 版本,本報告書有關 VSP 軟體之介紹 以 VSP 的 MARSSIM 版本為主。

MARSSIM 手冊是專門用於建築物及土壤之輻射偵檢的指引,VSP 的 MARSSIM 模組之取樣對象、取樣目標和統計檢定,僅限於 MARSSIM 手 冊中建議使用的類別項目。取樣對象部分,選擇 MARSSIM 模組後,取樣 對象將自動提供建築物或土壤兩個選項。取樣目標部分,若無背景污染, 應選擇「比較平均值與某個限制值」;若存在背景污染,則應選擇「比較平 均值與參考區域平均」。統計檢定部分,根據 MARSSIM 建議,無輻射背景 污染時使用符號檢定(Sign Test),此檢定目的為判斷取樣結果是否超過劑量 或放射性核種活度限值(也就是導出濃度指引水平,DCGL);在有輻射背景 污染時,則建議使用 WRS 檢定(WRS Test),檢定目的為判斷取樣結果和背 景污染區域的差異是否超過劑量或放射性核種活度限值。在 MARSSIM 模 組下,選定取樣目標後,程式中會自動選擇根據 MARSSIM 手冊所應使用 之統計檢定。



圖 14 VSP 版本選擇視窗畫面

VSP 提供友善的介面,非統計專業人員亦可使用,以視覺化的方式呈現所規劃的樣本位置,產出的報告及圖表可使用於品質保證計畫、測試計畫,或取樣和分析計畫等。以下簡要說明 VSP 操作步驟及如何解讀其產出 之報表圖表。

二、 匯入或繪製地圖並設定取樣區域

為方便說明,部分內容以核二除役計畫書中生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域(R00400)作為範例:

(一)、 設定地圖

開始一個新的專案後,第一個步驟為匯入或繪製地圖。使用者可以匯入 DXF(Drawing Interchange Format)格式檔、ArcView SHP 檔或匯入 Geosoft 或 RAMS 專案來設定地圖。此外,亦可開啟其他 VSP 專案來設定地圖或直

接匯入圖檔當作地圖。VSP 也內建了繪圖工具,使用者可以使用繪圖工具 繪製地圖圖面。

設定好地圖後,接著要設定的是座標,使用者可設定地圖的原點位置、 X 軸及 Y 軸的最大最小值,以及北方角度偏移等。圖 15 為 VSP 內建範例 地圖,圖 16 為從 Google 地圖擷取的核二廠廠區圖和地圖座標等資訊設定 視窗。

VSP 最新的版本提供針對房間和建築的取樣設計功能。和針對土壤進 行取樣設計不同,房間和建築具有高度及內部物件等特徵,VSP 提供的房 間繪製工具,可以繪製出三種不同的房間圖面,分別為透視圖、牆面圖以 及展開圖如圖 17。VSP 提供地圖視角(Map View)及房間視角(Room View) 讓使用使使用者檢視圖面,地圖視角參考圖 18,房間視角參考圖 19。VSP 亦提供房間特徵編輯和設定相關工具,如設定房間大小、設定座標原點, 以及插入門窗及家具等物件等(參考圖 20 及圖 21)。



圖 15 VSP 範例地圖



圖 16 核二廠廠區圖和地圖座標等資訊設定視窗

| 🕞 BuildingTest3.vsp:1 | 🖪 BuildingTest3.vsp: 2 | 🕞 BuildingTest3.vsp: 3 |
|---------------------------------|--------------------------------|-----------------------------|
| This is a Perspective Room View | This is a Wall-strip Room View | This is a Splayed Room View |
| | | |

圖 17 房間透視圖/牆面圖/展開圖



圖 18 地圖視角



圖 19 房間視角



圖 20 房間特徵編輯設定功能

| | Ţ Ţ | |
|----------|--------------------------|---|
| | Object Information | × |
| | Door | |
| T | | |
| | Position X: 6.000 inches | |
| | | |
| | Width: 30.000 | |
| T | Height: 80.000 | |
| | OK Delete Cancel | |

圖 21 房間物件資訊編輯視窗

(二)、 設定取樣區域

設定好地圖或房間底圖後,接下來要設定的是取樣區域。取樣區域可 分為開放區域和封閉區域,開放區域代表為線狀非封閉起來的區域,如圖 22 的紅色線條,紅色線條上面的箭頭方向代表受污染泥土的清除方向,也 就是乾淨方向。封閉區域如圖 10 的橘黃色色橢圓形區域。

核二廠除役計畫第四章主題為:廠址與設施之輻射特性調查及評估結 果。該章內容中說明核二廠輻射特性調查作業將輻射調查範圍分為數類的 偵檢包(Survey Package),其中,可能受輻射影響及不受輻射影響的廠址環 境歸類為R類偵檢包,共分為14個偵檢包,涵蓋廠房外圍土地、水體、道 路等區域,參考圖23。為示範如何運用VSP進行電廠最終狀態偵檢之實 作,我們以生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域(R00400)作為取樣區域之 範例。圖24的黃色區域為以核二除役計畫書中生水池及氣渦輪機房等建 物周圍區域(R00400)作為設定取樣區域之範例。



圖 22 開放型取樣區域(紅色線)及封閉型區樣區域(橘黃色區域)



圖 23 核二除役計畫中R類偵檢包土樣取樣點分布圖



圖 24 核二生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域作為取樣區域範例圖

三、 建立取樣計畫

決定好取樣區域後,接下來就是建立取樣計畫。取樣計畫內容包含在 哪裡取樣(Where)、要取多少樣本(How many)、要取什麼樣的樣本(What,如 泥土、空氣),以及如何取樣和分析。以下簡要介紹 VSP 如何協助使用者建 立取樣計畫。

(一)、 選擇取樣目的(Sampling Goal)

VSP 依據 DQO 程序指引使用者選擇及設定取樣計畫的內容。建立取 樣計畫的第一件事為選擇取樣目的。取樣目的也就是蒐集資料之目的或所 要解決的問題。在 VSP 的 MARSSIM 模組中,僅提供 MARSSIM 手册指引 相關的取樣目的選項供使用者選擇,包含 1.比較平均值與某個限制值及 2. 比較平均值與參考區域平均值,以及 3.非統計取樣。說明如下:

1. 比較平均值與某個限制值

又稱作單樣本議題(one-sample problem),目的是透過比較樣本平 均值(或中位數)與某個限制值之結果做出決策,譬如決定核電廠廠址 是否符合外釋法規,當沒有背景污染時,應選擇此項作為取樣目的。 VSP「比較平均值與某個限制值」相關參數設定視窗提供介面供使用 者輸入必要的 DQO 參數,以計算所需的樣本數,VSP 並會將取樣位 置顯示於地圖上,視窗畫面請參考圖 25。

2. 比較平均值與參考區域平均值

又稱作雙樣本議題(two-sample problem),目的是透過比較樣本平 均值(或中位數)與某個參考區域之平均值(或中位數)之結果做出決策, 譬如決定核電廠廠址是否符合外釋法規。當有背景污染時,當有背景 污染時,應選擇此項作為取樣目的。VSP「比較平均值與參考區域平 均值」相關參數設定視窗提供介面供使用者輸入必要的 DQO 參數, 以計算所需的樣本數,VSP 並會將取樣位置顯示於地圖上,視窗畫面 請參考圖 26。

3. 非統計取樣

提供以統計方法以外的方式設定或增加樣本數,包含預定取樣數 及判斷(權威)取樣。當選則取樣目的選擇預定取樣數時,VSP 可協助 使用者選擇樣本位置之規劃方式,請參考圖 27;當選擇判斷(權威)取 樣時,使用者可直接在取樣區域上透過滑鼠左鍵設定取樣位置。 根據 MARSSIM 手冊,取樣母體的分佈不須假定或對稱分布,因此, 在 VSP 的 MARSSIM 版本取樣目視窗中,已預設為不假定預定取樣數,並 假定為非對稱分布(平均數和中位數不同),設定畫面請參考圖 25 及圖 26。

在取樣點上點按滑鼠右鍵會出現取樣點資訊設定視窗如圖 28,使用者 可以透過該視窗設定取樣點之標籤、數值,以及是否為歷史取樣點(取樣設 計前已有取樣結果數據)等。

| True Average vs. Fixed Threshold Average vs. Fixed Threshold Sample Placement Costs Data Analysis Analytes cannot i summe the data will be normally distributed. For Help, highlight an item and press assume the truty data are instrymmetrical (the mean and median are different) MARSSIM. I want to assess for infection i want to calculate the number of samples one analyte at a time. These design parameters apply to [:s137/B0/A] Specify Huld Hypothesis: Want to assume the site i unacceptable (div) unal proven offerwise. (want the text data and lephal and Action Level Specify Lover Board Elephal and Action Level (int) if the undent >= 25.0 % chance of noncoscity acceptrate in an acceptable (div) if the undent on scalar the data in a scalar if the undent scalar data and in a scalar in | | | | |
|---|--|------|----|---|
| Average vs. Fixed Threshold Sample Placement Costs Data Analysis Analysis I cannot assume the data will be normally distributed. For Help, highlight an item and press I assume that my data are not symmetrical (the mean and median are different) MARSSIM Ivant to assess for Ivant to calculate the number of samples one analyte at a time. I want to assess for Ivant co calculate the number of samples one analyte at a time. Ivant or assess for include (dny) Ivant prevent otherwise. Bycely Net Househows Ivant obstame the site is unacceptable (dny) Ivant prevent otherwise. Ivant obstame the site is unacceptable (dny) Ivant prevent otherwise. Specify Net Househows Package to control well See May and the site is unacceptable (dny) Ivant prevent otherwise. Ivant otherwise is that the unedan is of above the action level of See May and the site is unacceptable (dny) if the true medan is of a conceptable file (dny) Ivant prevent prevent of See May (file (dny) Ivant prevent pr | True Average vs. Fixed Threshold | _ | | × |
| 1 cannet _ assume the data will be normally distributed. For Help, highlight an item and press I sasume that my data are _ not symmetrical (the mean and median are different) MARSSIM I want to assess for _ write e sol | Average vs. Fixed Threshold Sample Placement Costs Data Analysis Analytes | | | |
| I assume that my data are not symmetrical (the mean and median are different) MARSSIM I want to assess for wrate coll The design parameters apply to Co-137 (Ba/kg) Specify Nt do assume the site is inacceptable (diffy) will proven otherwise. (Assume the fuce median >= action level) Specify I and assume the site is inacceptable (diffy) will proven otherwise. (Assume the fuce median >= action level) Specify Lower Board of Gray Region and Failer Acceptable (diffy) is gray assume the site is unacceptable (diffy) if the ture median is 25 Ba/kg blow the action level is gray assume the site is an acceptable (diffy) if the ture median is 25 Ba/kg blow the action level is the site is unacceptable (leve Board Gray Region and Failer Acceptance is acceptable (leve median >= action level) If the ture median is 25 Ba/kg blow the action level is the site is unacceptable (leve Board Gray Region and Failer Acceptable (leve median >= action level) If work to associate as the site is unacceptable (leve median >= action level) If work to associate associable (leve median >= action level) If work to associate associable (leve median >= action level) I work to associate associable (leve median >= action level) I work to associate associable (leve median >= action level) I work to associate associable (leve median >= action level) I work to associate associable (leve median >= action level) I work to associa the site associable (leve median >= action level) <td>I cannot 💌 assume the data will be normally distributed. For Help, highlight an item and press</td> <td></td> <td></td> <td></td> | I cannot 💌 assume the data will be normally distributed. For Help, highlight an item and press | | | |
| I want to assess for wifece soil wife (whice a statistic status) I want to calculate the number of samples one analyte at a time. wife These design parameters apply to [c+137 (Bq/kg] wife assume the site is unacceptable [dity] wife to assume the true median >= action level. I want to assume the true median >= action level. Secoly that Brackson And Egeboard And Egeb | I assume that my data are not symmetrical (the mean and median are different) MARSSIM | | | |
| These design parameters apply to Cs137 (Bq/kg) Specify Mul Hypothesic Want to assume the site is Inacceptable (diry) University State Rejection Rate (aphs) and Action Level Want Tester Specify Take Rejection Rate (aphs) and Action Level Want Tester Specify Cale Rejection Rate (aphs) and Action Level Want Tester Specify Lower Bound of Gray Region and Palse Acceptance Rate (bals) University and no more than a Solo % Cannoe of inconcered/specify acceptable frait The true medanic 25 Bq/kg (that is, 25 Bq/kg (bals is, 25 Bq/kg (bals with eaction level) University auton more than a Solo % Cannoe of inconcered/specify accepting the null hypothesis that the site is unacceptable (true medan >= action level) 12 Bq/kg Investigation Level [L] 5 Bq/kg 12 Bq/kg Investigation Level [L] 5 Bq/kg 12 EMC Calculations Minimum Number of Samples for Cs-137: 12 EMC Calculations Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 12 + 20 % Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 15 Wati Mumore of Samples in Survey< | I want to assess for surface soil. |] | | |
| Specify Lower Bound of Gray Region and False Acceptance Rate (beta) If the true median is 2.5 Bg/kg (that is, 2.5 Bg/kg below the action level) If the true median is 2.5 Bg/kg (that is, 2.5 Bg/kg below the action level) then I want no more than a 5.0 % chance of incorrectly accepting the null hypothesis that the site is unacceptable (true median >= action level). I want to use ordinary I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 Bg/kg. Investigation Level (L): 5 Bg/kg. (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 12 EMC Calculations Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1.2 and 3 survey units Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 15 It in the true median is a survey in the status 15 It is a survey in the status It is a survey investigation | These design parameters apply to Cs-137 (Bq/kg) Specify Null Hypothesis: I want to assume the site is unacceptable (dirty) v until proven otherwise. (Assume the true median >= action level.) Specify False Rejection Rate (alpha) and Action Level: I want at least 95.0 % confidence that I will conclude the site is unacceptable (dirty if the true median is a cherup the action level for the site is unacceptable | | | |
| Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be Bq/kg. (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 12 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units Minimum Number of Samples in Survey 12 Minimum Number of Samples in Survey 12 Exercise the measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units 15 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation Investing to the status survey investigation | Specify Lower Bound of Gray Region and False Acceptance Rate (beta): If the true median is 2.5 Bq/kg (that is, 2.5 Bq/kg below the action level) then I want no more than a 5.0 % chance of incorrectly accepting the null hypothesis that the site is unacceptable (true median >= action level). I want to use ordinary I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 Bq/kg. | | | |
| Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 15 確定 取満 套用(A) 説明 | Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be Bq/kg. (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 12 EMC Calculations | | | |
| Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 15 確定 取消 套用(A) 說明 | Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | | | |
| 確定 取消 套用(A) 說明 | Minimum Number of Samples in Survey 12 + 20 % 15 | | | |
| | 確定取消 | Ħ(A) | 說明 | 1 |

圖 25 「比較平均值與某個限制值」相關參數設定視窗

| erage vs. Reference Average Sample Placement Costs Data Analysis Analytes | |
|---|--|
| cannot a assume the data will be normally distributed For Help, highlight an item and press F1 | |
| | |
| want to assess for building surfaces. | |
| | |
| These design parameters apply to Cs-137 | |
| Specify Null Hypothesis: | |
| I want to assume the site is unacceptable (dirty) until proven otherwise. | |
| (Assume the true median difference >= action level.) | |
| Specify False Rejection Rate (alpha) and Action Level: | |
| if the true site median is 5.00 Rol/ca above the true reference median | |
| Speciful Lower Round of Grau Berinn and False Accentance Bate (heta) | |
| If the true site median is only 3 Bo/kn above the true reference median | |
| then I want no more than a 5.0 % chance of incorrectly accenting the null | |
| that the site is unaccentable (true median difference $s = 5$ Bo/kg) | |
| and the site is diracceptable (add median directice >= 5 bq/kg). | |
| want to use Ordinary 👻 sampling | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is 1.2 Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is I.2 Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation | |
| I want to use ordinary or sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | |
| I want to use ordinary ord | |
| I want to use ordinary ord | |
| I want to use ordinary ord | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is I.2 Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 EMC Calculations Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is I.2 Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 EMC Calculations Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | |
| I want to use ordinary or sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | |
| I want to use ordinary or sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units Inimum Number of Samples in Survey Unit 13 + 20 % 16 Inimum Number of Samples in Section 2.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units | |
| I want to use ordinary or sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) (Dptional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 EMC Calculations Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1, 2 and 3 survey units 13 + 20 % 16 tinimum Number of Samples in Survey Unit 13 + 20 % 16 16 | |
| I want to use ordinary sampling. The estimated standard deviation due to sampling and analytical variability is Investigation Level (IL): 5 Bq/kg. I expect the mean to be (Optional) Minimum Number of Samples for Cs-137: 13 EMC Calculations Investigation Level: See MARSSIM Section 5.5.2.6 and Table 5.8 for example final status survey investigation levels for direct measurements and scan surveys in Class 1. 2 and 3 survey units 13 + 20 % 16 tinimum Number of Samples in Survey Unit 13 + 20 % 16 16 tinimum Number of Samples in Reference Area 13 16 | |

圖 26 「比較平均值與參考區域平均值」相關參數設定視窗



圖 27 「預設取樣數」相關參數設定視窗

| Sample Information × |
|---|
| Type: Manual Sample X: 429.4373 LX: 893.0904 Y: 190.2707 LY: 405.8014 Z: 0.0000 Surface: Floor |
| Value: All Values >>> Historical Label Position |
| Composite ID: 0 |
| User-Defined Parameters Parameter: Value: |
| OK |

圖 28 「取樣點資訊」相關參數設定視窗

(二)、 輸入數據品質目標(DQO)以計算樣本數

VSP 中計算樣本數所需的輸入產出自偵檢規劃階段中的 DQO 程序。 DQO 程序透過統計科學原理,確保計算所得之樣本數能提供足夠的數據可 信度。VSP 運算所需樣本數時所需的輸入包含虛無假設、可接受的型 I 錯 誤率、型 II 錯誤率、預估標準差、灰色區間,以及行動水平(Action Level) 等資訊。VSP 的 MARSSIM 版本中,取樣目標若選擇「比較平均值與某個 限制值」或「比較平均值與參考區域平均值」,代表程式中會應用統計原理 來計算需要的樣本數。使用者應將 DQO 程序產出之型 I 錯誤率、型 II 錯誤 率、行動水平或 DCGL 資料、從先前偵檢所得之預估標準差,以及依照 MARSSIM 手冊計算所得的灰色區間範圍等資訊,透過 VSP 取樣目標視窗 畫面輸入。VSP 程式會依據使用者輸入的資料,計算達成所輸入之可容忍 錯誤率所需的樣本數,並且,當取樣完成並將取樣結果資料輸入 VSP 後, VSP 程式會根據 DQO 輸入值進行取樣結果的統計檢定,得出結論。以下將 簡要說明以上所提及之輸入項目,: 1. 統計檢定簡介及相關參數

統計檢定會建立兩種對立的假設,分別是虛無假設(Null Hypothesis),以H₀符號表之及對立假設(Alternative Hypothesis),以H₁ 符號表之。虛無假設又可說是預設狀況,必須有足夠的數據支持,才 能否定虛無假設(等同接受對立假設)。也就是說,當數據不足以否定 虛無假設時,便代表接受虛無假設所假設之狀況,反之,則代表接受 對立假設。

以核能電廠輻射偵檢為例,虛無假設和對立假設分別預設如下:

H₀: 偵檢區域的殘餘輻射高於規定限值

H₁: 偵檢區域的殘餘輻射不高於規定限值

根據取樣結果做統計檢定會有兩個可能的結果,一為根據數據無 法否定虛無假設(H₀),代表檢定結果為:偵檢區域的殘餘輻射高於規 定限值,也就是取樣的偵檢區域不符合外釋規定,後續須進行除污等 活動;另一則是根據數據可以否定虛無假設,接受對立假設(H₁),也 就是檢定結果為:偵檢區域的殘餘輻射不高於規定限值,符合外釋法 規之要求。

然而,因取樣與實際真實的情況,必定有所差異,根據取樣做出的結論,即無法避免會有一定的機率會產生決策錯誤。統計檢定定義 了兩種可能的決策錯誤,分別稱為型 I 錯誤及型 II 錯誤,說明如下:

型 I 錯誤:取樣對象(又稱母體)實際的情況為虛無假設所假設的 情況,但根據取樣結果做出的結論卻是接受對立假設。型 I 錯誤的機 率以α符號表之。

型 II 錯誤:取樣對象實際的情況為對立假設所假設的情況,但根 據取樣結果做出的結論卻是接受虛無假設。型 II 錯誤的機率以β符

42

號表之。

以核能電廠輻射偵檢為例,型I錯誤代表偵檢區域實際的殘餘輻 射高於規定限值,但根據取樣結果,卻做出殘餘輻射符合規定限值的 結論;型II錯誤代表偵檢區域實際的殘餘輻射不高於規定限值,但根 據取樣結果,卻做出殘餘輻射不符合規定限值的結論。因此,當發生 型I錯誤時,所做出之決策,會造成民眾曝露於超過法規限值的環境, 而發生型II錯誤時,所做出之決策,則可能會使電廠增加不必要的改 善除污支出。

型 I 錯誤和型 II 錯誤發生的機率必定存在,所謂的數據品質,代 表透過控制型 I 錯誤率和型 II 錯誤率,以確保數據以及決策的可信 度。然而,為達到越小的型 I 錯誤率和型 II 錯誤率,就必須取得越大 的樣本數,成本也就愈高。因此,取樣設計規劃負責人,必須在決策 可信度及取樣預算間取得平衡。

根據 DQO 程序之指引制定核能電廠除役輻射偵檢計畫時,DQO 第六步驟應產出虛無假設、可接受的型 I 錯誤率、可接受的型 II 錯 誤、灰色區間的寬度、以及標準差的估計值等。VSP 根據虛無假設、 灰色區間的寬度,以及預估標準差計算要達到可接受的型 I 錯誤率和 型 II 錯誤率所需最少樣本數,亦可讓使用者依據需要增加一定比例 的樣本數(參考圖 25 及圖 26)。VSP 提供介面協助使用者預估取樣和 分析成本,若所需的成本超過預算,取樣計畫可能需增加預算或提高 可接受的決策錯誤率。

2. 標準差

計算樣本數的公式中,需要使用到取樣對象(又稱母體)之標準差。 標準差是衡量數據離散度之統計量,使用者可透過過去取樣結果或專 家判斷輸入預測之標準差值。根據 MARSSIM 手冊,當取樣目的為「

43

3. 行動水平及 DCGL

MARSSIM 手冊中,行動水平(Action Level)的定義為某數值,決 策者將根據取樣結果是否高過行動水平來決定是否要採取某行動或 做出某決定,譬如偵檢單元是否要做進一步的調查。

導出濃度指引水平(DCGL, Derived Concentration Guideline Level) 的定義為,依據法規對除役核電廠殘餘輻射對個人造成輻射劑量之限 值所導出之泥土或建築物所殘留放射性物質活度之限值。若殘餘放射 性物質只包含一種核種,可以直接比較取樣結果和 DCGL 值,若殘餘 放射性物質包含兩種以上的核種,則須透過計算取樣結果各放射性物 質活度的 SOF(Sum of Fractions)是否超過 1,來判斷是否符合法規, SOF 的計算方法於本計畫 109 年度之期末報告中有詳細說明。VSP 中 提供介面讓使用者選擇一次分析一種放射性核種(One Analyte at a Time)或一次分析所有的核種(The Unity Rule)的模式。

當污染大致均勻分布於偵檢單元時,採用之 DCGL 用 DCGLw(用 於較大區域及統計檢定之 DCGL 值,W 代表 Wide)表示,代表為運用 於較大範圍(如一偵檢單元)的 DCGL 值。而當有小區域範圍的活度高 於 DCGLw時,根據 MARSSIM 手冊指引,可進一步計算 DCGL_{EMC}(用 於有較高活度之小區域的 DCGL 值,EMC 代表 Elevated Mearurement Comparison),並將小區域內的活度和 DCGL_{EMC} 比較,以判斷是否符 合除役標準及是否需要進行除污。DCGL_{EMC} 比較,以判斷是否符 方法和區域範圍的大小以及 DCGLw 值相關。VSP 中也有提供較高量 測值比較(EMC, Elevated Mearurement Comparison)的區域面積因子輸 入介面,協助使用者或決策者進行小區域有較高活度時的 EMC 評估。

4. 灰色區間(Gray Region)

在本計畫 108 年的成果中「DQO 指引中文摘譯」中,有對灰色

區間的介紹。根據 DQO 指引內容, 灰色區間和虛無假設區域在行動 閥值(也就是規定限值)的不同側(參考圖 29), 當實際參數位於灰色區 間時, 若做出決策錯誤代表發生了型 II 錯誤。核電廠除役輻射偵檢的 預設虛無假設設定中,型 II 錯誤代表作出偵檢區域實際的殘餘輻射 不高於規定限值, 但根據取樣結果, 卻做出殘餘輻射不符合規定限值 結論之錯誤決策。

灰色區間代表的意義為當參數實際值在此區域內時決策錯誤的 後果影響相對較小。灰色區間的一側為行動閥值,另一側在 MARSSIM 手冊中稱為灰色區間左邊邊界(LBGR, Lower Bound of the Gray Region)。在計算所需最少樣本數時,用到的計算公式有兩個預 定,一為當實際參數數值等於行動閥值時型 I 錯誤發生率為所設定的 α值,另一為當實際參數數值 LBGR 時,型 II 錯誤發生率為所設定的 β值。圖 29 在行動閥值左邊的線條數值代表發生型 II 錯誤的機率, 我們可以看到當實際參數值小於 LBGR 時,發型 II 錯誤的機率會小 於β,但在灰色區間我們接受較大的型 II 錯誤率,因為當實際參數值 小於行動閥值但卻非常接近時,做出殘餘輻射超過行動閥值(或稱規 定限值)的決策,是可以被接受的。

灰色區間越大,代表可以接受較大型 II 錯誤的區域越大,所需的 樣本數越小。反之,灰色區間越小,代表可以接受較大型 II 錯誤的區 域越小,所需的樣本數越大。此外,可接受的型 I 錯誤率(α)和型 II 錯 誤率(β)越小,所需的樣本數越大,反之,則所需的樣本數越小。

MARSSIM 中訂定了灰色區間範圍的設定步驟如下

- 1) 一開始設定 LBGR 為 DCGLw 的一半,灰色區間的寬度用 Δ 表示, Δ =(DCGLw-LBGR)計算 Δ/σ 。
- 2) 若 Δ/σ 在 1 到 3 之間,維持 LBGR 值。

3) 若 Δ/σ 小於 1,則將 LBGR 降低,直到 Δ/σ=1 或 LBGR=0。



4) Δ/σ 大於 3 , 則將 LBGR 提高 , 直到 Δ/σ 小於或等於 3 。

圖 29 灰色區間示意圖

(三)、 選擇取樣位置模式

這裡所說的取樣設計代表取樣位置的設計。VSP 允許根據機率取樣及 判斷式取樣。機率取樣代表應用機率理論和隨機選擇進行取樣,判斷式取 樣則代表參考專家意見決定取樣點。VSP 提供數種取樣位置模式選擇,包 含簡單隨機取樣、系統性網格採樣(正方形、三角形或長方形)、網格內隨機 取樣,以及網格內取樣(三角形或長方形),如圖 30~ 圖 36 所示。



圖 30 取樣位置模式選擇視窗(選擇簡單隨機取樣)



圖 31 系統性網格採樣-正方形



圖 32 系統性網格採樣-三角形



圖 33 系統性網格採樣-長方形





圖 35 網格內取樣-三角形



圖 36 網格內取樣-長方形

(四)、 假設範例 - 核二廠運用 VSP 進行取樣設計

核二廠除役計畫[5]第四章主題為:廠址與設施之輻射特性調查及評估 結果。該章內容中說明核二廠輻射特性調查作業將輻射調查範圍分為數類 的偵檢包(Survey Package),其中,可能受輻射影響及不受輻射影響的廠址 環境歸類為R類偵檢包,共分為14個偵檢包,涵蓋廠房外圍土地、水體、 道路等區域,參考圖八。為示範如何運用 VSP 進行電廠最終狀態偵檢之實 作,我們以生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域(R00400)作為取樣區域之 範例。此區域於特性偵檢時土樣取6樣,次表土樣取6樣,分析結果顯示, 表土4、次表土4皆測得 Cs-137,測值範圍介於偵檢設備之最小可測量(MDA) ~3.58 Bq/kg,於該區土地上直接量測劑量率所得之平均劑量率與標準差則 分別為 0.053 μSv/h 及 0.012 μSv/h。

我們參考核二除役計畫書生水池及氣渦輪機房等建物周圍區域 (R00400)作為運用 VSP 進行最終狀態偵檢取樣設計之範例。由於核二廠尚 未進入除役階段,符合除役規範之各區域核種活度限值(DCGL)亦尚未完成 計算,因此,運用 VSP 進行取樣規劃所需之活度限值及標準差等資訊,我 們僅能先使用假設值。此範例之取樣目標相關設定如下:

- 1) 假設根據法規所計算出來 R00400 的 C-137 活度限值(DCGL)為 5
 Bq/kg,標準差為 1.2 Bq/kg。
- 2) 設定可接受的型 I 錯誤率(α)和型 II 錯誤(β)皆為 5%。
- 3) 根據 MARSSIM 手冊指引,設定灰色區域下限為 2.5 Bq/kg(代表當 實際平均值或中位數值為 2.5 Bq/kg 時,發生型 II 錯誤的機率為所 設定的 5%)。
- 4) 選擇三角形系統性網格採樣。

完成以上設定後,VSP 計算出要達成我們所需之數據品質的最少取樣 數為12個樣本,為增加檢定力,通常會根據最少取樣數再增加一定比例的 取樣數,我們於 VSP 取樣目的視窗中設定增加 20%數量的樣本數,計算結 果為15個樣本。但 VSP 實際在規劃取樣點時,,同樣的設定因為起始點 為隨機模式,每次重新規劃時,取樣點位置和數目可能會有些許不同。我 們的假設範例中,VSP 實際規劃出的建議樣本數為17,我們將取樣點標籤 設為 L1~L17, VSP 呈現取樣點位置和標籤如圖 37, 取樣點座標資訊如圖 38。



圖 37 VSP 視覺化呈現取樣點位置

| Visual Sample Plan - [NPP2.VS File Map Edit Sampling | P] Goola To | ols Options | Room Vis | Window | Halp | | - | |
|--|----------------|-------------|----------|---------------|-------|------------|-------------|-------------|
| | | | | 9 9 9 3 | | ₩? | | |
| Layer Control | Sample | s | | | | | | |
| Destings | Row | X Coord | Y Coord | Label | Value | Type | Historical | Sample Ar |
| E Background Images | 1 | 198 9869 | 90 7087 | 11 | | Systematic | | Area 4 |
| | 2 | 305 2718 | 90 7087 | 12 | | Systematic | | Area 4 |
| ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ ₩ | 3 | 145 8445 | 182 7541 | 13 | | Systematic | | Area 4 |
| | 4 | 252 1294 | 182 7541 | 14 | | Systematic | | Area 4 |
| Default Map | 5 | 358 4142 | 182 7541 | 15 | | Systematic | | Area 4 |
| Derault Layer | 6 | 464 6990 | 182 7541 | 16 | | Systematic | | Area 4 |
| Default Man | 7 | 92 7021 | 274 7994 | 17 | | Systematic | | Area 4 |
| | 8 | 198 9869 | 274 7994 | 18 | | Systematic | | Area 4 |
| Miea 4 | 9 | 305 2718 | 274 7994 | 19 | | Systematic | | Area 4 |
| Tem Settillas | 10 | 411 5566 | 274 7994 | 110 | | Systematic | | Area 4 |
| | 11 | 39 5597 | 366 8448 | 111 | | Systematic | | Area 4 |
| | 12 | 145 8445 | 366 8448 | 112 | | Systematic | | Area 4 |
| | 13 | 252 1294 | 366 8448 | 113 | | Systematic | | Area 4 |
| | 14 | 358 4142 | 366 8448 | 114 | | Systematic | | Area 4 |
| | 15 | 92 7021 | 458 8902 | 115 | | Systematic | | Area 4 |
| | 16 | 198 9869 | 458,8902 | 116 | | Systematic | | Area 4 |
| | 17 | 305 2718 | 458 8902 | 117 | | Systematic | | Area 4 |
| | | 303.2710 | 450.0502 | 217 | | Systematic | 1 | Alcar |
| | | | | | | | | |
| | | | | | | | | |
| | | | | | | | | |
| | | | | | | | | |
| | | | | | | | | |
| | | | | | | | | |
| < > | < | | | | | | | > |
| For Help, press F1 | | | | | | | X=143.44 Y= | =1031.95 Fe |

圖 38 取樣點座標資訊表格

四、 評估取樣計畫

(一)、 成本估算

VSP 軟體中也提供了簡易的成本估算介面如圖 39,根據 VSP 計算出 來的樣本數及使用者輸入之預估固定費用和變動費用(每一樣本蒐集和分 析費),估算總成本。若估算出來的總成本超過預算,可以透過調整數據品 質目標(DQO)來降低樣本數及成本。

| - |
|---|
| 🍎 True Average vs. Fixed Threshold |
| |
| Average vs. Fixed Threshold Sample Placement Costs Data Analysis Analytes |
| |
| |
| Total Area to Sample: 146745.42 Feet^2 |
| - Sampling Cost Structure for Each Analyter |
| Sampling Cost Structure for Each Analyte. |
| Fixed Planning and Validation Cost: \$ 1000.00 |
| |
| Field Collection Cost per Sample: \$ 100.00 |
| |
| Analytical Lost per Analysis: \$ 400.00 |
| Total Cost for 15 'Co 127' Samples: \$9 500.00 |
| Total Cost for 15 Cs-157 Samples: \$6,500.00 |
| |
| |
| |

圖 39 成本估算視窗介面

(二)、 取樣設計效能圖

目前最新版的 VSP 提供 3 種可以顯示取樣設計效能的圖,取樣 設計效能圖之 X 軸代表參數實際的平均值或中位數,Y 軸則分別代 表不同定義的發生機率值;灰色區域代表可接受較大型 II 錯誤的區 域;紅色垂直線代表行動水平或 DCGL 值;綠色垂直線和紅色垂直線 條距離為預設標準差。為擷取 VSP 中取樣設計效能圖,我們延續前 面所敘述的核二廠最終偵檢範例,設定參數(取樣分析放射性元素)為 Cs-137。在取樣設計效能圖中可以看到 VSP 依據 MARSSIM 手冊指 引設計,當取樣目的為「比較平均值與某個限制值」時採用符號檢定 (Sign Test),而當取樣目的為「比較平均值與參考區域平均值」時則採 用 WRS 檢定(WRS Test)。在選擇取樣目的並輸入數據品質目標(DQO) 後,即可查看 VSP 提供的 3 種取樣設計效能圖,說明如下:

1. DQO 指引描述之決策效能目標圖

根據 DQO 指引,決策效能目標圖(DPGD, Decision Performance Goal Diagram)為取樣統計檢定結果等於或超過門檻值(threshold)之機 率圖(也就是接受虛無假設,檢定結果為不符合法規限值的機率)。

DQO 指引描述之決策效能目標圖也是 VSP 預設顯示之決策效能目標 圖,其 X 軸代表參數實際的平均值或中位數, Y 軸代表取樣統計檢定 結果為判斷參數的平均值或中位數為超過行動水平的機率。圖 40 及 圖 41 分別為取樣目的為「比較平均值與某個限制值」和「比較平均 值與參考區域平均值」的決策效能目標圖。



圖 40 決策效能目標圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值)



圖 41 決策效能目標圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值)

2. 決策正確機率圖

VSP除了 DQO 指引所描述的決策效能圖,亦可繪製「決策正確 機率圖」,決策正確機率圖代表當參數實際平均值或中位數低於行動 水平或 DCGL 值時,取樣統計檢定結果正確的判定參數的平均值或 中位數低於行動水平或 DCGL 值,以及當參數實際平均值或中位數 高於行動水平或 DCGL 值時,取樣統計檢定結果正確的判定參數的 平均值或中位數高於行動水平或 DCGL 值的機率,也就是取樣後統 計檢定結果判定正確的機率。取樣目的為「比較平均值與某個限制值」 以及取樣目的為「比較平均值與參考區域平均值」之決策正確機率圖 分別如圖 42 和圖 43。



圖 42 決策正確機率圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值)



圖 43 決策正確機率圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值) 3. 預期檢定力(Prospective Power)圖

檢定力的定義為統計結果判定虛無假設為錯的機率,也就是拒絕 虛無假設,接受對立假設的機率,以除役核電廠輻射偵檢案例來說就 是檢定結果判定偵檢單元符合外釋標準的機率。圖 44 和圖 45 分別 為取樣目的為「比較平均值與某個限制值」以及取樣目的為「比較平 均值與參考區域平均值」之預期檢定力圖。所謂預期檢定力,代表使 用取樣前預估之標準差繪製之檢定力圖,待取樣完成,並將取樣結果 值輸入後,VSP 會提供回溯檢定力(Retrospective Power)圖。回溯檢定 力圖和預期檢定力差異在於回溯檢定力圖使用取樣結果數據的標準 差來繪製。VSP 可同時顯示預期檢定力和回溯檢定力圖,用以判斷取 樣結果之檢定力是否足夠。圖 46 為預期檢定力/回溯檢定力圖,此圖 顯示檢定力足夠。


圖 44 預期檢定力圖(取樣目的:比較平均值與某個限制值)



圖 45 預期檢定力圖(取樣目的:比較平均值與參考區域平均值)



圖 46 預期檢定力/回溯檢定力圖

(三)、 VSP 分析結果報告

VSP 針對一取樣區域之取樣設計的分析報表是 VSP 最有價值的產出之一。VSP 報告內容包含以下資料:

- 取樣目的(Sampling Objective)
- 取樣設計摘要(參考圖 47)
- 統計檢定的假定(Assumptions of the Desigh)
- 計算樣本數的公式
- 取樣點座標列表
- 顯示各取樣點位置及標籤之取樣區域圖
- 取樣設計效能圖
- 敏感度分析(分析可接受決策錯誤率跟最少需要樣本數的關聯)
- 取樣結果統計摘要(需輸入取樣結果值,參考圖 48)
- 取樣結果統計圖(需輸入取樣結果值,參考圖 49)
- 取樣資料統計檢定結果(需輸入取樣結果值,參考圖 50)

| SUMMARY OF | SAMPLING DESIGN |
|---|---|
| Primary Objective of Design | Compare a site mean or median to a fixed threshold |
| Type of Sampling Design | Nonparametric |
| Sample Placement (Location) in the Field | Systematic with a random start location |
| Working (Null) Hypothesis | The median(mean) value at the site exceeds the threshold |
| Formula for calculating number of sampling locations | Sign Test - MARSSIM version |
| Calculated number of samples | 12 |
| Number of samples adjusted for EMC | 12 |
| Number of samples with MARSSIM Overage | 15 |
| Number of samples on map ^a | 16 |
| Number of selected sample areas ^b | 1 |
| Specified sampling area ° | 146745.42 ft ² |
| Size of grid / Area of grid cell ^d | 106.285 feet / 9783.03 ft ² |
| Grid pattern | Triangular |

圖 47 取樣設計摘要

| SUMMARY STATISTICS for Cs-137 | | | | | | | | |
|-------------------------------|-------------|---------|--------|---------|-----|------|-----|-----|
| | I | า | | 15 | | | | |
| | М | in | | | 0.8 | | | |
| | M | ax | | | | 4.1 | | |
| | Ra | nge | | 3.3 | | | | |
| | Me | ean | | 2.0533 | | | | |
| | Me | lian | | 2.1 | | | | |
| | Vari | ance | | 0.88695 | | | | |
| | Std | Dev | | 0.94178 | | | | |
| | Std | Error | | 0.24317 | | | | |
| Skewness | | | 1.0542 | | | | | |
| Inte | erquar | tile Ra | nge | 1.1 | | | | |
| | Percentiles | | | | | | | |
| 1% | 5% | 10% | 25% | 50% | 75% | 90% | 95% | 99% |
| 0.8 | 0.8 | 0.98 | 1.3 | 2.1 | 2.4 | 3.98 | 4.1 | 4.1 |

圖 48 取樣結果統計摘要



圖 49 取樣結果統計圖(長條圖、箱型圖,以及分位數-分位數圖)

Tests for Cs-137 Summary of Statistical Tests

The following table summarizes the data analysis results and is comparable to MARSSIM Table 8.2. This analysis applies to the discrete sample results (see MARSSIM 8.2.5).

| All Measurements < DCGL _W | Average > DCGL _W | Sign Test Result | Conclusion |
|---|--------------------------------|------------------|-------------------------------------|
| Yes | No | N/A | Survey Unit meets release criterion |

圖 50 取樣資料統計檢定結果

伍、 VSP 軟體應用於除役電廠輻射偵檢之實例

有關 VSP 軟體應用於除役電廠輻射偵檢之實例,我們主要參考的文件 是美國錫安核電廠(Zion Nuclear Power Plant)之「最終狀態輻射偵檢偵檢包 發展」說明文件以及「最終輻射偵檢報告(偵檢單元編號 10208D)」。美國錫 安核電廠建設於 1968 年,為壓水式核能發電廠,總共有兩個機組-1 號和 2 號機,兩個機組皆於 1998 年 2 月 13 日永久停機,於 2011 年 11 月 2 日至 2013 年 10 月進行電廠輻射初始偵檢調查。其最終狀態偵檢調查於 2016 年 3 月開始進行,2020 年 4 月完成最終狀態偵檢第三階段更新版之報告,陳 請 NRC 審查。

在進行最終狀態偵檢各偵檢單元設計前,電廠應先產出相關指引。以 美國錫安核電廠為例,於2015年10月產出了「偵檢單元分級程序(Survey Unit Classification)」說明文件以及「最終輻射偵檢之獨立與控制(Isolation and Control for Fianl Radiation Survey)」說明文件,於2016年產出了「最終 狀態輻射偵檢包發展(Final Radiation Survey Package Development)」的說明 文件。「偵檢單元分級程序」說明最終輻射偵檢區域分級的程序;「最終輻 射偵檢之獨立與管控」說明進行最終輻射偵檢前,應確認及掌控最終輻射 偵檢所應具備的資料及設備的程序;「最終狀態輻射偵檢包發展」則是說明, 當完成區域分級及所有最終輻射偵檢規劃與執行所需要的資料和設備都完 成後,發展偵檢包之最終輻射偵檢計畫之程序。VSP 軟體可用於協助偵檢

63

規劃,錫安核電廠最終狀態輻射偵檢偵檢包發展說明文件中提及如何運用 VSP軟體進行取樣數之計算、取樣點之規劃,以及檢定力圖表之產出。

一、 偵檢單元最終偵檢計畫內容之規範

錫安核電廠「最終狀態輻射偵檢偵檢包發展」說明文件提供有關最終 輻射偵檢(Final Radiation Survey, FRS)之規劃、執行和評估之指引。該文件 中所指最終輻射偵檢(FRS)包含最終狀態偵檢(Final Status Survey, FSS)和源 項偵檢(Source Term Survey, STS)。FSS 目的是要證明泥土、埋管和地下水 的殘餘輻射濃度符合廠址的倒出濃度指引水平(Derived Concentration Guideline Levels, DCGL);STS 則是要證明建築物地下室、內建管路殘餘輻 射的存量符合 10 CFR 20.1402. 所規範的劑量標準。以下摘述「最終狀態輻 射偵檢偵檢包發展」說明文件中與取樣設計和統計分析有關的內容:

(一)、 最終輻射偵檢編號

用9個代碼來描述偵檢包:

- 1. 第一個代碼:描述是屬於開放土地(L)、設備結構(B),或系統(S)。
- 第二個代碼:描述目前的區域分級(1~5,1~3 為受影響區域區域分級, 4為不受影響區域,5為未指定)。
- 3. 第三到第五碼為偵檢區域代號。
- 4. 第六到第七碼為偵檢單元代號。
- 5. 第八個代碼為英文字母,可使偵檢單元再細分為更小的單元。
- 6. 第九個代碼,區分是屬於最終輻射偵檢(F)或源項偵檢(S)。

(二)、 最終輻射偵檢計畫之建立

獨立預備每一個偵檢單元個別之最終輻射偵檢計畫。每一個最終輻射偵檢(FRS)包可包含一或多個最終輻射偵檢取樣計畫。

 依序指定最終輻射偵檢(FRS)下的每一個最終輻射偵檢計畫的編號(e.g. 計畫 #1,計畫#2...)。

- 3. 一個最終輻射偵檢計畫通常會包含的項目:
 - 1) 最終輻射偵檢計畫封面表單(參考圖 51)
 - 區域預備完成確認和管控清單(Area Turnover and Control Checklist)。(來自「最終輻射偵檢之獨立與控制」文件,參考 圖 52)
 - 區域預備完成前確認(Pre-Turnover Walkdown)(來自「最終輻射 (檢之獨立與控制」文件,參考圖 53)。
 - 4) 偵檢單元區域分級基本資料概要。
 - 6) 偵檢單元分級工作表(來自「偵檢單元分級程序」文件,參考 圖 54)。
 - 6) 最終輻射偵檢數據品質目標(DQOs)和偵檢設計。(參考圖 55)。
 - 7) 偵檢設備。
 - 8) 現場日誌。
 - 9) 取樣/量測確認及座標。
 - 10) 掃描確認及座標(掃描區域的四個角座標)。
 - 11) 偵檢區域之照片、地圖,和/或繪圖。
 - 12) 最終輻射偵檢現場量測和分析結果。
- 4. 任何和偵檢單元相關之資料(如:照片、地圖、樓層圖...)
- 5. 提供每一個直接量測和/或樣本獨一的編號。
- (三)、 最終輻射偵檢計畫封面表單

- 1. 開啟最終輻射偵檢計畫封面表單(參考圖 51)。
- 2. 完成最終輻射偵檢計畫封面表單一般資訊部分。

 透過最終輻射偵檢計畫封面表單之[最終輻射偵檢預備]部分,評估偵檢 單元是否已完成預備。

4. 權責輻射工程師(Radiological Engineer, RE)確認偵檢單元預備完成後在 封面表單簽名。

(四)、 最終輻射偵檢數據品質目標(DQOs)及偵檢設計

- 1. 開啟最終輻射偵檢數據品質目標(DQOs)及偵檢設計表單(參考圖 55)。
- 2. 陳述問題:包含問題內容、持有人、規劃團隊、時程,以及資源。
- 3. 確認要做的決定:包含主要研究問題、行動選項,以及決策。
- 4. 確認做出決策所需輸入資訊:
 - 需要的資訊。
 - 2) 歷史資料。
 - 3) 關注的核種(Radionuclides of Concern, ROC)
 - 4) 釋出標準(每個核種的 DCGL)。
 - 5) 總結所有要用於最終輻射偵檢之輻射偵檢數據。
 - 描述行動水平(Action Level)以及當狀況達到行動水平時要採 取的行動。
 - 7) 建立取樣計畫必要的掃描涵蓋範圍以及選擇之基礎。
 - 8) 根據品質保證計畫規劃(Quality Assurance Project Plan, QAPP) 確認及文件化品質管控(Quality Control, QC)的類別和頻率。

- 9) 確認用於物質樣本分析的類別。
- 建立固定和掃描最小偵測濃度 (Minimum Detectable Concentration, MDC)計算方法及公式。
- 建立符合取樣計畫數據品質所需的 MDCs。
- 指定用於獲取現場量測所需的輻射儀器並記錄針對特定行動
 水平的固定和掃描 MDC。
- 建立樣本濕度內容物的標準,考量低能量粒子的偵測敏感度。
- (五)、 定義研究界線
- 1. 產出偵檢單元地圖。
- 2. 描述偵檢單元邊界、情況,以及方向和地標。
- 描述暫時的界定,包含執行偵檢的預期時程、預期天氣以及任何限制。
- 4. 描述執行偵檢時可能會有的實際限制。
- (六)、 建立決策規則
- (七)、 訂定可接受的最大決策錯誤率
- 1. 說明虛無假設。
- 訂定可接受的型Ⅰ錯誤率和型Ⅱ錯誤率。
- 3. 建立灰色區間。
- (八)、 優化設計
- 1. 確認適合的統計檢定。
- 2. 計算相對位移(Δ/σ),如有需要根據 MARSSIM 指引調整灰色區間。
- 3. 確認所需的樣本數。
- 4. 確保掃描使用之儀器和偵檢器對關注的核種(Radionuclides of Concern,

ROC)或代理核種的 MDC 小於 DCGLw。若掃描 MDC 大於 DCGLw,可能 要根據 MARSSIM 調整樣本數。

5. 計算格點距離。(註:電腦軟體如 VSP(Visual Sample Plan)可以用於規劃 取樣點的位置)。

 產出偵檢地圖。(註:每一個取樣計畫應應運用電腦軟體[如 VSP]產出偵 檢單元的邊界以及偵檢取樣位置)。

 根據品質保證計畫規劃(QAPP),隨機指定系統性量測的5%或取樣位置, 進行重複量測和/或分別樣本分析。

8. 指定是否要進行任何偏差性取樣(Biased Samples),以及取樣的原因。

FRS Sample Plan Cover Sheet

Information Use

GENERAL SECTION

| Survey Area No.: | | Survey Unit No.: | | | | | |
|--|--|--|--|--|--|--|--|
| Survey Unit Name: | Survey Unit Name: | | | | | | |
| Survey Unit Type: | | | | | | | |
| Open Land | Structural Interio | r 🔄 - Structural Exterior | System | | | | |
| Classification: | - Class 3 | - Class 2 | Class 1 | | | | |
| PREPARATION FO | R FINAL STATUS SURV | VEY ACTIVITIES | | | | | |
| (a checked box signifi | es an affirmative response) | | | | | | |
| Reference Gri | d and/or Reference Coordin | ates have been established (if ap | opropriate). | | | | |
| A walk-down form complete Survey" is inc | has been performed of the s d in accordance with ZS-L7 luded with this Sample Plan | urvey unit and a completed <i>"Pr</i> I-300-001-003, <i>"Isolation and G</i> I. | e-Turnover Walk-Down" Control for Final Radiation | | | | |
| "Area Turnov "Isolation and and issues that | er and Control Checklist" co l <i>Control for Final Radiatio</i> t were identified have been n | ompleted in accordance with ZS <i>n Survey</i> " is included with this resolved. | -LT-300-001-003, Sample Plan and all items | | | | |
| All preparation Radiation Sur | n activities (clear vegetation veys have been completed. | , erect scaffolding, etc.) necessa | ary to perform Final | | | | |
| Area has been | cleared of all non-essential | materials and equipment. | | | | | |
| Area has been | posted and access control n | neasures have been implemented | d. | | | | |
| ALL ABOVE ACT | ONS ARE COMPLETE A FRS ACTIVITIES (signa | ND SURVEY UNIT IS PREPA ture signifies affirmative respor | RED AND READY FOR ase) | | | | |
| Radiolo | gical Engineer (Print Name | /Signature) | Date | | | | |
| SURVEY PACKAG | E APPROVAL | | | | | | |
| THIS SAMPLE PLAN HAS BEEN COMPLETED, INDEPENDENTLY REVIEWED AND APPROVED FOR IMPLEMENTATION. | | | | | | | |

| Prepared: | | | Date: | |
|--------------|--|-------------|-------|--|
| | (Print Name) | (signature) | | |
| Peer Review: | | | Date: | |
| | (Print Name) | (signature) | | |
| Approved: | | | Date: | |
| | Characterization/License Termination Manager (Print Name) | (signature) | | |

圖 51 偵檢單元最終輻射偵檢計畫封面

| | AREA | TURNOVER AND C CHECKLIST | ONTROL | Ir | Revision 2 formation Use | |
|--|---|---|---------------------------------|--|------------------------------------|--------|
| AREA TURNOVER | R: | | | | | |
| Survey Area No.: | | Survey | Unit No.: | | | |
| Description: | | | | | | |
| Survey Unit Type: | Open Land | St | ructure 🗌 | | System 🗌 | |
| Classification: | Class 3 | Class 2 |] (| Class 1 | | |
| Survey Unit Area: | | _ m ² In | nitiation Date | : | | |
| COMPLETION OF | DECOMMISSIO | ONING AND/OR REM | MEDIATIO | N ACTIVITIES | S: | |
| Preparations for FF | RS: (Completed By | Decommissioning G | roup) | (checked box indi | cates an affirmative resp | ponse) |
| All decommission (e.g., sub-surface) | oning activities in t e systems, electrical | the area are complete, l components, etc.) tha | including rea t could interf | moval, as neces ere with FRS | sary, of items | |
| All decommission otherwise affect radioactive mate | ning activities in a it are either comple rial to the area. | reas either adjacent to ete or are deemed not | the survey us to have any s | nit to be isolated reasonable poter | l or that could ntial to spread | |
| 3) All tools and equ | ipment not needed | for FRS are removed. | | | | |
| 4) Housekeeping ha | as occurred and is s | atisfactory for perform | nance for FRS | S | | |
| 5) All transit paths routed where pra | to or through the a actical | area, except those requ | uired to suppo | ort FRS, are elii | minated or re- | |
| This area has been ad Surveys. | lequately remediate | ed and is acceptable for | r release for t | he performance | of Final Radiat | ion |
| | Vice-President D&D/Constru Print Name/S | action (or designee) ign | | Date | | |
| PRE-TURNOVER | WALK-DOWN: | | | | | |
| Walk-Down was: | Performed on: Not Performed | Date: - Reason Walk-Do | By: wn was not P | (PrintName/ Performed: | Signature) | |
| SURVEY FOR ARI | EA TURNOVER: | | | | | |
| Survey Required for | Area Turnover: | No- Yes- | RA/RASS S | Sample Plan #: | | |
| Radiological Enginee | er | (Print Name/Signature) | Da | ate: | | I |
| Survey performed by | · | (Print Name/Signature) | Da | ate: | Time: | |
| - Copy of Surve | ey Map and data res | sults attached | | | | |

圖 52 區域預備完成確認和管控清單

| | PRE-TURNOV | In | formation Use | |
|----------------------------|----------------|------------------|---------------|----------|
| Survey Area No.: | | Survey Unit No.: | | |
| Survey Unit Type: | Open Land | Structure | | System 🗌 |
| Survey Unit Classification | on: | | | |
| Classification: | Class 3 | Class 2 | Class 1 | |
| Survey Unit Area: | m ² | | | |
| Description: | | | | |
| | | | | |
| Physical Configuration: | | | | |

Preparations for FRS: (checked box indicates an affirmative response)

| 1) | All decommissioning activities in the area are complete, including removal, as necessary, of items (e.g., sub-surface systems, electrical components, etc.) that could interfere with the survey | |
|----------------|---|--|
| 2) | All surfaces to be surveyed are prepared for FRS as necessary (e.g. interferences removed, paint removed, penetrations exposed, excavations backfilled, etc) | |
| 3) | All decommissioning activities in areas either adjacent to the survey unit to be isolated or that could otherwise affect it are either complete or are deemed not to have any reasonable potential to spread radioactive material to the area. | |
| | | |
| 4) | All tools and equipment not needed for FRS are removed. | |
| 4) 5) | All tools and equipment not needed for FRS are removed. Housekeeping has occurred and is satisfactory for performance for FRS. | |
| 4) 5) 6) | All tools and equipment not needed for FRS are removed. Housekeeping has occurred and is satisfactory for performance for FRS. All support equipment (e.g., ladders or scaffold) and equipment used for FRS activities does not pose the potential for introducing or spreading plant-related radioactivity in the area. | |

Resolved Findings and Observations: (items that would prevent an affirmative response above and how resolved)

圖 53 區域預備完成前確認

SURVEY UNIT CLASSIFICATION WORKSHEET

Information Use

| Survey Area No.: Survey Unit No.: |
|--|
| SECTION 1 – Class 1 (checked box indicates affirmative) |
| Area previously subjected to remedial actions (see MARSSIM section 5.4). |
| Considering the potential for all impacted areas to exceed the DCGL, does the Yes No existing data provide a high degree of confidence that no individual measurement will exceed the applicable DCGL in this survey unit? |
| IF NO OR UNKNOWN, THEN THE SURVEY UNIT IS CLASSIFIED AS A CLASS 1 AREA. IF YES, CONTINUE WITH THE CLASSIFICATION PROCESS BELOW. P |
| SECTION 2 - Class 2 A Radioactive materials present in unsealed form. C Potentially contaminated transport route. T Area downwind and/or downstream from an effluent release point. C Upper walls or ceiling of building subjected to airborne radioactivity. E Area where low concentrations of radioactive materials were handled. D Perimeter of former contamination control area. D |
| Does the existing data provide a high degree of confidence that no individual measurement will exceed 5% of the applicable DCGL? A R IF NO OR UNKNOWN, THEN THE SURVEY UNIT IS CLASSIFIED AS A CLASS 2 AREA. |
| SECTION 3 - Class 3 A Buffer zone around a Class 1 or Class 2 area. Image: Class 2 area. Potential for low levels of residual radioactivity. Image: Class 2 area. Is there no reasonable potential for contamination in this area? Yes IF NO OR UNKNOWN, THEN THE SURVEY UNIT IS CLASSIFIED AS A CLASS 3 AREA. IF YES, CONTINUE WITH THE CLASSIFICATION PROCESS BELOW. |
| SECTION 4 |
| Sufficient process knowledge and/or historical data to warrant a non-impacted Yes No designation? |
| IF NO OK UNKNOWN, THEN THE SURVEY UNIT IS CLASSIFIED AS A CLASS 3 AREA. IF YES, THE SURVEY UNIT IS NON-IMPACTED. |
| Submitted: Reviewed: (Print/Sign Name/Date) (Print/Sign Name/Date) |

圖 54 偵檢單元分級工作表

Survey Unit No: _____

DATA QUALITY OBJECTIVES

1.0 STATE THE PROBLEM

The problem:

Stakeholders:

The Planning Team:

Schedule:

Resources:

2.0 IDENTIFY THE DECISION

Principal Study Question:

Alternate Actions:

The Decision:

3.0 IDENTIFY INPUTS TO THE DECISION

Information Needed:

Historical Information:

Radionuclides of Concern:

Release Criteria:

Radiological Survey Data:

Basis for the Action Level:

Basis for Scan Measurements:

Basis for Quality Control (QC) Measurements:

Investigation Levels:

Sampling and Analysis Methods to Meet the Data Requirements:

4.0 DEFINE THE BOUNDARIES OF THE SURVEY

Boundaries of the Survey: Temporal boundaries:

Constraints:

5.0 DEVELOP A DECISION RULE

Decision Rule:

6.0 SPECIFY TOLERABLE LIMITS ON DECISION ERRORS

Type I Error: Type II Error:

Lower Bound of the Grey Region

7.0 OPTIMIZE DESIGN

Type of statistical test:

Wilcoxon Rank Sum Test (WRS) Sign Test

Basis including background reference location if WRS test is specified:

Number of Systematic samples:

Number of Biased samples and locations:

Number of samples for Quality Control:

圖 55 最終輻射偵檢數據品質目標(DQOs)和偵檢設計

二、 錫安核電廠應用 VSP 之實例

以下內容主要摘錄自錫安核電廠「最終輻射偵檢報告-偵檢單元 10208D」。

錫安核電廠最終輻射偵檢之 10208D 偵檢單元的區域名稱為南方倉庫 區(South Warehouse Area),屬於 MARSSIM 第一級區域分級之開放土地偵 檢單元。在錫安核電廠執照終止計畫中(License Termination Plan, LTP), 10208 偵檢單元為第三級區域分級之開放土地偵檢單元(如圖 56)。此偵檢 單元於 2013 年執行特性偵檢,偵檢結果所有樣本中關注核種的活度都小於 最小偵測活度(MDC),但 2017 年 6 月時,因鄰近區域進行的除污作業,重 新將 10208 偵檢分類為第一區域分級,並將之分割為 4 個偵檢單元(如圖 57:10208A、10208B、10208C,及 10208D)。錫安核電廠的最終偵檢規劃 使用 VSP 軟體產出取樣地圖,使用的取樣位置模式為系統性網格採樣-三角 形,座標則是根據 VSP 提供的 GPS 座標。根據 VSP 計算結果,偵檢單元 10208 需要的樣本數為 17,圖 58 為 VSP 產出之取樣結果的 Posting Plot 圖, 此圖表示出取樣位置及取樣結果。圖 59 為 VSP 產出之預期檢定力/回溯檢 定力圖,根據此圖,取樣結果的檢定力足夠。



圖 56 錫安核電廠最終偵檢偵檢單元 10208



圖 57 偵檢單元 10208 因區域分及改變切割為 4 個偵檢單元

Posting Plot



[55]

圖 58 偵檢單元 10208 之 Posting Plot 圖



圖 59 預期檢定力/回溯檢定力圖

陸、 美國 NRC 有關核電廠輻射偵檢數據品質審查文獻

核電廠輻射偵檢之數據品質之確保源自合適的偵檢規劃,我們研析之 NRC產出有關核電廠輻射偵檢數據品質審查文獻為「核電廠執照終止審查 標準計畫(NUREG-1700)」之2.5節,有關最終輻射偵檢計畫的審查要點。 最終狀態輻射偵檢是在廠區特性偵檢以及除污皆已完成,預備要釋出前進 行。最終狀態輻射偵檢的目的是要證明廠區符合電廠執照終止的殘餘輻射 標準。NRC對核電廠執照終止計畫(LTP)中有關最終輻射偵檢計畫部分,審 核通過的標準為內必須包含以下幾點:

- 電廠執照終止計畫(LTP)應包含 NUREG-1757 Vol 2 中所描述應提供的資料,以及以下資料:
 - 鑑別主要的輻射污染。
 - 用於處理難以偵測核種的方法。
 - 乾淨區域再污染的控制程序。
 - 描述用於現場偵檢工作及實驗室分析的品質保證(QA)計畫。 QA 計畫中應包含品保機構;訓練和資格要求;偵檢儀器和程序(包含水、空氣和土壤取樣程序);文件控制;採購項目控制; 檢查;偵檢儀器控制;處理、貯存、校準,和回應檢查;偵檢 設備和實驗室樣本的移動;不符合項目;矯正措施;品保紀錄; 以及偵檢稽核(包含審查、分機和稽核數據的方法)。
 - 偵檢崁入或埋入管線的方法。
- 最終偵檢計畫須符合 NUREG-1757 第四部份所定義的評估標準。

柒、 數據品質相關管制建議

本計畫今年度的研究主題為核能電廠除役輻射偵檢之取樣方法與統計 分析,綜合今年度之文獻蒐集及研析,提出與研究主題相關之除役電廠輻 射偵檢之數據品質相關管制建議如下:

一、 電廠執照終止計畫(LTP)之最終輻射偵檢計畫審查

電廠執照終止計畫(LTP)之最終輻射偵檢計畫應涵蓋本報告上一章所 提及審查通過標準之必需包含內容項目。

二、 電廠輻射偵檢指引文件規範

參考錫安核電廠之資料,電廠應建立有關輻射偵檢相關指引文件,如:

1. 品質保證計畫規劃(QAPP):品質保證和品質控制(QA/QC)程序。

2. 偵檢單元分級程序:說明最終輻射偵檢區域分級的程序。

 最終輻射偵檢之獨立與管控:說明進行最終輻射偵檢前,應確認及掌控 最終輻射偵檢所應具備的資料及設備的程序。

 4. 偵檢單元最終狀態輻射偵檢包發展指引: 當完成區域分級及所有最終 輻射偵檢規劃與執行所需要的資料和設備都完成後,發展偵檢包之最終輻 射偵檢計畫之程序。

三、 偵檢儀器規範

輻射偵檢所使用的儀器之最小檢測濃度(MDC)計算公式應於相關文件 中說明。依據 MARSSIM 規範,掃描儀器的最小檢測濃度(MDC)應小於 DCGL_{EMC}及 DCGL_W。當 MDC 小於 DCGL_{EMC}時,不須增加額外的樣本 點。若 MDC 大於及 DCGL_W或 DCGL_{EMC}時,則需增加掃描點數,需要 增加的數目,並應透過 MARSSIM 提供的公式計算求得

四、 VSP 軟體工具運用

電廠可應用但不限定須應用 VSP 進行取樣數計算、規劃取樣點位置, 並能提供有關取樣效能相關的圖。電廠應依據 MARSSIM 之規定於規劃階 段產出有關數據品質之 DQOs,並於評估階段透過圖表說明評估結果。

捌、 結論

本子分項計畫透過研讀 MARSSIM 手冊有關取樣設計及統計分析相關 內容、研究 VSP 軟體,並蒐集和研讀美國除役核電廠如何實作符合 MARSSIM 所規範的方式,進行輻射偵檢規劃、執行和評估。

台灣的核能一廠已進入除役階段,核能二廠及三廠也即將進入除役階 段。完成除役前,電廠的廠區需要透過最終狀態偵檢來檢驗及確認電廠各 區域之殘餘輻射是否符合外釋規範。最終狀態偵檢的結果關係廠區是否能 再利用的決策,為能確保決策的可靠度,必須透過符合科學及統計學之偵 檢規劃來達到所期望的數據品質。VSP 軟體可運用於協助建立符合數據品 質之取樣規劃,並提供友善易使用之視覺化介面,且產出之分析報告可採 用於規劃文件及品管報告中,為電廠進行取樣設計及統計分析可採用之工 具。

本報告統整研究結果,提供有關數據品質以及 VSP 軟體工具運用的管制/審查建議予管制單位參考。

81

玖、 參考資料

- Multi-Agency Radiation Survey and Site Investigation Manual (MARSSIM). August 2000.
- 2. Visual Sample Plan Version 7.0 User's Guide, 2014.
- 3. ZS-LT-300-001-001, Zion Nuclear Power Station, "Final Radiation Survey Package Development", 2016.
- 4. NUREG-1700, Standard Review Plan for Evaluating Nuclear Power Reactor License Termination Plans, 2018.
- 2018年行政院原子能委員會委託研究計劃-核電廠除役管制各階段工程 技術與分析應用研究子計畫四-2期末報告。
- 2019年行政院原子能委員會委託研究計劃-核電廠除役管制各階段工程 技術與分析應用研究子計畫二-2期末報告。