

行政院及所屬各機關出國報告提要

出國報告名稱：參加2007核種傳輸會議順道進行核種遲滯評估技術研究

頁數 17 含附件：是 否

出國計畫主辦機關：台電公司 聯絡人：郭麗雯 電話：(02)80782334

出國人員姓名：郭麗雯

服務機關：台灣電力公司

單位：綜合研究所

職稱：化學資深研究專員

電話：(02)80782334

出國類別：1 考察 2 進修 3 研究 4 實習 5 其他

出國期間：96年8月20日～9月2日

出國地區：瑞士、德國

報告日期：96年10月31日

分類號/目

關鍵詞：核種傳輸、高放射性廢料

內容摘要：(二百至三百字)

目前世界各國持續的投入人力與物力從事高放射性廢料最終處置有關工程障壁材料性質研究，在核種遲滯功能的評估上，則因各國的地質條件的差異，而有所不同，國際間對有關技術的交流相當頻繁與

密切，因此出國參加國際會議，並參觀相關之實驗室，可與國際間技術交流，對國際有關此議題的研發趨勢有所了解，亦可增加對研究成果的自信心。

本次出國主要參加 2007 核種傳輸國際會議(Radionuclide Migration 2007)此會議於 8 月 26~31 在德國慕尼黑舉行，本所發表” Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite” 論文一篇，在會場中與各國專家交換研究心得，藉以了解世界各國在核廢料最終處置技術上最新的發展，再加上實際觀摩瑞士 PSI 試驗室與研究人員經驗交流，加速建立台電自有評估技術的能力。

本文電子檔已傳至出國報告資訊網 (<http://report.gsn.gov.tw>)

摘要

目前世界各國持續的投入人力與物力從事高放射性廢料最終處置有關工程障壁材料性質研究，在核種遲滯功能的評估上，則因各國的地質條件的差異，而有所不同，國際間對有關技術的交流相當頻繁與密切，因此出國參加國際會議，並參觀相關之實驗室，可與國際間技術交流，對國際有關此議題的研發趨勢有所了解，亦可增加對研究成果的自信心。

本次出國主要參加 2007 核種傳輸國際會議(Radionuclide Migration 2007) 此會議於 8 月 26~31 在德國慕尼黑舉行，本所發表” Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite” 論文一篇，在會場中與各國專家交換研究心得，藉以了解世界各國在核廢料最終處置技術上最新的發展，再加上實際觀摩瑞士 PSI 試驗室與研究人員經驗交流，加速建立台電自有評估技術的能力。

目次

| | |
|-------------------------|-----|
| 摘要..... | 3 |
| 一、出國目的..... | 5 |
| 二、出國行程..... | 6. |
| 三、行程介紹..... | 7 |
| 3-1 瑞士 PSI 研究機構..... | 7 |
| 3-2 核種傳輸 2007 國際會議..... | 9 |
| 四、心得..... | 14 |
| 五、建議事項..... | 16. |

一、出國目的

高放射性廢料深地層處置，採用多重障壁的概念，天然障壁因天然地質條件而定，工程障壁則可採用工程材料及施工加以控制，工程障壁材料研究，是用過核子燃料深地層處置研究項目中，極重要的一環，在高放射性廢料需要長時間與生物圈隔離的深地層處置環境中，材料的核種遲滯功能是特別必須關注的課題，也是處置場是否可靠、安全的關鍵因子，因此如何評估材料的核種遲滯功能，需考慮那些因子，因子間的關聯性如何，因子間的權重關係，都是必須了解的課題，因此欲借重國外的研究經驗，縮短進行本課題研究摸索的時間，迅速了解此技術的關鍵所在，建立起最終處置工程障壁材料功能評估的自主技術。

目前世界各國持續的投入人力與物力從事高放射性廢料最終處置有關工程障壁材料性質研究，在核種遲滯功能的評估上，則因各國的地質條件的差異，而有所不同，國際間對有關技術的交流相當頻繁與密切，2007 核種傳輸國際會議 (Radionuclide Migration 2007) 於 8 月在德國慕尼黑舉辦，本所發表” Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite” 論文一篇，因此，本所遴派負責執行高放射性廢料最終處置相關人員，化學室郭麗雯參加該會議，發表論文，與各國專家交換研究心得，可藉以了解世界各國在核廢料最終處置技術上最新的發展，再加上實際觀摩瑞士 PSI 試驗室與研究人員經驗交流，可加速建立台電自有評估技術的能力。

二、出國行程

| | |
|----------------|--|
| 96年8月20日~8月21日 | 往程(台北-巴黎-蘇黎克) |
| 96年8月22日~8月25日 | 觀摩核種傳輸試驗及評估技術 (參訪瑞士PSI—Paul Scherrer Institute) |
| 96年8月26日~8月31日 | 參加核種傳輸(Migration 2007)國際會議(發表Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite 論文一篇) |
| 96年9月1日~9月2日 | 返程(慕尼黑-巴黎-台北) |

三、行程介紹

3-1 瑞士 PSI 研究機構

瑞士的 PSI (Paul Scherrer Institute) 研究院是一個相當大的研究機構，從事很多高能物理的先端科技研究及應用開發工作，研究院分為生物所、同步輻測與奈米技術研究所、能源所、核能與安全研究所、粒子與物質研究所、中子與μ子凝聚物研究所及大型研究設備所，PSI 投入相當大的能力於加速器的研發與應用上，本次拜訪的廢料處置研究室 LES (Laboratory for Waste Management) 是屬於核能與安全研究所的一個研究室。

LES 有 23 個成員，成員的專長包含有機化學、無機化學、物理化學、核化學、材料、水文、地質等非常的廣，研究領域包含：1、地球化學的模式 (Geochemical Modeling) 2、傳輸機構的探討 (Transport Mechanism) 3、擴散程序 (Diffusion Processes) 4、黏土材料系統 (Clay System) 5、水泥材料系統 (Cement System) 6、XAS Beamline 7、膠體化學 (Colloic Chemistry)，因為研究院有許多高能物理有關的設備，因此許多具放射性的研究與試驗，在此可得到很好的支援，因此本次的核種傳輸會議 (Migration 2007)，LES 也發表了相當多的文章，也有研究員被邀請為會議的演講者。

此次參訪 PSI，係由 LES 的主管 Dr. Bradburg 安排，由 Dr. Bart Baeyens 接待，探討的主題包含：吸附係數試驗、膠體傳輸、水泥材料系統的核種傳輸行為、核種擴散程序、及核種吸附資料庫的應用，除核種吸附資料庫的應用談話在辦公室進行外，其他每個主題均安排前往實驗室參觀並與有關的人員會談，所有關於核種傳輸的試驗室均在核能管制區內進行，其控管的程序類似核能電廠的控管，相當嚴格，可見其試驗的專業性。

首先參觀吸附試驗實驗室，由 Dr. Bart Baeyens 親自介紹，其實驗內容與國

內清華大學進行的核種吸附試驗內容相近，但規模大一些，僅無氧手套相便有好幾套，進行的核種種類也相多樣。膠體傳輸係由 Dr. C. Degueldreru 解說，進入實驗室剛好有位來自日本的國際合作的學者與 Dr. Degueldreru 一同實驗，實驗室在進行膨潤土的膠體形成試驗，將膨潤土置於水中，經過一天至數星期的放置，產生的膠體便可利用雷射分析其粒徑，分 $0.05\ \mu\text{m}\sim 0.2\ \mu\text{m}$ 及 $0.2\ \mu\text{m}\sim 5\ \mu\text{m}$ 兩段的粒徑範圍加以分析，接著進行吸附試驗，膠體吸附核種後，可以濾紙過濾，以 TEM-EDX 或 EELS (Electron Energy Loss Spectrum) 分析核種在膠體表面吸附的情形，這方面的研究，這次在核種傳輸的 2007 年會議上，有多篇的文章探討，因為作為緩衝材料的膨潤土，對核種的吸附效果很好，但因為膨潤土遇水會產生膠體，在工程擾動帶 (EDZ)，核種會隨著膠體，快速的遷移至地質圈，甚至生物圈，因此膠體的核種遷移是地下處置場功能評估很重要的考慮因子。

水泥材料系統的核種遷移是由 Dr. Erich Wieland 介紹，一般作為回填或是孔隙回填的混凝土材料 75% 為砂、石，5% 為廢料，對核種具有吸附特性主要是在 20% 的 Cement Paste，因此探討水泥材料的核種遷移性質，僅須針對 Cement Paste 進行，至於 Cement Paste 的孔隙水組成為 Lawrence Solution，含有 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、 NaCl 、 SiO_4^{4-} ... 等固定的化學成分，水泥水化的產物 Cement Paste 有 C_3S 、 C_2S 多種物種，均有現成品，可供實驗，因此針對不同組合的水泥水化產物，進行核種吸附實驗是相當容易的，經吸附後的樣品，可以 Micro XRF、Micro XAS 及 EXAF (Extended X-ray Adsorption Fine Structure) 測量，此兩種微區分析的 X-光源，須有一很強的來源，一般須由同步加速器產生，分析的 Beam size 約 $3 * 4\ \mu\text{m}^2$ 大小，可分析核種吸附的位置，探討核種吸附的機構。

核種的擴散程序探討試驗，是由 Dr. Luc Van Loon 介紹，Dr. Luc Van Loon 進行多年的核種擴散研究，被邀請在核種傳輸 2007 國際會議上，針對擴散的理論探討結果做了一場精闢的演講；在實驗室中，參觀了做黏土擴散試驗的裝置，

因為本次在核種傳輸 2007 國際會議發表的文章，即是利用 LA – ICP – MS 分析核種在膨潤土中的擴散行爲，與該實驗室的實驗過程相似，因此將我的實驗情形，與 Dr. Luc Van Loon 做很詳細的討論，得到相當的鼓舞與信心。Dr. Luc Van Loon 並介紹了實驗室近來的一些實驗結果，如：Eu³⁺在瑞士的潛在母岩 Mont Terri 的 OPA 黏土礦物中 140 天可擴散 400µm 等。

“核種吸附資料庫的應用方法?”，提出與 LES 的主管 Dr. Bradburg 及 Dr. Bart Baeyens 討論，原先他們無法理解我的問題，後來我將研究所在高放處置計畫所扮演的角色告知 Dr. Bradburg，並詳細說明我的問題後，他們終於理解並且回答我：核種吸附資料庫的應用是由 NAGRA 的人決定，PSI 僅提供可靠的數據，後續的應用則由作功能/安全評估的人處理，LES 的人與 NAGRA 的人互動相當密切，約每星期便有一次的討論，NAGRA 作評估需使用數據或是模式要有所簡化時，都會與數據提供者作充分的溝通，確定其合理性，這與國內的現況有相當大的差異，此點是頗值得我們參考學習。

此次瑞士 PSI 的參訪，對核種傳輸的全盤工作有了大致的認識，PSI 投入相當多的人力、物力，作如此基礎的工作，其目的是在為高放射性廢料最終處置技術取得更讓人信服的科學證據，相信世界其他核能先進國家所作的努力，亦是如此。

LES 2005~2006 年的研究議題成果摘要如附件一所示。

3-2 核種傳輸 2007 國際會議

MIGRATION 會議主要針對銻系元素與分裂核種，在自然系統中遷移的化學程序進行探討，此會議提供科學家們定時聚會的場所，針對此議題進行研討並定時交換研發訊息，此會議每兩年舉辦一次，第一屆的會議於 1987 年在慕尼黑舉辦，當時適逢車若比核電廠事故後的第二年，今年是第 11 屆會議，再度回到慕尼黑，具有懷舊、回顧的意義，今年的主題為銻系及分裂核種在地質圈的化學及遷移行

爲 (Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fussion Products in the Geosphere)，會議的議題及論文，大多是核種在岩石圈水文系統中遷移的反應機制、地化及核種遷移模式等的基礎研究，以期建立正確合理的模式來描述其遷移行爲，提供放射性廢料處置功能/安全評估所需的資訊。本屆 MIRGRATION 2007 研討會的議題大致延續過去傳統與分組，今年新增一特別分組，討論有機物反應的模式發展及國際研發活動，以下爲分組及分組中子項目的名稱及論文發表的篇數，總共發表的論文有 307 篇：

1、銻係及分裂核種的水化學(Aquatic Chemistry fo Actinides and Fission Products)

(1)溶解度與溶解反應(Solubility and Dissolution) 22 篇

(2)固相溶液及二次相生成(Solid Solution and Secondary Phase Formation) 14 篇

(3)有機、無機的配位錯合反應(Complexation with Inorganic and Organic Ligands) 37 篇

(4)氧化/還原及輻射分解反應(Redox reaction and Radiolysis Effects) 22 篇

(5)固/液介面反應(Solid-water Interface Reaction) 56 篇

(6)膠體的形成(Colloid Formation) 10 篇

(7)實驗方法的研發(Experimental Mehtods) 8 篇

2、核種遷移行爲(Migration Behavior of Radionuclides)

(1)動力系統中的吸/脫附現象(Sorption/Desorption phenomena in Dynamic Systems) 14 篇

(2)地質介質中的擴散及遷移(Diffusion and Other Migration Processes) 31 篇

- (3)膠體的遷移(Colloid Migration) 14 篇
- (4)生物及有機物質的效應(Effects of Biological and Organic Materials) 20 篇
- (5)現地及大尺度試驗(Field and Large Scale Experiments) 10 篇
- (6)天然類比(Natural Analogues) 8 篇
- 3、地化及核種遷移模式(Geochemical and Transport Modelling)
 - (1)資料篩選及評估(Data Selection and Evaluation) 1 篇
 - (2)化學及遷移之偶合效應(Coupling Chemistry and Transport) 5 篇
 - (3)模式發展及應用(Development and Application of Models) 10 篇
 - (4)模式驗證(Model Validation) 1 篇
- 4、特別分組
 - (1)金屬離子及主要核種與自然界有機物質交互作用模式發展和應用
(Development and Application of Metal Ion and Notably of Radionuclide Interaction with Natural Organic Matter and Modelling Concepts) 15 篇
 - (2)國際研發活動(International Research Activity) 9 篇

詳細的論文篇名如附件二。

本次台灣前往發表的有六篇文章，清華大學、原科中心與青雲科技大學發表五篇，其中兩篇歸類於固/液介面反應分項，另三篇歸類於地質介質中的擴散及遷移分項，本所發表的論文：Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite，則歸類於核種遷移行爲之地質介質中的擴散及遷移分項下，內容摘要如下：

**Using the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer
to Analyze the Nuclide Distribution in Bentonite**

Quo Lih-Wen¹⁾, Lai Cheng-I²⁾

¹⁾*Taiwan Power Research Institute, Taiwan Power Company, Taipei, Taiwan, R.O.C.*

²⁾*National Applied Research Laboratory, Taipei, Taiwan, R.O.C*

The retardation characteristic of buffer material to nuclide is a central factor for the performance assessment of the high-level radioactive wastes final disposal. Therefore, it is an important consideration for the selection of buffer materials. In order to establish the non-radioactive measurement technique of nuclide transport, the Laser Ablation Induced Couple Plasma Mass Spectrometer (LA-ICP-MS) is adopted to delve into the transport behavior of nuclide in the buffer material.

In this study, we selected the bentonite which is generated in the Wyoming State of US and is compacted up to the density of 1.6 g/cm³ and of 2.0 g/cm³, respectively. Afterwards, the diffusion experiment of 4 nuclides including Cs, U, Se and Pd is conducted. Elapsing a period of 180 days and of 270 days respectively, the bentonite samples are cut along the radius direction. Different nuclide distribution in these samples is analyzed by line scan mode of LA-ICP-MS direct measurement to evaluate the transport behavior of these four nuclides in the compacted bentonite samples.

The test results show :

- (1) The distribution of nuclide over the whole cross section of the bentonite samples can be obtained by combining the analysis result of each line distribution. It can be observed the accuracy of the nuclide distribution of this alternative is much better than that of traditional

method.

- (2) According to the analysis results of the four nuclides distribution in the bentonite samples, it exhibits the intensity of Cs (M=133) element and of U (M=238) is extremely significant but the intensity of Se (M=82) element and of Pd (M=106) is greatly lower.
- (3) At the period of 180 days, the nuclide with Cs has already uniformly distributed over the whole cross section but the intensity increases with time. On the other hand, the distribution of the nuclide with U exhibits the significant peak at the side of contacting transport solution at 180 days and the wave front moves toward the other side with the increase of testing period.
- (4) As compared to the bentonite sample with density of 1.6 g/cm^3 , the intensity of Cs and of Se elements in the sample with density of 2.0 g/cm^3 is stronger.
- (5) The analysis of through out solution shows the concentration of Ca and of Mg ion is within the range of ppm and that of Sr within the range of hundreds of ppb. Since the concentration of nuclides including Se, Cs and U in the solution is less than ppb, it implies that these nuclides do not leach out of the bentonite sample.

在會中特別與 PSI 的 Dr. Luc Van Loon 討論所作的結果，Dr. Luc Van Loon 認為結果相當合理、正確，建議我進一步的作模式分析驗證，但因模式的計算並非我的專長，只好日後找人協助。

會議中，無論專題演講或是論文發表，討論均相當熱烈，大會的議程安排亦相當緊湊，自白天到晚上均有議題討論，自討論的過程當中，獲得不少的心得與研發靈感，這應是參加研討會，另一重要的收穫。

四、心得

- 1、PSI 的 LES 所作的核種傳輸研究相當全面性，也相當深入，有些甚至屬於科學性的探討，而非工程的應用，令人驚訝的是他們對高放射性廢料最終處置者如何應用數據，他們並不主導，而是由 NAGRA 在作 SA/PA 的人決定，但當作 PA/SA 的人對數據應用有疑問時，仍不斷的諮詢 PSI 人員，如何將實驗結果合理的放入模式評估當中，因此 PSI 人員與 NAGRA 的 SA/PA 人員聯絡非常緊密，時常聚會討論。
- 2、和參與核種傳輸 2007 國際會議人士討論本所完成之論文，許多核種傳輸試驗的專家對此專題感到興趣，因為 LA-ICP-MS 可分析很小距離(可達 μm 等級)的元素組成變化，可用以探討核種吸附的位置、機構，是一方便又不須有放射性顧慮的設備。會議中除針對研究方法的討論，並進一步討論分析結果，頗符合理論的預期，建議本研究可進一步的用理論計算，模擬分析結果。
- 3、參與核種傳輸國際研討會，對歐洲國家的高放射性廢料最終處置計畫的合作關係，留下深刻的印象，在會中發表的文章，2 個國家的實驗室合作是常有的事，3 個國家甚至 4 個國家的合作也不少，歐盟國家科學家們之間的合作相當的緊密，這與歐盟的成立應有相當的關係。2004 年 3 月歐洲國家開始了高放射性廢料地質處置工程研究的整合計畫，結合了法國、西班牙、瑞士、英國、比利時、芬蘭、德國、荷蘭及瑞典等廢料處理單位及技術發展單位，科學家們藉由這樣的技術整合，人員的技術交流，也相當的密切，這對高放射性最終處置的技術有極大的幫助，也有助於未來處置場評估結果建立信心。
- 4、日本的中央電力研究所本次也發表一篇探討核種在飛灰混凝土中的傳輸行為，也是利用 LA-ICP-MS 作為研討的工具，與研究者討論後得知，這樣的混凝土配方主樣考量可降低混凝土的孔隙，可用於高放射性廢料的中期處置。

- 5、核種在膨潤土的緩衝材料中的遷移，速度相當的慢，但膨潤土在裂隙中，遇水產生膠體，核種隨著膠體的傳輸，是一個相當重要的課題，在傳輸的會議中，有相當多的論文，討論此議題。
- 6、會議中有許多論文利用微區的 XRD (X-光繞射儀)、XRF (X-光螢光光譜儀)、EXAF (X-光吸收光譜儀) 及 RAMAN 光譜儀，探討核種吸附的機構，清大應可整合同步輻射中心的設備，進行更多的核種吸附機構的探討，對未來的高放射性廢料最終處置功能安全評估應更有幫助。
- 7、核種傳輸會議，參加約有 400 人左右，規模相當大，集結了世界各國的專家，發表論文許多傾向於物理、化學吸、脫附性質的探討，及核種傳輸的的機構研究，這部分在功能/安全評估的模式中，扮演的角色雖然不多，但因對傳輸機構的了解，有助於判斷模式分析的合理性。

五、建議事項

就本次參加MIGRATION 07 研討會及參訪瑞士的PSI 研究院的廢料處置研究室LES的心得，提出以下幾點建議以共參考：

(1)、本公司高放射性廢料最終處置團隊係由核研所負責功能/安全評估、能環所進行地質調查、清大進行核種吸附試驗工作、台電負責整合，以瑞士的經驗，整合工作應自功能/安全評估角度出發，較可符合實際的需求，因為功能/安全評估最清楚模式中參數的真正意義，實驗者依據參數的真正涵義，設計實驗，作出功能/安全評估者需要的數據，實驗者也必須不斷的和功能/安全評估者有密切的互動，以確認所提供的數據是正確的，是符合模式需求的，要達到這樣的目的，團隊間密切的合作是非常必要的。台電公司若要自行掌握高放最終處置計畫技術整合的核心能力，應投入更多的人力，進行功能/安全評估技術發展，進而整合其他研究單位，將可收事半功倍之效。

(2)、核種吸附實驗機構的探討，是本所對高放射性廢料最終處置計畫中一直強調的工作方向，這次前往MIGRATION 07 會議，更加深這樣的看法，雖然探討機構，偏向科學的研究，但唯有對機構有清楚的認識，才可對高放射性廢料最終處置功能/安全評估結果產生更強的信心。清大應可結合貴儀中心、同步輻射中心，設計可行的機構探討試驗，以加強這方面的能力，但這些試驗需有長期穩定的經費支持。

(3)、MIGRATION 會議中感受到國際間對放射性廢料的核種遷移議題的熱烈討論與密切合作，國內進行相關的研究計畫，應與國際間有更密切的交流與合作，一則可了解國際動態，增加研發信心，二則讓國際間對國內情形有所了解，較易取得研發資源，若有較長期的合作計畫，則可更深入學習相關技術，與世界同步。

(4)、相對於核能先進國家投入高放射性廢料最終處置計畫大量的人力與物力，

認真、嚴肅的看待此問題，持續的進行相關的研發工作，台灣顯然政策不確定，預算不穩定，在這樣的情況下，作起來特別感覺特別吃力與無奈，人力無法穩定，經驗無法傳承，成果無法彰顯。