

**ATOMERŐMŰVI KIÉGETT FŰTŐELEM
BIZTOSÍTÉKI CÉLÚ KARAKTERIZÁLÁSA IN-SITU
GAMMA-SPEKTROMETRIÁVAL**

PhD értekezés

KIRCHKNOPF PÉTER

Témavezető: DR. SZALÓKI IMRE

BUDAPEST

2025

TARTALOMJEGYZÉK

Tartalomjegyzék	2
1. Bevezető	4
1.1. Nukleáris üzemanyag kazetták	6
1.2. Kiegészített fűtőelemek	7
1.2.1. Radionuklid-összetétel	8
1.2.2. Jelentősebb gamma-sugárzó radionuklidok	9
1.3. Nukleáris biztosítéki felügyelet (<i>Safeguards</i>)	11
1.3.1. Kiegészített fűtőelemek biztosítéki ellenőrzése	12
1.4. Nukleáris törvényszéki analitika	14
1.5. Gamma-spektrometria	14
1.5.1. Kiegészített üzemanyagok gamma-spektruma	16
2. Kiegészített fűtőelemek gamma-spektrometriai mérése	19
2.1. Történeti áttekintés, a mérések célja	19
2.2. A mérés helyszíne, az elrendezés elemeinek részletezése	20
2.2.1. A Paksi Atomerőműben használt VVER-440 üzemanyagkazetták	21
2.2.2. Az 1. számú akna és a beépített kollimátor	23
2.2.3. Az alkalmazott mérőműszerek	25
2.3. Oldal és magasság szerinti kiegészítés-profil mérések	26
3. A kiegészítés becslése	29
3.1. Irodalmi áttekintés	29
3.2. Spektrumok kiértékelése, aktivitásarányok számítása	31
3.2.1. Gamma-csúcsok keresése és integrálása	31
3.2.2. A relatív hatásfokgörbe számítása és illesztése	32
3.2.3. Az aktivitásarányok számítása	34
3.2.4. Átlagos és a mérési magasságban jellemző kiegészítések	35
3.3. A kiegészítés és az aktivitásarányok közötti kapcsolatok felderítése	37
3.3.1. Méréskori és üzemvégi aktivitásarányok	37
3.3.2. A kiegészítésbecsléshez megvizsgált aktivitásarányok	38
3.4. A regressziós analízis eredményei (<i>BU</i>)	40
3.5. Diskusszió, következtetések	45
3.6. [T1] Tézispont: Kiegészítésbecslési módszer vizsgálata gamma-spektrometriával mért hasadási termék aktivitásarányokkal	49
4. A hűlési idő és az eredet vizsgálata	50
4.1. Irodalmi áttekintés	50
4.2. A hűlési idő és a gamma-spektrometriával mérhető aktivitásarányok közötti kapcsolat	52
4.2.1. Az adatok forrása	52
4.2.2. Aktivitásarányok és a hűlési idő közötti összefüggés	52
4.2.3. A hűlési idő becsléséhez megvizsgált aktivitásarányok	53

4.2.4.	A regressziós analízis eredményei (CT).....	54
4.2.5.	Diszkusszió, következtetések	57
4.3.	Az eredet meghatározásának lehetőségei	59
4.4.	Speciális eset: rövid és extrém rövid hűlési idők	61
4.5.	[T2] Tézispont: Hűlési idő becslése és időbeli eredetmeghatározás gamma-spektrometriával	64
5.	Gépi tanulási módszerek alkalmazása	65
5.1.	Irodalmi áttekintés	65
5.2.	A vizsgált gépi tanulási módszerek ismertetése	66
5.2.1.	Klaszteranalízis	67
5.2.2.	Support Vector Regression	67
5.2.3.	Random Forest	67
5.2.4.	Mesterséges Neurális Háló	68
5.2.5.	Konvolúciós Neurális Háló	68
5.3.	A modellek implementációja.....	69
5.3.1.	Modellek felépítése	69
5.3.2.	Input <i>feature</i> -ök és output <i>targetek</i>	72
5.3.3.	Tanítás és hiperparaméter optimalizálás.....	74
5.4.	A klaszteranalízis eredménye	77
5.5.	A paraméterbecslések eredményei	80
5.6.	Diszkusszió, következtetések	85
5.7.	[T3] Tézispont: Paraméterbecslés és előélet-vizsgálat gépi tanulási módszerekkel	86
6.	Hasadási termék aktivitások számítása	87
6.1.	Az abszolút hatásfok-kalibráció lehetőségei	87
6.2.	Irodalmi áttekintés	88
6.3.	A kiégett fűtőelem mérések Monte-Carlo modellje	89
6.3.1.	A HPGe detektor felépítése	89
6.3.2.	A kiégett kazetta és a kollimátor geometriai felépítése	94
6.3.3.	A szimulációs idő csökkentésére alkalmazott eljárások.....	95
6.3.4.	A detektor pozicionálásából származó hiba	98
6.4.	A szimulációs modell validációja.....	99
6.4.1.	A relatív hatásfok-függvények összehasonlítása.....	99
6.4.2.	A ^{137}Cs koncentrációk összehasonlítása	101
6.4.3.	A szimuláció várható pontossága	103
6.5.	Eredmények és diszkusszió	104
6.6.	[T4] Tézispont: Az aktivitásmérés megvalósítása Monte-Carlo szimulációval	105
7.	Összefoglalás	106
	Köszönetnyilvánítás	108
	Függelék.....	109
	A: Az 1-es akna falába épített kollimátor dokumentumai	109
	Hivatkozások	112

1. BEVEZETŐ

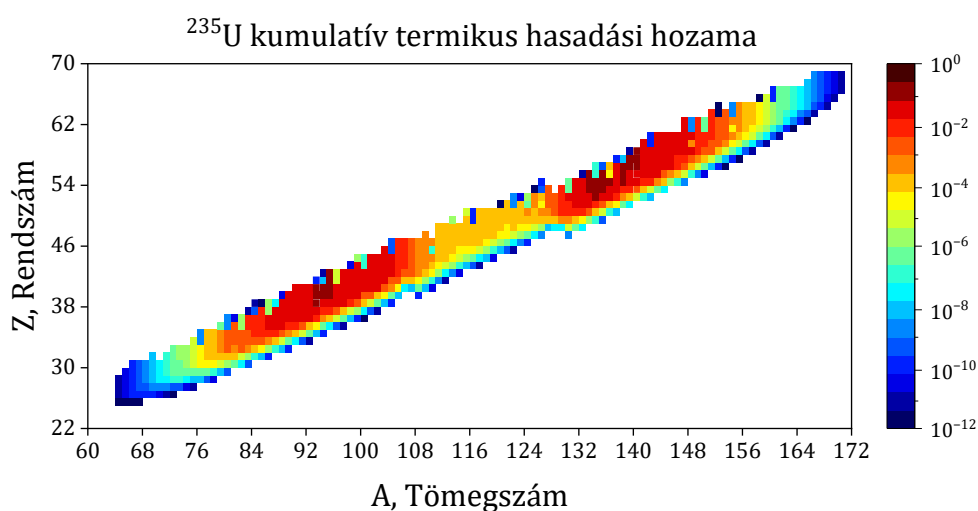
Atomreaktorokban a neutron-indukált maghasadás szabályozott láncreakciója révén az atommag kötési energiájának egy része a hasadás végtermékeinek kinetikus energiájává, valamint elektromágneses sugárzási energiává alakul át. A kritikus rendszerben kialakult neutronter kutató, illetve oktatóreaktorok esetén alkalmazható anyagszerkezet-vizsgálati és elemanalitikai, valamint radioaktív izotóp előállításra. Az anyagszerkezet-vizsgálatok és elemanalitikai technikák körébe tartoznak a neutron-diffrakciós vizsgálatok, a neutronradiográfia, a neutron aktivációs analitika (NAA) és a prompt-gamma aktivációs analitika (PGAA). Radioaktív atommagok képződhetnek egy stabil atommag neutronbefogásán keresztül, ilyen izotópokat alkalmaznak ipari területen besugárzásra és talajvizsgálatokra, orvosi területen pedig diagnosztikai, illetve terápiás feladatokat láthatnak el. Atomerőművekben a maghasadásból felszabaduló hőenergiát hőcserélő rendszeren keresztül villamosenergia előállításra használják. Az atomerőművi reaktorok jellemzően nagyobb méretűek, több hasadóanyagot tartalmaznak és nagyobb hőteljesítménnyel bírnak a kutató- és oktatóreaktorokhoz képest. A nukleáris üzemanyagok olyan elemeket tartalmaznak, melyeknek van hasadásra képes izotópjuk. A hasadás végbe mehet gyors vagy termikus neutronok hatására.

A két legfontosabb elem, mint nukleáris üzemanyag, az urán (U) és a plutónium (Pu). Az uránnak a ^{233}U és a ^{235}U izotópjai termikus neutronokkal való reakciójuk során hasadhatnak el, a ^{238}U izotóp pedig gyors neutronok hatására képes hasadni. A felsorolt uránizotópok közül a 235-es és 238-as tömegszámúak a természetben előfordulnak, a 233-as tömegszámú viszont csak mesterségesen állítható elő például ^{232}Th neutronbesugárzásával. A plutónium izotópjainak mindegyike mesterségesen előállított, közülük a ^{239}Pu és a ^{241}Pu képes termikus hasadásra. A ^{238}Pu , ^{240}Pu és ^{242}Pu izotópok gyorshasadásra képesek, valamint a 240-es és 242-es tömegszámúaknak jelentős a spontán hasadási valószínűsége.

Hasadást követően a nagy tömeg- és rendszámú atommagok jellemzően kettő darab közepes tömeg- és rendszámú hasadvány magra esnek szét, neutron- és gamma-emisszió kíséretével. Ritkább jelenség a hármass hasadás, amikor a két közepes tömegű atommag mellett egy harmadik könnyű mag is keletkezik. A hasadvány magok mindegyike neutronfelesleggel bír, emiatt nagyságrendben 1 s-os időn belül negatív béta-bomlással átalakul egy rendszámmal nagyobb elem azonos tömegszámú izotópjává. A folyamatot egy elektron és egy antineutrínó kibocsátása kíséri. Egyes atommagoknál a béta-bomlást spontán neutron-emisszió is követi, az így keletkező neutronok a késő neutronok, melyek kulcsfontosságú szerepet töltenek be a reaktorok szabályozhatóságában. A béta-bomlások sorozatával számos elem különböző izotópjai képződnek és alakulnak át, ezek a hasadási termékek. A hasadási termékek felezési ideje igen széles tartományban oszlik el, a legrövidebbek 1 s nagyságrendűek, a leghosszabbak pedig több millió évesek. A bomlási lánc addig tart, amíg végül egy stabil atommag nem képződik. A reaktoron belüli neutronter hatására nem a béta-bomlás az egyetlen lehetséges átalakulási mód, neutron keltette magreakció is végbe mehet, aminek a leggyakoribb fajtája a neutronbefogás. Ezek alapján megkülönböztetik a közvetlen és a közvetett (aktivációs) hasadási termékeket, az utóbbiak esetében a keletkezésükhöz neutronbefogás is szükséges. Ez egyben

azt is jelenti, hogy a hasadási termékek neutronbefogása is nagy hatással lehet a láncreakció folyamatára, a legjelentősebb befolyásoló a rendkívül nagy befogási hatáskeresztmetszettel rendelkező ^{135}Xe mag.

A hasadási termékek keletkezésének mennyiségi viszonyát a hasadási hozamok számszerűsítik, amik az egy hasadásra jutó keletkezési valószínűségeket adják meg a hasadási termékekre. A hasadási hozamok a hasadó atommagra és a hasadás típusára (termikus, gyors, spontán) jellemző értékek, azonban a rendszám és tömegszám függvényében ábrázolt jellegük hasonló, kétpúpú görbét, illetve felületet alkotnak. A bomlások hatását is figyelembe véve módosított hasadási hozamokat kapunk, ezeket kumulált hasadási hozamnak nevezik (1.1. ábra). Fontos kiemelni, hogy a kumulatív hasadási hozamok nem tartalmazzák a neutronaktivációval történő keletkezés és fogyás hatását.



1.1. ábra: Az ^{235}U termikus hasadására vonatkozó kumulatív hasadási hozam eloszlása 2D kontúr grafikonon a hasadási termékek rendszámának és tömegszámának függvényében. A piros színnel jelzett csúcsok közepe a $Z=40$, $A=94$ (^{94}Zr) és a $Z=55$, $A=138$ (^{138}Cs) magok környékén helyezkedik el. Az adatok forrása a JEFF-3.1.1 adatbázis [1].

Az üzemelő reaktor üzemanyagában a hasadáson kívül más neutron indukált magátalakulások is lejátszódnak, mint például az (n,γ) , $(n,2n)$, $(n,3n)$ reakciók. A magreakciók és bomlások eredményeként létrejönnek a transzurán elemek (Np, Pu, Am, Cm, Cf stb.) izotópjai. A plutónium, mint már említett hasadóanyag, izotópjai jelentős befolyásolói a láncreakció folyamatának, rajtuk kívül még a kúrium és a kalifornium egyes nagy spontán hasadási valószínűségű izotópjai bírnak nagy jelentőséggel.

A nukleáris üzemanyag mennyisége egy termikus reaktor működése közben folyamatosan csökken, eközben transzurán elemek és hasadási termék izotópok keletkeznek. A keletkező plutónium izotópok egy része az üzemelés során elhasad, idővel a teljes energiafelszabadulás egyre növekvő hányadát adják. Az üzemanyag elhasználódását kiégésnek nevezik (angolul: *burnup* (BU)) és mennyiségileg az üzemanyag kezdeti hasadóanyag tömegére vonatkoztatott teljes energiafelszabadulással jellemzik. Gyakori mértékegységei a MWnap/kgUi és az ezzel ekvivalens GWnap/tUi , valamint a MWnap/tUi , ahol az „i” az *initial*,

azaz kezdeti tömeget jelöli. Kevert kezdeti üzemanyag összetétel esetén urán helyett a teljes nehézfém tömeget adják meg.

1.1. Nukleáris üzemanyag kazetták

Az atomreaktorok biztonságos üzemelése szempontjából elengedhetetlen a megfelelően strukturált üzemanyag rács alkalmazása. Ez a gyakorlatban egy kétdimenziós négyzet- vagy hatszög rácsot jelent, melyben az üzemanyagot tartalmazó, egymással szomszédos térrészek középpontjainak távolsága a rácsállandó. Az üzemanyagon kívül a rácsszerkezet része az üzemanyag burkolata és egyéb szerkezeti elemei, valamint a köztes teret kitöltő hűtőközeg, amely termikus reaktorok esetén a moderátor szerepét is betöltheti. A harmadik dimenziót a kétdimenziós rácsot annak síkjára merőleges eltolásával kapjuk meg. A legelterjedtebb kivitelezésben a rácsot hengeres üzemanyag pálcák alkotják. A pálcákat az egyszerűbb kezelés és pozicionálás végett távtartórácsok használatával kötegelik, ez jelent egy fűtőelem köteget, vagy más néven kazettát. PWR (nyomottvizes reaktor) típusnál az üzemanyag, illetve a moderátor és egyben hűtőközeg egy nyomás alatt álló tartályban kap helyet. Más konfigurációval bír például az RBMK (nagyteljesítményű nyomottcsöves) típus, amiben az üzemanyagot és a víz hűtőközeget négyzetrácsba rendezett és nyomás alatt lévő csőrendszer tartalmazza, a grafit moderátora csövek körül helyezkedik el. Hasonlóan nyomottcsöves elrendezésű a CANDU reaktortípus, viszont itt az üzemanyag a nyomásálló csövekben vízszintes orientációjú rácsban helyezkedik el, valamint a moderátor és a hűtőközeg is nehézvíz.

A kazettában található nukleáris üzemanyag leggyakrabban fém-oxid formájában van jelen. Ilyen oxidok az UO_2 és a PuO_2 , egyes reaktorokban a két oxid keverékét, a MOX (*mixed oxide*) üzemanyag típust alkalmazzák. A természetes izotópösszetételű urán mindössze 0,72%-ban tartalmaz ^{235}U -t, ami a legtöbb termikus reaktortípushoz nem elegendő, ezért az uránt ^{235}U tartalmában általában 3-5%-ra dúsítják, ami alacsony dúsítású uránnak (LEU) számít. Kivételt képeznek a brit Magnox és a kanadai CANDU reaktortípusok, melyek természetes urán üzemanyaggal működnek. Kutatóreaktorok esetében elterjedt az 5% feletti dúsítású üzemanyag használata, azonban a 20%-os dúsítás felső határt képez, fölötté már magas dúsítású uránról (HEU) van szó. Erőművi reaktoroknál az üzemi ciklus elnyújtásának céljából a hasadóanyag egy részéhez hozzáadnak nagy neutronabszorpciós hatáskeresztmetszetű kiégő mérget, egy tipikus kiégő mérget a gadolínium-oxid.

A hasadóanyagot fém burkolat veszi körül, ami védi azt a külső mechanikai hatásoktól, valamint meggátolja a nukleáris anyag és a hasadási termékek közegbe való kijutását. A burkolat anyagával szemben támasztott követelmények a nagyfokú mechanikai stabilitás, magas olvadáspont és a kis neutronelnyelési képesség. Kis teljesítményű reaktoroknál a burkolat anyaga lehet alumínium, azonban nagyobb egységeknél cirkónium ötvözeteket alkalmaznak azok magasabb olvadáspontja miatt. Egységnyi tömegét és neutronelnyelését tekintve mindkét anyag az acélötvözeteknél jobb választásnak bizonyul. A pálcákat összetartó és mechanikai stabilitást adó elemek a távtartó rácsok, melyek a kazetta több magassági pontján megtalálhatók. Ezek anyaga megegyezik a pálcaburkolat anyagával. A legtöbb fűtőelem köteg

dizájn nem tartalmaz kazetta burkolatot, kivételt képez ebből a szempontból a VVER-440 típusú reaktorok üzemanyagkazettája, amelyet a gyártók cirkónium-nióbium ötvözetű köpennyel szerelnek fel.

1.2. Kiegett fűtőelemek

Egy reaktorban használt, neutronbesugárzásnak kitett fűtőelem kazetta besugárzott fűtőelemnek minősül, kiegett fűtőelemről akkor beszélünk, ha azt a továbbiakban nem tervezik a reaktorban újra használni. A kiegett fűtőelemek nagy aktivitású radioaktív hulladékok, melyek a radioaktív sugárzásuk mellett a nagy mennyiségű maradék hasadóanyag tartalmuk miatt is kiemelt potenciális veszélyforrásként kezelendők. Az erőművi kiegett kazetták átmeneti tárolása az első néhány évben víz alatt elhelyezve történik, csak a hasadási termékek aktivitása miatti hőfejlődés kellő mértékű csökkenése után térhetnek át levegő hűtéses tárolásra.

A kiegett fűtőelemek végső elhelyezése – ami a nukleáris üzemanyagciklus utolsó fázisát képezi – napjainkban még megoldatlan kérdésként merül fel a világ legtöbb üzemeltetőjénél. Az kiegett üzemanyagban tárolt energia további felhasználásának módja a reprocessálás. Az erre célra kialakított nukleáris üzemenben feldarabolják és feloldják a kazettát, majd szeparálják a még hasznosítható uránt és plutóniumot a szerkezeti anyagoktól és a hasadási termékektől. A kinyert hasadóanyagot később egy fűtőelem gyártó üzemenben újra felhasználhatják reprocesszált urán, vagy MOX tartalmú kazetták előállításával.

1.1. táblázat: A kiegett fűtőelemek karakterizálásához használt legfontosabb fizikai paraméterek.

Fizikai paraméter	Mértékegységek	Leírás
Kiegés, BU	GWnap/tUi ¹ , GWnap/tHMi ²	Adott kezdeti urántömegre vonatkoztatott teljes hőenergia felszabadulás értéke.
Hűlési idő, CT	nap, év	Az üzemanyag legutolsó besugárzásának végső időpontjától számított eltelt idő.
Kezdeti dúsítás, IE	wt% ²³⁵ U/U	A friss üzemanyag átlagos ²³⁵ U dúsítási szintje.
²³⁵ U koncentráció, CU5	cm ⁻³ , wt% ²³⁵ U	A kiegett üzemanyag ²³⁵ U atommagjainak koncentrációja.
²³⁸ U koncentráció, CU8	cm ⁻³ , wt% ²³⁸ U	A kiegett üzemanyag ²³⁸ U atommagjainak koncentrációja.
²³⁹ Pu koncentráció, CPU9	cm ⁻³ , wt% ²³⁹ Pu	A kiegett üzemanyag ²³⁹ Pu atommagjainak koncentrációja.

¹ Kezdeti urántömegre vetített felszabadult hasadási energia

² Kezdeti nehézfém (urán+plutónium) tömegre vetített felszabadult hasadási energia, MOX üzemanyagoknál használják

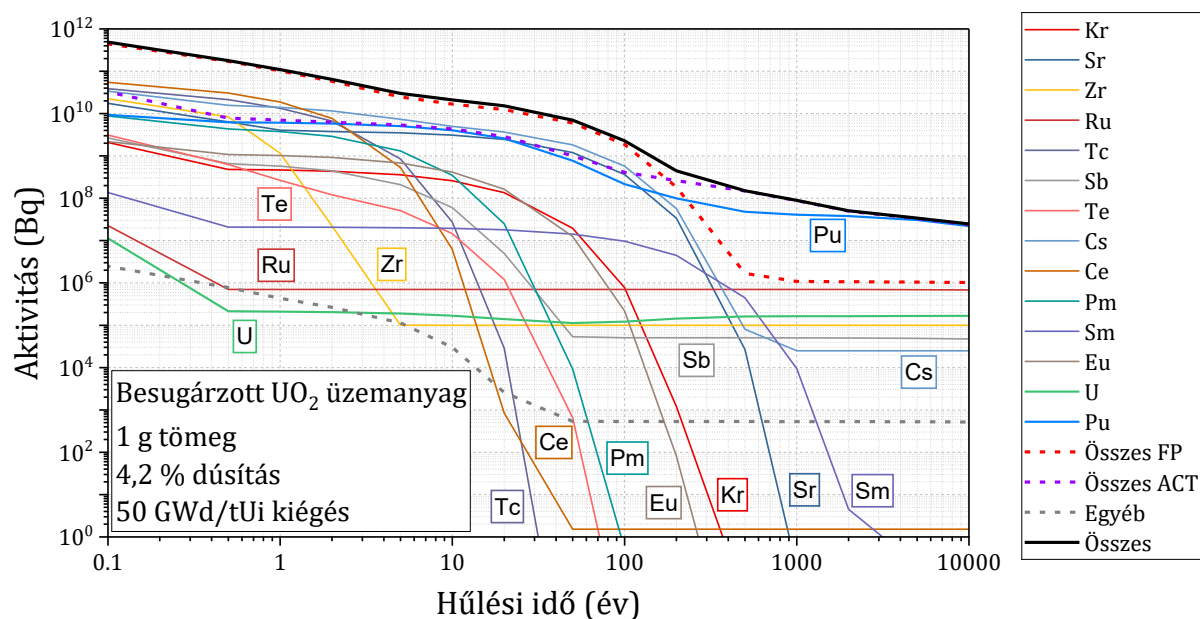
Egy kiégett kazetta fizikai jellemzői a besugárzatlan kezdeti állapotától, valamint az üzemelése során a reaktorban eltöltött idejétől és a zónán belüli pozíciójától függenek. Befolyásoló tényezők még természetesen a reaktor típusa, a fűtőelemkazetta geometriai és anyagi paraméterei és az üzemelés idő- és hely szerinti alakulása is. A kiégett kazetták legfontosabb fizikai paraméterei a kiégés (*BU*), a hűlési idő (*CT*), a kezdeti urándúsítás (*IE*) és a maradék hasadóanyag tartalom, ez utóbbinál az ^{235}U és ^{239}Pu magkoncentrációkat és tömegszázalék mennyiségeket használgják. A paraméterek bővebb leírása az 1.1. táblázatban található. Sugárvédelmi szempontból a hasadási termék radionuklidok és az aktinoidák által képviselt aktivitások számítanak fontos paraméternek.

1.2.1. Radionuklid-összetétel

A friss üzemanyagok elemi- és izotóp-összetétele időben konstansnak tekinthető, ezzel szemben a besugárzás alatt lévő, valamint a kiégett fűtőelemek anyagi összetétele időben jelentős változáson megy keresztül. A magreakciók és radioaktív bomlások következtében egy kiégett fűtőelemben több mint 80 fajta elem és összesen több mint 1500 féle izotóp is jelen lehet, bár ezek nagyobb része a rövid felezési időnek köszönhetően a besugárzás végét követő 1 napon belül elbomlik.

Az egzakt radionuklid összetétel számos változó függvénye, függ többek között a friss üzemanyag anyagi jellemzőitől, a besugárzás teljesítményétől és annak időbeliségétől, valamint az eltelet hűlési időtől. Egy nyomottvizes reaktorban (PWR) üzemelő, 1 g kezdeti urántömegű, 4,2% kezdeti dúsítású és végső állapotában 50 GW_{nap}/t_{Ui} kiégésű üzemanyag aktivitás-idő görbáját szemléleti az 1.2. ábra. A hűlés kezdetén az 1 g-os üzemanyagdarab teljes aktivitása közel 1 TBq, ez az érték nagyjából 1000 év alatt 100 MBq-re csökken. Az aktivitás túlnyomó részét 100-200 év hűlési időig a hasadási termékek – meghatározó mértékben a Sr és Cs izotópok – teszik ki, ezután az aktinoidák dominálnak, élükön a Pu izotópokkal. Az U izotópjai az ábrázolt időtartományban elenyésző részét képezik a kiégett üzemanyag össz-aktivitásának.

A kiégett üzemanyagok aktivitásának időbeli alakulása megfelelően szemlélteti a velük kapcsolatos egyik legnagyobb kihívást: az évezredekken keresztül fennmaradó magas aktivitási szint nagymértékű radioaktív sugárzási és kontaminációs veszélyt jelent.



1.2. ábra: 1 g tömegű, 4,2% kezdeti dúsítású és 50 GWnap/tUi kiégésű besugárzott UO_2 üzemanyag aktivitásának időbeli alakulása a besugárzás befejezésének pillanatától. Az elemek szerinti időgörbék az adott elem összes radionuklidjának össz-aktivitását szemléltetik. Az „Összes FP” adatsor a hasadási termékek, az „Összes ACT” adatsor pedig az aktinoidák aktivitásának összege. Az „Egyéb” adatsor az összes nem hasadási termék és nem aktinoida aktivitását reprezentálja. Az adatok az ORIGEN2 kód PWRUE adatkönyvtárának használatával végzett számításból származnak [2].

1.2.2. Jelentősebb gamma-sugárzó radionuklidok

A kiégett fűtőelemek dóziszárulékának túlnyomó részét a gamma-sugárzó hasadási termékek adják. Az urán és transzurán radionuklidok is bocsátanak ki gamma-fotonokat, azonban ezen izotópok aktivitása a hasadási termékekhez képest eltörpül. A gamma-sugárzás a veszélyein túl a kiégett üzemanyagból érkező jelforrásként is használható, ugyanis energia-szelektív detektálásával fény derülhet a radionuklid összetételre. Ez a vizsgálati módszer azonban a fent említett aktivitásviszonyok miatt csak a hasadási termékekre korlátozódik.

A radioaktív hasadási termékek neutronfeleslegük miatt negatív béta-bomlással alakulnak át egy másik elem azonos tömegszámú izotópjává. A bomlás következtében létre jövő atommag keletkezhet egyik gerjesztett állapotában, de akár alapállapotban is. A magasabb energiaszintű állapotból alacsonyabbra történő átmenet végbe mehet elektromágneses sugárzás kibocsátásával – ez a gamma-sugárzás – és történhet elektron-kibocsátással is, amit belső konverzióknak hívnak. Alapállapotban keletkező atommag esetében a béta-bomlást nem követi gamma-emisszió, ezért az ilyen módon bomló radionuklidok (pl. ^{90}Sr) gamma-sugárzást mérő eszközzel nem detektálhatók. A kiégett fűtőelemekben leginkább mérhető gamma-sugárzó radionuklidok listáját és néhány jellemző adatát az 1.2. táblázat tartalmazza.

1.2. táblázat: Kiegészített fűtőelemekben kimutatható gamma-sugárzó hasadási termékek jellemzői. A zárójelbe tett nuklid az anyamagnál rövidebb felezési idejű bomlásterméket jelöl, aminek a gamma-sugárzása alapján az anyamag detektálható, ilyen esetben a táblázatban szerepelnek a bomlástermék által kibocsátott gamma-fotonok is. A felezési időkre és a gamma-emissziókra vonatkozó adatok az ENSDF adatbázisból származnak [3].

Radionuklid	Felezési idő	Fontosabb kibocsátott gamma-fotonok energiája (keV) és emissziós valószínűsége		Keletkezés módja
⁹¹ Y	58,51 nap	1204,8 (0,3%)		közvetlen
⁹⁵ Zr (⁹⁵ Nb)	64,03 nap (34,991 nap)	724,2 (44,3%) 756,7 (54,4%)	765,8 (99,8%)	közvetlen
¹⁰³ Ru	39,26 nap	497,1 (91%)	610,3 (5,8%)	közvetlen
¹⁰⁶ Ru (¹⁰⁶ Rh)	371,55 nap (30,07 s)	511,9 (20,4%) 616,2 (0,75%) 621,9 (9,9%) 873,5 (0,44%)	1050,4 (1,6%) 1128,1 (0,4%) 1562,3 (0,2%)	közvetlen
^{110m} Ag	249,78 nap	657,8 (95,6%) 706,7 (16,7%) 763,9 (22,6%) 884,7 (75%)	937,5 (35%) 1384,3 (25%) 1505 (13,3%)	aktiváció
¹²⁵ Sb	2,75856 év	427,9 (29,6%) 463,4 (10,5%) 600,6 (17,6%)	606,7 (4,8%) 636 (11,1%) 671,4 (1,8%)	közvetlen
¹³⁴ Cs	2,0652 év	475,4 (1,5%) 563,3 (8,3%) 569,3 (15,4%) 604,7 (97,6%) 795,9 (85,5%)	802 (8,7%) 1038,6 (1%) 1168 (1,8%) 1365,2 (3%)	aktiváció
¹³⁶ Cs	13,01 nap	818,5 (99,7%) 1048,1 (79,8%)	1235,4 (20%)	aktiváció
¹³⁷ Cs	30,08 év	661,7 (85,1%)		közvetlen
¹⁴⁰ Ba (¹⁴⁰ La)	12,753 nap (1,68 nap)	487 (45,5%) 537,3 (24,4%) 751,6 (4,3%) 815,8 (23,3%) 867,8 (5,5%)	919,6 (2,7%) 925,2 (6,9%) 1596,2 (95,4%) 2521,4 (3,5%)	közvetlen
¹⁴⁴ Ce (¹⁴⁴ Pr)	284,89 nap (17,28 min)	696,5 (1,34%) 1489,2 (0,28%)	2185,7 (0,69%)	közvetlen
^{148m} Pm	41,29 nap	599,7 (12,5%) 611,3 (5,5%) 630 (89%)	725,7 (32,8%) 915,3 (17,2%) 1013,8 (20,3%)	aktiváció
¹⁵⁴ Eu	8,601 év	591,8 (4,9%) 692,4 (1,8%) 723,3 (20,1%)	996,6 (10,5%) 1004,8 (18%) 1274,4 (34,8%)	aktiváció

		756,8 (4,5%)	1494,1 (0,7%)	
		873,2 (12,1%)	1596,5 (1,8%)	
¹⁵⁶ Eu	15,19 nap	646,3 (6,3%)	1230,7 (8%)	aktiváció
		723,5 (5,4%)	1242,4 (6,6%)	
		811,8 (9,7%)	1966 (3,9%)	
		1065,1 (4,9%)	2026,7 (3,3%)	
		1079,2 (4,6%)	2097,3 (3,8%)	
		1153,7 (6,8%)	2186,7 (3,5%)	
		1154,1 (4,7%)		
¹⁶⁰ Tb	72,3 nap	879,4 (30,1%)	1178 (14,9%)	aktiváció
		962,3 (9,8%)	1271,9 (7,4%)	
		966,2 (25,1%)	1312,1 (2,9%)	

1.3. Nukleáris biztosítéki felügyelet (*Safeguards*)

Az atommag energiájának hasadás általi felszabadítása történhet szabályozatlan láncreakcióval is, ekkor a hirtelen óriási hőfelszabadulás hatására robbanás következik be. Ezt az effektust alkalmazzák az atomfegyvereknél, melyek az ember által alkotott legpusztítóbb erejű fegyverek. A nukleáris fegyverek elterjedésének megfékezése, azaz a nukleáris non-proliferációra való törekvés, az 1950-es évek óta kulcsfontosságú szerepet játszik az atomenergia békés célú felhasználásnak biztosításában. A békés célú és biztonságos felhasználás elősegítésére 1957-ben megalakult a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség (NAÜ, *IAEA*). 1968-ban megnyitják, majd 1970-ben elfogadják az Atomsorompó szerződést (*NPT*), ami 1995 óta határozatlan ideig meghosszabbított hatályban van. Az *NPT* három alappillére a leszerelés, a non-proliferáció és a békés felhasználás. A leszerelési pillér értelmében minden részes állam köteles a teljeskörű nukleáris fegyver leszerelésre törekedni. A szerződés jogilag megkülönbözteti az atomhatalmakat (*NWS*) és az atomfegyverrel nem rendelkező államokat (*NNWS*). A non-proliferációs törekvések céljából a részes *NWS*-ek nem adhatnak át atomfegyvereket, illetve a fegyverek előállításához szükséges információt *NNWS*-nek, a részes *NNWS*-ek pedig vállalják, hogy nem próbálnak meg atomfegyvert előállítani. Az összes részes állam részesül a NAÜ támogatásában az atomenergia békés célú felhasználását illetően, beleértve az anyagi, technológiai és tudásra vonatkozó szükségleteket [4].

A támogatás nyújtásának feltétele az állam és a NAÜ, illetve egyéb regionális szervezetek, mint például az Euratom, között létrejött Biztosítéki egyezmény, ami az *NNWS*-ek esetében az Átfogó biztosítéki egyezmény (*Comprehensive safeguards agreement, CSA*) megkötését jelenti. A *CSA* értelmében az állam aláveti magát a NAÜ által kivitelezett biztosítéki felügyeleti ellenőrzésnek, ami kiterjed az állam fennhatósága alá tartozó és békés célra alkalmazott összes nukleáris anyagra, berendezésre és létesítményre. Az államnak kötelessége egy saját biztosítéki rendszer kiépítése, amelybe bele tartozik a nukleáris anyagok nyilvántartása és ellenőrzése. A NAÜ által végzett biztosítéki ellenőrzések célja az összes (bejelentett és be nem jelentett) nukleáris anyagokkal végzett tevékenységek felügyelete,

azonban a CSA alapján a be nem jelentett anyagok ellenőrzésére a gyakorlatban nincs lehetősége [4] [5].

NWS-ek önként vállalhatják bizonyos nukleáris létesítményeik biztosítéki ellenőrzését egy másik fajta egyezmény, az állam és a NAÜ közötti Önkéntes felajánlás szerinti biztosítéki egyezmény (*Voluntary agreement offer, VOA*) megkötésével, amely jellemzően a fűtőelem reprocesszáló üzemeket érinti. Egy államnak lehetősége még a NAÜ-vel Tételspecifikus biztosítéki egyezményt kötni, ebben az esetben az egyezményben meghatározott nukleáris anyagok és nem-nukleáris anyagok (pl. nehézvíz), eszközök és létesítmények kerülnek biztosítéki ellenőrzés alá [4] [5].

A NAÜ ellenőrzési jogkörének kiterjesztésére szolgál a CSA-val rendelkező állammal megkötött Kiegészítő Jegyzőkönyv (*Additional Protocol, AP*), aminek tartalmaznia kell a NAÜ-ben megfogalmazott Modell Kiegészítő Jegyzőkönyv összes előírását. Az AP további jogosultságokat ad az ellenőröknek, növelve ezzel a biztosítéki rendszer eredményességét. A Kiegészítő Jegyzőkönyv szerinti ellenőrzés (*complementary access*) lehetővé teszi a nukleáris létesítmények bejárásán túl az ezekhez kapcsolódó létesítményekben vagy más telephelyeken (pl. uránbánya) végzett ellenőrzéseket is annak érdekében, hogy fény derüljön a be nem jelentett tevékenységekre. Az ellenőrök a Kiegészítő Jegyzőkönyv szerinti ellenőrzés során használhatnak sugárzásmérő detektorokat, mintát vehetnek, valamint ellenőrizhetik az anyagnyilvántartásokat és az azonosító eszközök helyességét és sértetlenségét [4] [5].

1.3.1. Kiegett fűtőelemek biztosítéki ellenőrzése

A biztosítéki rendszer legfőbb célja a fegyverkezési célú nukleáris tevékenység minél előbbi észlelése. A két legfontosabb mérőszám, amik a különböző nukleáris anyagok fegyverkezési célú használatának potenciálját írják le, a szignifikáns mennyiség (*significant quantity, SQ*), a konverziós idő (*conversion time*) és az észlelési idő (*detection time*). A szignifikáns mennyiség az az anyagmennyiség egy adott anyagból, ami már elegendő lehet nukleáris fegyver előállításához. A konverziós idő egy adott anyag nukleáris fegyverhez használható fém formába alakításához jellemzően szükséges idő. Az észlelési idő a biztosítéki tevékenységek gyakoriságának megtervezésében játszik szerepet, ennyi idő szükséges a fegyverkészítéshez vezető úton egy fő lépés megtételéhez. A besugárzott és a kiegett üzemanyagok észlelési idejét 1-3 hónapra becsülik, a bennük található Pu és LEU szignifikáns mennyiségei pedig rendre 8 kg és 75 kg ^{235}U [4] [5].

Az ellenőrzés módszereit túlnyomó részt roncsolásmentes technikák (*non-destructive assay, NDA*) alkotják, ezeket kiegészítheti néhány roncsolásos mérés (*destructive assay, DA*) is, azonban ez utóbbi módszerek a kiegett fűtőelem feldolgozását igénylik. A roncsolásmentes módszerek a fűtőelem anyagának ionizáló- és nemionizáló sugárzásának mérésén alapulnak. Az ionizáló sugárzások ebben az esetben gamma- és neutronsugárzásokat jelentenek, a nemionizáló sugárzás pedig a vízbeli fénysebességnél gyorsabban haladó elektronok keltette, a kék színtartományban is látható elektromágneses sugárzás – a Cserenkov-sugárzás [6].

Cserenkov-sugárzás megfigyelésén keresztül igazolható a kiégett üzemanyag jelenléte, amennyiben a kazettát egy vízzel teli és jól átlátható pihentető medencében tárolják. Erre a célra kétfajta szabványosított eszközt alkalmaznak: a kézi *ICVD*-t (*Improved Cherenkov Viewing Device*) és a *DCVD*-t (*Digital Cherenkov Viewing Device*). Az *ICVD* elegendő a legalább közepes mértékben kiégett és rövidebb ideje pihenő üzemanyagok ellenőrzésére, azonban kis kiégésű és hosszabb ideje pihenő üzemanyagok esetében már a nagyérzékenységű *DCVD*-t kell alkalmazni. Rossz láthatósági viszonyoknál, illetve betokozott üzemanyagok esetén a Cserenkov-detektálás nem kivitelezhető [6].

A kiégett üzemanyagokban jelen lévő spontán hasadó atommagok (pl. ^{242}Cm és ^{244}Cm) következtében a neutronsugárzás mérése is lehetőséget ad biztosítéki ellenőrzésre. A neutronmérő rendszert az üzemanyagkazetta közelébe kell elhelyezni a neutronok vízen belüli rövid szabadúthossza miatt. A gyakorlatban alkalmazott detektortípusok a hasadási kamrák és ^3He gáztöltésű csövek. A mérési technika szerint léteznek össz-neutron mérő rendszerek, mint például a *Fork* detektor rendszerben (*FDET*) elhelyezett neutrontetektorok, neutron koincidenca számlálásra alkalmas gyűrűk, amikkel a hasadási neutronok egyidejű detektálása valósítható meg, valamint a passzív neutron albedó reaktivitási (*PNAR*) arány meghatározására alkalmazott integrált rendszerek [6] [7].

A hasadási termékek intenzív gamma-sugárzása miatt adott geometriában elvégzett össz-gamma mérés, továbbá gamma-spektrometriai vizsgálat is lehetőséget ad kiégett fűtőelemek azonosítására. A *Fork* detektor rendszerben a neutrontetektorok mellett helyet kap két össz-gamma mérésre alkalmas Si dióda és egy közepes felbontású kadmium-cink-tellúrid (*CZT*) gamma-spektrométer. *Fork* detektorral különféle geometriájú üzemanyagkazetták ellenőrizhetők, a kazetta víz alatt a detektor villájába mozgatható, függőleges irányú mozgatással és tengely körüli forgatással pedig pásztázható. Gyors, pihentető medencén belüli ellenőrzésre használják az *SFAT* (*Spent fuel attribute tester*) rendszert, amiben egy *CZT* detektort helyeznek el. Az *SFAT* szerkezetileg a detektor egységből, valamint annak vízhatlan burkolatából és bővíthető, levegővel töltött kollimátor csövekből áll. A detektort a vizsgálni kívánt üzemanyag fölé pozicionálva annak a levegő kollimátoron keresztül érkező gamma-sugárzása mérhető, míg a szomszédos kazettákból kibocsátott sugárzást a medence vize elnyeli [6]. Nagyfelbontású gamma-spektrométert, azaz *HPGe* (*High purity germanium*) detektort biztosítéki ellenőrzésre jelenleg ritkán alkalmaznak, azonban egy ilyen portábilis egységgel és kellően vastag árnyékolás mögül mérve nyerhető ki a legprecízebb spektrális információ. Azonban – az 1.2. ábra időgörbéi alapján – nagyjából 100 év hűlési időig még *HPGe* detektorral mért kiégett fűtőelem gamma-spektrumokban sem mutatható ki sem az urán, sem pedig a plutónium izotópok jelenléte.

A hasadóanyag, illetve a hasadási termékek jelenlétének igazolásával az ellenőr megállapíthatja, hogy az ellenőrzött tétel valóban kiégett üzemanyag. Ahhoz azonban, hogy egy adott tételre igazolja az operátor állítását annak nukleáris anyag mennyiségéről, mindenképpen szükséges a fűtőelem paramétereinek (1.1. táblázat) mérése. Erre a célra a jelenlegi technikákat kihasználva is csak korlátozott mértékben alkalmazhatók a neutron- és gamma-spektrometriai mérések.

Az értekezés további részeiben kizárólag a gamma-spektrometriai vizsgálatokról, mint a témához választott mérési módszerről lesz szó. A munka egyik fő célja, hogy a gamma-spektrometriai méréstechnikával gyűjthető adatokból minél több paramétert és a lehetőségekhez mérten ezeket minél pontosabban lehessen mérni.

1.4. Nukleáris törvényszéki analitika

A kiégett fűtőelemek karakterizációjának egy másik alkalmazási területe egy bűnügyi eljárás részeként elvégzett vizsgálat. Azokat a radioaktív vagy nukleáris anyagokat, melyek összefüggésbe hozhatók egy bűnténnyel – például egy bűnügyi helyszínen jelen vannak – nukleáris törvényszéki analitikai (*Nuclear Forensics*) eljárásnak kell alávetni. Egy ilyen eljárás során a vizsgálatot végző szakértőknek olyan, a nyomozás szempontjából kulcsfontosságú kérdésekre kell választ adniuk, mint az anyag mivolta, eredete (gyártási helyszín és idő) és a felhasználásának célja [8]. Ennek érdekében számos fajta mérési módszert alkalmaznak, amik eredményeként különböző anyagi paraméterek határozhatók meg, mint például az izotópösszetétel, az anyag kora, szennyező anyagok jelenléte és a fizikai méretei, valamint az anyag morfológiája. Fontos felismerni, hogy a nukleáris törvényszéki analitikában minden anyagra jellemző paramétert mérés útján határoznak, ezek valós vagy referencia értéki pedig ismeretlenek. Továbbá, mivel a nukleáris törvényszéki analitika egy bűnügyi nyomozás részét képezi, ezért a különböző nukleáris és radioaktív tulajdonságokon kívül ugyanolyan fontos a „hagyományos” bűnjelek (pl. újnyomatok, DNS) rögzítése és elemzése.

Nukleáris törvényszéki analitikai szempontból a nukleáris biztosítéki ellenőrzésekkel ellentétben kiégett üzemanyagoknál érdemes kisebb anyagmennyiségre fókuszálni, ugyanis egy teljes kiégett kazetta bűnügyi helyszínen való megtalálása egy igen valószínűtlen szcenárió. Helyette sokkal inkább elképzelhető, hogy a helyszínen a nyomozók egy reprocesszáló üzemből eltulajdonított kisebb darabot vagy feloldott anyagot találnak. Kiégett üzemanyag esetében a mérendő vagy meghatározandó nukleáris paraméterek megegyeznek a 1.1. táblázatban szereplőkkel. A hűlési idő minél pontosabb kimérése itt kiemelt szerepet kap, mivel ez alapján lehet következtetni egyrészt az anyag korára (a hűlési idővel azonos), másrészt a kezdeti nuklidösszetételre, harmadrészt pedig arra, hogy a leállási dátumok ismeretében melyik reaktorban/erőműben használták.

1.5. Gamma-spektrometria

A gamma-spektrometria a roncsolásmentes anyagösszetétel vizsgálatok egy fajtája, mely egy vagy több minta, illetve a környezet saját és indukált gamma-sugárzásának mérésén alapul. Ilyen vizsgálatoknál specializált mérőműszereket alkalmaznak, amik képesek a gamma-fotonok műszeren belüli energialeadása révén egy energiaspektrumot szolgáltatni az őket érő sugárzási térről. Ilyen detektorok a szcintillációs elven működő NaI(Tl) és LaBr₃, valamint a félvezető kristályt tartalmazó HPGe és CZT. A különböző detektortípusok sajátos tulajdonságai alkalmassá teszik őket egyes mérési feladatokra, például a LaBr₃-ok nagy intenzitású terekben

($\sim 10^5$ cps számlálási sebesség) is működőképesek, míg a HPGe-k kiemelkedően jó energiefelbontása a legprecízebb izotópelemzést és aktivitásszámítást teszi lehetővé.

A detektálás fizikai alapját a gamma-fotonok és a detektoranyag közötti kölcsönhatások adják, ezek a fotoeffektus, a Compton-szórás és a párkeltés. Mindhárom kölcsönhatás egy darab elektron keltésével jár, amiből annak ionizációs hatása miatt nagyszámú másodlagos töltött részecske képződik. Az egy foton detektorral való kölcsönhatásából keletkező töltött részek száma arányos a foton energialeadásával. A detektorrendszerrel egyedi eseményeket, vagyis beütéseket regisztrálunk, ezeket a leadott energia nagysága szerint pedig adott energiaintervallumnak megfelelő rekeszekbe gyűjtjük. A beütéseket energia szerinti hisztogramja a detektor válaszfüggvénye, amit energiaspektrumnak nevezünk.

A gamma-spektrumokból kinyerhető legértékesebb információt a teljesenergia- vagy más néven fotocsúcsok hordozzák, amiket általában csak gamma-csúcsoknak neveznek. A fotocsúcs centrumához rendelt energia jelöli a kibocsátott gamma-részecske energiáját, az alapvonal feletti összeterülete pedig arányos a radioaktív nuklid aktivitásával, vagy magreakció okozta emisszió esetén a reakciósebességgel. A spektrumban előfordulhatnak olyan csúcsok is, melyek nem fotocsúcsok, hanem szórási, annihilációs, vagy összegződési események termékei, ezekből a csúcsokból nem állapítható meg egyértelműen az őket létrehozó fotonok energiája vagy a forrásuk aktivitása. Aktivitásszámításhoz az általános esetben az (1.1) egyenlet alkalmazható, ahol A a keresett izotópspecifikus aktivitás a mérés kezdetének időpontjában, E_γ a gamma-csúcs centrumának energiája (ami megegyezik a fotonenergiával), N a gamma-csúcsból kiszámolt össz-beütésszám, t_{live} a mérés élő (holtidővel korrigált) ideje, ε a teljesenergia-csúcsra érvényes abszolút detektálási hatásfok, p_γ az izotópra és E_γ -ra jellemző emissziós valószínűség, t_{real} a mérés valódi eltelt ideje és $T_{1/2}$ a bomló izotóp felezési ideje. A $t_{\text{real}} \ll T_{1/2}$ szélső esetben (ami a kiegészített kazetták mérésére jellemzően teljesül) a mérés alatt bekövetkező bomlások korrekciós tagja elhanyagolható, így megkapjuk az egyszerűsített (1.2) egyenletet.

$$A = \frac{N(E_\gamma)}{t_{\text{live}} \varepsilon(E_\gamma) p_\gamma(E_\gamma)} \frac{\ln 2 \ t_{\text{real}}/T_{1/2}}{(1 - 2^{-t_{\text{real}}/T_{1/2}})} \quad (1.1)$$

$$A = \frac{N(E_\gamma)}{t_{\text{live}} \varepsilon(E_\gamma) p_\gamma(E_\gamma)} \quad (1.2)$$

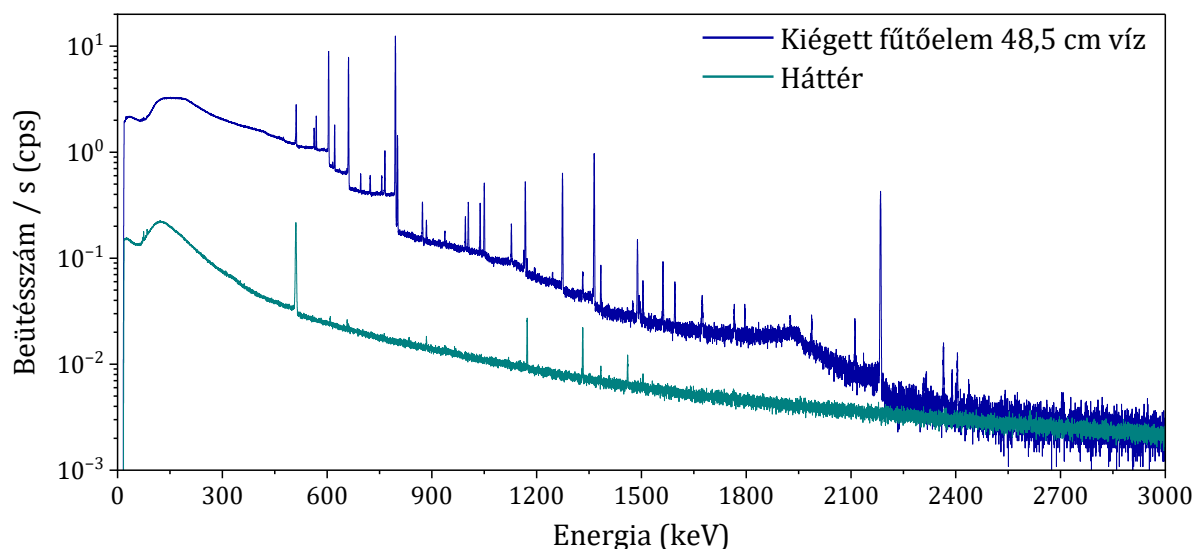
Az (1.1) és (1.2) formulák az egyetlen csúcsból számított aktivitásértéket adják meg, a több mérhető gamma-fotont produkáló forrásokra az aktivitás várható értéke a csúcsokból számított aktivitások átlagolásával becsülhető meg. A mérési idő és az emissziós valószínűség (ismert radionuklid esetén) meghatározása triviális, az előbbi a mérőrendszer adataiból leolvasható, az utóbbi pedig a megfelelő nukleáris adatbázisok alkalmazásával kikereshető érték. A beütésszám kiszámítása spektrumértékelő szoftverrel történik, amely a gamma-csúcsra Gauss-függvényt illeszt és az integrálját numerikus úton határozza meg. A képletben szereplő mennyiségek közül az energiától és a mérési elrendezéstől, mintától és detektortól is függő hatásfok meghatározása igényli a legtöbb munkát, adott energiára érvényes értéke hitelesített aktivitású referencia

sugárforrások, vagy elméleti úton, részecsketranszport számítások és szimulációk alkalmazásával kapható meg.

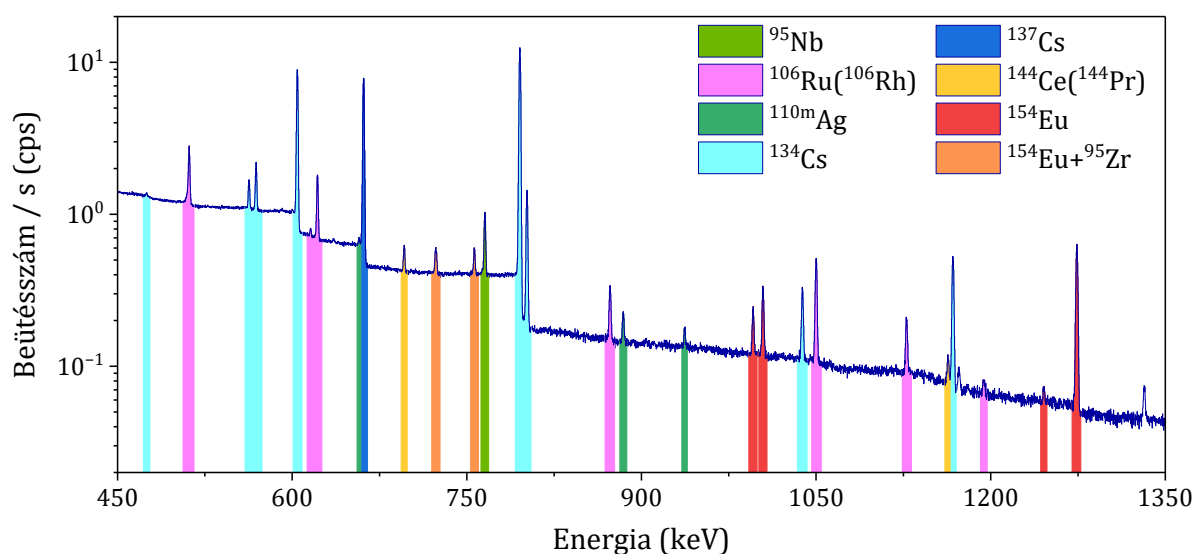
1.5.1. Kiégett üzemanyagok gamma-spektruma

Az elhasznált nukleáris fűtőelemek gamma-spektrumai a bennük azonosítható nuklidok szempontjából jellegzetesek, az 1.2. táblázatban felsorolt izotópok gamma-csúcsait – vagy azok egy részét – tartalmazzák. A felvett spektrum alakja döntően a hűlési időtől és a mérési elrendezésben alkalmazott detektor típusától, valamint az árnyékoló anyagoktól függ, de ezeken kívül befolyásolja még a fűtőelem kiégési szintje is. A rövidebb felezési idejű nuklidok (^{91}Y , ^{103}Ru , ^{136}Cs , ^{140}Ba , $^{148\text{m}}\text{Pm}$, ^{156}Eu és ^{160}Tb) lefeljebb fél év hűlési ideig mutathatók ki, a 30 éves felezési idejű ^{137}Cs azonban minden esetben mérhető jelet ad. Az árnyékoló anyag lehet a kazetták hűtésére is szolgáló víz, illetve a detektor irányában elhelyezett acél, ólom, beton stb. árnyékoló elemek. Az árnyékolók hatása leginkább a spektrum 400 keV-nél alacsonyabb tartományában látszik, mivel ezeken az energiákon az eleve ritkán kisugárzott fotonok gyakorlatilag teljesen eltűnnek a spektrumból. A kiégés növekedésével arányaiban megnő az közvetett hasadási termékek mennyisége a közvetlen hasadási termékekhez képest, ezért a belőlük származó gamma-csúcsok is jelentősebb részét teszik ki a spektrumnak.

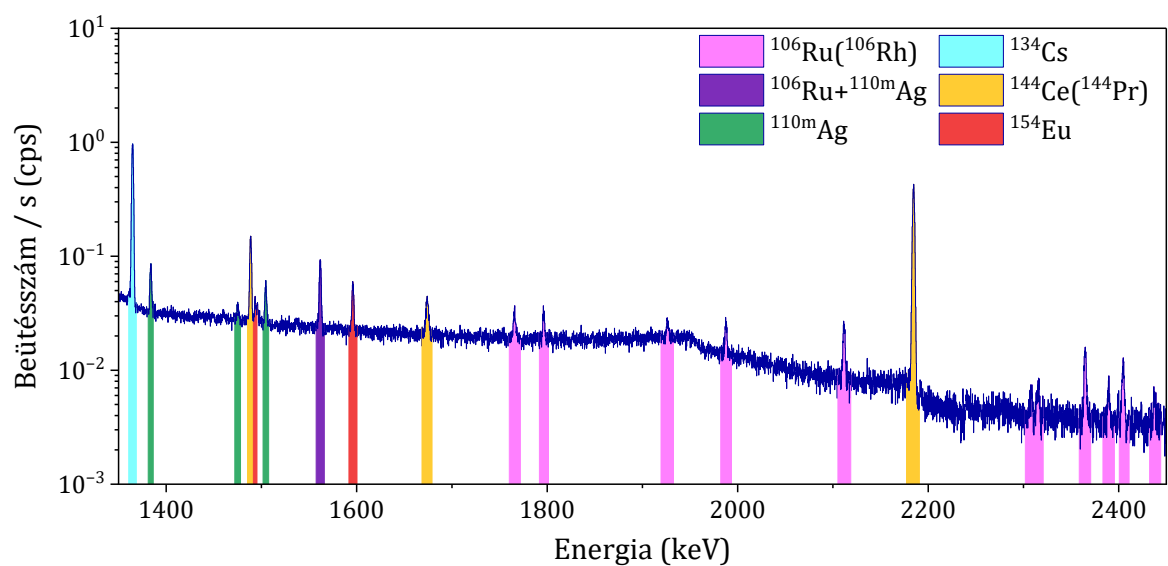
Példaként egy a Paksi Atomerőműben tárolt kiégett üzemanyag kazetta mért gamma-spektruma látható az 1.3. ábrán. A kazetta kiégési szintje a mérési magasságon 51 GWnap/tUi, a hűlési ideje a mérés időpontjában 16 hónap volt. A HPGe detektor irányában 48,5 cm vastag vízréteg volt a kazetta közelebbi köpenye és a tároló akna fala között, a teljes távolság a detektor és a kazetta köpenyének felülete között hozzávetőleg 178 cm volt. A háttérspektrumban négy darab jellegzetes gamma-csúcs azonosítható: (1) 511 keV energián az elektron-pozitron annihilációs fotonok csúcsa, (2) 1173,2 keV és (3) 1332,5 keV energiákon a ^{60}Co szerkezeti aktivációs termék két gamma-csúcsa és (4) 1460,8 keV energián a ^{40}K primordiális, a természetes háttérsugárzás részét képező radionuklid gamma-csúcsa. A kiégett fűtőelem spektrumában jelentkező hasadási termék gamma-csúcsokat a spektrum két részletében az 1.4. és 1.5. ábrák mutatják be. A legjelentősebb hozzájárulást 16 hónap hűlési időnél a ^{137}Cs és ^{134}Cs izotópok adják, ezeket az ^{154}Eu , ^{106}Ru és ^{144}Ce izotópok követik. A grafikonokon megfigyelhető néhány fontos csúcsinterferencia. 723-724 keV és 756,8 keV energiákon az ^{154}Eu és ^{95}Zr nuklidok kibocsátott fotonjai összegződnek, ami miatt a csúcsterületek szétválasztása nélkül a ^{95}Zr közvetlenül nem értékelhető ki. Egy másik megfigyelhető interferencia áll fenn 1562,3 keV-en a ^{106}Ru (^{106}Rh) és az $^{110\text{m}}\text{Ag}$ izotópok csúcsai között. Rövidebb hűlési idejű üzemanyag esetén az itt bemutatott példákon kívül több más csúcsinterferencia is lehetséges.



1.3. ábra: 48,5 cm vízzel árnyékolt kiégett üzemanyag gamma-spektruma koaxiális típusú HPGe detektorral mérve, logaritmusos beütésszám skálán megjelenítve. Az adatok a Paksi Atomerőmű egyik 16 hónap hűlési idejű kiégett kazettájának méréséből, valamint ugyanazon helyszínen elvégzett háttérmérésből származnak.



1.4. ábra: 16 hónap hűlési idejű, 48,5 cm vízzel árnyékolt kiégett fűtőelem köteg HPGe detektorral rögzített gamma-spektrumának 1. részlete. A 450-1350 keV energia-intervallumban azonosítható hasadási termék gamma-csúcsok izotóponként külön színnel jelölve láthatók. A két jelöletlen csúcsot 1173 és 1332 keV energián a háttérből származó ^{60}Co gamma-emissziók okozzák.



1.5. ábra: 16 hónap hűlési idejű, 48,5 cm vízzel árnyékolt kiegészített fűtőelem köteg HPGe detektorral rögzített gamma-spektrumának 2. részlete. Az 1350-2450 keV energia-intervallumban azonosítható hasadási termék gamma-csúcsok izotóponként külön színnel jelölve láthatók.

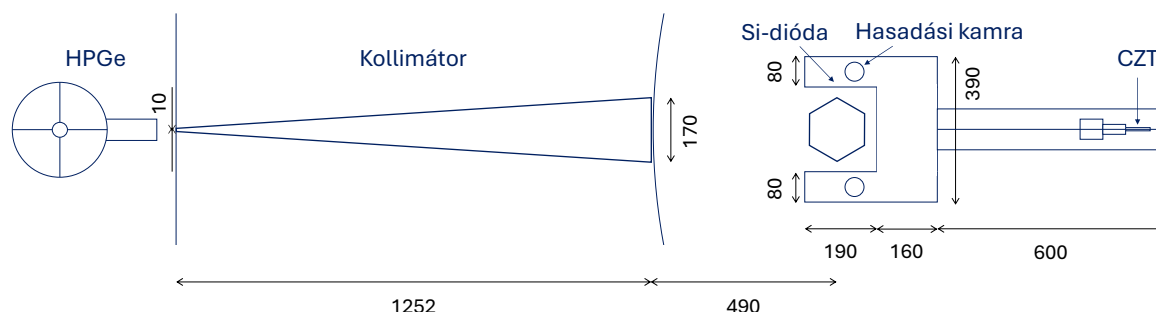
2. KIÉGETT FŰTŐELEMÉK GAMMA-SPEKTROMETRIAI MÉRÉSE

A jelen értekezésben felhasznált kísérleti adatok túlnyomó része a Paksi Atomerőmű Zrt-ben több éven keresztül végzett, kiégett fűtőelem kötegek gamma-spektrometriai méréséből származik. Ebből következően az értekezés második fejezete teljes egészében a mért fűtőelemeket, a mérések helyszínét és azok elrendezését részletezi. A kiégett fűtőelemek mérését a Paksi Atomerőmű Zrt. felkérésére a HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont végzi, illetve korábban az intézet jogelődjei végezték.

2.1. Történeti áttekintés, a mérések célja

A 2003-as súlyos üzemzavart követően biztosítéki célból felmerült a betokozott sérült üzemanyagok és törmelékük hasadóanyag-tartalmának megmérése, amit az MTA Izotópkutató Intézet, Sugárbiztonsági Osztály (IKI SBO) vállalt el. 2006-ban ép kiégett kazettákon tesztelték a kifejlesztett detektorrendszert, ezt követően 2007-ben elsőként további próbaméréseket végeztek, majd később a sérült üzemanyagok tokjainak mérésére is sor került. A tokok mérése 2007 novembertől 2008 január végéig zajlott.

A mérések helyszíne az Atomerőmű 1. kiépítésének főépületében, azon belül a 2-es blokkhoz tartozó 1. számú aknában volt. A vízzel teli szerelőaknába az átrakógép segítségével mozgattak és tartottak pozícióban fűtőelemeket, illetve zárt tokokat. A hasadóanyag-tartalom mérését két detektorrendszerrel hajtották végre (2.1. ábra). Az egyik egy saját fejlesztésű Fork detektor volt, ami középen egy kollimált CZT típusú gamma-spektrométert, a karjaiban pedig két-két Si-diódát és hasadási kamrát tartalmazott, az előbbiekkal össz-gamma dózisteljesítményt, az utóbbiakkal pedig neutronszámlálást megvalósítva. A Fork detektort vízbe eresztve egy üzemanyagkazetta vagy hermetikus tok két kar közé pozícionálva volt mérhető. A másik mérőeszköz egy koaxiális HPGe gamma-spektrométer volt, amit a Fork detektorral szemben, az akna falába beépített kollimátor kilépő ablaka mögé helyeztek el.



2.1. ábra: A sérült üzemanyagot tartalmazó tokok méréseinek zárójelentése alapján reprodukált mérési geometria méretarányos felülnézeti rajza. A Fork detektor (jobb oldalon) két karja között egy hatszögletű fűtőelem külső határoló felületei láthatók. A feltüntetett méretek mm-ben értendők.

A kiégett fűtőelemekkel elvégzett kalibrációs mérésorozat során a kazettákról több különböző szögállásban is felvettek spektrumokat. Az eredményeikből megállapították, hogy nem szükséges mind a hat oldalt mérni, hanem elegendő három egymással 120°-os szöget bezáró oldalt a HPGe, illetve CZT detektor irányába fordítva rögzíteni a spektrumokat.

A sérült üzemanyagot tartalmazó tokok mérésénél megszerzett tapasztalatok alapján 2010-ben elindult egy új projekt az IKI SBO-n, ami már kifejezetten a kiégett fűtőelemek mérését célozta meg. Az Atomerőmű reaktorfizikusai kísérleti úton akarták felmérni a C-PORCA nevű nodális diffúziós kóddal végzett kiégés-számításaik pontosságát [9]. A koncepció szerint a kiválasztott kazettákat HPGe detektorral mérve kiszámítható a ^{134}Cs és a ^{137}Cs izotópok aktivitásnak aránya, ami elméletben arányos a kiégési szinttel. A reaktorfizikusok által használt kódot kiegészítve egy, a cézium izotópok keletkezését, átalakulását és bomlását kezelő modullal képesek voltak az adott kazettákra meghatározni a várt $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányokat. A mért és a számított aktivitásarányok pontos egyezése esetén a kiégés és a hasadóanyag-tartalom számítása is pontosnak minősülne. A kiválasztott kazetták az 1-es reaktorból származtak, összesen 28 darabot mértek meg, azonban ezek közül a reaktor hatszögletű szektor-szimmetriáját figyelembe véve csak nyolc rendelkezett egyedi üzemeltetési történettel. A méréseket az SBO tagjai az 1-es blokki 1. számú aknában 2010 októberében hajtották végre. A munka jelentős eredményei közé tartozott a kazetták oldal szerinti kiégési aszimmetria észlelése: hat darab, azonos üzemeltetési történetű, de más-más szektorokban használt kazettánál mindig a zóna közepe felé néző oldalak méréséből adódott az oldalak közötti legnagyobb $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány. Végeredményben a mért aktivitásarányok mindössze átlagosan +1,5%-kal tértek el a számított értékektől. 2013-ban megjelent C. T. Nguyen és az MTA EK SBL-en dolgozó munkatársainak cikke, amelyben összefoglalják a kiégett fűtőelem mérések elvét, gyakorlati megvalósítását és részben a fentiekben is említett eredményeit [10].

A 2007/2008 és a 2010-es mérések sikereit követve 2010-et követve egészen a jelen időig néhány kivételtől eltekintve minden évben évente egyszer sor került újabb kiégett üzemanyagok mérésére. Mára elmondható, hogy a Paksi Atomerőmű mind a négy blokkjában használt üzemanyagokról vannak mérési adatok. A 2025-ös évi mérésekkel bezárólag összesen 160 darab egyedi kazetta vizsgálata történt meg, amiknek a nagyja üzemelési történetében, kiégési szintjében és méréskori hűlési idejében különbözik és együttesen széles paraméter-tartományt fednek le.

2.2. A mérés helyszíne, az elrendezés elemeinek részletezése

A 2010-2025 között elvégzett kiégett fűtőelem mérések elrendezése alapvetően a 2.1. ábrán bemutatott sémát követi, azonban ezeknél a méréseknél a Fork detektor nem került alkalmazásra. A következő alfejezetekben a mérési elrendezés egyes elemeit, vagyis az üzemanyag kazetta, az 1. számú akna és a falába beépített kollimátor, valamint a HPGe detektor kerül bemutatásra.

2.2.1. A Paksi Atomerőműben használt VVER-440 üzemanyagkazetták

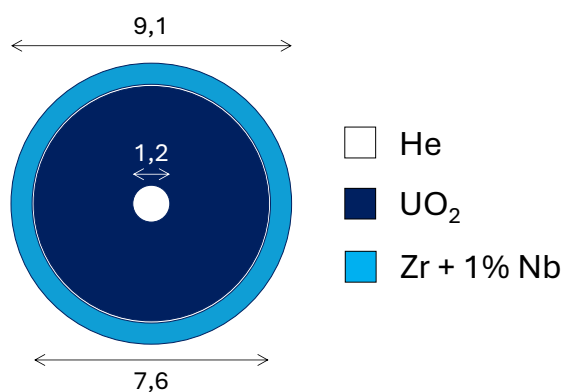
A vizsgálatok tárgyát képező kiégett üzemanyagok geometriai felépítése a jelen munkában – pontosabb ismeretek híján – ekvivalensnek feltételezett a kazetta besugárzás előtti „friss” állapotának geometriájával. Ez a feltételezés elhanyagolja az urántabletták üzem közbeni deformációját és a burkolatok méretváltozásait, továbbá az anyagi összetétel módosulásával sem számol.

Az üzemanyagkazettáknak a kialakításukat tekintve két nagy csoportja létezik: az „RK” jelzésű munkakazetták és az „ARK” jelzésű szabályozó és biztonságvédelmi (SZBV) kötegek üzemanyag részei. A két csoport közötti meghatározó különbségek az eltérő magasságok és a zónán belül az SZBV kötegek számára fenntartott pozíciók, ahová csak ARK-k kerülhetnek. Az eltérő magasság különböző töltet magasságot is jelent, ami miatt a friss ARK-k az RK-knál kevesebb uránt tartalmaznak. Az évek során az üzemanyag konstrukciója többször is módosult az eredeti gyártmányhoz képest, ami néhány méret esetében – például az üzemanyag rácsosztása és a töltet teljes magassága – kismértékű változást okozott. Ezek a módosulások a jelen mérés szempontjából elhanyagolhatók, az itt feltüntetett méretek a modernizált, gadolínium kiéggő mérget tartalmazó kazettákra érvényesek [11].

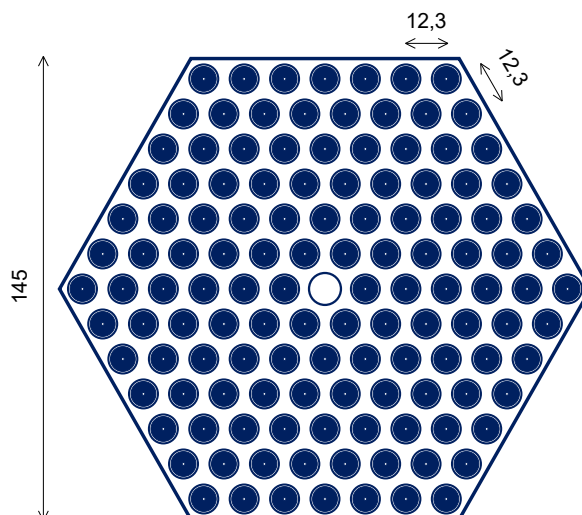
Az üzemanyag legkisebb részegysége az uránpasztilla, ami egy 10-12 mm magasságú és 7,6 mm átmérőjű, közepén furatos UO_2 henger. A pasztillában alacsony dúsítású urán található, amely a régebbi gyártmányú kazettáknál 1,6-3,6 wt% ^{235}U dúsítást, újabban pedig 3,6-4,95 wt% ^{235}U dúsítást jelent. Az üzemanyag pasztillákat az alján és a tetején lezárt pálcákba töltik be, a pálcák felső részében a pasztillákat rugó szorítja a pálca aljához. A pálcaburkolat anyaga $\text{Zr}+1\%\text{Nb}$ ötvözet, külső átmérőjük 9,1 mm (2.2 ábra). A pálcaburkolat belső határa és a pasztillák között, valamint a furaton belül He gázzal való kitöltést alkalmaznak. Bizonyos pálcákban a pasztillák az UO_2 mellett Gd_2O_3 kiéggő mérget is tartalmaznak, melyek rendeltetése a kampány elején lekötött reaktivitás révén a hosszabb üzemelési idő biztosítása. Egy pálca a magasság mentén mm-enként átlagosan $0,46 \pm 0,007$ g UO_2 üzemanyagot tartalmaz. Az üzemanyagpálcákat 12,3 mm rácsosztású hatszögrácsba rendezik (2.3. ábra), ezt a szerkezetet a kazetta számos magassági pontjában található távtartórácsok fogják össze. A pálcák és az urántöltet teljes magassága az RK és ARK típusoknál eltérő, értékeiket a 2.1. táblázat tartalmazza, az RK típus kazettaszerkezetének oldalnézeti metszete pedig a 2.4. ábrán látható. Az üzemanyagrácsot összesen 126 darab pálca alkotja, a középső pozícióban egy felülről nyitott üres cső helyezkedik el, ami lehetőséget ad zónán belüli neutrondetektorok alkalmazására. A teljes kazettaszerkezetet felülről a fejrész, alulról a lábrész, oldalról pedig a köpeny fogja össze. A köpeny anyaga $\text{Zr}+2,5\%\text{Nb}$ ötvözet, vastagsága 1,5 mm.

2.1. táblázat: Az RK és ARK típusú üzemanyagkazetták fontosabb geometriai paraméterei.

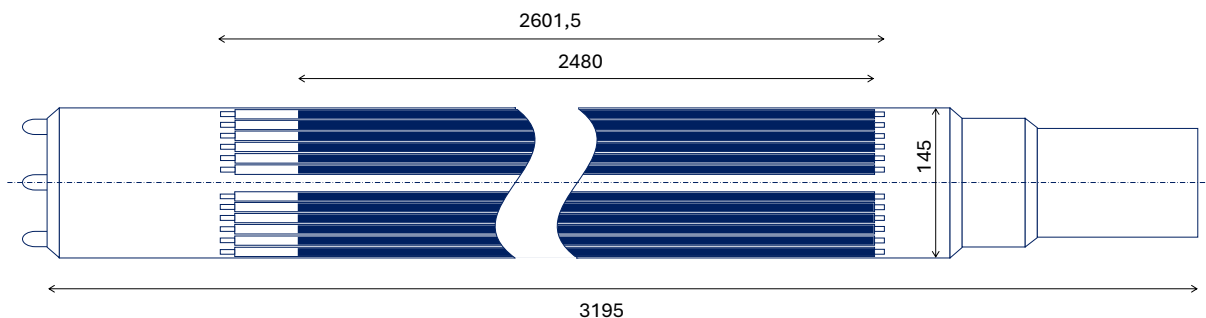
	RK	ARK
Kazetta teljes magasság	3195 mm	3200 mm
Üzemanyag pálca magasság	2601,5 mm	2540 mm
Urántöltet magasság	2480 mm	2360 mm
Uránpasztilla átmérő	7,6 mm	7,6 mm
Uránpasztilla furat átmérő	1,2 mm	1,2 mm
Pálcán belüli gázrész vastagság	0,13 mm	0,13 mm
Pálcaburkolat belső átmérő	7,73 mm	7,73 mm
Pálcaburkolat külső átmérő	9,1 mm	9,1 mm
Üzemanyag rácsosztás	12,3 mm	12,3 mm
Kazetta köpeny vastagság	1,5 mm	1,5 mm
Kazetta köpeny külső kulcsméret	145 mm	145 mm



2.2. ábra: A friss állapotú üzemanyagpálca felülnézeti keresztmetszeti rajza. A méretek mm-ben értendők.



2.3. ábra: Az RK és ARK típusú kazettákra egyaránt érvényes, a hatszögrácsa rendezett urántöltet elhelyezkedését mutató felülnézeti keresztmetszet. A méretek mm-ben értendők, a távtartórács nincs ábrázolva.



2.4. ábra: A 147010 típusú munkakazetta vázlatos szerkezete oldalnézetből a kazetta keresztmetszetének középvonalában, a bal szélén a fejrész, a jobb szélén pedig a lábrész látható. A központi cső és a távtartórácsok, valamint ezek mellett számos más szerkezeti elem és méreteik nincsenek bejelölve. A beszínezett rész az üzemanyag-töltetet reprezentálja. A feltüntetett méretek mm-ben értendők.

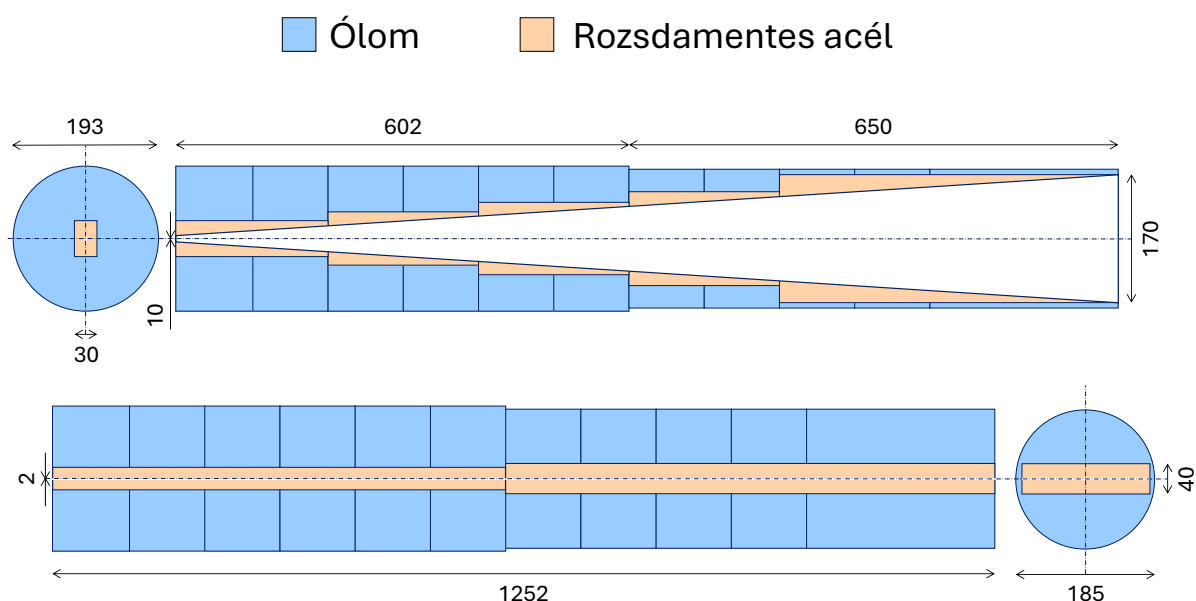
A 2010-től kezdődő mérések során a kazetták minden esetben az egyik lapjukkal a detektor felé mutató irányra merőleges helyzetben álltak. Ez az elrendezés lehetővé teszi az első pálcasor – ami a detektorhoz legközelebb eső hét pálcá – mellett a második sor számára is, hogy a belőlük kiinduló fotonok az üzemanyagban minimális gyengítést szenvedjenek el. Az összes többi, az előbbieket mögött elhelyezkedő pálcából (a detektor felé néző oldal melletti oldalak legkülső pálcáinak kivételével) származó gamma-sugárzás a detektorba csak az erősen elnyelő UO_2 -n keresztülhaladva juthat el. Mindezekből következően világosan látszik, hogy a pálcák eltérő hozzájárulást adnak a detektorral regisztrált beütésekhez, amit az egyes pálcák súlyfüggvényével írható le. A hozzájárulás mértéke erősen függ a gamma-energiától, nagyobb energiáknál a detektortól messzebb található pálcák relatív hozzájárulása megnő. Az egy kazettán belüli pálcák zónán, illetve kazettán belüli elhelyezkedése, valamint az eltérő kezdeti dúsításuk miatt a végső pálcaszintű kiégésük is különbözni fog. Egyetlen mérésből kapott gamma-spektrum azonban nem jellemző a kazetta adott magassági pontjára érvényes átlag kiégésre, mivel a pálcák súlyfaktorai befolyásolják a mérési eredményt. Ezt az effektust kiküszöbölendő az összes kazettát több forgatási helyzetben, vagyis több oldaláról szükséges mérni. Ez a legtöbb esetben három, egymással 120° -os szöget bezáró oldal mérésével történt, mind a hat oldalt csak a 2010-es mérési sorozatban vizsgálták meg.

2.2.2. Az 1. számú akna és a beépített kollimátor

A blokkok 1. számú szerelőaknája, vagy röviden 1-es aknája, a pihentető medence mellett helyezkedik el és azzal egybenyitható annak érdekében, hogy a nagy dózisteret adó kiégett fűtőelemeket víz alatt tudják egyikből a másikba átmozgatni. A kazetták mozgását az átrakógéppel végzik. Az átrakógép képes vízszintes síkban két, egymásra merőleges tengely mentén mozogni, ezeket „híd” és „kocsi” tengelynek nevezik. A megfogója egy állítható magasságú függőleges rúd, amivel egyrészt a kazetta függőleges irányban mozgatható, másrészt pedig a rudat forgatva elforgatható. A függőleges mozgatási tengelyt „kötél”-nek nevezik. Egy kazetta mérése azzal kezdődik, hogy az átrakógép a kazetta fejrészénél megfogja

és átmozgatja azt a pihentető medencéből az 1-es aknába. A mérés alatt a kazettát az átrakógép tartja pozícióban.

A kiégett fűtőelemből származó gamma-fotonok detektálásának nélkülözhetetlen feltétele az 1-es akna falába beépített kollimátor szerkezet. A kollimátor paraméterei a Paksi Atomerőműtől kapott munkamegrendelési dokumentációból származnak, amik magukba foglalják a szerkezeti terveket és az anyaggyártási információkat. A dokumentáció releváns részleteinek beszkenelt oldalait az „A” jelű függelék tartalmazza. A kollimátor, ami mind a négy reaktorblokkon megtalálható, egy keskeny központi fényúton keresztül szinte gyengítés nélkül engedi át a gamma-sugárzást. Kívülről befelé haladva, a kollimátor ólomgyűrűkből és a bennük közrefogott acélbetétekből áll, a betétek belseje üreges, ez alkotja a levegővel kitöltött fényutat. A fényút egy trapéz alapú hasáb, amelynek a trapéz alakú oldali a vízszintes síkban fekszenek. Az akna felé néző belépő nyílása 170 mm széles, míg a másik oldalán található kilépő nyílása mindössze 10 mm széles. A belépő nyílás szélessége meghaladja a kazetta 167,5 cm-es leghosszabb átlós méretét, így a mérés alatt a kazetta távolságától függetlenül az összes pálca adott magasságbeli szelete beleesik a fényútba. A fényút teljes hossza 1252 mm, magassága a hossz mentén végig 2 mm, ami rendkívül precíz magasság szerinti érzékenységet, valamint kellően alacsony áteresztett fotonintenzitást biztosít.



2.5. ábra: Az 1-es akna falába beépített kollimátor felülnézeti (felső rész) és oldalnézeti (alsó rész) keresztmetszeti rajzai. A színezett részek a jelmagyarázatban látható módon ólmot és rozsdamentes acélt jelölnek, a kollimátoron belüli kitöltetlen terület a levegőt tartalmazó központi fényút. A jelölt méretek mm-ben értendők.

A kollimátor felépítése a 2.5. ábrán látható. A belépő nyílás előtt közvetlenül az akna kettős acélfala található, amely két rétegből, egy belső szénacél falból és a rá felvitt rozsdamentes acél palástból épül fel. A szénacél fal 8 mm, a rozsdamentes réteg 4 mm vastag, a kettőt egymással egy 3 mm vastag rozsdamentes acél rácszat kapcsolja össze. A kollimátort felépítő ólomhengerek a közepükönél pontosan akkora, téglalap formájú üreget tartalmaznak,

amelybe beleilleszkehet a fénytutat magába foglaló acél betételem. A nagyobb méretű betét 40 mm, míg a kisebb 30 mm magasságú. A nagyobb betétet a kisebb, 185 mm átmérőjű ólomhengerek, a kisebb betétet a 193 mm átmérőjű ólomhengerek veszik körül. A betét oldalirányban haladva kívülről lépcsőzetesen szűkül, ellenben a központi fénytut folytonos módon válik egyre kisebb nyílásúvá.

2.2.3. Az alkalmazott mérőműszerek

A mérésekhez alkalmazott gamma-spektrométer kiválasztása fundamentálisan befolyásolja a kiégett kazettáról rögzített spektrumot. A HPGe kristály mérete, alakja és a sugárzási térbeli orientációja mind befolyással van az abszolút detektálási hatásfokra. A hatásfok mellett lényeges paraméter az energiafelbontó-képesség, amit érdemben a germánium kristály mérete és a detektor planár vagy koaxiális kialakítása szab meg. A kiégett fűtőelem mérések elrendezéséből adódóan 400 keV-nél alacsonyabb energián nem detektálhatók gamma-csúcsok, ezért planár típusú detektor használata nem indokolt. Az ideális választás egy alacsony relatív hatásfokú koaxiális detektor alkalmazása, ahol a relatív hatásfok a 3x3 inch méretű NaI(Tl) szcintillációs kristály 1332,5 keV energián, 25 cm távoli pontszerű forrásra mért hatásfokhoz viszonyított százalékban kifejezett érték. Az alacsony (10-15%) relatív hatásfok önmagában nem hátráltatja a spektrum-begyűjtést, mert az árnyékoló vízréteg vastagságának csökkentésével az abszolút hatásfok növelhető, azonban előnye, hogy a kisebb méretű kristály jobb energia-felbontást biztosít, így az egymáshoz közeli gamma-csúcsok könnyebben választhatók szét.

2.2. táblázat: A Paksi Atomerőműben a kiégett fűtőelem mérésekhez használt gamma-spektrometriai mérőműszerek listája.

Év	HPGe detektor	Sokcsatornás analizátor	Megjegyzés
2010	PGT IGC 10	ORTEC DSPEC jr. 2.0	
2011	PGT IGC 10	ORTEC DSPEC jr. 2.0	
2013	PGT IGC 10	ORTEC digiDART	
2015	PGT IGC 10	ORTEC DSPEC jr. 2.0	
2016	PGT IGC 10	ORTEC digiDART	
2017	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	IGC 10 meghibásodott, helyette a GEM10P4-70 lett rendszeresítve
2018	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	
2019	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	
2020	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	
2021	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	
2022	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	
2023	ORTEC SGD-GEM-3615	ORTEC digiDART	GEM10P4-70 javítás alatt volt
2024	ORTEC GEM10P4-70	ORTEC digiDART	

2024-ig bezárólag összesen három, a HUN-REN EK SBL, illetve jogelődjeinek eszközparkjába tartozó HPGe detektorral történetek kiégett fűtőelem vizsgálatok. Minden évben egy adott detektorból és sokcsatornás analizátorból álló mérőrendszer került bevetésre, ezek listája a 2.2. táblázatban látható.

A PGT gyártmányú IGC 10 modell [12] egy p-típusú koaxiális, 9% relatív hatásfokú HPGe detektor volt, ami sajnálatos módon 2016-ban a kiégett fűtőelem méréseket követően meghibásodott, így további használatra alkalmatlanná vált. A gyártói adatlapja szerint egy 40 mm átmérőjű és 39 mm vastagságú germánium kristályt tartalmazott. A kristály összetérfogata a hátoldalánál benyúló lyuk méretének levonása után 46 cm^3 volt. A 25 literes kriosztátjának köszönhetően akár 10 napig is tudott egy nitrogén töltéssel üzemelni. A 661,7 keV-es ^{137}Cs gamma-csúcs félértékszélessége 1,5-1,6 keV tartományban mozgott.

2017-től kezdve rendszeresen az ORTEC gyártmányú GEM10P4-70 p-típusú koaxiális detektort alkalmazták [13]. Ez egy nominálisan 10% relatív hatásfokú detektor, melyben egy 50,1 mm átmérőjű és 36 mm vastag, összesen $69,5 \text{ cm}^3$ térfogatú germánium kristály helyezkedik el. Hátránya az elődjéhez képest az, hogy csak 13 literes folyékony nitrogén kriosztáttal van felszerelve, ami egy töltéssel mindössze 4-5 nap működést tesz lehetővé. Előnye azonban, hogy az energiatárolása valamivel jobb, 661,7 keV-en a félértékszélesség 1,2-1,4 keV közötti értékű. 2023-ban meghibásodott, de még szervizelhető állapotban volt, a javítás ideje alatt egy másik, az SGD-GEM-3615 modellű detektor alkalmazására volt szükség. Ez egy kisebb koaxiális kristállyal rendelkező és mindössze 3% relatív hatásfokkal bíró gamma-spektrométer. Az alacsonyabb hatásfok miatt az összes kazetta közelebbi pozícióban lett mérve, azonban a spektrum minősége a jobb energiatárolás miatt kis mértékben javult: 661,7 keV-en csupán 1,1-1,2 keV volt a félértékszélesség.

A sokcsatornás analizátorok állítják elő a detektor feszültségjeléből a gamma-spektrumot és kapcsolatot teremtenek a detektor és a számítógép között, amin a spektrometriai szoftverrel zajlik a mérés vezérlése. Mindkét használt analizátor ORTEC gyártmányú, köztük két lényeges különbséggel [14] [15]. Az első a beállított csatornaszám, ez a DSPEC jr. 2.0-nál 8192, a digiDART-nál pedig 16384 volt minden mérésnél. Ez azt eredményezi, hogy a digiDART méréseinél a beütések kétszer annyi csatornára oszlanak szét, ezáltal az egymáshoz közeli csúcsok jobban elválhatnak, különálló csúcsokat eredményezve, azonban kis csúcsterületek esetén a statisztikus hiba nagyobb lehet. A második különbség az, hogy a digiDART a DSPEC jr. 2.0-val ellentétben akkumulátorral ellátott mérőegység, hálózati betáplálás nélkül is órákon keresztül képes működni, ami alkalmasabbá teszi helyszíni mérések végzésére. Végezetül megjegyzendő, hogy a digiDART modellből az évek során összesen három, egymással működésében teljesen megegyező egységgel történtek mérések.

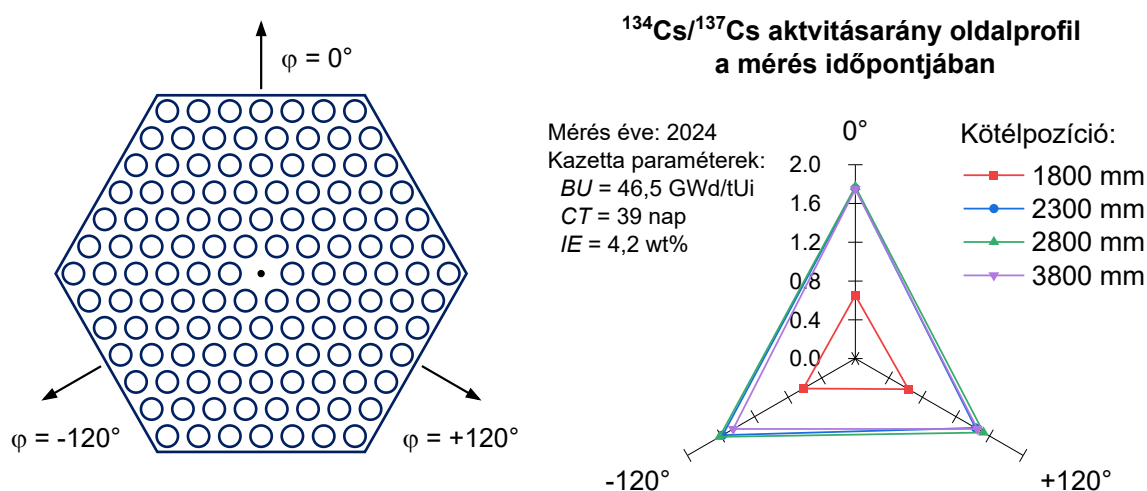
2.3. Oldal és magasság szerinti kiégés-profil mérések

Mindegyik évi mérés során – a kazettapozíció beállításától és a műszer kalibrációjától eltekintve – alapvetően kétfajta vizsgálat történt meg: az egy magassági ponton elvégzett oldalankénti kiégés-aszimmetria és az egyik oldal mentén különböző magasságokban felvett

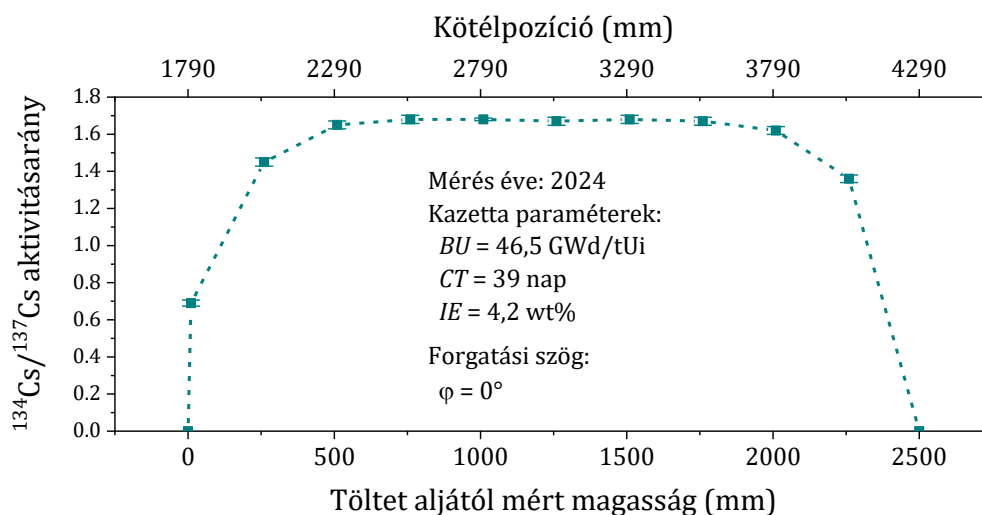
kiégés-profil kimérése. A két méréssorozat alapján a kazettákra egy hozzávetőleges, oldal és magasság szerinti kiégés eloszlás konstruálható, azonban fontos megjegyezni, hogy az oldalprofil a végekhez közeledve egyre inkább különbözik a töltet közepén mért eloszlástól (az eltérés mértéke a tapasztalatok alapján $\pm 5-15\%$ -on belül mozog).

Az oldalprofil három kazettaoldal relatíve hosszú idejű méréséből ismerhető meg. A mérési élő idők az évek alatt változtak, jellemzően a pozitív növekmények irányába, de döntően oldalanként 3600-9000 s közé estek. Az összes oldalprofil mérésnél a kazetta a 2800 mm-es kötélpozícióban volt, ami a töltet aljától számítva nagyjából 1000 mm-es magasságot jelent. A három oldal jelölése a forgatási helyzet szerint -120° , 0° és $+120^\circ$, ahol a 0° minden kazetta esetében azonos orientációjú állást jelez (2.6. ábra). Példaképpen a 2.6. ábra jobb oldalán egy 2024-ben mért kazetta $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ szerinti oldalprofilja látható, amelyről ezen kísérleti adatok alapján megállapítható, hogy a 0° -kal jelölt oldala a három közül a legkiégettebb. A három oldalról rögzített spektrumokat átlagolva egy, az átlagos kiégési viszonyokat jobban tükröző spektrum nyerhető, amely a háromszoros mérési időnek köszönhetően magasabb jel-zaj aránnyal is bír. Azonban az átlagspektrum a pálcák hozzájárulását nem azonos súllyal tartalmazza, hiszen a legbelső pálcagyűrűkből a külsőbb pálcák elnyelése miatt mindhárom oldal spektrumához nagyon kis súllyal adnak beütéseket.

Változatlan forgatási szög mellett a kazettát függőleges irányban több különböző pozícióban megmérve lehet a magasság szerinti kiégés-profil megszerkeszteni. Ezek a spektrum-felvételek az oldalprofilhoz képest rövidebb ideig, mérésenként rendszerint 300-900 s élő időig tartanak. Egy magassági szkennelés során összesen 8-10 magassági pontban készülnek spektrumok, amelybe beletartoznak a töltet aljának és tetejének közelében a még üzemanyagot tartalmazó részről készült mérések is. Egy kazetta $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ szerinti magassági profilját mutatja a 2.7. ábra. A profil a kazetta 0° -os szögben álló oldaláról készült összesen tíz + kettő mérési ponttal, ahol az első és utolsó pontok a töltet végét jelölik. A töltet közepén található, körülbelül 1500 mm széles tartományon belül a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány állandó értéket mutat, amiből a kiégési szint konstans jellege is következik. A magassági profilok az összes mért kazettára hasonló alakot vesznek fel, azonban apróbb eltérések jelentkezhetnek például egy szabályozó kazetta közelsége miatt, vagy szabályozó kazetták profiljában azok üzem közbeni mozgása miatt.



2.6. ábra: Oldal szerinti kiégés-profil mérések három kazettaoldalon. Az ábra bal oldalán a φ forgatási szög szerint kijelölt oldalak láthatók, a nyilak a detektor irányába mutatnak. Az ábra jobb oldalán egy kiégett kazettának a mérés időpontjában fennálló $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ profilja van feltüntetve más-más magasságokban.



2.7. ábra: A mérés időpontjában fennálló $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitáshány a töltet aljától mért távolság függvényében egy 2024-ban mért kiégett fűtőelemre. Az összes mérési pont rögzítése a kazetta 0° -os állásában történt. Az 1790 mm és 4290 mm kötélpziciók spektrumaiban a cézium izotópokat nem lehetett kimutatni, ez jelzi a töltet végét.

3. A KIÉGÉS BECSLÉSE

3.1. Irodalmi áttekintés

A kiégésnek, mint az egyik kulcsparaméternek a meghatározása már hosszú idő óta kutatott téma. Relevanciája nem csak az atomreaktorok üzemeltetésének területén van, hanem kiterjed a biztosítéki és a nukleáris törvényszéki analitikai vizsgálatokra is. Kulcsfontosságú szerepet kapnak a kiégett fűtőelemeken elvégzett mérések, – legyen szó akár gamma-, neutron- vagy tömegspektrometriai mérésről – hiszen az atomreaktoroknál használt reaktorfizikai kódok kiégés-számítását csak ezen az úton lehet validálni. A jelen értekezés témája a gamma-spektrometriai vizsgálat, ezért az irodalmi összefoglalóban is az ezzel a módszerrel foglalkozó publikációk kerülnek fókuszba.

A. Lebrun és G. Bignan 2001-ben megjelent cikkében a kiégett üzemanyagok különböző mérési módszereit vizsgálták meg [16]. A munkájukban rámutattak néhány alapvető empirikus összefüggésre specifikus, gamma-spektrometriai úton mérhető hasadási termék aktivitások, illetve aktivitásarányok és a kiégés között. A cikk szerint a ^{137}Cs aktivitása a kiégéssel lineárisan változik, a ^{134}Cs aktivitása a kiégés négyzetének függvénye, míg az ^{154}Eu aktivitása a kiégés valamilyen hatványától függ. A $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ és $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányok szintén a kiégésnek adott kitevőjű hatványával arányosak. A szerzők kiemelik, hogy 90 nap hűlési ideig a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány, 5000 nap feletti hűlési időnél a $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány, a köztes tartományban pedig a kettő közül bármelyik jól használható a kiégés-becslésére. Azonban a bemutatott módszer alkalmazhatóságát korlátozza a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arány erős függése a fűtőelem üzemelési történetétől, amely a szerzők szerint akár 30% változást is okozhat.

P. Jansson 2002-es doktori disszertációjában a nukleáris üzemanyagok spektroszkópiai tanulmányozását kutatta [17]. Munkájában kiemelte az aktivitásarányok alkalmazását a kiégés-becsléséhez, amit az arányok mérési geometriától való függetlenségével indokolt. Lebrun és Bignan munkájához hasonlóan Jansson is hatványfüggvény alakú összefüggést használt a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, illetve a $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány és a kiégés között. Kidolgozott továbbá egy korrekciós módszert, ami a ^{134}Cs és ^{137}Cs izotópok üzem közbeni radioaktív bomlását figyelembe véve pontosabb összefüggést biztosít a mérhető $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arány és a kiégés között. A korrekció alkalmazásához viszont szükség van az üzemelési történet előzetes ismeretére, így ez a módszer ismeretlen – vagy annak feltételezett – eredetű anyagokra nem alkalmazható.

C. Willman és szerzőtársai a 2006-ban megjelent cikkében kifejezetten biztosítéki ellenőrzési szempontból vizsgálták többek között a kiégés gamma-spektroszkópiai meghatározásának lehetőségeit [18]. Ebben a munkában a ^{134}Cs , ^{137}Cs és ^{154}Eu izotópok mért beütéseit, nem pedig azok aktivitásának arányait alkalmazták. A vizsgálat fix mérési elrendezésben, 17x17 PWR típusú üzemanyagokon történt a svéd Ringhals 3 atomerőműben. A szerzők megállapítási szerint a kiégés az üzemanyagokra vonatkozó ismeretek nélkül is mindössze 1,6% relatív standard deviáció mellett meghatározható. A bemutatott mérési

technika tehát, amely elrendezésében nagyon hasonló a Paksi Atomerőműben végzett mérésekhez, a megfelelő kalibrációs állandók birtokában jól alkalmazható a kiégés becslésére. Hátránya azonban, hogy nem univerzális, mivel a kalibrációt minden mérőhely és mért fűtőelem esetében egyedileg kell elvégezni.

2016-os cikkükben M. Kolečka és társai a csehországi LVR-15 kutatóreaktor nagydúsítású kiégett fűtőelemeiben végzett gamma-spektrometriai méréseiket ismertették [19]. A munkában két korábbi publikációjuk eredményeire támaszkodva összevetették különböző üzemelési történetű kazettákra a méréseikből származtatott és az MCNPX Monte-Carlo kóddal számított kiégéseket. Újszerű elemként az eddig is széles körben használt ^{134}Cs , ^{137}Cs és ^{154}Eu radionuklidok mellett a ^{106}Ru és ^{144}Ce hasadási termékek gamma-sugárzását is felhasználták.

2016-ban két publikáció is megjelent egy közös szerzői csoport munkájáról, az egyik S. Vaccaro, a másik A. Favalli vezetésével [20] [21]. A kutatásban részt vett többek között az EURATOM, az Uppsalai Egyetem és az Egyesült Államok nemzeti laboratóriumai közül három intézmény. Vaccaro cikkében a Clab nevű svéd átmeneti nukleáris üzemanyag tárolóban elvégzett gamma-spektrometriai mérésekről számol be. PWR (nyomottvizes reaktor) és BWR (forralóvizes reaktor) erőművek üzemanyagairól is rögzítettek spektrumokat, majd ezek alapján vizsgálták a ^{134}Cs , ^{137}Cs és ^{154}Eu kiválasztott gamma-csúcsainak összefüggését a kiégéssel. A szerzők megállapították, hogy különböző PWR üzemanyag dizájnok között nincs lényeges eltérés a kiégés függvényében mért jelben, azonban a BWR kazetták esetében jelentős, 10%-os nagyságrendű különbségeket is észleltek. Favalli cikke az előbbi publikációban bemutatott adatok elemzésére épül, célja a kiégett fűtőelemek paraméterei (kiégés, hűlési idő és kezdeti dúsítás) és a gamma-spektrometriai adatsorokból kinyert információk közötti kapcsolatok számszerűsítése. Ezt a feladatot modellfüggvény-illesztésekkel végezték el, melybe bevonták a ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{106}Ru és ^{144}Ce nuklidokat, illetve ezek válogatott aktivitásarányait. Az aktivitásarányok kiégéstől és a hűlési időtől való függését közös egyenlettel írták fel: az előbbinél lineáris, az utóbbinál exponenciálisan csökkenő függvényalakot használva, majd a két tag szorzatát az adott aránnyal egyenlővé téve. Eredményeik alapján a három paramétert a teljes PWR kazetta sokaságra nézve 3-6% közötti átlagos abszolút eltérésen belül meg tudták becsülni. Megvizsgálták a közepes felbontású LaBr_3 gamma-spektrométer alkalmazásának lehetőségét is, amely a cikk tanulsága szerint a HPGe detektor helyett elfogadható alternatívaként szolgálhat.

A hivatkozott tudományos munkák összegzéseként megállapítható, hogy az elmúlt két évtized alatt a kiégett üzemanyagok gamma-spektrometriai mérése széles körben elfogadottan alkalmas módszernek bizonyult a fűtőelemek paramétereinek meghatározásához. A kidolgozott, izotóp-specifikus aktivitásokon és aktivitásarányokon alapuló paraméterbecslő módszerek jól működnek, azonban vannak olyan tényezők, amik nehézkessé teszik az alkalmazásukat és mérséklék a pontosságukat. Ilyen tényezők például az irreguláris, hosszú szüneteket magába foglaló üzemelési történet és az üzemelési adatok ismeretlen volta.

3.2. Spektrumok kiértékelése, aktivitásarányok számítása

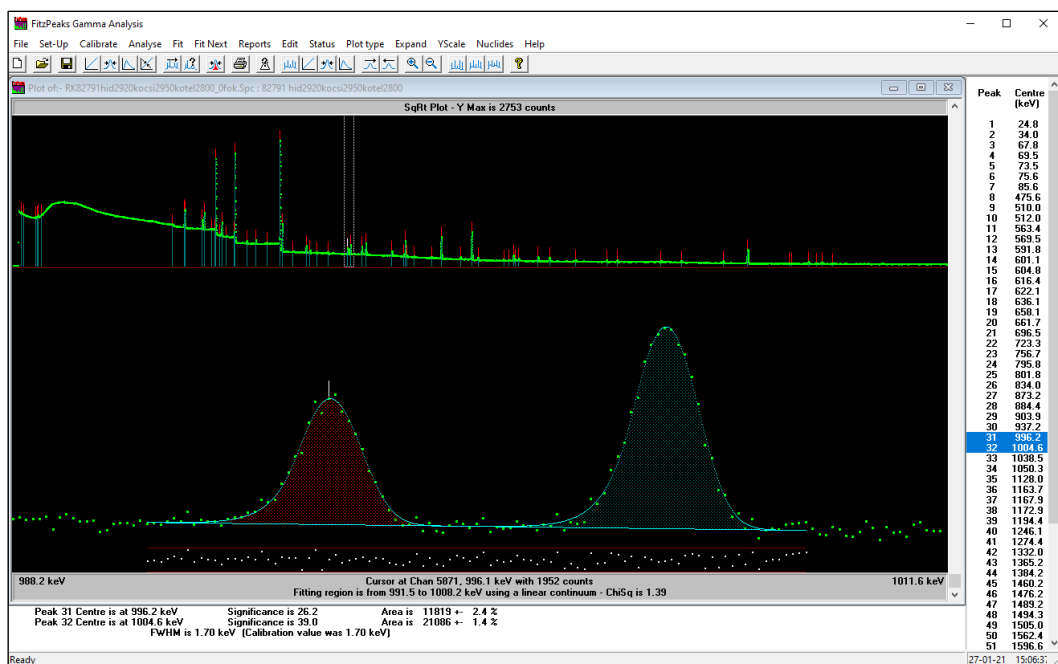
A kutatás első lépése a rendelkezésre álló adatok feldolgozása volt. A kiégés számíthatóságának vizsgálatát a 2010-2020 időszakban elvégzett mérések eredményei alapján hajtottam végre. Ezek az adatok 110 darab RK és 9 darab ARK típusú fűtőelemet, azaz összesen 119 darabot fednek le. A hát és három oldalú sektorszimmetria mentén kiválasztott kazetták kvázi azonos paraméter vektort képviselnek, így az egyedi előéletű üzemanyagok száma mindössze 47, amibe beletartozik 8 darab eltérő hűlési idejű ismétlődő mérés is. A legfontosabb mérési eredmény a kiégés becslésének szempontjából a három kazettaoldalra átlagolt spektrum, ugyanis a kérdéses mennyiség a kazetta átlagos kiégése az adott mérési magasságon. Izotópspecifikus aktivitások számítása meglehetősen bonyolult hatásfok-kalibrációt igényelne, továbbá a feldolgozott irodalomban is jobbra az arányosított mennyiségeket alkalmazzák, ezért a jelen kutatást is az aktivitásarányok használatára alapoztam.

3.2.1. Gamma-csúcsok keresése és integrálása

Az elemzés megkezdése előtt szükség volt a spektrumokban keresendő releváns radionuklidok kiválasztására. Itt a spektrumokban kimutatható összes hasadási termék izotópot választottam ki, amik tömegszám szerint rendezve a következők: ^{91}Y , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , ^{106}Ru (^{106}Rh), $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce (^{144}Pr) és ^{154}Eu . Az izotópok gamma-csúcsai közül alapvetően minden az adott spektrumban észlelhetőre, de legalább a 1.2. táblázatban felsoroltakra irányult a keresés. A spektrumokat a FitzPeaks spektrumelemző szoftver segítségével értékeltem ki [22]. A szoftver a spektrum beolvasásával alkalmazza a fájlban eltárolt – a mérések során beállított – energiakalibrációt, viszont a csúcsillesztéshez a félértékszélesség-kalibráció elvégzése is szükséges. A csúcsok keresése az adatsor második deriváltjának vizsgálatával történik. Ezután a megtalált csúcsok középenergiája körül a program Gauss-függvény alakú csúcsot illeszt a beütésekre a csúcshoz tartozó régióban (3.1. ábra). Egymáshoz közeli vagy ténylegesen átfedő csúcsokat multipletként kezel, vagyis a közös régióban található csúcsok számával egyező számú függvény illeszt egyidőben, ilyen módon képes az átlapoló csúcsok dekonvolúciójára. Az illesztéssel egyidőben az (3.1) egyenlet alapján numerikus úton kiszámítja a csúcsok alapvonal feletti területét ($N(E_\gamma)$), valamint ennek bizonytalanságát és a félértékszélességet ($FWHM$):

$$N(E_\gamma) = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} e^{-\left(\frac{E-E_\gamma}{2\sigma^2}\right)} dE, \quad FWHM = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma, \quad (3.1)$$

ahol E a beütésszám binnekhez rendelt energia, $E_{\min}$ és $E_{\max}$ a régió határai és σ a Gauss-függvény standard deviációja. A csúcsterületek birtokában azokat a mérési élő idővel leosztva kiszámíthatók a beütésszám-ráták, a gamma-emissziós valószínűségek pedig a nukleáris adatbázisok alapján ismertek (1.2. táblázat). Az aktivitásarányok számításához azonban még szükség van egy hatásfok jellegű mennyiségre, vagyis a relatív hatásfok-görbére.



3.1. ábra: Kiegészített fűtőelem gamma-spektrumának elemzése a FitzPeaks szoftverrel. Az ablak felső részén a teljes spektrum jelenik meg négyzetgyök skálán, az alsó kinagyított részen az ^{154}Eu két egymáshoz közeli gamma-csúcsának illesztése látható.

3.2.2. A relatív hatásfokgörbe számítása és illesztése

A relatív hatásfok számítása az abszolút hatásfokhoz hasonló formulával ((3.2) egyenlet) történik, azonban az előbbi esetében az aktivitásra vonatkozó ismeret hiánya miatt az aktivitással leosztás helyett a hatásfokot valamilyen módon normálni kell. Ehhez célszerű egy, mindegyik spektrumban azonosítható gamma-csúcsot kiválasztani és a csúcsához rendelt energián a relatív hatásfokot egységnyi értékre fixálni. A kiegészített fűtőelemeknél a választásom természetes módon a ^{137}Cs mag 661,7 keV-es gamma-emissziójára esett, hiszen az ebből eredő csúcs valóban az összes spektrumban megtalálható. A gamma-csúcsok energiáihoz tartozó relatív hatásfokot ($\varepsilon_{\text{rel}}(E_\gamma)$) a (3.3) formula alapján számítottam ki.

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{N_i(E_\gamma)}{t A_i p_{\gamma,i}(E_\gamma)} \quad (3.2)$$

$$\varepsilon_{\text{rel}}(E_\gamma) = \frac{N_i(E_\gamma)}{t p_{\gamma,i}(E_\gamma)} \frac{t p_\gamma(662\text{keV})}{N(662\text{keV})} \frac{A_{^{137}\text{Cs}}}{A_i} = \frac{N_{\text{norm},i}(E_\gamma)}{p_{\gamma,i}(E_\gamma)} F_i, \quad (3.3)$$

$$N_{\text{norm},i}(E_\gamma) = N_i(E_\gamma) \frac{p_\gamma(662\text{keV})}{N(662\text{keV})},$$

$$F_i = \frac{A_{^{137}\text{Cs}}}{A_i}$$

A (3.2) és (3.3) képletekben szereplő i index a ^{137}Cs kivételével a spektrumban detektálható radionuklidok listáján fut végig. $N_{\text{norm},i}(E_\gamma)$ a 661,7 keV energiára normált csúcsterület, F_i pedig az i -edik izotóp szorzófaktorja, ami nem más, mint a ^{137}Cs és az i -edik izotóp aktivitásának

hányadosa. A hatásfokillesztés elvégzéséhez szükséges előre tudni az aktivitásarányok legalább közelítő pontosságú értékeit, amiket azonban pont a relatív hatásfokgörbe segítségével lehetne kiszámolni. A probléma megoldásához kihasználtam az egy görbére történő illeszkedést fizikai követelményét és ez alapján a szorzófaktorok értékeit iteratív módon becsültem meg. Végezetül a már egy görbét alkotó pontokra egy megfelelően illeszkedő függvényalakot kerestem. A hatásfok-függvényt tapasztalat alapján a (3.4) egyenlet által leírt kettős exponenciális alakban volt érdemes megilleszteni, ahol a_1 , a_2 és a_3 a keresett illesztési együtthatók.

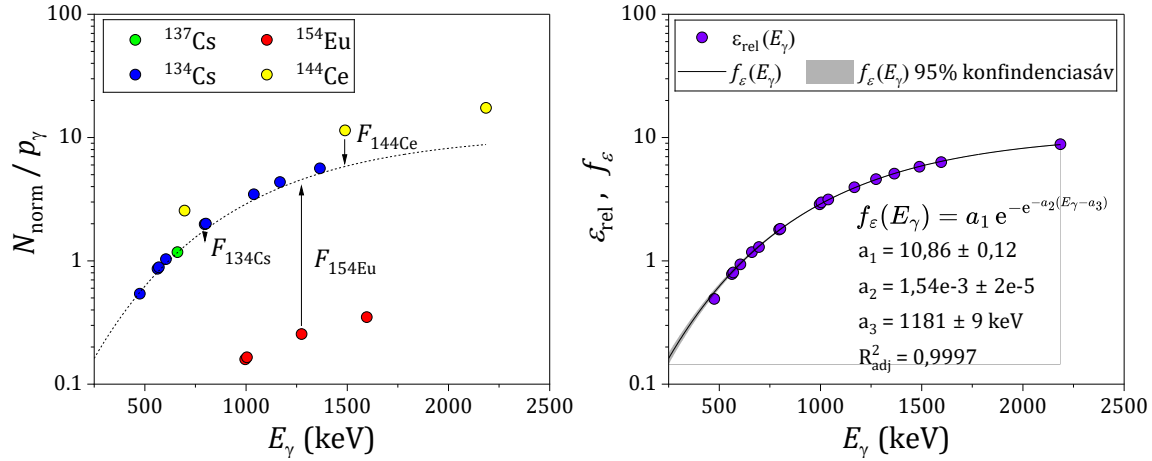
$$f_{\varepsilon}(E_{\gamma}) = a_1 e^{-e^{-a_2(E_{\gamma}-a_3)}} \quad (3.4)$$

A függvényillesztés során alkalmaztam $f_{\varepsilon}(E_{\gamma} = 0 \text{ keV}) = 0$ megszorítást, amely feltétel teljesülése egyrészt fizikailag megkövetelhető, másrészt az illesztés elvégzését is könnyítette.

A szorzófaktorokat számító algoritmus az alábbi lépésekből áll:

- (1) A nuklid (i) és a hozzá rendelt összes gamma-csúcs kiválasztása. Ismétlésnél a sorban következő nuklid kiválasztása, a sorrend: ^{134}Cs , ^{154}Eu , ^{144}Ce .
- (2) F_i kezdeti értékének számítása egy vagy kettő már beskálázott pont és az i -edik nuklid kettő vagy egy csúcsának lineáris interpolációja alapján. ^{134}Cs esetén a két csúcs a 604,7 és 795,9 keV, az alappont a ^{137}Cs 661,7 keV-es csúcsa. ^{154}Eu -nél a 1274,4 keV-es csúcs interpolációja történik a ^{134}Cs 1168 és 1365,2 keV csúcsainak pontjai közé. Végül a ^{144}Ce esetében annak 1489,2 keV-es csúcsa kerül lineárisan az ^{154}Eu 1274,4 és 1596,5 keV energiái közé.
- (3) Az aktuális nuklid (i) és az előtte már meghatározott szorzófaktorú nuklidok, valamint a ^{137}Cs pontjaira a (3.4) egyenlet szerinti f_{ε} függvény illesztése és ennek a jóságát mérő R^2_{adj} érték számítása.
- (4) A kezdeti F_i faktor értékének véletlenszerű módosítása a $0,95F_i$ és $1,05F_i$ határokon belül, majd az új faktorról a függvényillesztés újbóli elvégzése. Amennyiben az új illesztés R^2_{adj} értéke az előzőéhez képest csökkent, úgy az új faktor értéke az egy lépéssel előbbi értékére ugrik vissza. Ez az iteráció összesen 100 lépésen keresztül zajlik.
- (5) Ugrás a következő nuklidra ($i+1$) és a számítás folytatása az (1) lépéstől. Ha a sorban az i -edik volt az utolsó nuklid, akkor a szorzófaktorok, valamint az utolsó illesztés paramétereinek lementése, majd a műveletsor befejezése.

A szorzófaktorok hatását és a használatukkal összeskálázott pontokra elvégzett függvényillesztést egy kiválasztott kazetta példáján keresztül a 3.2. ábra illusztrálja.



3.2. ábra: Emissziós valószínűséggel leosztott normált beütésszámok az energia függvényében (bal oldali grafikon) és a faktorokkal való szorzás után kapott relatív hatásfok értékekre végrehajtott függvényillesztés (jobb oldali grafikon). Az adatok egy 2020-ban 48,5 cm víz árnyékolás mögött mért, 4,7% kezdeti dúsítású, 48,6 GWnap/tUi átlagos kiegészű és a mérésakor ~500 nap hűlési idejű kazetta átlagspektrumából származnak.

3.2.3. Az aktivitásarányok számítása

Az F_i szorzófaktorok birtokában annak inverzeként lényegében már azonnal adódnak az illesztéshez használt nuklidoknak a ^{137}Cs -el képzett aktivitásarányai. Mégis célszerűbb volt az f_ϵ relatív hatásfokfüggvényt és a (3.3) képletet alkalmazni ($f_\epsilon(E_\gamma) \rightarrow \epsilon_{\text{rel}}(E_\gamma)$ behelyettesítéssel), mivel így az összes nuklid aktivitásaránya egységes módon határozható meg. Az E_γ energiától függő, ^{137}Cs -el képzett aktivitásarány így a (3.5) egyenlet alapján áll elő, ahol a könnyebb olvashatóság kedvéért bevezetésre került az $\alpha_i(E_\gamma)$ jelölés. Az eredmények bizonytalanságának becslését ($\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)}$) az egymástól nem független változókra vonatkozó hibaterjedési képlet alkalmazásával végeztem el, aminek a tagjai a (3.6) egyenletből olvashatók le, ahol az a_1 , a_2 és a_3 paraméterek kovarianciái $\text{Cov}(a_i, a_j)$ alakban szerepelnek. A nagy delta előtétellel jelzett mennyiségek a jelölt mennyiség standard deviációját reprezentálják.

$$\frac{A_i(E_\gamma)}{A_{^{137}\text{Cs}}} \equiv \alpha_i(E_\gamma) = \frac{N_{\text{norm},i}(E_\gamma)}{f_\epsilon(E_\gamma) p_{\gamma,i}(E_\gamma)} \quad (3.5)$$

$$\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)} \equiv \Delta\alpha_i(E_\gamma) = \alpha_i(E_\gamma) \sqrt{\left(\frac{\Delta N_i}{N_i}\right)^2 + \left(\frac{\Delta N(662\text{keV})}{N(662\text{keV})}\right)^2 + \left(\frac{\Delta a_1}{a_1}\right)^2 + \left((E_\gamma - a_3)e^{-a_2(E_\gamma - a_3)}\Delta a_2\right)^2 + \left(-a_2 e^{-a_2(E_\gamma - a_3)}\Delta a_3\right)^2 + \frac{2}{\alpha_i^2} \left(\frac{\partial \alpha_i}{\partial a_1} \frac{\partial \alpha_i}{\partial a_2} \text{Cov}(a_1, a_2) + \frac{\partial \alpha_i}{\partial a_1} \frac{\partial \alpha_i}{\partial a_3} \text{Cov}(a_1, a_3) + \frac{\partial \alpha_i}{\partial a_2} \frac{\partial \alpha_i}{\partial a_3} \text{Cov}(a_2, a_3) \right)} \quad (3.6)$$

Mivel az energiafüggő arányok (3.6) egyenlet alapján számított bizonytalansága eltérő nagyságú lehet, ezért az adott nuklidra jellemző aktivitásarány várható értéke az energiafüggő arányok súlyozott átlagaként becsülhető meg [23]. Az átlagolásnál használt súlytényezők az energiafüggő arányok szórásának inverz négyzetei ($1/\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)}^2$). A várható érték ($\bar{\alpha}_i$) és a hozzá tartozó szórás ($\sigma_{\bar{\alpha}_i}$) számítását a (3.7) és a (3.8) egyenletek írják le, mindkettőnél és minden esetben az összegzések az i -edik nuklidhoz rendelt gamma-csúcsok energiáin fut végig.

$$\bar{\alpha}_i = \frac{\sum_{E_\gamma} \alpha_i(E_\gamma) \frac{1}{\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)}^2}}{\sum_{E_\gamma} \frac{1}{\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)}^2}} \quad (3.7)$$

$$\sigma_{\bar{\alpha}_i} = \left(\sum_{E_\gamma} \frac{1}{\sigma_{\alpha_i(E_\gamma)}^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.8)$$

3.2.4. Átlagos és a mérési magasságban jellemző kiégések

A kiégés és a mérhető aktivitásarányok vizsgálatánál elsőként azt szükséges tisztázni, hogy melyik kiégési szintre vonatkozik a mérésből származtatott aktivitásarány. Itt meg kell említeni a pálca és a kazetta szintű kiégéseket, amik rendre egy kiválasztott pálca és az adott kazetta átlagos kiégéseit jelentik. Viszont a palcák és a kazetta hossza mentén is változó kiégési szintek tapasztalhatók (lásd 2.7. ábra), így értelmezhető egy adott magassági szakaszra pálca és kazetta szinten is átlag kiégés. A gamma-spektrometriai vizsgálat alapja a három kazettaoldal átlagspektruma, ami mindig egyetlen magassági helyzetre vonatkozik, tehát a kazettákra átlagolt kiégés értékek helyett a mérési magasságra, azaz egy 2-2,5 mm magas szeletre, jellemző kiégési szintet szükséges ismerni. Ezzel szemben az Atomerőmű reaktorfizikusainak a mérésekhez nyújtott adatszolgáltatásában csak a kazetta átlagos kiégése szerepel, ami érthető is, hiszen a mérési pozíciók kiválasztását végül a mérést végző szakemberek döntenek el.

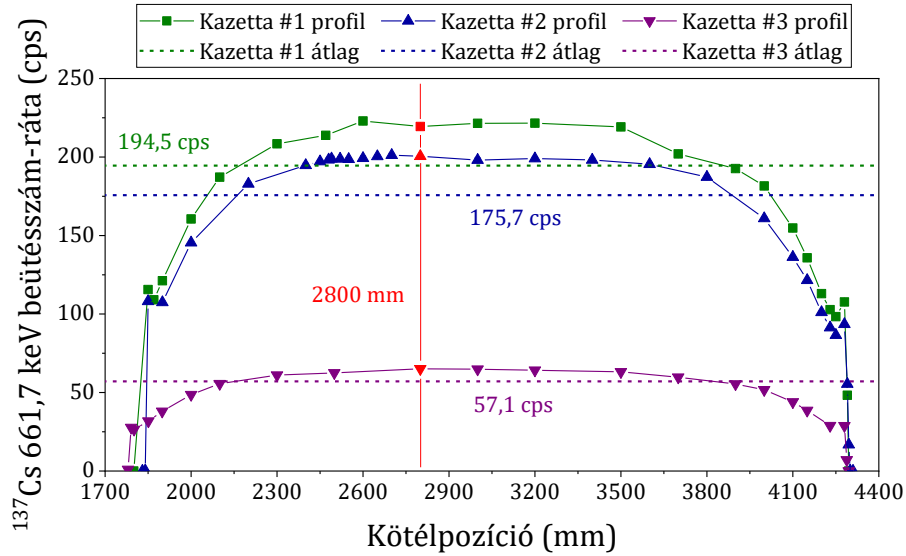
Az átlagos és a mérési magasságon fennálló kiégési szint viszonya a magassági profil mérések alapján számszerűsíthető. Ehhez fel kell tételezni, hogy a ^{137}Cs 661,7 keV-es gamma-csúcsának időegységre eső beütésszáma egyenesen arányos a kiégéssel, amely feltételezés a 30 éves felezési időnek és a közvetlen keletkezési módnak köszönhetően jó közelítéssel teljesül is. Részletesen, számos ponton kimértem a kazetta egy oldalának ^{137}Cs profilját, amely a görbe numerikus integrálásával és a töltet magasságának, valamint az átlagos kiégésnek az ismeretében kiszámítottam az átlag és a 2800 mm kötélkoordináta közötti kiégés-arányszámot (r_{BU}). A (3.9) egyenlet az átlagos beütésszám-ráta ($\overline{C(662\text{keV})}$) kiszámításának módját adja meg: a mérési pontok által kirajzolódó profil integrálját a trapéz-módszer segítségével közelítettem, ahol $z_{\min}$ az alsó és $z_{\max}$ a felső töltethatár kötélpozíciója, C_z a z magasságon mérhető beütésszám ráta, k az 1-től $k_{\max}$ -ig a magassági pontok $[z_{\min}, z_{\max}]$ intervallumán futó index, Δz_k pedig a k -1-edik és a k -adik pontok közötti magasságkülönbség. Az átlagos beütésszám ráta meghatározása után az r_{BU} arányszám a (3.10) egyenlet alapján adódik.

$$\overline{C(662\text{keV})} = \int_{z_{\min}}^{z_{\max}} \frac{C_z(662\text{keV})}{z_{\max} - z_{\min}} dz \approx \sum_{k=1}^{k_{\max}} \frac{C_{k-1}(662\text{keV}) - C_k(662\text{keV})}{2(z_{\max} - z_{\min})} \Delta z_k \quad (3.9)$$

$$r_{BU} = \frac{C_{2800\text{mm}}(662\text{keV})}{\overline{C(662\text{keV})}} \quad (3.10)$$

A 2800 mm-es kötélkoordináta kiégésének és az átlagkiégésnek az arányának meghatározását három darab, 2020-ban megmért RK típusú kazetta eredményeire alapoztam. A választás azért éppen ezekre az adatokra esett, mert ezek méréseivel készítettem a legrészletgazdagabb magassági profilokat (3.3. ábra). Az itt bemutatott számoláshoz használt kazetták spektrumait azonos mérőrendszerrel rögzítettem és kazettánként megegyező távolságokat alkalmaztam, emiatt a beütésszámok további korrekciójára nem volt szükség. A három arányt és azok bizonytalanságát a 3.1. táblázat tartalmazza. Az átlagos r_{BU} érték inverz hibanégyzettel súlyozott átlagolásból származik, a hozzá megadott bizonytalanság azonban tartalmazza az arányszámok megfigyelt szórásának járulékát is. Ezen alfejezet konklúziójaként elmondható, hogy a kísérleti tapasztalatok alapján a mérési pozíciónál a kazetta szeletének kiégése átlagosan 13,5%-kal magasabb a kazetta átlagkiégésénél.

A fejezet hátralévő szakaszaiban a kiégés (BU) alatt minden esetben az Atomerőmű által szolgáltatott átlagos kiégés r_{BU} -szorosa értendő.



3.3. ábra: Kiégett kazetták magassági profiljai a ^{137}Cs hasadási termék 661,7 keV-es gamma-emissziója alapján. Szaggatott vonallal és mellette értékkel jelölve az integrálásból számított átlagos beütésszám-ráták láthatók. A 2800 mm-es kötélpozícióhoz tartozó értékek piros színnel vannak kiemelve. A függőleges hibasávok a szimbólumoknál kisebbek.

3.1. táblázat: Az átlagkiégés és a 2800 mm-es kötélpozícióban fennálló kiégési szint közötti arányszámok három kazetta magassági profilja alapján.

	Kazetta #1	Kazetta #2	Kazetta #3	Átlag
$r_{BU} \pm \Delta r_{BU}$	$1,128 \pm 0,002$	$1,141 \pm 0,003$	$1,140 \pm 0,005$	$1,135 \pm 0,006$

3.3. A kiégés és az aktivitásarányok közötti kapcsolatok felderítése

A ^{137}Cs -hez viszonyított aktivitásarányok birtokában egyszerű osztásokkal az összes többi nuklid tetszőleges aktivitásaránya megképezhető. A fő kérdés az, hogy az aktivitásarányok és a kazetta kiégése között milyen függvényszerű viszony áll fenn, illetve melyik arány használata eredményezi a legpontosabb kiégésbecslést.

A kutatás témájának területén megjelent korábbi publikációk, de elsősorban Favalli és társainak munkássága [21] nyomán a kiégés számítására alkalmazott összefüggés leírására a hatványfüggvény alakot alkalmaztam. A modellfüggvényt (f_{BU}), ami az aktivitásarány értékét veszi fel, a (3.11) egyenlet adja meg, ahol a b_1 és b_2 paraméterek egy adott aktivitásarány és a kiégés között jellemzőek, értéküket nemlineáris regresszióval határoztam meg.

$$f_{BU} = b_1 BU^{b_2} \quad (3.11)$$

Ennek a módszernek egy nagy előnye az egyszerűsége, ami lehetővé teszi például egy safeguards ellenőr számára az általa mért adatok alapján a helyszíni értékelést. A gamma-spektrum elemzése és a relatív hatásfok-kalibráció is automatizálható, amely lépések után már az előre meghatározott modellfüggvényből a kiégés azonnal adódik. Azonban ez az előnye a pontosság szempontjából nézve egyben a hátránya is, mert nem veszi figyelembe az üzemelési történet hatását, amely már Lebrun és Bignan tanulmánya [16] szerint is igen jelentősen befolyásolja egyes nuklidok aktivitásának időbeli alakulását.

3.3.1. Mérési és üzemvégi aktivitásarányok

A radioaktív anyagok aktivitásának tárgyalásánál minden esetben közölni kell azt a konkrét időpontot, amikor a megadott érték érvényes. Az aktivitás időbeli változását a radioizotóp bomlási állandója (λ) határozza meg, ami a felezési időből származtatható mennyiség. Az exponenciális bomlástörvény ((3.12) egyenlet) alapján két izotópra jellemző aktivitás hányadosának időbeli alakulása a (3.13) formula szerint írható le.

$$A(t) = A(t = 0) e^{-\lambda t} \quad (3.12)$$

$$\frac{A_1}{A_2}(t) = \frac{A_1}{A_2}(t = 0) e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} \quad (3.13)$$

Mindez azért lényeges, mert a kiégett fűtőelemekben a hasadási termékek aktivitásarányai az utolsó üzemi ciklusuk végét, azaz az üzemvégi állapot kezdetét, követően már nem a maghasadási folyamat szerint, hanem kizárólag a radioaktív bomlások következtében változnak. Ez az időbeliség a gamma-spektrometriával vizsgálható izotópok esetében kevés kivétellel egyszerű exponenciális csökkenést vagy növekedést jelent. Egy kivétel például a $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}$ páros, ahol a felezési idők hányadosa a cirkónium javára éppen 2 alatti, tehát a ^{95}Nb aktivitására nem áll fenn a szekuláris egyensúly feltétele.

A hűlési idő (CT) ismeretében és azt a (3.13) formulába a t idő helyére behelyettesítve a mérés idejére meghatározott aktivitásarányból kiszámolható az üzemvégi aktivitásarány. A számításhoz fontos a hűlési időt negatív előjellel használni, hiszen a méréstől kezdve időben

visszafelé kell számolni. Ezt a módszert lehet alkalmazni safeguards ellenőrzések céljából, valamint az atomerőművek kiégés-számításának ellenőrzésére. Azonban egy nukleáris törvényszéki analitikai célból végzett vizsgálatnál az üzemelés végétől számított idő nem ismert, így ebben az esetben a mérés idejére érvényes arányokból kell a kiégést megbecsülni, vagy valamilyen módszerrel először a hűlési időt megmérni.

A kétfajta időre értelmezett aktivitásarányokat szükséges egymástól megkülönböztetni. A mérés kori arányokat a ($t = CT$), a hűlési idő használatával az üzemvégi időpontra visszaszámolt arányokat pedig a ($t = 0$) jelölés azonosítja.

3.3.2. A kiégésbecsléshez megvizsgált aktivitásarányok

Alapvetésként az összes mért hasadási termék valamely másik nukliddal képzett aktivitásarányán alapuló becslést célszerű megvizsgálni. Ennek a módszernek viszont gátat szab a nuklidok kimutathatósága a rendelkezésre álló adatokban. Míg egyes hasadási termékek, mint a ^{134}Cs , ^{137}Cs és ^{154}Eu az összes kazettánál mérhető értéket mutattak, másokat csak az adathalmaz tört részében lehetett detektálni (3.2. táblázat). Ez a körülmény egyrészt a kazetták hűlési időivel függ össze, amik közül a legrövidebb 200, a leghosszabb pedig 4469 napos volt, így az ezekhez képest relatíve rövid felezési idejű izotópok már jelentős mértékben elbomlottak. Másrészt egyes izotópok kis emissziós valószínűségű gamma-sugárzók, tehát a kimutatásuk még ideális hűlési idők esetén is hosszabb mérési időket igényel.

3.2. táblázat: A hasadási termékek detektálási gyakoriságai a kiégésbecslés vizsgálatára használt adathalmazon belül.

Hasadási termék	Detektált darabszám (összes = 119)	Hasadási termék	Detektált darabszám (összes = 119)
^{91}Y	6	^{137}Cs	119
^{95}Zr (^{95}Nb)	53	^{140}Ba (^{140}La)	0
^{103}Ru	23	^{144}Ce (^{144}Pr)	115
^{106}Ru (^{106}Rh)	116	$^{148\text{m}}\text{Pm}$	0
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	104	^{154}Eu	119
^{125}Sb	81	^{156}Eu	0
^{134}Cs	119	^{160}Tb	0
^{136}Cs	0		

Az alkalmazhatóság szempontjából olyan izotópok aktivitásának arányait vizsgáltam meg, amelyek a lehető legtöbb esetben detektálhatók. A 3.2. táblázatból leolvasható számok alapján ennek a kritériumnak a következő hasadási termékek tesznek eleget: ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{144}Ce és ^{154}Eu . Ezek pontosan ugyanazok a magok, amelyeket Kolečka [19] és Favalli [21] a publikációikban is használtak.

A kimutathatósági szempontok mellett más, elméleti megfontolások mentén is szűkíteni lehet az aktivitásarányok körét. A kiégésbecslésre leginkább olyan hasadási termék arányok működhetnek jól, amelyek eltérő keletkezési móddal rendelkeznek. Ilyen értelemben a

„közvetlen/közvetlen” (pl. $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$) és az „aktiváció/aktiváció” (pl. $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$) típusú arányok a jelen célkitűzés szempontjából kedvezőtlenek.

Az összetett, kettőnél több nuklidot tartalmazó és esetlegesen az egynél nagyobb kitevőjű hatványú aktivitással szereplő arányokból nagy számú kombináció előállítható. Ilyen összetett arányoknak a kiégéssel való összefüggése rendkívül érdekes, hiszen egy ilyen arány sokkal több információt hordozhat magában a kiégésről, mint két nuklid aránya. Emellett célzottan olyan összetett aktivitásarányok is konstruálhatók, amik effektív felezési ideje messze meghaladja akár a ^{137}Cs 30 éves idejét is, ezáltal – emberi léptékeken belül – lehetőség nyílik a kiégés mérésére kvázi hűlési időtől független mennyiségekkel. Egy ilyen összetett arányt említ R.W. Mills doktori értekezésének bevezetőjében [24]. Erre az arányra „Fox-arány” néven hivatkozik és a (3.14) kifejezéssel definiálja, amelyben az izotópokat jelölő vegyjelek az aktivitásaikat takarják.

$$^{106}\text{Ru } ^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}^2 \quad (3.14)$$

Mills szerint a Fox-arány egyenesen arányos a kiégéssel, az itt megadott hivatkozásából (konferencia előadás) pedig kiderül, hogy ezt az arányt az Egyesült Királyságban a sellaföldi nukleáris telephelyen alkalmazták a kiégés mérésére [25].

A Fox-arányt megvizsgálva azonban szembetűnik, hogy itt két közvetlen hasadási termék aktivitásának szorzata van elosztva egy aktivációval keletkező termék aktivitásának négyzetével. Következésképpen a (3.14) kifejezésben a számláló egy egyszerű heurisztikus képben BU^2 -tel arányos, a nevező pedig BU^4 -nel, vagyis a Fox-arány $1/BU^2$ szerint változik. Szerencsésebb választás tehát a Fox-arány inverzét használni, amely elméletben BU^2 -tel proporcionális. A Fox-arány inverze a (3.15) kifejezéssel definiálható.

$$^{134}\text{Cs}^2 / (^{106}\text{Ru } ^{137}\text{Cs}) \quad (3.15)$$

Az inverz Fox-arány effektív felezési ideje a bomlási állandók megfelelő összegzése alapján számítható ki a (3.16) és (3.17) egyenletekkel.

$$\lambda_{\text{eff}} = 2\lambda_{^{134}\text{Cs}} - (\lambda_{^{106}\text{Ru}} + \lambda_{^{137}\text{Cs}}) = -1,05 \times 10^{-9} \text{ 1/s} \quad (3.16)$$

$$T_{1/2,\text{eff}} = \frac{\ln 2}{\lambda_{\text{eff}}} = -21 \text{ év} \quad (3.17)$$

A negatív előjelű effektív felezési idő 21 évenkénti megduplázódást ír le és bár ez abszolútértékét tekintve a ^{137}Cs felezési idejénél kisebb, mégis a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány effektív felezési idejének majdnem tízszerese.

Nyilvánvalóan az összetett arányok körét megfelelően nagy hatványkitevőket alkalmazva tetszőleges számúra lehetne növelni, de az egyszerűségnek is vannak előnyei. A kevesebb arányban szereplő izotóp és az alacsonyabb hatványkitevők alacsonyabb mérési bizonytalanságú mennyiségeket szolgáltatnak a több tagú és magasabb kitevőkkel alkotott arányoknál. Az inverz Fox-arány három izotóp alkotójával, egyetlen négyzetes kitevőjével és a relatív hosszú effektív felezési idejével ígéretes mennyiségnek tűnik.

Végül az itt ismertetett megfontolásokat alapul véve a következő aktivitásarányokkal történtek vizsgálatok: $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$, $^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$, $^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$ és $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$.

3.4. A regressziós analízis eredményei (BU)

Az aktivitásarányok és a kiégés között feltételezett, (3.11) szerinti függvény által leírt összefüggések függvényillesztéseinek eredményeit a 3.4. – 3.8. ábrák mutatják be. A regressziókat az OriginPro 2021 szoftverrel végeztem el, minden esetben az aktivitásarányokra vonatkozó, azok inverz szórásnégyzetével egyenlő súlytényezőket alkalmazva [26]. A grafikonokon a pontok a gamma-spektrumok alapján meghatározott aktivitásarányok, a görbe a regresszió eredménye és a görbe körüli sáv az illesztés 95%-os predikciós intervalluma. Minden grafikon alatt a pontoknak az illesztett görbéhez viszonyított százalékos eltérése látható. A 3.9. és 3.10. ábrákon az illesztett függvények és a mért aktivitásarányok közötti eltérések eloszlásait ábrázoltam az arányok szerinti külön hisztogramokon, az ábrák sorrendben a mérési és az üzemi állapotokra vonatkoznak. A regresszióval kiszámított b_1 és b_2 paraméterek értékeit és azok bizonytalanságát, kovarianciáját ($\text{Cov}(b_1, b_2)$) és korrelációs együtthatóját ($\rho(b_1, b_2)$), valamint az illesztés minőségét jellemző redukált khí-négyzet (χ_{red}^2) és módosított r-négyzet (R_{adj}^2) számokat a 3.3. táblázat foglalja össze.

Az illesztett függvényekbe a kazetták ismert, magassági pontra kiszámított kiégéseit behelyettesítve adódik az aktivitásarányok becslött értéke. A kiégés becsléséhez a (3.11) képlet átrendezése szükséges, így áll elő a (3.18) egyenlet, amelyben f_{BU} helyére az α_i szimbólum került, ami egy tetszőleges, i -vel indexelt aktivitásarány mérés alapján meghatározott értékét reprezentálja, bu_i pedig a becslött kiégését jelöli.

$$bu_i = \frac{1}{b_1} \alpha_i^{1/b_2} \quad (3.18)$$

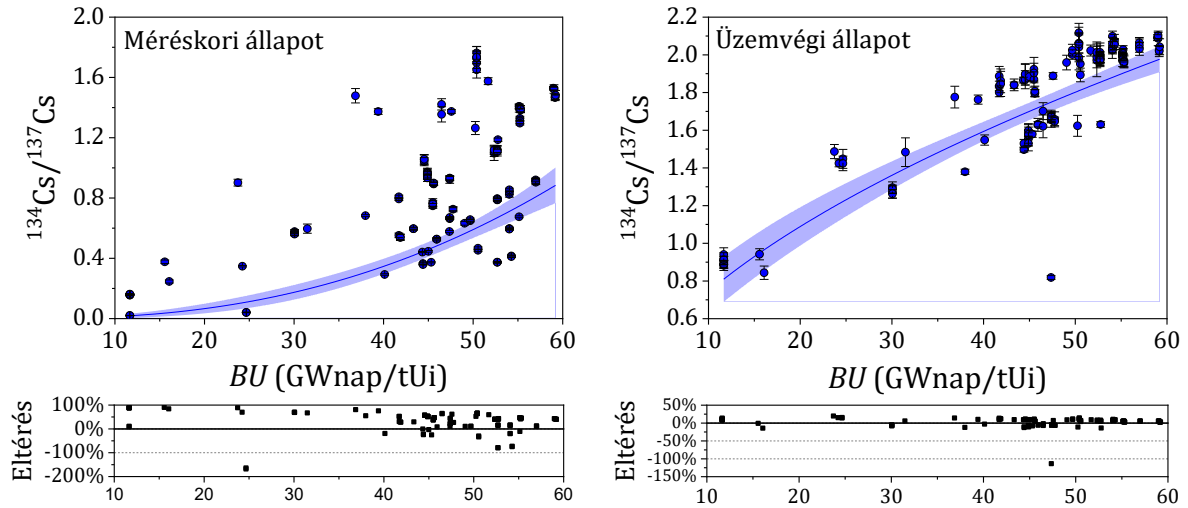
A fenti összefüggéssel számolt bu_i és az ismert BU értékek különbségével képzett eltérések segítségével vizsgáltam meg a becslések pontosságát. Az eltérések előjeles átlaga információt ad a módszer átlagos torzításáról (B_i). Az átlagos abszolút eltérés (*mean absolute error*, MAE_i) és a négyzetes közép szerinti eltérés (*root mean square error*, $RMSE_i$) a torzítással szemben a módszer átlagos precizitását jellemzik. Minél közelebb esnek a B_i , MAE_i és $RMSE_i$ metrikák a nullához, annál megbízhatóbbnak minősül az α_i aktivitásarányra alapozott becslés. A BU és a bu_i értékek egyezésének vizsgálatához definiáltam egy 95%-os konfidenciaintervallumot, amit a (3.22) képlet jelöl, ahol σ_{bu} a mérésből számított kiégés becslött szórása, $\sigma_{BU} = 0,9 \text{ GWnap/tUi}$ pedig a C-PORCA kódból származó kiégés-bizonytalanság. A metrikák kiszámított értékeit és a konfidenciaintervallumba (CI) esés százalékos arányát a 3.4. táblázat foglalja össze.

$$B_i = \frac{1}{j_{\text{max}}} \sum_{j=1}^{j_{\text{max}}} (bu_{i,j} - BU_j) \quad (3.19)$$

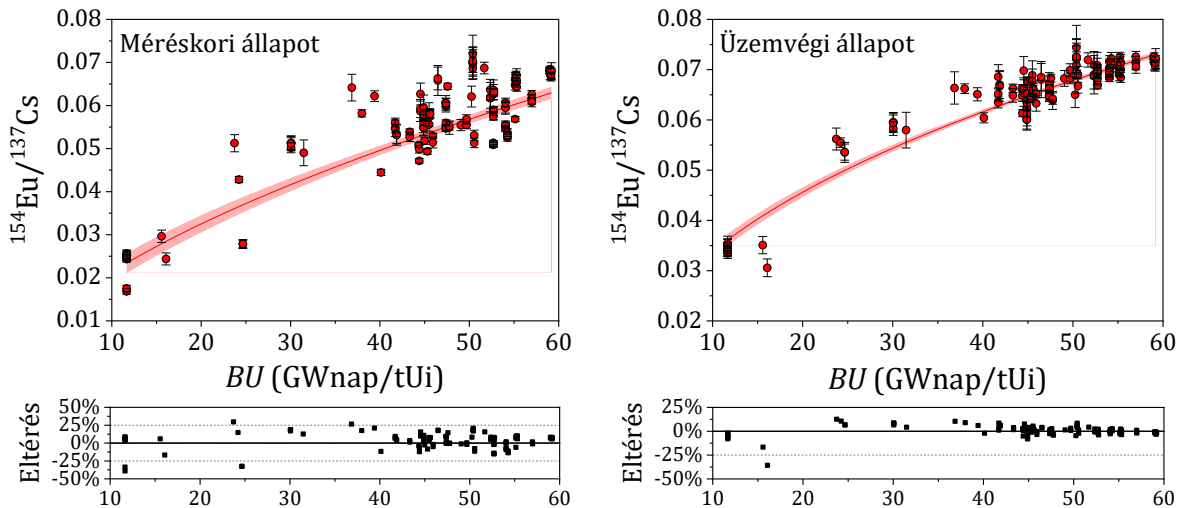
$$MAE_i = \frac{1}{j_{\text{max}}} \sum_{j=1}^{j_{\text{max}}} |bu_{i,j} - BU_j| \quad (3.20)$$

$$RMSE_i = \sqrt{\frac{1}{j_{\max}} \sum_{j=1}^{j_{\max}} (bu_{i,j} - BU_j)^2} \quad (3.21)$$

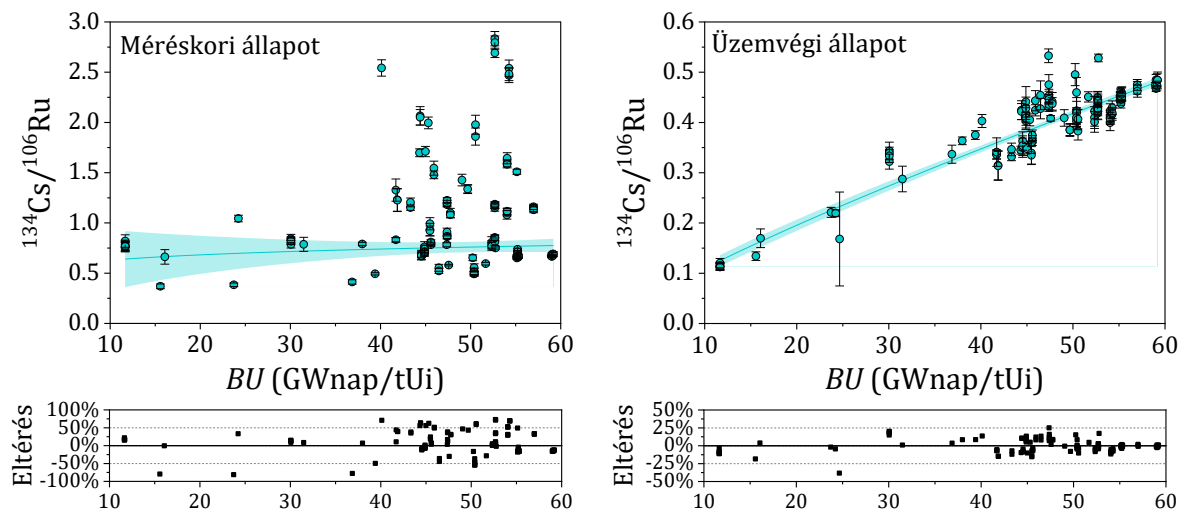
$$bu - 1,96\sqrt{\sigma_{bu}^2 + \sigma_{BU}^2} < BU < bu + 1,96\sqrt{\sigma_{bu}^2 + \sigma_{BU}^2} \quad (3.22)$$



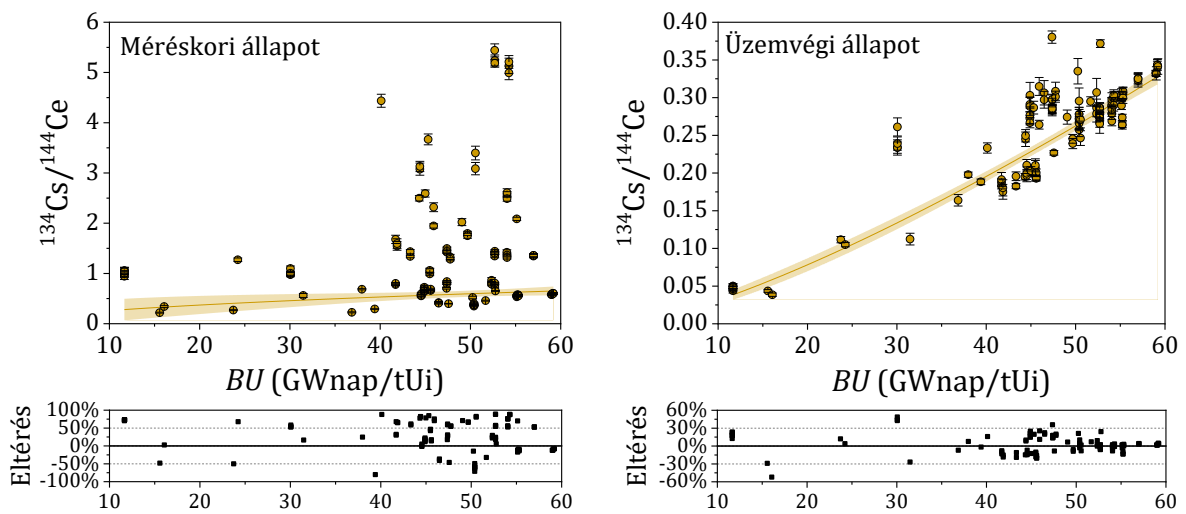
3.4. ábra: Függvényillesztés a kiegész - $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány adatpontokra. A bal oldali grafikonokon a mérés idejére kiszámolt, a jobb oldaliakon az üzemvég időpontjára meghatározott arányok szerepelnek.



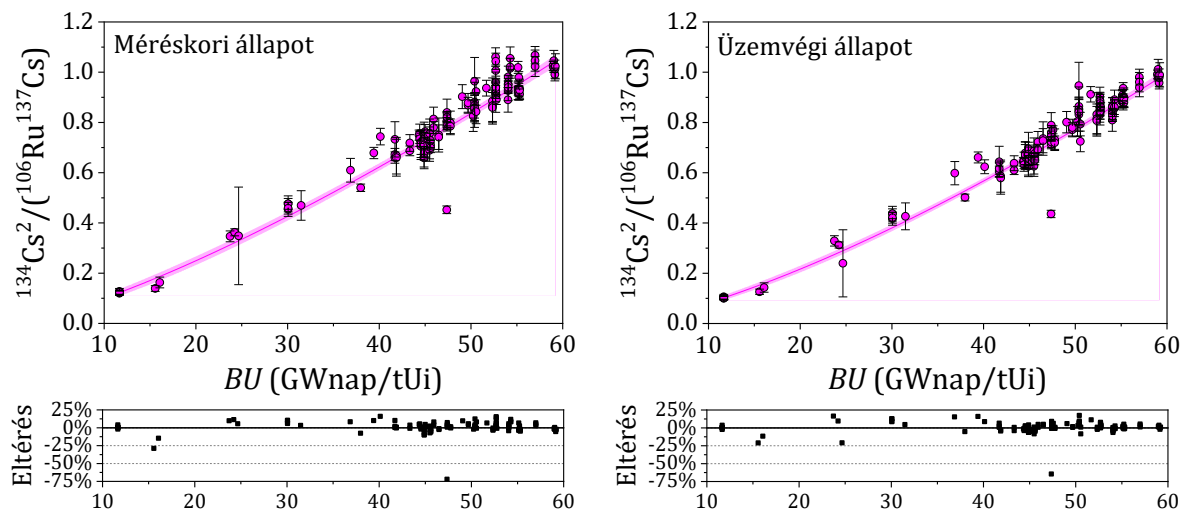
3.5. ábra: Függvényillesztés a kiegész - $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány adatpontokra. A bal oldali grafikonokon a mérés idejére kiszámolt, a jobb oldaliakon az üzemvég időpontjára meghatározott arányok szerepelnek.



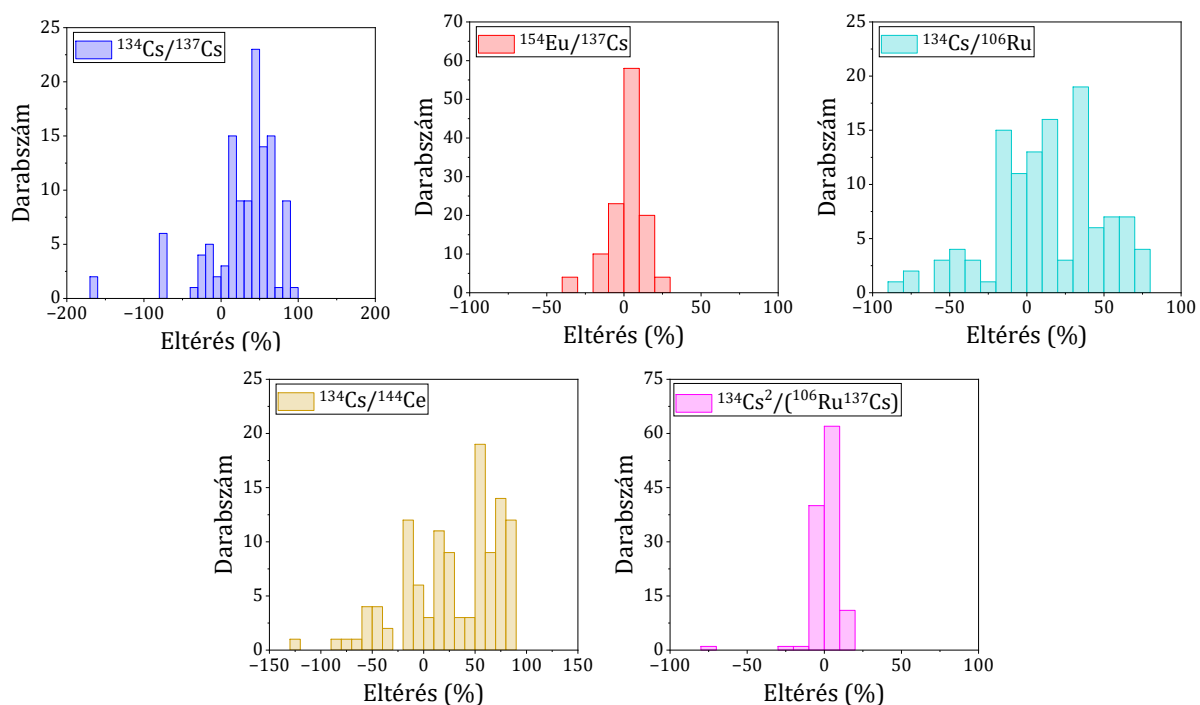
3.6. ábra: Függvényillesztés a kiegész - $^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$ aktivitásarány adatpontokra. A bal oldali grafikonokon a mérés idejére kiszámolt, a jobb oldaliakon az üzemvég időpontjára meghatározott arányok szerepelnek.



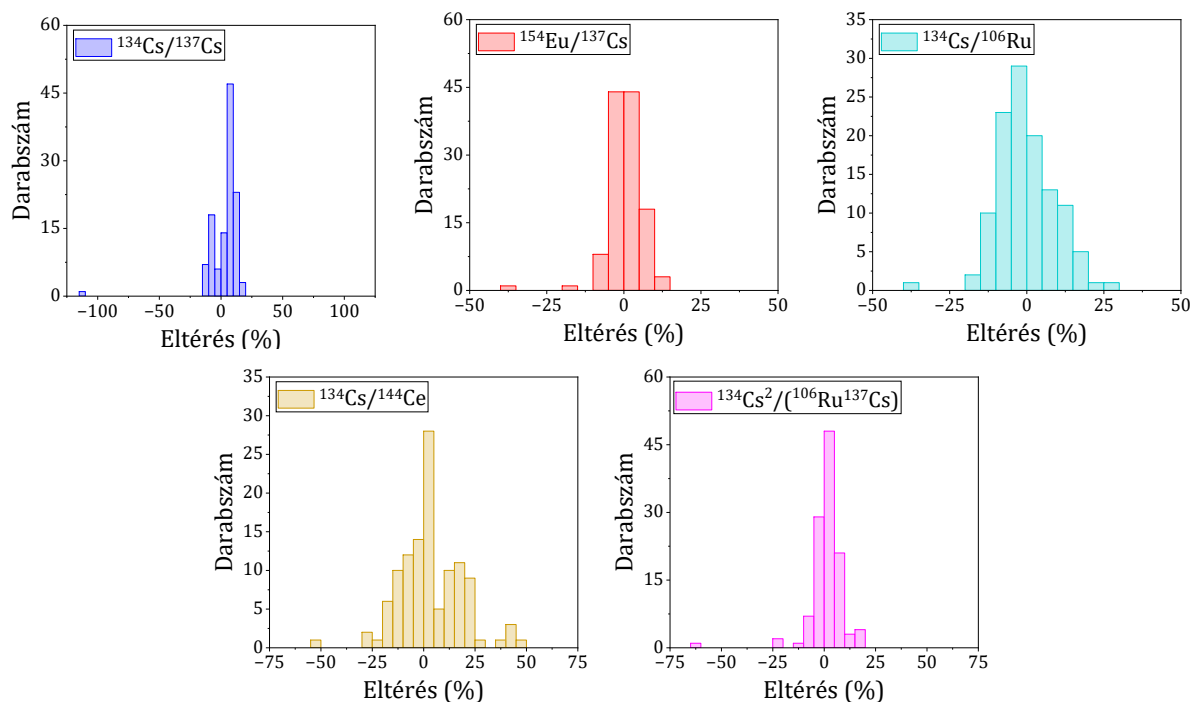
3.7. ábra: Függvényillesztés a kiegész - $^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$ aktivitásarány adatpontokra. A bal oldali grafikonokon a mérés idejére kiszámolt, a jobb oldaliakon az üzemvég időpontjára meghatározott arányok szerepelnek.



3.8. ábra: Függvényillesztés a kiegészés - $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány adatpontokra. A bal oldali grafikonokon a mérés idejére kiszámolt, a jobb oldaliakon az üzemvég időpontjára meghatározott arányok szerepelnek.



3.9. ábra: Az illesztett függvény és az adatpontok közötti százalékos eltérések eloszlása nagyságuk szerint a mérés kori állapot aktivitásarányaival számolva. A hisztogramok oszlopainak 10%-ot fednek le.



3.10. ábra: Az illesztett függvény és az adatpontok közötti százalékos eltérések eloszlása nagyságuk szerint az üzemvégi állapot aktivitásarányaival számolva. A hisztogramok oszlopai 5%-ot fednek le.

3.3. táblázat: A kiegészítő aktivitásarány adatpontokra illesztett függvények paraméterei és a regresszió minőségét jellemző számértékek.

Aktivitásarány	$b_1 \pm \Delta b_1$	$b_2 \pm \Delta b_2$	$\text{Cov}(b_1, b_2)$	$\rho(b_1, b_2)$	χ_{red}^2	R_{adj}^2
Méréskori állapot ($t = CT$)						
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	$(5,2 \pm 5,3) \times 10^{-5}$	$2,4 \pm 0,3$	$-1,4 \times 10^{-5}$	-1	1032	0,72
$^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$	$0,0052 \pm 0,0007$	$0,61 \pm 0,03$	$-2,3 \times 10^{-5}$	-1	29,3	0,84
$^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$	$0,078 \pm 0,081$	$0,52 \pm 0,26$	-0,04	-1	406,4	0,039
$^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$	$0,48 \pm 0,28$	$0,12 \pm 0,15$	-0,02	-1	160	-0,003
$^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$	$0,0048 \pm 0,0007$	$1,32 \pm 0,04$	$-2,6 \times 10^{-5}$	-1	6,3	0,973
Üzemvégi állapot ($t = 0$)						
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	$0,21 \pm 0,04$	$0,55 \pm 0,05$	-0,002	-1	101,2	0,604
$^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$	$0,0125 \pm 0,0006$	$0,43 \pm 0,01$	$-6,3 \times 10^{-6}$	-1	3,5	0,952
$^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$	$0,0015 \pm 0,0003$	$1,32 \pm 0,06$	$-5,9 \times 10^{-5}$	-1	27,5	0,932
$^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$	$0,016 \pm 0,002$	$0,83 \pm 0,03$	-2×10^{-5}	-1	7,3	0,939
$^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$	$0,0034 \pm 0,0004$	$1,39 \pm 0,03$	$-1,4 \times 10^{-5}$	-1	4,7	0,982

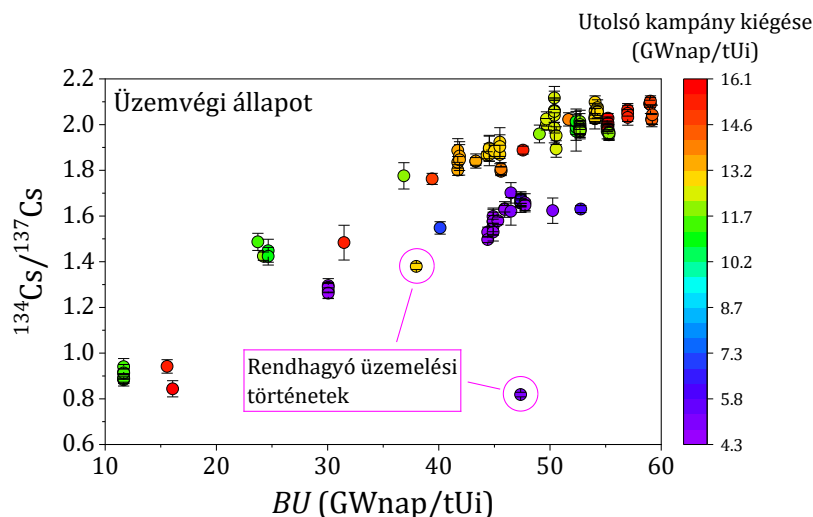
3.4. táblázat: Az illesztett függvények b_1 és b_2 paraméterei alapján számított B , MAE és $RMSE$ értékek GWnap/tUi mértékegységben, valamint a 95%-os konfidenciaintervallumon belüli egyezés aránya az összes mért kazetta viszonyában.

Aktivitásarány	B (GWnap/tUi)	MAE (GWnap/tUi)	$RMSE$ (GWnap/tUi)	95% CI-n belüli egyezés aránya
Méréskori állapot ($t = CT$)				
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	+11	13	15,2	60%
$^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$	+4,45	7,09	9	86%
$^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$	> 60	> 60	> 60	28%
$^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$	> 60	> 60	> 60	15%
$^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$	+0,62	1,72	2,58	99%
Üzemvégi állapot ($t = 0$)				
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	+3,81	7,08	8,18	66%
$^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$	+1,02	3,21	4,14	98%
$^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$	+0,45	3,74	4,89	99%
$^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$	+1,4	4,14	6,02	95%
$^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$	+0,49	1,45	2,25	99%

3.5. Diszkusszió, következtetések

Az összesen 119 darab kiégett fűtőelem kísérleti adataira regressziós technikát alkalmazva a hasadási termék aktivitásarányok és a kiegész közötti függvényszerű kapcsolatokra derítettem fényt. A feltételezett, hatványfüggvény alakban felírt kapcsolat alapján kiszámolt kiegész és e paraméter ismert értékei közötti eltérések elemzésével kiválasztható a becslés szempontjából alkalmazandó ideális mennyiség. A vizsgált aktivitásarányok eredményét egyesével értékeltem, aminél figyelembe vettem a méréskori és az üzemvégi állapotokban nyújtott teljesítményükre.

A $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arányról megállapítottam, hogy a méréskori értékek nagy szórásának köszönhetően ez a mennyiség a hűlési idő ismeretének hiányában nem alkalmas a kiegész becslésére. Az üzemvégi időpontra visszaszámolt arány is meglepetést okozott, hiszen az elmélet szerint várt lineáris összefüggés helyett egy gyökfüggvénynél épphogy magasabb hatványkitevőjű görbe illeszkedett jól az adatokra. A 3.4. ábrán megfigyelhető még a 25-60 GWnap/tUi tartományban a pontok széttartása, amiket mintha nem egyetlen görbével, hanem egy magasabban és egy alacsonyabban futó hatványfüggvénnyel lehetne külön-külön megilleszteni. A kampányokra lebontott kiegész adatokat szemügyre véve korrelációt fedeztem fel a legutolsó kampány kiegészi szintje és a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arány magasabban vagy alacsonyabban futó görbére illeszkedése között (3.11. ábra). A két rendhagyó üzemi történetű kazetta az utolsó üzemi ciklusa előtt 5-5 évet pihent, ami idő alatt a ^{134}Cs izotóp aktivitása kevesebb mint az ötödére csökkent. Az eredményeim megerősítik, hogy a mérhető $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arányra nagy hatással van a legutolsó kampányban szerzett kiegész, ezért ismeretlen üzemi történetű kiégett fűtőelemek esetén ennek a mennyiségnek a használata nem javasolt.



3.11. ábra: Az üzemvégi $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányok a kiégés függvényében és az utolsó kampányban szerzett kiégés szerint színezve.

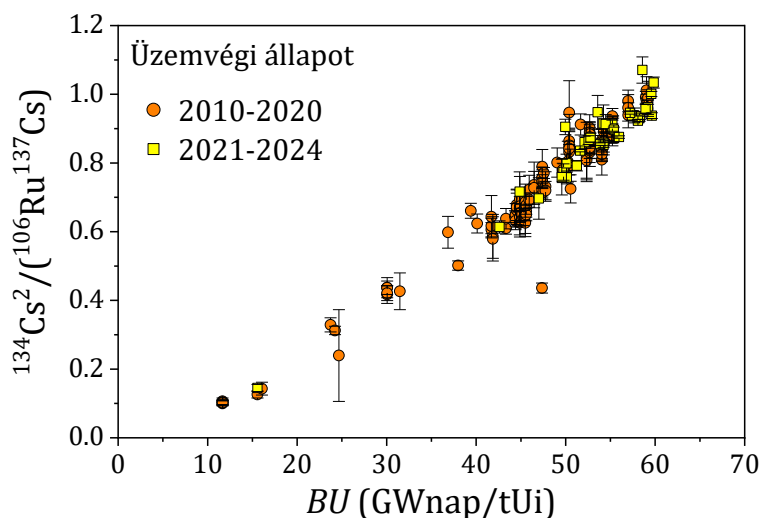
Az $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány jobban teljesített a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aránynál, ami vélhetően az ^{154}Eu 8,6 éves felezési idejének a következménye. A pontossága még a hűlési idő korrekciója nélkül is az üzemvégre kiszámolt $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ értékekkel végzett becsléssel vetekszik. Az üzemvégi állapotra átszámolt arányoknál nem lép fel az utolsó üzemi ciklus kiégése miatt okozott torzítás, emellett a rendhagyó előéletű kazetták értékei sem térnek el a hozzájuk hasonló össz-kiégésű fűtőelemekétől. Azonban ennek az aránynak is több hátránya van, ami megnehezíti a használatát. Az üzemvégi állapot értékeire illesztett hatványfüggvény kitevője még 0,5-nél is kisebb, ami alacsony érzékenységet eredményez. Másrészt a ^{134}Cs -hoz képest az ^{154}Eu elfogadható (kb. 1-2%) pontosságú méréséhez több időre van szükség és számos potenciális csúcs-interferencia léphet fel, amiket az elemzőnek a spektrum értékelésénél figyelembe kell venni.

A $^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$ és $^{134}\text{Cs}/^{144}\text{Ce}$ aktivitásarányok egymáshoz nagyon hasonló eredményeket produkáltak, ezért a két arányt itt együtt tárgyalom. Mindkettő esetében megállapítottam, hogy a mérés kori értéküket használva értelmezhető kiégésbecslés nem valósítható meg, ami a ^{106}Ru és ^{144}Ce kb. 1 éves felezési időiből következik. Meglepő eredmény, hogy az üzemvégi arányokkal átlagban megbízhatóbb becslést értem el, mint az elterjedten alkalmazott $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aránnyal. Az utolsó kampány kiégésének hatását ebben az esetben is megfigyeltam, de érdekes módon ez a tényező pont a fordított irányban hat, tehát a kisebb utolsó ciklusú kiégést szerzett kazettákra az arányok nagyobbá váltak.

Az összetett $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány majdnem minden szempontból a legmegbízhatóbb becslést eredményezte, egyedül az üzemvégi állapot torzításában maradt el kis mértékben a $^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$ aránytól. Az utolsó kampányban szerzett kiégés torzítása egyedül az egyik rendhagyó üzemi történetű kazetta esetében nyilvánult meg, aminek a mért aktivitásaránya a hozzá hasonló kiégésűekénél 35%-kal alacsonyabb. A hatványfüggvény alakú modellel rendkívül jó illeszkedést kaptam az üzemvégi és a mérés kori állapotoknál is. Ez utóbbi tulajdonság valószínű magyarázata a $^{134}\text{Cs}/^{106}\text{Ru}$ és a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arányok ötvöztetésében rejlik,

hiszen a fent leírt tapasztalatok alapján ezeknél az arányoknál az utolsó kampány kiégésének a hatása ellentétes irányú változást produkál. Az összetett arány bevezetésénél tárgyalt 21 éves effektív felezési időnek köszönhetően a mérés kori értékekből közvetlenül becsült kiégések is jobb egyezést mutatnak az ismert kiégésekkel, mint bármelyik másik tesztelt arányból az üzemvégi állapotban kiinduló becslés. A ^{106}Ru magnak van még egy tulajdonsága, ami megkülönbözteti az összes többi vizsgált hasadási terméktől: az ^{235}U és a ^{239}Pu termikus hasadására vonatkozó kumulált hasadási hozamainak aránya. ^{235}U urán hasadása esetén a hozam mindössze 0,4%, ellenben ^{239}Pu hasadásánál 4,3% [1], vagyis a plutónium hasadásából több mint 10-szeres mennyiségű ^{106}Ru keletkezik. Ez azt jelenti, hogy a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány részben integrálja a ^{239}Pu -nek a kiégéssel együtt növekvő részarányára vonatkozó információt is és feltehetően ez a tulajdonság is szerepet játszik az összetett arálynak a rendkívüli kiégés-becslő képességében. Egyetlen komoly hátránya ennek az aktivitásaránynak a ^{106}Ru 1 éves felezési idejéből adódó kimutathatósági időkorlát, amelyet a Paksi Atomerőműben szerzett mérési tapasztalataim alapján 9 évre becsültem.

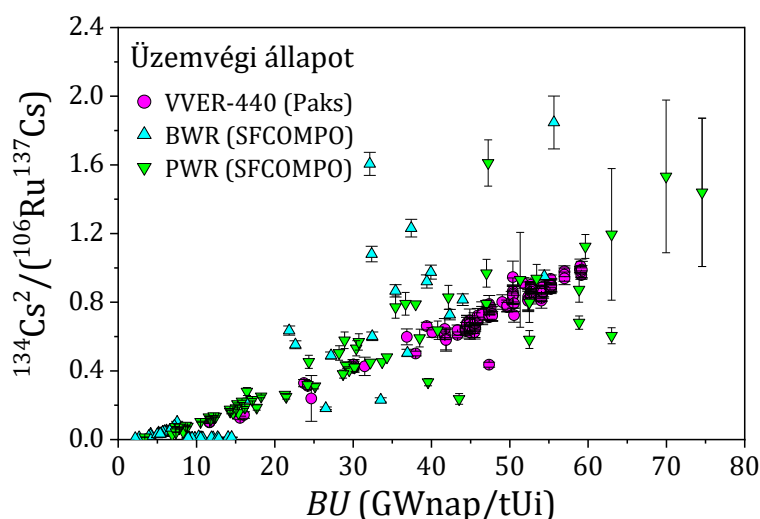
Az eddigiekben megállapított kiváló teljesítményt további teszteknek alávetve megvizsgáltam a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány alakulását a 2021-2024 időszakban elvégzett VVER-440 kiégett fűtőelem méréseknél is. A 3.12. ábrán láthatóan a sárga színnel jelzett 2021-2024 között megmért adatok (37 darab pont) nagyon jó konzisztenciát mutatnak a korábban mért narancs színű adatokkal (116 darab pont).



3.12. ábra: A Paksi Atomerőmű fűtőelemeiben mért $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány a kiégés függvényében az üzemvégi állapotban. A grafikonon a 2010-2020 éves mérések mellett a 2021-2024 időszakban mért kazetták adatai sárga színnel kiemelve szerepelnek.

További összehasonlítási alapot nyújt az OECD NEA által fenntartott SFCOMPO-2.0 könyvtár, amely egy szabadon hozzáférhető, számos reaktortípust és üzemelési történetet felölelő kiégett fűtőelemek kísérleti adataiból álló adatbázis [27]. Olyan mintáknál, melyeknél az elemzők megadták a ^{134}Cs , ^{137}Cs és ^{106}Ru koncentrációkat, kiszámítottam a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányt. BWR fűtőelemeknél ez 64 darab és PWR-ek esetében 65 darab pontot jelentett. Az összehasonlításhoz kiválasztott BWR kazetták között 6x6, 8x8 és 9x9

négyzetrácsos típusok fordultak elő, a PWR kazetták közül pedig 14x14, 15x15 és 17x17 négyzetrácsos konstrukciók is bekerültek az adathalmazba. Az összes aktivitásarányt az üzemvégi időpontra visszaszámolt értékként jelenítettem meg. A vizuális összehasonlítás a 3.13. ábrán tekinthető meg. A PWR és a VVER-440 kazetták között – kisebb számú kilógó pontoktól eltekintve – főként a kis kiégések tartományában jó egyezést állapítottam meg. A BWR adatok már nem illeszkednek ennyire jól a VVER-440 adatok mellé, itt kis és nagyobb kiégéseknél is nagy eltéréseket tapasztaltam.



3.13. ábra: Kiegett fűtőelemekben mért $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányok a kiégés függvényében más-más reaktorkonstrukciók esetén. Az SFCOMPO-ban mérési bizonytalanság adatokat nem minden esetben tüntettek fel, ezeknél a pontoknál a hibasáv nulla értéket mutat.

Az ebben a fejezetben bemutatott vizsgálatokból levont következtetéseket az alábbi felsorolás részletezi³:

- A VVER-440 típusú kiegett fűtőelemek gamma-spektrometriai mérésével a kiégés átlagosan $\pm 1,5$ GWnap/tUi (1σ) pontosságon belül meghatározható a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány alapján, ha a hűlési idő ismert és 9 éven belüli.
- 9 évnél hosszabb hűlési idő esetén a kiégés meghatározásához a $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitás használata javasolt, ezzel az átlagos pontosság $\pm 3,2$ GWnap/tUi (1σ).
- Ismeretlen hűlési idejű mintánál a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány – amennyiben a ^{106}Ru kimutatható – továbbra is alkalmazható a kiégés becslésére $\pm 1,7$ GWnap/tUi (1σ) mellett.
- A $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány alkalmasnak mutatkozik VVER-440 típus mellett 14x14, 15x15 és 17x17 PWR konstrukciójú fűtőelemek kiégének meghatározására is.

³ Az ebben a fejezetben bemutatott munkáim közül a 2021 előtti és utáni mérési adatok összehasonlítása (3.12. ábra), valamint a paksi mérések és az SFCOMPO-2.0 könyvtár adatainak összehasonlítása (3.13. ábra) nem részei az 1. tézispontozatához kapcsolódó [p1] publikációnak, mert ezeket a vizsgálatokat a cikk megjelenése után végeztem.

3.6. [T1] Tézispont: Kiegészéscslési módszer vizsgálata gamma-spektrometriával mért hasadási termék aktivitásarányokkal

VVER-440 típusú kiégetett fűtőelemek gamma-spektrometriai méréséből származó hasadási termék aktivitásarányok és a fűtőelem kiégetése közötti empirikus összefüggéseket határoztam meg. Hatványfüggvény modellel végzett regressziós analízissel megállapítottam, hogy a 9 évnél rövidebb hűlési idővel rendelkező fűtőelemekre, a széles körben alkalmazott $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány helyett a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányt használva átlagosan közel 5-ször pontosabb kiegészéscslés érhető el. A $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányról megmutattam, hogy a pontosság mindössze 19%-os romlása mellett a hűlési idő ismerete nélkül is alkalmazható a kiegészéscslésre.

A tézispontához kapcsolódó publikációk listája:

- [p1] P. Kirchknopf, I. Almási, G. Radócz, I. Nemes, P. Völgyesi és I. Szalóki, „Determining burnup, cooling time and operational history of VVER-440 spent fuel assemblies based on in-situ gamma spectrometry at Paks Nuclear Power Plant”, *Annals of Nuclear Energy*, 170, p. 108975, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.108975>.

4. A HŰLÉSI IDŐ ÉS AZ EREDET VIZSGÁLATA

A kiégett fűtőelemek hűlési ideje eltér a többi fontos paramétertől (1.1. táblázat). Idő dimenziójú mennyiségként értéke inherensen növekszik, amely változás egy mérés alatt magának a hűlési időnek a nagyságától és a mérés hosszától függően számottevő vagy elhanyagolható lehet. Ennek ellenére a hűlési idő több szempontból is rendkívül fontos paraméter. Egyrészt a segítségével az üzemvégi állapotra, vagyis a besugárzás végének időpontjára kiszámolhatók a mért izotópok aktivitásai és aktivitásainak arányai, ami nagyban megkönnyíti más fűtőelem paraméterek meghatározását. Másrészt valójában egy, a vizsgált fűtőelemre jellemző állandó értékű paraméter, az üzemvégi időpont ismerhető meg a hűlési idő által, ami önmagában egy fontos eredetjelölő paraméter a nukleáris törvényszéki analitikában.

4.1. Irodalmi áttekintés

Azokban a tudományos cikkekben, melyekben a szerzők a kiégés mérésének módszereit tárgyalják, gyakran szerepet kap a hűlési idő meghatározásának kérdése is. Ez összefügg a roncsolásmentes módszerekkel észlelhető izotópspecifikus mennyiségek hűlési időtől függő időbeli alakulásával.

P. Jansson a doktori értekezésében algebrai úton levezeti a hűlési idő gamma-spektrometriai mérés általi számítási módját [17]. Alapfeltevése szerint egy hasadási termék izotóp gamma-sugárzásának intenzitása (I) a kiégéstől (BU) és a hűlési időtől (CT) az alábbi módon függ:

$$I = k BU^{\kappa} \cdot e^{-\lambda CT}, \quad (4.1)$$

ahol k és κ a kiégéstől való függésnek az együtthatói, λ pedig az adott mag bomlási állandója. Jansson munkája szerint egy 1 és 2 indexekkel jelölt hasadási termék párra a kiégés együtthatóinak ismeretében és a két izotóp gamma-intenzitásait mérve a hűlési idő a következő alakban számítható ki:

$$CT = \frac{\ln \left[\left(\frac{k_2}{I_2} \right)^{\kappa_1} \cdot \left(\frac{I_1}{k_1} \right)^{\kappa_2} \right]}{\lambda_2 \kappa_1 - \lambda_1 \kappa_2}, \quad \lambda_2 \kappa_1 \neq \lambda_1 \kappa_2 \quad (4.2)$$

A hűlési idő számítása ebben a képletben valóban egyszerűen megvalósítható, de a (4.2) egyenletben szereplő intenzitásokat és együtthatókat is erősen befolyásolja a mérési geometria. Következésképpen ez a technika leginkább egy fixen telepített mérőrendszerre és korlátozott körű gyári típusú fűtőelemekre használható.

C. Willman és szerzőtársainak 2006-os cikkében a Jansson által kidolgozott (4.2) formulát, valamint a ^{134}Cs izotóp mért gamma-intenzitásából és ismert üzemvégi koncentrációjából adódó összefüggést alkalmazzák a hűlési idő számítására [18]. Két hasadási termék párt vizsgáltak, ezek a ^{137}Cs - ^{134}Cs és ^{134}Cs - ^{154}Eu . A (4.2) formulát elméleti megfontolásokat követve egyszerűsítik: ^{137}Cs esetén $\kappa = 1$, illetve ^{134}Cs és ^{154}Eu esetén $\kappa = 2$.

A cikkben tárgyalt módszer szerint a ^{134}Cs gamma-sugárzásának méréséből a hűlési idő a (4.3) egyenlet alapján számolható:

$$CT = \frac{\ln\left(K_{134} \frac{I_{134}}{i_{134}}\right)}{\lambda_{134}}, \quad (4.3)$$

ahol λ_{134} a ^{134}Cs bomlási állandója, K_{134} a ^{134}Cs -re jellemző kalibrációs konstans, I_{134} a ^{134}Cs reaktorfizikai kóddal számított üzemvégi mennyisége és i_{134} mért ^{134}Cs gamma-intenzitás. A kísérleti adataik 12 darab, 9 és 11 év közötti hűlési idejű, 17x17 PWR konstrukciójú kiégett kazetta nagy-felbontású gamma-spektrometriai méréséből származnak. A ^{134}Cs intenzitásából számolt hűlési idők rendkívül pontosnak bizonyultak, ekkor a deklarált értékhez képest $\pm 0,5\%$ -on belüli eltéréseket tapasztaltak, ami valójában együttesen jellemzi a reaktorfizikai kód és a mérőrendszer hitelességét. A ^{137}Cs - ^{134}Cs izotóp pár alapján 1,5%, a ^{134}Cs - ^{154}Eu pár esetén csak 15,5% relatív standard deviációs becslési pontosságot tudtak elérni. Az összességében sikeres kísérleti eredményeket felmutató cikk kapcsán ugyancsak igaz a Jansson munkája kapcsán említett korlátozott alkalmazási lehetőség.

A. Favalli cikkében a kiégés vizsgálatával egyező módon a S. Vaccaro vezetésével készült tanulmány mérési adataira alapozza a hűlési idő becslését [20] [21]. Az előzőek bekezdésekben idézett publikációkkal ellentétben Favalli és szerzőtársai relatív mennyiségekere, a hasadási termék aktivitásarányokra helyezi a hangsúlyt. A kiégés és a hűlési idő becslését közös matematikai leírással kezelve, az adataikra alkalmazott nemlineáris regresszió útján végezték el. Az eredményeik azt mutatták, hogy a módszerükkel a nem rendhagyó üzemelési történetű PWR kazettákra a hűlési idő 5,6%-os átlagos eltéréssel becsülhető, ami 4,6%-ra csökken, ha csak a 20 évnél rövidebb ideje pihenő fűtőelemek csoportját vizsgálják. Tény, hogy ez a pontosság elmarad a Willman által bemutatott módszerétől, azonban az aktivitásarányok használatának köszönhetően Favalli módszere a mérőrendszer és az üzemanyag geometriájától függetlenül alkalmazható.

A fejezet témájához olyan tanulmányok is kapcsolódnak, melyek nem direktben a hűlési idő becslésének kérdésével, hanem a kiégett fűtőelemek nukleáris törvényszéki analitikai vonatkozásával foglalkoztak. M. R. Scott 2005-ös mesterdiplomájában egy kiégett fűtőelem alkotta radiológiai diszpergáló eszköz (RDD) kiszóródott anyagának beazonosítási lehetőségét kutatta [28]. Célja a fűtőelem eredetének meghatározása, vagyis annak a reaktornak a megtalálása, amelyben felhasználták azt. Bár konkrét reaktorra leszűkíthető, egyértelmű eredet meghatározást nem vizsgált, roncsolásos és roncsolásmentes analitikai módszerekkel mérhető kulcsparaméterek segítségével sikeresen különbséget tudott tenni BWR, PWR, CANDU és LMFBR típusokból származó kiégett anyagok között. Egy másik, 2014-es tanulmányban A. E. Jones és társai szintén nukleáris törvényszéki analitikai szempontból vizsgálták a kiégett fűtőelemek kategorizálási lehetőségeit [29]. Számítással előállítottak kiégett fűtőelemekben mérhető izotópmennyiségeket AGR, BWR, CANDU, Magnox és PWR reaktortípusokra, majd dimenziócsökkentő és többváltozós elemzési módszereket alkalmazva tesztelték az eredet meghatározásának képességét. A kidolgozott módszerük $\sim 0,5\%$ -os tévedési aránnyal nagyon

hatékonyak bizonyult, ám ehhez a fűtőelemről részletes, kizárólag roncsolásos technikával kinyerhető információkra van szükség.

4.2. A hűlési idő és a gamma-spektrometriával mérhető aktivitásarányok közötti kapcsolat

4.2.1. Az adatok forrása

A hűlési idő meghatározását a kiégés becslésénél (3. Fejezet) is használt adatokra alapoztam, amik a 119 darab mért fűtőelem három oldaláról rögzített gamma-spektrumainak átlagolásával kapott spektrumok. A spektrumok kiértékelése, a relatív hatásfok-kalibráció, valamint az aktivitásarányok számításnak módszere az előző fejezetben leírtakkal teljesen megegyező. Értelemszerűen, a hűlési idő becsléséhez kizárólag a mérés időpontjában fennálló aktivitásarány értékek használhatók, azokat az üzemvégi állapotra nem kell és a hűlési idő ismerete nélkül nincs is lehetőség visszaszámítani.

A kazetták hűlési időinek tényleges értékei a mérések dátumának, illetve az üzemvégi dátumnak a különbségei, az üzemvégi dátumok a Paksi Atomerőmű reaktorfizikusai által szolgáltatott adatoknak köszönhetően ismertek. Azoknál a méréseknél, amelyek esetében egy kazetta három oldalának mérése nem egy, hanem két, egymást követő napra esett, a hűlési idő számítását mindig arra a napra alapoztam, amelyen két oldal mérése történt. A hűlési idők tartománya a vizsgált adathalmazban 200-4469 nap, becsült bizonytalanságuk ± 1 nap, ami a mért kazettáknál abszolút értékben legfeljebb 0,5%-os hibát okoz.

4.2.2. Aktivitásarányok és a hűlés idő közötti összefüggés

A radioaktív magok időbeli exponenciálisan csökkenő bomlási karakterisztikája következtében a modellfüggvényt (f_{CT}) természetes módon exponenciális alakban választottam ki. A (4.4) formulában az egyetlen illesztésből származó paraméter a c szorzótényező, a kitevőben szereplő $(\lambda_2 - \lambda_1)$ szorzófaktor ugyanis ismert mennyiségeknek a különbsége. Itt λ_1 az aktivitásarány számlálójában, λ_2 pedig az arány nevezőjében levő izotóp bomlás állandója.

$$f_{CT} = c e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)CT} \quad (4.4)$$

Az f_{CT} függvény ismeretében és a helyére a kiválasztott aktivitásarány értékét (α_i) beírva a (4.4) egyenlet átalakításából következik az i -vel jelölt arányból becsült hűlési idő (ct_i) kiszámítását leíró (4.5) egyenlet. A Gauss-féle hibaterjedési formulát alkalmazva a (4.5) egyenletre és élve azzal a feltételezéssel, hogy a bomlási állandók bizonytalansága elhanyagolható, a becsült hűlési idő bizonytalanságát (Δct_i) a (4.6) összefüggéssel határoztam meg.

$$ct_i = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \left(\frac{c}{\alpha_i} \right) \quad (4.5)$$

$$\Delta ct_i = \frac{1}{|\lambda_1 - \lambda_2|} \sqrt{\left(\frac{\Delta c}{c} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \alpha_i}{\alpha_i} \right)^2} \quad (4.6)$$

4.2.3. A hűlési idő becsléséhez megvizsgált aktivitásarányok

Ahogy a kiégés becslésénél, úgy a hűlési idő esetében is a szóba jöhető aktivitásarányok körének szűkítésére volt szükség. Itt ismét azt a megközelítést alkalmaztam, hogy a hasadási termékek a keletkezésük jellege szerint csoportosíthatók és az arányok ennek megfelelően „közvetlen/közvetlen”, „aktiváció/aktiváció” vagy „aktiváció/közvetlen” módon jellemezhetők. A hűlési idő számításához azonban elengedhetetlen, hogy a kiválasztott arány amennyire csak lehetséges a kiégéstől független legyen. Belátható tehát, hogy a keresett aktivitásarányoknak „közvetlen/közvetlen” vagy „aktiváció/aktiváció” jelleget kell viselniük.

Az arány érték időbeli változásának a módszer érzékenységének maximalizálásához a lehető legnagyobb kell lennie, ami az effektív felezési idő minimalizálását jelenti. Ezt a gyors változást viszont úgy kell teljesíteni, hogy közben az arány tagjai akár évek múltán is mérhető mennyiségben legyenek jelen. Az izotópokra jellemző kimutathatóságot meghatározó mértékben maga a hűlési idő befolyásolja, amiből következően egy-egy rövidebb felezési idejű hasadási termék detektálásának a hiánya (adott mérési elrendezésnél) a magasabb hűlési időknek egyfajta indikátora.

Az előző bekezdésekben ismertetett megfontolások alapján öt aktivitásarányt választottam ki, ezek a 4.1. táblázatban találhatók. Az ^{110m}Ag izotóp a többinél valamivel kevesebb kazettánál volt detektálható (3.2. táblázat), ezek mindegyike a méréskor 2000 napnál rövidebb hűlési idővel rendelkezett.

4.1. táblázat: A hűlési idő becsléséhez kiválasztott aktivitásarányok effektív felezési idői és keletkezésük jellegei.

Aktivitásarány	$T_{1/2,\text{eff}}$ (nap)	Keletkezés jellege
$^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	992	aktiváció / aktiváció
$^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$	385	közvetlen / közvetlen
$^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$	292	közvetlen / közvetlen
$^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$	374	aktiváció / aktiváció
$^{110m}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$	271	aktiváció / aktiváció

A 3.5. alfejezet 3.11. ábráján bemutatott rendhagyó előéletű kazetták közül a négy ciklust üzemelő (nagyobb kiégésű) kazetta adatai korrekcióra szorultak. A több, mint 5 év (1898 nap) kihagyás a negyedik üzemi ciklus előtt jelentős információvesztést eredményezett, ami leginkább a rövidebb felezési idejű ^{106}Ru , ^{110m}Ag és ^{134}Cs izotópokat érintette. A korrekciót a (4.7) heurisztikus formula alapján végeztem el, ahol $\alpha_{i,\text{kor}}$ a kiszámított aktivitásarány, r az első három ciklus átlagos kiégésének és a negyedik ciklus kiégésének hányadosa és t a kampányok közötti hosszú szünet alatt eltelt idő.

$$\alpha_{i,\text{kor}} = \alpha_i [1 + r(e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t} - 1)] \quad (4.7)$$

A korrekció helytállóságát több azonos dúsítású és három ciklust üzemelő, valamint négy ciklust üzemelő és az utolsóban kis kiégést szerző kazetta mérési adataival ellenőriztem. Az utóbbi kazetták egyetlen mérvadó különbsége a rendhagyó előéletűhöz képest a hosszú üzem

közi szünet hiánya volt. Összevetésben $\pm 15\%$ -on belüli eltéréseket kaptam a korrigált aktivitásarányok és az ellenőrző négy ciklusos kazetták adatai közt, ami sokkal kedvezőbb, mint a korrekció nélküli átlagosan -55% -os különbség.

4.2.4. A regressziós analízis eredményei (CT)

A 4.1. táblázat aktivitásarányait a kazetták hűlési idejének függvényében ábrázolva és ezekre az adatsorokra a (4.4) formulával definiált függvényt illesztve meghatároztam az arányokra jellemző c szorzófaktorokat. A regressziót az OriginPro 2021 szoftverrel végeztem el, minden esetben az aktivitásarányokra vonatkozó, azok inverz szórásnégyzetével egyenlő súlytényezőket alkalmazva [26]. Az eredményeket a 4.1. – 4.5. ábrák szemléltetik, amelyeken bal oldalt az adatpontok és a rájuk illesztett függvény látható logaritmusos y-skálán, jobb oldalt pedig az illesztett és a mért aktivitásarányok közötti százalékos eltérések eloszlása szerepel. Az exponenciális függvényben szereplő c paraméter értékeit és becsült hibáját, valamint az illesztés jóságát jellemző χ_{red}^2 és R_{adj}^2 számokat a 4.2. táblázat tartalmazza. A 3. fejezetben a kiegészítő definiált B_i , MAE_i és $RMSE_i$ statisztikai jellemzőket a hűlési idő ismert és becsült értékeire vonatkozóan sorban a (4.8), (4.9) és (4.10) egyenletek adják meg, a kiszámított jellemzők a 4.3. táblázatban találhatók. A CT és a ct_i értékek egyezésének vizsgálatához definiált 95%-os konfidenciaintervallumot a (4.11) képlet adja meg, ahol σ_{ct} a mérésekből számított hűlési idő becsült szórása, $\sigma_{CT} = \pm 1$ nap pedig a hűlési idő becsült hibája. A konfidenciaintervallumba (CI) esés százalékos arányát a 4.3. táblázat tartalmazza.

$$B_i = \frac{1}{j_{\text{max}}} \sum_{j=1}^{j_{\text{max}}} (ct_{i,j} - CT_j) \quad (4.8)$$

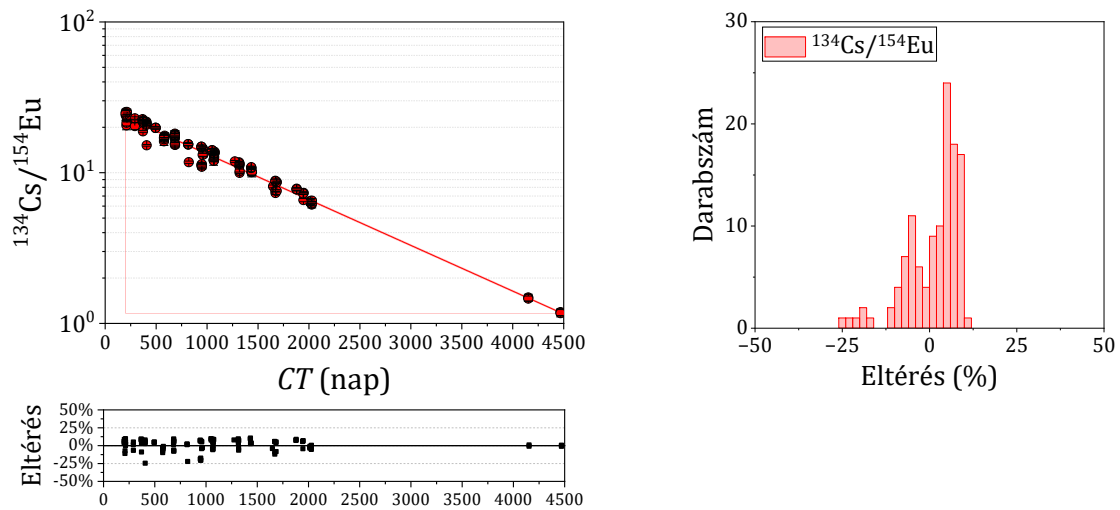
$$MAE_i = \frac{1}{j_{\text{max}}} \sum_{j=1}^{j_{\text{max}}} |ct_{i,j} - CT_j| \quad (4.9)$$

$$RMSE_i = \sqrt{\frac{1}{j_{\text{max}}} \sum_{j=1}^{j_{\text{max}}} (ct_{i,j} - CT_j)^2} \quad (4.10)$$

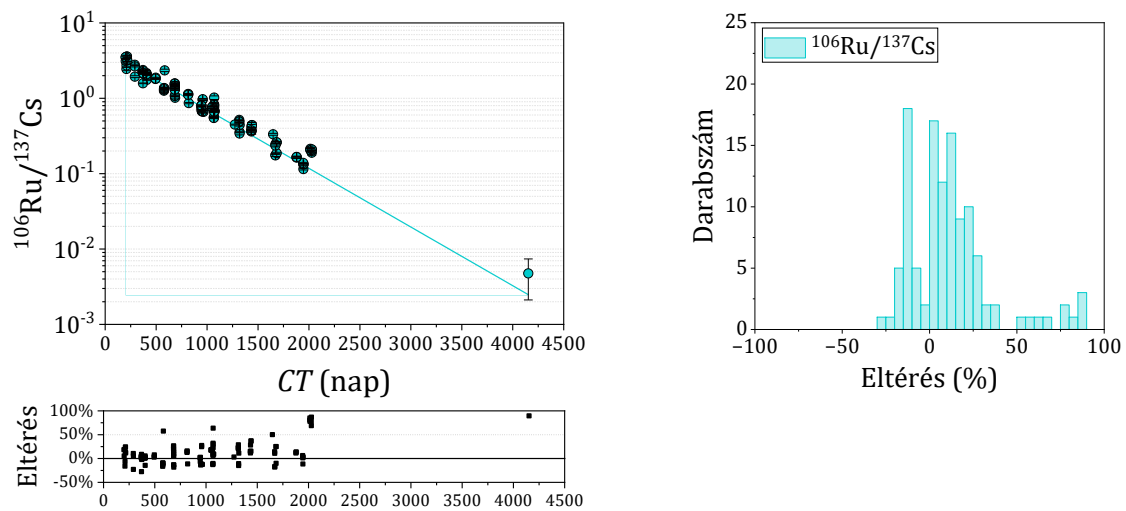
$$ct - 1,96\sqrt{\sigma_{ct}^2 + \sigma_{CT}^2} < CT < ct + 1,96\sqrt{\sigma_{ct}^2 + \sigma_{CT}^2} \quad (4.11)$$

4.2. táblázat: A hűlési idő - aktivitásarány adatpontokra illesztett függvények paramétere, a bomlási állandók különbsége és a regresszió minőségét jellemző számértékek.

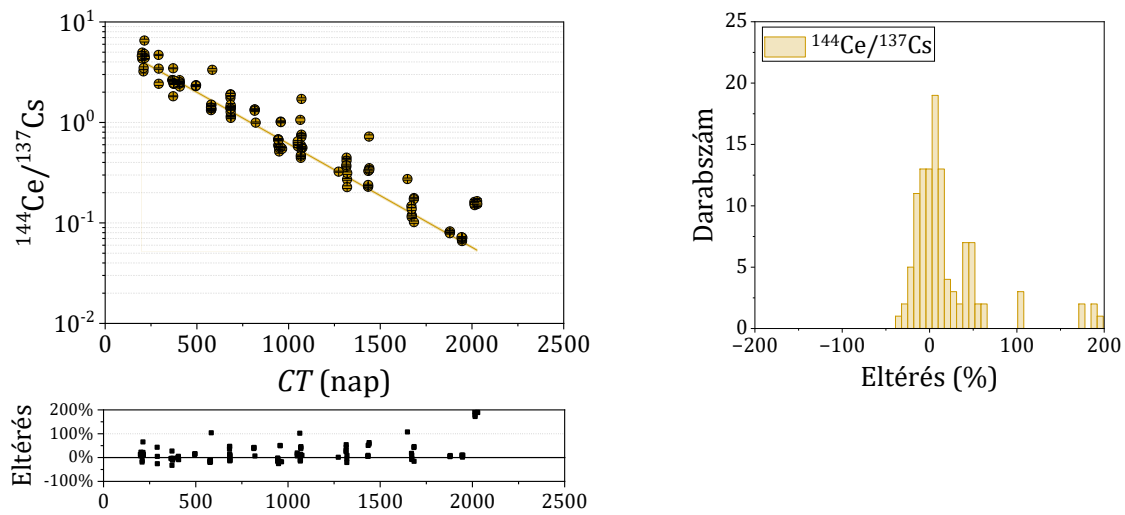
Aktivitásarány	$c \pm \Delta c$	$\lambda_1 - \lambda_2$ (1/nap)	χ_{red}^2	R_{adj}^2
$^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	$26,8 \pm 0,2$	$6,98 \times 10^{-4}$	16,9	0,976
$^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$	$4,24 \pm 0,06$	$1,79 \times 10^{-3}$	39,1	0,969
$^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$	$6,54 \pm 0,1$	$2,37 \times 10^{-3}$	111	0,949
$^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$	$0,0182 \pm 0,0002$	$1,86 \times 10^{-3}$	6,2	0,98
$^{110\text{m}}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$	$0,49 \pm 0,01$	$2,55 \times 10^{-3}$	13,5	0,967



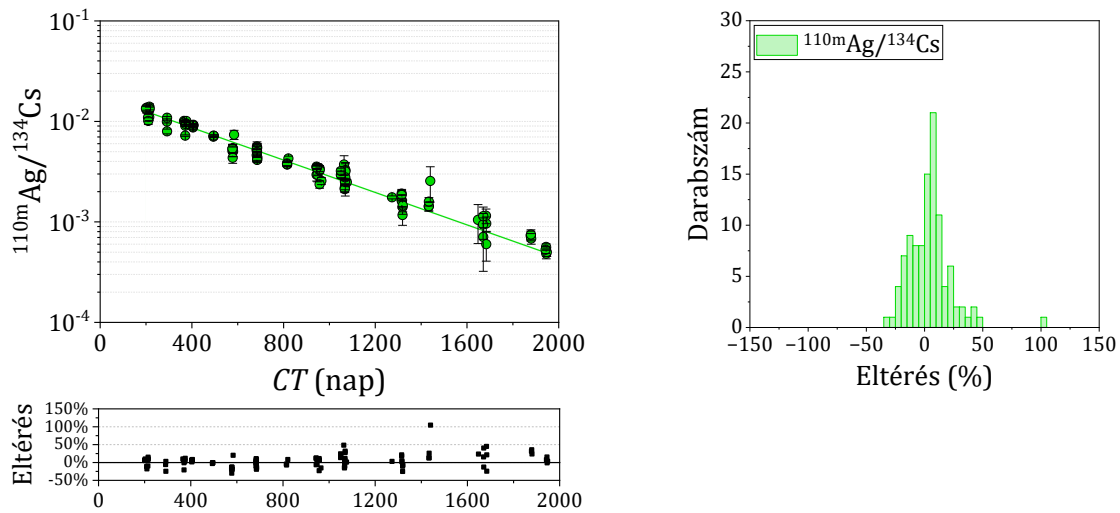
4.1. ábra: Függvényillesztés a hűlési idő - $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarány adatpontokra. A jobb oldalon az illesztett és a mért érték százalékos eltérése látható.



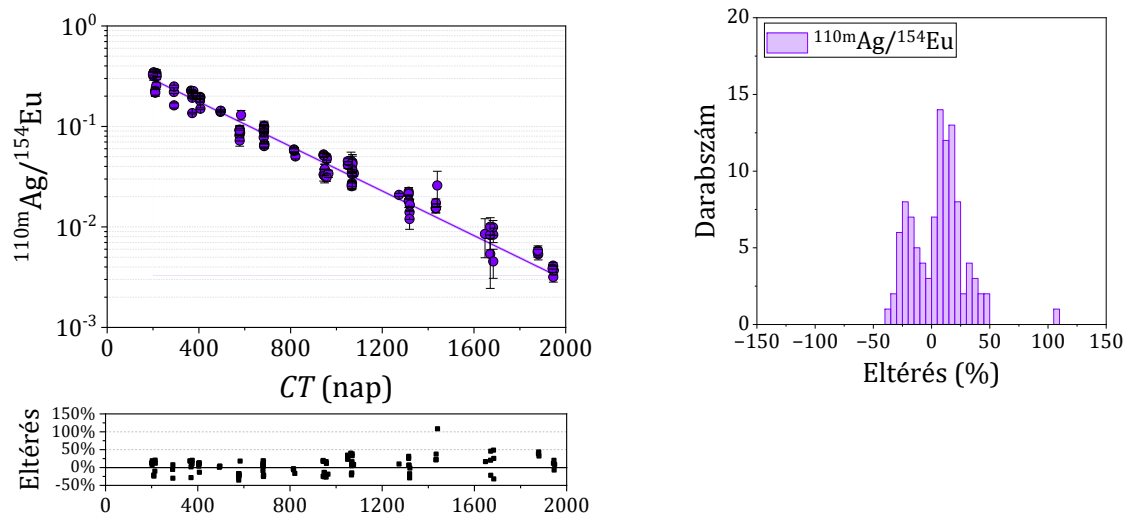
4.2. ábra: Függvényillesztés a hűlési idő - $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány adatpontokra. A jobb oldalon az illesztett és a mért érték százalékos eltérése látható.



4.3. ábra: Függvényillesztés a hűlési idő - $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány adatpontokra. A jobb oldalon az illesztett és a mért érték százalékos eltérése látható.



4.4. ábra: Függvényillesztés a hűlési idő - $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarány adatpontokra. A jobb oldalon az illesztett és a mért érték százalékos eltérése látható.



4.5. ábra: Függvényillesztés a hűlési idő – $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarány adatpontokra. A jobb oldalon az illesztett és a mért érték százalékos eltérése látható.

4.3. táblázat: Az illesztett függvények c paraméterei alapján számított B , MAE és $RMSE$ értékek napokban megadva, valamint a 95%-os konfidenciaintervallumon belüli egyezés aránya az összes mért kazetta viszonyában.

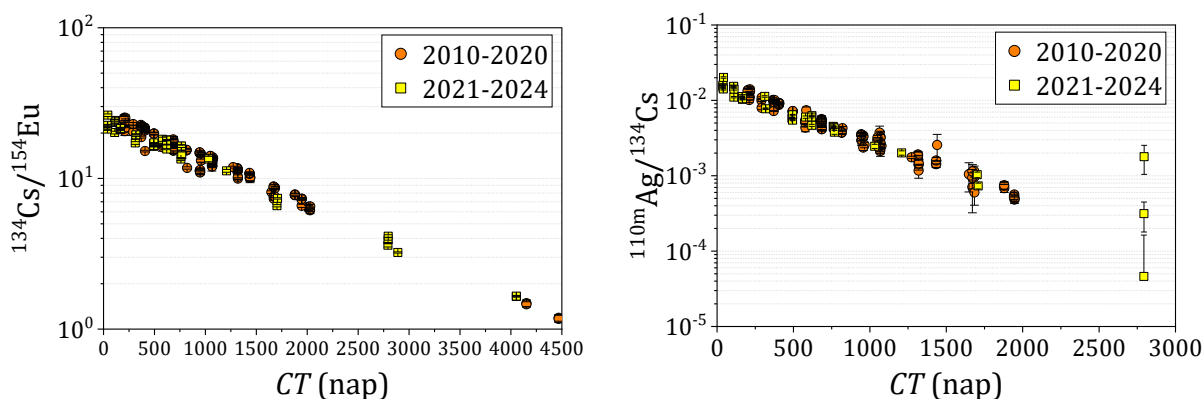
Aktivitásarány	B (nap)	MAE (nap)	$RMSE$ (nap)	95% CI-n belüli egyezés aránya
$^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	-13	92	113	50%
$^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$	-50	91	121	20%
$^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$	-64	103	156	18%
$^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$	-16	68	89	78%
$^{110\text{m}}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$	-13	70	83	49%

4.2.5. Diszkusszió, következtetések

Az eredményeim alapján a hűlési idő számításának megbízhatósága 104 darab kazetta mérése alapján az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányt használva lett a legkedvezőbb. Mellette közel azonos teljesítményt nyújtott az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$ arány, azonban – vélhetően az ^{154}Eu magasabb mérési bizonytalanságának köszönhetően – a becslés átlagos pontossága az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányhoz képest az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{154}\text{Eu}$ esetében kisebb. A $^{144}\text{Ce}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarány a 4.3. ábrán megfigyelhető függőleges szórás következtében nem ad megbízható becslést, feltehetően azért, mert ez a mennyiség a kiégéstől vagy az üzemelési történetétől nem teljesen független. A $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és a $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányok hasonlóan precíz hűlési idő becslést tesznek lehetővé, az utóbbi arány viszont nagyobb torzítással rendelkezik és a ^{106}Ru kimutatása 9 évnél hosszabb ideje pihenő kazettáknál már kihívást jelent.

Minden előnye ellenére a $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarány alkalmazása az ^{110m}Ag izotóp 250 napos felezési ideje miatt időben korlátozott. A kísérleti vizsgálat megerősíti, hogy az $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarány 5-5,5 év hűlési időn belül eredményesen, átlagosan ± 3 hónap hibával használható, az időkorlát becült értéke 6-7 év közé tehető. Ezen időn túl a legalkalmasabb mennyiségnek a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarány bizonyult, amelyből a hűlési idő átlagosan ± 4 hónap hibán belül kiszámítható. A $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ arány legalább 12,5 év hűlési ideig alkalmazható, azonban a mérési bizonytalanságok extrapolálásával várhatóan akár 20 éve pihenő kazettáknál is sikeresen kimutatható. A tényleges kimutatási határok természetesen a konkrét mérési elrendezéstől is erősen függenek, az itt feltüntetett korlátok a Paksi Atomerőműben végzett mérésekre és azok körülményeire (detektor, mérési idő stb.) értendők.

A javasolt két aktivitásarány megbízhatóságát a 2021-2024 időszakban elvégzett mérések alapján ellenőriztem (4.6. ábra). A grafikonokon megfigyelhető, hogy a későbbi mérésekből számított aktivitásarányok hiánytalanul beilleszkednek a korábbi mérések pontjai közé, ami alapján mindkét aktivitásarányt megbízhatónak találtam. A 4.6. ábra jobb oldali grafikonjának jobb szélén három, 7,5 éves hűlési idejű kazetta mért $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásaránya látható, amik rendhagyó módon kilógnak a görbeillesztés alapján várt kb. 10^{-4} -es értéktartományból. Ezeknek a kazettáknak a mérési eredményei a $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arány alkalmazhatóságának korlátját tükrözik, megerősítve ezzel a fentiekben a 6-7 éves alkalmazhatósági határra vonatkozó becslésemet.



4.6. ábra: A $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ (bal oldal) és az $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ (jobb oldal) aktivitásarányok ábrázolása a hűlési idő függvényében a regresszióhoz felhasznált 2010-2020 évi adatsor és a későbbi 2021-2024 évi adatsor megkülönböztetésével.

Az SFCOMPO-2.0 adatbázis különböző típusú kiégett nukleáris üzemanyagaival a hűlési idő esetében a csekély számú rendelkezésre álló információ miatt nem tudtam a VVER-440-es kazettákat összehasonlítani. Ennek egyik oka az, hogy a ^{110m}Ag izotópról a teljes adatbázisban mindössze kettő kazettánál közöltek koncentráció értéket. A másik ok a számos mintánál nem közölt mérési dátum, amely esetben a mért értékeket csak az üzem végének időpontjára kiszámítva adták meg, ezek a mennyiségek viszont nem alkalmazhatók a hűlési idő számítására.

4.3. Az eredet meghatározásának lehetőségei

A nukleáris törvényszéki analitikai eljárás szempontjából rendkívül fontos információt adnak a fűtőelem eredetére utaló paraméterek. Ezek magukba foglalják a felhasználás helyét, ami az erőmű típusára vagy akár konkrét létesítményre is vonatkozhat, illetve az idejét, vagyis a pihentetés kezdetének dátumát. A mérések útján meghatározott hűlési időből azonnal következik az utolsó üzemelési ciklus végének becsült időpontja, amely maga egy eredetjelölő paraméter, hiszen ez a dátum összevethető a potenciálisan eredetként felmerülő erőművek blokkjainak leállási dátumaival. A kutatásomhoz használt adatok mindegyike a Paksi Atomerőmű kiégett kazettáiból származik, emiatt az eredet helyére vagy az erőmű típusára irányuló vizsgálatot a jelen keretek között nem tudtam megvalósítani. A Paksi blokkok leállásának dátumai azonban a mérésekhez szolgáltatott adatok alapján ismertek, így az utolsó üzemelési ciklus beazonosítási lehetősége megvizsgálható. Az itt felhasznált adatok a teljes 2010-2024 időszakban elvégzett mérésekből származnak.

A fenti megállapításaimból kiindulva érdemes a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányokkal is megbecsült hűlési időkből származó leállási dátumok pontosságát értékelni. Az értékelésénél különbséget tettem két eset között: az egyik eset, amikor a blokk száma ismert; a másik eset, amikor nem feltételezhető a blokk számára vonatkozó információ megléte. A metodika mindkét esetben megegyező: a kampányok ismert leállási dátumai közül az adja meg eredményként a pihentetés kezdetének időpontját, ami a becsült hűlési idő alapján számolt dátumhoz pozitív vagy negatív irányban a legközelebb esik.

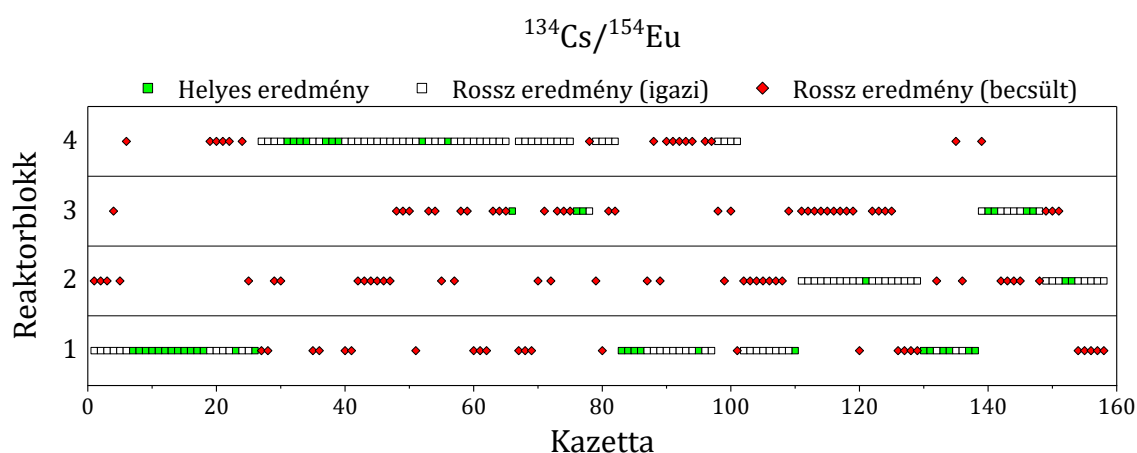
Amikor rendelkezésre áll a vizsgált fűtőelemek reaktorblokkra vonatkozó információja, akkor a 4.4. táblázatban összegzett eredmények szerint az utolsó kampány sorszámának becslése az esetek több, mint 90%-ában pontosnak bizonyult. Ez a pontosság mindkét aktivitásarányra jellemző volt, de a $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aránynál 18 darab kazettára a kis $^{110\text{m}}\text{Ag}$ spektrális jelnek köszönhetően nem sikerült a hűlési idő egzakt számítása. A kiemelkedően magas találati arány nem meglepő, hiszen a korábbi vizsgálataim során a két mennyiségre megállapított hűlési idő becslési bizonytalanság ± 3 és ± 4 hónap, ami a régebbi 12 hónapos és az újabban bevezetett 15 hónapos kampányokra nézve egyaránt megfelelő pontosságot eredményez.

4.4. táblázat: Az utolsó kampány dátumának becslése és a kampány sorszámának beazonosítása. Az eltérések kampányszám (k) értékben vannak feltüntetve.

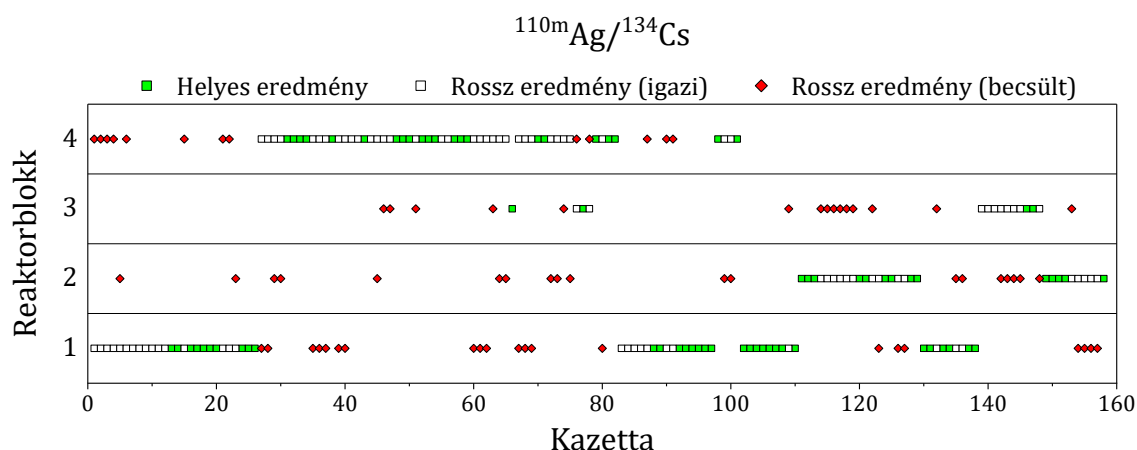
Aktivitásarány	Kazetták darabszáma a kampányszám becslésének eltérése szerint					összes
	$\leq -2 k$	$-1 k$	0	$+1 k$	$+2 k \leq$	
$^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$	1	9	148	0	0	158
$^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$	0	2	132	5	1	140

A helyzet alapjaiban megváltozik akkor, amikor a négy reaktorblokk közül nem tudni, hogy az adott kazetta melyiken volt üzembe helyezve. Ekkor ugyanis előfordultak a különböző blokkoknál egymáshoz 1-2 hónap közelségben lévő leállási dátumok is. Az eredmények

értékeléséből kiderítettem, hogy a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aránnyal számolva mindössze 45 kazettánál (28%), az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aránnyal számolva pedig 70 kazettánál (50%) lett pontos a blokk számának és az utolsó kampány sorszámának meghatározása. A tévedés oka szinte minden esetben a blokk számának helytelenül prediktált értékére vezethető vissza, jól meghatározott blokk melletti kampányszám tévedés csak egy-egy esetben történt. A blokkok számának helyes meghatározását és tévesztéseit a két mennyiségre rendre a 4.7. és 4.8. ábrák szemléltetik. Az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarány az eredet-meghatározási probléma esetében is felülmúlta a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ arányt az utóbbihoz képesti másfélszer több helyes beazonosított utolsó ciklussal. Az itt látható eredmények alapján azonban világos, hogy a nukleáris törvényszéki analitikai célok, vagyis a megbízható eredetmeghatározás eléréséhez a regressziós módszernél kisebb hibájú számítási technikára van szükség.



4.7. ábra: A hűlési idő alapján a blokk- és kampányszámra tett becslési kísérlet eredménye a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarányból kiindulva.



4.8. ábra: A hűlési idő alapján a blokk- és kampányszámra tett becslési kísérlet eredménye az $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányból kiindulva.

4.4. Speciális eset: rövid és extrém rövid hűlési idők

Atomerőművi környezetben végzett, elsősorban safeguards célú gamma-spektrometriai mérések rendszerint 1 éves, vagy ennél hosszabb pihentetésű fűtőelemeken történnek. Ennek ellenére elképzelhető olyan kiégett fűtőelem ellenőrzése és vizsgálata is, amely esetében a reaktor leállítását követően 1 évnél kevesebb idő telt el. Nukleáris törvényszéki analitikai szempontból nélkülözhetetlen az ilyen paraméterrel rendelkező fűtőelemek vizsgálata.

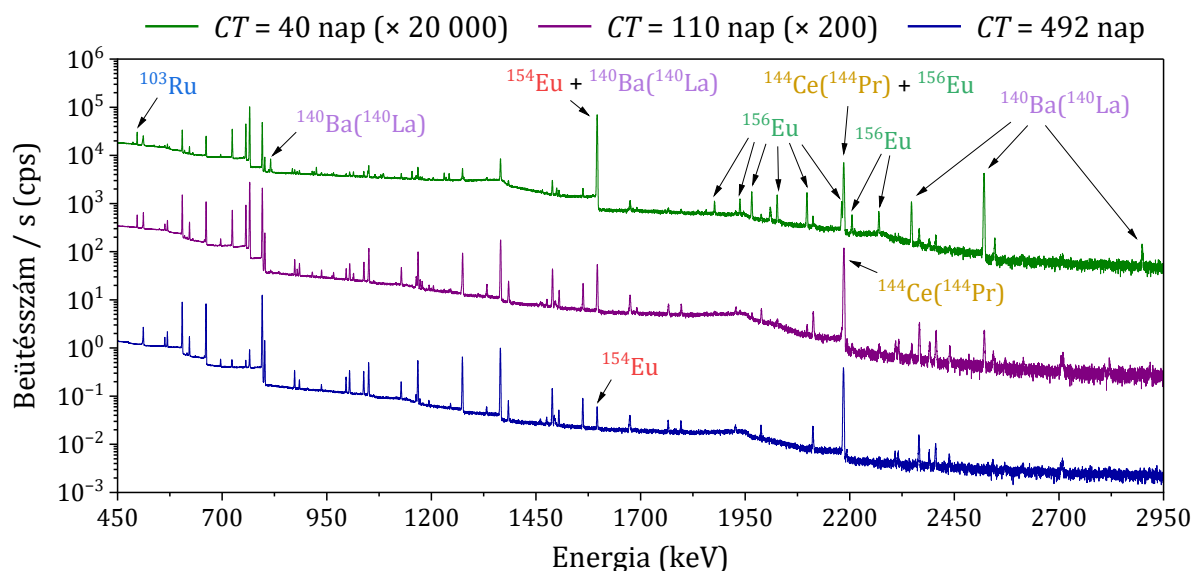
Extrém rövidnek a jelen kontextusban azt a hűlési időt neveztem, amely az $^{110m}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányra megállapított átlagos bizonytalansági határba, vagyis 0-3 hónapba esett. Ilyenkor a 4.6. ábra jobb oldali grafikonján láthatóan továbbra is használható az empirikusan meghatározott exponenciális összefüggés, azonban a becsült paraméter relatív hibája 100% körüli értékű. Ebben az esetben meg kell győződni arról, hogy a valódi hűlési idő az extrém rövidnek mondható 0-3 hónap, vagy például a rövidnek számító 3-6 hónap tartományban van. Az is előfordulhat, hogy a számolásból negatív értékű hűlési idő adódik, ami ugyan fizikailag értelmetlen eredmény, de a valódi hűlési idő rövidségének egyfajta indikátora.

A gamma-spektrometriai vizsgálat alapján megállapított mérvadó különbség extrém rövid és ennél hosszabb hűlési idejű kiégett kazetták között a spektrumban detektálható hasadási termékek köre, illetve a gamma-sugárzásuk intenzitásviszonyai. A várakozásom az volt, hogy minél rövidebb ideje pihen egy kiégett fűtőelem, annál több rövid felezési idejű izotóp aktivitása esik az adott mérési elrendezésnél a detektálható nagyságrendbe. A vizsgálatom alapját négy darab 110 nap körüli és öt darab 40 nap körüli hűlési idejű kazetta mérése képezte. E rövid felezési idejű magok listája az 1.2. táblázat alapján: ^{91}Y , ^{95}Zr (^{95}Nb), ^{103}Ru , ^{136}Cs , ^{140}Ba (^{140}La), ^{148m}Pm , ^{156}Eu és ^{160}Tb .

A 4.9. ábra egy-egy ilyen rövid pihentetésű, valamint összehasonlításként egy 16 hónapos hűlési idejű kazetta gamma-spektrumait mutatja be. A három kazetta azonos kezdeti dúsítású és 0,5 GWnap/tUi-n belül azonos kiégésű, üzemelési történetükben megegyeznek (három nagy kiégésű és végül egy kis kiégésű ciklus), illetve a spektrumok egyazon HPGe detektorral lettek rögzítve. A három spektrum között mérvadó különbséget csupán két tényező okoz: az eltérő hűlési idők és az eltérő távolságok miatt megváltozott vízréteg-vastagságok, ez utóbbi beállítást a mérések holt idejének csökkentése és mérési idejének optimalizálása miatt volt szükséges változtatni. Az ábrán bejelöltem a lényegesebb eltéréseket a spektrumokban található csúcsok között. A nyíllal megjelölt csúcsokat a feltüntetett hasadási termékek gamma-emissziói okozzák, amik néhány esetben (például 1596 és 2185 keV) több nuklid gamma-sugárzásának átfedő csúcsaként jelentkeznek. A 492 napos hűlési idejű kazetta spektrumában beazonosítottam a ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{154}Eu , ^{106}Ru (^{106}Rh), ^{144}Ce (^{144}Pr), ^{110m}Ag , ^{125}Sb és ^{95}Zr (^{95}Nb) izotópok gamma-csúcsait, amik ebben az esetben nem kaptak külön jelölést. Az előző kazettához képest a 110 nap hűlési idejű kazettában még észleltem a ^{103}Ru és a ^{140}Ba (^{140}La) izotóp nyomait is, valamint megfigyeltem a ^{95}Zr és ^{95}Nb magokra jellemző gamma-csúcsoknak (724, 756 és 765 keV) a cézium izotópok csúcsaihoz képesti magas beütésszámát. A vizsgált hűlési időt tovább csökkentve 40 napra a spektrum képe jelentős változást mutat 800 keV energia felett. Itt a ^{140}Ba bomlásából származó csúcsok meghatározó nagyságúvá válnak,

emellett az 1800 keV feletti régióban számos ^{156}Eu gamma-csúcs emelkedik ki az alapvonalból. Az említett két nuklid jelentősen megnöveli az 1500 keV-nél kisebb energiákon a Compton-háttérrel, aminek köszönhetően az itt található ^{134}Cs , ^{154}Eu és $^{110\text{m}}\text{Ag}$ csúcsok az alapvonalból kevésbé emelkednek ki. A 40 napos hűlési idejű kazetta spektrumában a spektrum részletes elemzésével kimutattam még az ^{91}Y , ^{136}Cs , $^{148\text{m}}\text{Pm}$, és ^{160}Tb hasadási termékeket is, azonban a 4.9. ábra grafikonján a csúcsaik szemmel nem kivehetők.

A 40 napos (extrém rövid) és a 110 napos (rövid) hűlési idejű kiégett fűtőelemekre számolt aktivitásarányokat a 4.6. táblázat tartalmazza. Itt csak a beazonosított rövid felezési idejű izotópok aktivitásának a ^{137}Cs aktivitásával képzett arányai szerepelnek. A kis számú rendelkezésre álló adatpont következményeként a mérési eredményekből csak limitált érvényű következtetéseket tudtam levonni. Ennek ellenére a számított aktivitásarány értékek jellemző nagyságrendjei már indikációt adnak a hűlési idő rövidségére, ezeket a megállapításaimat a 4.5. táblázatban összesítettem.



4.9. ábra: Különböző hűlési idejű kiégett kazetták három oldalára áltagolt gamma-spektrumai. Mindhárom kazetta átlagos kiégése 50-51 GWnap/tUi közötti, kezdeti dúsításuk pedig 4,7 wt% volt. A 40 napos kazetta 73,5 cm, a 110 napos kazetta 53,5 cm és a 492 napos kazetta 48,3 cm árnyékoló vízréteg mögött helyezkedett el.

4.5. táblázat: A $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, $^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$ és $^{156}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ aktivitásarányok hűlési időtől függő nagyságrendi értékei.

CT jelleg	$^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$	$^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$	$^{156}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$
extrém rövid (0-90 nap)	$\geq 10^{-2}$	$\geq 10^{-1}$	$\geq 10^{-1}$
rövid (90-180 nap)	$10^{-3} - 10^{-4}$	$10^{-2} - 10^{-3}$	$10^{-2} - 10^{-3}$
hosszú (> 180 nap)	$< 10^{-4}$	$< 10^{-3}$	$< 10^{-3}$

4.6. táblázat: Rövid és extrém rövid hűlési idejű kazettában mért rövid felezési idejű nuklidok és a ^{137}Cs aktivitásának arányai a mérés időpontjában. Az arányok alatt zárójelben a relatív mérési bizonytalanságok százalékos értékei szerepelnek.

<i>BU</i> (GWnap/tUi)	<i>CT</i> (nap)	<i>IE</i> (wt%)	$\frac{^{136}\text{Cs}}{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{^{140}\text{Ba}}{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{^{148\text{m}}\text{Pm}}{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{^{156}\text{Eu}}{^{137}\text{Cs}}$	$\frac{^{160}\text{Tb}}{^{137}\text{Cs}}$
46,3	38	4,2	0,023 ($\pm 3,2\%$)	0,50 ($\pm 0,8\%$)	0,073 ($\pm 2,8\%$)	0,17 ($\pm 1\%$)	0,0076 ($\pm 21\%$)
46,4	39	4,2	0,022 ($\pm 3,2\%$)	0,50 ($\pm 0,9\%$)	0,077 ($\pm 3,4\%$)	0,18 ($\pm 1,1\%$)	0,0080 ($\pm 14\%$)
50,5	40	4,7	0,022 ($\pm 3,1\%$)	0,47 ($\pm 0,9\%$)	0,080 ($\pm 3,1\%$)	0,17 ($\pm 1\%$)	0,033 ($\pm 4,2\%$)
51,8	41	4,7	0,019 ($\pm 3,2\%$)	0,39 ($\pm 0,8\%$)	0,072 ($\pm 3,1\%$)	0,15 ($\pm 1\%$)	0,030 ($\pm 4,4\%$)
52,6	42	4,2	0,044 ($\pm 2,2\%$)	0,87 ($\pm 0,8\%$)	0,099 ($\pm 3,1\%$)	0,38 ($\pm 0,9\%$)	0,015 ($\pm 13\%$)
44	108	4,2	0,00087 ($\pm 32\%$)	0,029 ($\pm 0,5\%$)	0,037 ($\pm 1,9\%$)	0,017 ($\pm 1,9\%$)	0,0078 ($\pm 6,2\%$)
45,9	109	4,2	0,00065 ($\pm 34\%$)	0,025 ($\pm 0,5\%$)	0,037 ($\pm 1,7\%$)	0,016 ($\pm 1,8\%$)	0,0068 ($\pm 5,8\%$)
50,7	110	4,7	0,00055 ($\pm 35\%$)	0,0092 ($\pm 0,6\%$)	0,021 ($\pm 2,2\%$)	0,0061 ($\pm 3,5\%$)	0,015 ($\pm 1,8\%$)
47,9	111	4,7	0,0012 ($\pm 37\%$)	0,023 ($\pm 0,5\%$)	0,036 ($\pm 1,7\%$)	0,014 ($\pm 2,1\%$)	0,030 ($\pm 1,4\%$)

A hűlési idő rövidségét indikáló aktivitásarányok a 4.6. táblázat értékei alapján a $^{136}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, a $^{140}\text{Ba}/^{137}\text{Cs}$ és az $^{156}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$. A hosszabb effektív felezési idejük következtében a $^{148\text{m}}\text{Pm}/^{137}\text{Cs}$ és a $^{160}\text{Tb}/^{137}\text{Cs}$ arányok nem mutattak nagyságrendi eltérést a 40 és a 110 nap körüli hűlési idejű kazetták között, így ez a két mennyiség nem alkalmas a két hűlési idő közötti különbségtételre. Fontos kiemelni, hogy a 4.6. táblázat mért mennyiségeit az összkiegész és kifejezetten az utolsó kampányban szerzett kiegész is befolyásolja. Éppen emiatt a 4.5. táblázatban jelzett értékek csak nagyságrendiek lehetnek és az indikáció csak a hűlési idő kategóriájára és nem adott értékére vonatkozik. Függvényszerű kapcsolat felállításához több mérési adatra van szükség a 0-180 nap hűlési idő tartományban⁴.

⁴ Az ebben a fejezetben bemutatott munkáim közül az eredetmeghatározási számításokat (4.3. alfejezet), valamint a rövid hűlési idők indikátorainak keresése (4.4. alfejezet) nem részei a 2. tézispontozhoz kapcsolódó [p1] publikációnak, mert ezeket a vizsgálatokat a cikk megjelenése után végeztem.

4.5. [T2] Tézispont: Hűlési idő becslése és időbeli eredetmeghatározás gamma-spektrometriával

Megmutattam, hogy exponenciális modellfüggvény alkalmazásával a mért $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarány a hűlési időre átlagosan ± 3 hónap bizonytalanságot eredményező becslést ad 0,5-5 éve pihenő VVER-440 típusú fűtőelemeknél. Azonos mérési és számítási technikát alkalmazva a 0,5-12 év tartományba eső hűlési időknél a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásaránnyal ± 4 hónapos számítási pontosság érhető el. A 6 hónapnál rövidebb hűlési idők esetén megállapítottam, hogy a ^{136}Cs , ^{140}Ba és ^{156}Eu izotópoknak a ^{137}Cs -tel képzett aktivitásarányai a hűlési idő rövidségének indikátorokai. Rámutattam, hogy az időbeli eredet megbízható megállapítása a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányok alapján csak a reaktorblokk ismeretében lehetséges.

A tézisponthoz kapcsolódó publikációk listája:

- [p1] P. Kirchknopf, I. Almási, G. Radócz, I. Nemes, P. Völgyesi és I. Szalóki, „Determining burnup, cooling time and operational history of VVER-440 spent fuel assemblies based on in-situ gamma spectrometry at Paks Nuclear Power Plant”, *Annals of Nuclear Energy*, 170, p. 108975, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.108975>.

5. GÉPI TANULÁSI MÓDSZEREK ALKALMAZÁSA

A feladat továbbra is a kiégett fűtőelemek fő paramétereinek gamma-spektrometriai úton történő meghatározása. Az eddigi módszerek a spektrumokból kinyert hasadási termék aktivitásarányok és a paraméterek empirikus összefüggéseire támaszkodtak. Ezek kétségtelen előnye az egyszerűség, ami lehetővé teszi például egy biztosítéki ellenőrzés során a használatukat, azonban a pontosságuk korlátozott. Ennek a pontossági korlátnak az oka a számítási modell egyszerűségéből származik. Az egyetlen mért mennyiség (aktivitásarány) szimpla függvnyszerű kapcsolata a keresett paraméterrel (kiégés, hűlési idő stb.) szükségszerű elhanyagolást eredményez az olyan információk kapcsán, amik a mért adatokban még rejlenek. Következésképpen érdemes többváltozós becslési módszereket is megvizsgálni. A napjainkban feltörekvőben lévő gépi tanulási (*Machine Learning*, *ML*) technikák – legyen szó akár egyszerűbb klaszteranalízisről vagy bonyolultabb neurális hálók használatáról – alkalmasak az említett spektrumokba integrált információ kinyerésére.

5.1. Irodalmi áttekintés

Kiégett fűtőelemekben mérhető nukleáris jelek többváltozós elemzésére a közelmúltban több kutatási erőfeszítés is történt. 2017-es cikkében J. Coble a kiégés, hűlési idő és a kezdeti dúsítás becslését vizsgálta a parciális legkisebb négyzetes regresszió (*partial least squares*, *PLS*) módszerével [30]. A szerzők BWR és PWR típusú erőművekben üzemelő fűtőelemekre izotópleltár adatokat generáltak az ORIGEN-ARP kóddal, majd ezek alapján jelentős geometriai egyszerűsítéseket téve szimulált gamma-spektrumokat állítottak elő. A karakterizáláshoz háromféle stratégián alapuló algoritmust alkalmaztak. Eredményeik szerint azok a stratégiák teljesítettek jól, amik elsőként a fűtőelem típusát azonosítják be és utána becsülik a paramétereiket. C. Hellesen a szintén 2017-ben megjelent publikációjában Coble cikkéhez hasonló feladatra vállalkozik [31]. Szimulált gamma-spektrometriai adatok alapján főkomponens analízist és a PLS módszert vetettek be a három fő paraméter (*BU*, *CT*, *IE*) becslésére. A későbbiekben A. M. Bachmann 2021-es cikkében Coble munkájához hasonló kutatást végzett [32]. Ebben a publikációban három gépi tanulási módszert vizsgáltak meg: *ordinary least squares regression*, *principal component regression* és a már korábban is alkalmazott PLS-t. Az eredmények azt mutatták, hogy tesztelt módszerek a kiégés becslésére jól alkalmazhatók, azonban a hűlési idő és a kezdeti dúsítás számításánál jóval kisebb pontosságú értékeket adtak.

2018-ban M. Åberg Lindell és szerzőtársainak két publikációja is megjelent ebben a témakörben. Az időrendben első cikkben a fő kérdés az urán-oxid és a MOX alapú kiégett üzemanyagok közötti különbségtétel volt [33]. Összesen hét gépi tanuláson alapuló klasszifikációs modellt próbáltak ki, a gamma-spektrometriai adatokat a *Serpent2* kóddal generálták le. A vizsgálataik sikerrel zárultak, eredményeik szerint a *k nearest neighbour* és egy speciális kernellel rendelkező *support vector machine* (*SVM*) modellekkel a két üzemanyagtípus megbízhatóan elkülönül, ha a hűlési idő 20 éven belül marad. A második

cikkben már a három fő paraméter és ezek mellett a plutónium tömegarány becslésével foglalkoztak urán-oxid és MOX kezdeti összetételű PWR üzemanyagoknál [34]. Előzetes értékelések alapján a kiégést, a kezdeti hasadóanyag részarány és a plutónium tömegarány mennyiségének számolását SVM modellel, a hűlési idő számolását pedig döntési fás regresszióval végezték el. A kezdeti hasadóanyag részarány kivételével a becsült eredményeik megbízhatónak bizonyultak, kiégésben $\pm 3,5$ GWnap/tHMi, hűlési időben ± 4 hónap becslési bizonytalanságot tudtak elérni. Az eredményeik jól mutatják a hosszú hűlési idők bizonytalanság növelő hatását. Az urán üzemanyagokra kipróbált plutónium becselő módszer is ígéretesnek mutatkozott.

S. Grape és szerzőtársai 2020-as cikkükben kifejezetten a *Random Forest (RF)* gépi tanulási modellel végeztek kiégett fűtőelem karakterizációs vizsgálatokat [35]. Több, mint fél milliós darabszámú szintetikus adatahalmazt állítottak elő, melyek a három fő paraméterük szerint széles tartományt fedtek le. A gamma-spektrometriai jeleken kívül bevonásra került még az össz-gamma intenzitás, a Cserenkov fényintenzitás és egy a neutronemisszióra jellemző időállandó. Eredményeikkel rámutatnak arra, hogy a gamma-spektrometriai adatok elégségesek a vizsgált paraméterek becsléséhez a 20 évnél rövidebb hűlési idejű fűtőelemeknél. Azonban ennél hosszabb ideje pihenő kazettáknál a kiégés és a kezdeti dúsítás becsléséhez a hasadási termék aktivitásokon túl további információra is szükség van.

A kiégett fűtőelemek safeguards ellenőrzésének egy másik aspektusa a kazetában található pálcák eltávolítása vagy „dummy” pálcára cserélése. Ennek a detektálást vizsgálta R. Rossa 2020-ban megjelent cikke, amiben kifejezetten a gépi tanulási módszerek alkalmazhatóságát tesztelték [36]. Különböző detektorokkal mérhető, szintetikus gamma- és neutron jelekből kiindulva számolták a defektusok százalékos arányát döntési fákat és a *k nearest neighbour* modellt használva. A módszer sikeresnek bizonyult, kimutatták, hogy a *k nearest neighbour* technikával jobb pontosságokat érthető el, valamint a gamma-sugárzásból érkező jelek érzékenyebbek a defektusok észlelésénél.

Több publikáció is kiemeli a szintetikus adatok használatát, mint hátráltató tényezőt [33] [34] [32]. A jelen értekezésben valós kísérleti adatokra támaszkodtam, így a munkám elviekben mentes a generált adatok okozta hátrányoktól, viszont a méréseknél fellépő bizonytalanságok torzíthatják az eredményeket. Összegezve az itt felsorolt publikációk tanulságait kijelenthető, hogy a meglévő kísérleti adatokra érdemes vizsgálni a gépi tanulási algoritmusok alkalmazását, mert ezáltal várhatóan a paraméter-becslések pontossága növelhető.

5.2. A vizsgált gépi tanulási módszerek ismertetése

Többfajta gépi tanulási modellt választottam ki és teszteltem annak érdekében, hogy megtaláljam a kitűzött feladat szempontjából a legalkalmasabbat. Ebben az alfejezetben ezeknek a módszereknek a rövid ismertetése következik.

5.2.1. Klaszteranalízis

A klaszterezési algoritmusok a többparaméterből álló megfigyelések csoportosulási jellegét képesek megállapítani [37]. A csoportok kialakulását és az azokba beletartozást a megfigyelések közötti távolságok döntenek el: két megfigyelés közötti kis távolság egy csoportba tartozást, nagy távolság külön csoportba tartozást indikál. Az algoritmusoknak két nagy típusa létezik, ezek a parametrikus és a hierarchikus klaszterezési algoritmusok. A parametrikus típusoknál a klaszterek bizonyos módokon előre definiáltak (például a számuk rögzített) és az adatok csoportba tartozása változhat. A legegyszerűbb és egyben a legrégebben ismert és használt parametrikus algoritmus a „*k-means*” klaszterezés, ahol a klaszterek számát (k) az elemzést végző személy adja meg, ami alapján az eljárás megállapítja a klaszterek középpontjainak koordinátáit és a megfigyeléseket egyenként beosztja ezen csoportok valamelyikébe [38] [39]. A megfigyelések közötti euklideszi távolságokat alapul véve a *k-means* algoritmus a legkisebb négyzetek módszerével a klasztereken belüli távolságokat minimalizálja, a klaszterek középpontjai közötti távolságokat pedig maximalizálja. A megfigyeléseket gyakran kettőnél több dimenziós vektorok alkotják, ezért ilyenkor szükség van a klaszterezést megelőzően dimenziócsökkentő módszer alkalmazására. Az ilyenkor szokásosan használatos eljárás a főkomponens analízis (*Principal Component Analysis, PCA*) [40]. PCA-t alkalmazva a megfelelő módon normált adatokra a dimenziószám akár kettőre is redukálható, az így előállt vektorelemeket nevezik főkomponenseknek ($PC_i, i = 1, 2, \dots$).

5.2.2. Support Vector Regression

A *Support Vector Regression (SVR)* technika a *Support Vector Machine (SVM)* algoritmusok egy fajtája, amivel lineáris és nem-lineáris regresszió is megvalósítható [41] [42] [43]. Az SVM módszer a megfigyelések hipersíkokkal történő elkülönítésével operál és azt a sokdimenziós térben értelmezett hipersíkot keresi, amely maximális ϵ távolsággal szeparálja a megfigyelések pontjait. A hipersíktól pontosan ϵ távolságra található pontok a *support vector*-ok. Nem-lineáris problémák megoldása az SVM algoritmusban kernel függvények használatával lehetséges, amik magasabb dimenziójú terekbe transzformálják az adatokat, ahol azokra már a lineáris SVM módszer alkalmazható. Regresszió esetében a modell teljesítménye nemcsak a kiválasztott kernel függvénytől, hanem a benne definiált ϵ távolságtól is függ. Az SVR módszer erőssége az egyszerű és univerzális alkalmazhatóságban, valamint a kiugró adatokra nézve mutatott robusztusságában rejlik. Ebből kifolyólag a tesztelése a Paksi Atomerőműben mért adatokon mindenképpen indokolt.

5.2.3. Random Forest

A *Random Forest (RF)* algoritmus az együttes (*ensemble*) paraméterbecslő módszerek családjának a tagja [44]. A megfigyelések véletlenszerű kiválasztásával nagy számú döntési fa készíthető, melyek elágazásinak megállapításához az algoritmus a megfigyelési vektor véletlenszerű részeit használja. Végezetül az összes megkonstruált döntési fával számított érték átlaga adja meg a becsült paraméter értékét. A bevitt véletlenszerűség segít kiküszöbölni az *overfitting* vagyis a túltanulás jelenségét, amikor a modell a tanuló adathalmazra rendkívül jó

eredményeket szolgáltat, de ezen a halmazon kívüli megfigyelés pontos becslésére már képtelen. Ebből következőleg az RF modellek általános jellemzője a robusztusság. További előnyös tulajdonsága a megfigyeléseket felépítő vektor elemeinek (*feature*) a becsléshez adott hozzájárulását mérő MDI (*Mean Decrease Impurity*), vagy másnéven Gini fontosságnak a meghatározása. Ez a mennyiség az összes döntési fára nézve az adott *feature* okozta elágazások számával arányos, a fontosságok összehasonlításával megállapítható, hogy mely *feature*-ök a leghasznosabbak és melyek az elhanyagolhatók.

5.2.4. Mesterséges Neurális Háló

A mesterséges neurális háló (*Artificial Neural Network, ANN*) modell nem más, mint egy teljesen összekötött (sűrű) többrétegű *perceptron* (*Multi-Layer Perceptron*) [45]. A mesterséges neurális hálók az élőlények idegrendszeri felépítésére hasonlító, rétegekből és ezeken belül nóduszokból, valamint a nóduszok közötti irányított összeköttetésekből álló, tanulásra képes modellek. A nódusok mindegyikéhez súlyfaktorok kapcsolódnak, ezek száma a nódusznak az azt követő rétegben található nóduszokkal való kapcsolatainak számával egyezik meg. A nódusok a bemeneteik lineáris kombinációját állítják elő, amelyben a szorzótényezők a bemenetet adó elemek súlyfaktorai. Ezután a nódusz a megkapott lineáris kombinációt egy aktivációs függvénybe teszi, ennek a függvénynek az értéke lesz a kimenő érték. Különböző aktivációs függvények alkalmazásával sikeres tanítás érhető el nem-lineáris problémákra is. A tanítás egy erre a célra kijelölt tanuló adathalmazon, a háló végétől (kimeneti réteg) az elejéig (bemeneti réteg) visszafelé haladva történik. E folyamat során a nóduszok súlyfaktorainak beállítása valósul meg. A tanításhoz nagy számú egyedi megfigyelés szükséges, ami általában a neurális hálók alkalmazásának az egyik nehezítő tényezője. Ennek ellenére az ANN típusú gépi tanulási modellek nagyon sokoldalúak és az adattudományban széles körben használtak, ezért mindenképpen indokolt az ANN tesztelése a kiégett fűtőelemek paraméterbecsléséhez.

5.2.5. Konvolúciós Neurális Háló

Az utolsóként tesztelt gépi tanulási modell abban tér el az előzőktől, hogy ez egy mély tanulási (*deep learning*) modell. A konvolúciós neurális hálók (*Convolutional Neural Network, CNN*) felépítésüket tekintve az ANN típusú neurális hálónál sokkal összetettebbek, gyakori alkalmazási területük a képfelismerés és a számítógépes látás [46] [47]. A konvolúciós rétegekben a nagy számú bemeneti adatra szűrő operátorokat alkalmazva áll elő a kimenet, ezeket a rétegeket általában redukált nódusszámú összesítő rétegek köveik. A rétegek közötti kapcsolatok száma CNN esetében a sűrűn behálózott ANN modellekhez képest ritkának mondható. A CNN modell bevetésének és tesztelésének fő motivációja a gamma-spektrumból elvégzett közvetlen paraméterbecslés, ami azt jelenti, hogy a neurális háló bemenete nem egy vagy több kiértékelésből származó mennyiség, hanem maga a spektrum. A módszer sikeres alkalmazása által lehetőség nyílna a potenciálisan bonyolult és időigényes spektrum-kiértékelési művelet átugrására, ami például egy safeguards ellenőrzésnél hatalmas előnyt jelentene. Továbbá ilyen módon a kiértékelés következtében fellépő hibalehetőségek is kiküszöbölhetővé válhatnak.

5.3. A modellek implementációja

A klaszteranalízist, valamint az ezt megelőző PCA-t az R nevű statisztikai számításokra fejlesztett programkóddal hajtottam végre [48]. Az input adatokat a 2010-2020 időszakban mért kiégett kazettákra kiszámolt ^{134}Cs , ^{154}Eu , ^{106}Ru és ^{144}Ce aktivitások ^{137}Cs aktivitással képzett arányai alkották. Ebben az esetben az aktivitásarányok kizárólag az üzemvégi állapotra vonatkoztak. A PCA és a klaszteranalízis összesen 119 darab megfigyelés alapján történt. Az adatok eltérő skálájából eredő torzítások elkerülése végett a PCA-t megelőzően a teljes adatsort a standard normál eloszlás szerint transzformáltam. A *k-means* algoritmus szerinti klaszteranalízist az első két főkomponensen (*PC1* és *PC2*) végeztem el. Az optimális klaszterszám vizsgálatát a $k = [2; 15]$ tartományban végeztem a „*gap statistic*” módszerrel [49].

Az összes többi ML modellt (SVR, RF, ANN és CNN) a Python programnyelvi környezet 3.10.11-es verziójában implementáltam. A kísérleti adatok ezeknél a számolásoknál a 2010-2021 időszakban elvégzett 128 darab kazetta méréseiből származnak. A konzisztencia fenntartása végett az ML módszerek mellé a Python környezetben egy nem-lineáris regressziós (NLR) modellt bevezettem, amivel lényegében a 3.3 és 4.2 fejezetekben ismertetett regressziót hajtottam végre a 2021-es méréseket is magába foglaló adatokon. A kiégés és a hűlési idő becslése ebben az esetben rendre a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs})$ és a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarányokkal történt. Az NLR modell adja a kiégés és a hűlési idő esetén az ML módszerekkel szembeni összehasonlítás alapját. Az NLR, SVR és az RF modellek alkalmazását a *scikit-learn* (v1.2.0) nevű, gépi tanulási algoritmusokat tartalmazó Python csomag használatával valósítottam meg [50]. A neurális háló alapú modellek (ANN és CNN) implementációját egy külön a neurális hálókra specializált Python csomaggal, a *Keras* nevű ML keretrendszerrel végeztem el, ami a *tensorflow* (v2.11.0) könyvtár része [51].

5.3.1. Modellek felépítése

Ebben a szekcióban az ML modellek felépítését, vagyis az azokat definiáló hiperparamétereket ismertetem. A hiperparaméterek alatt olyan, az algoritmusra definiált belső szöveges vagy számszerű változók értendők, amik a tanítást és a későbbi számolást alapvetően meghatározzák. Ebből következően az értékük helyes beállítása a kitűzött feladat elvégzésének szempontjából nélkülözhetetlen. A hiperparaméterek egy részénél elegendő volt egy fix értéket megválasztanom, voltak viszont olyanok is, amiknél egy optimalizációs eljárást kellett alkalmazni az adott feladatra legjobban használható értékek megállapításához.

Az SVR modellt az 5.1. táblázatban felsorolt hiperparaméterek definiálják. Az összes többi itt fel nem sorolt paraméter esetében az SVR függvényben megadott alapértelmezett értékek lettek alkalmazva.

5.1. táblázat: Az SVR modell fontosabb hiperparaméterei és azok értéktartománya.

Hiperparaméter	Leírás	Érték-tartomány	Jelleg
kernel	Az algoritmus kernel függvénye, ez lehet lineáris, polinom (<i>poly</i>), radiális egység (<i>rbf</i>) vagy <i>sigmoid</i> függvény	<i>poly</i> , <i>rbf</i> , <i>sigmoid</i>	Opt. kateg. ⁵
degree	A polinom alakú kernel függvény foka (egész szám)	2 - 3	Opt. int. ⁶
gamma	A polinom, <i>rbf</i> és <i>sigmaoid</i> alakú kernel függvények skálafaktora	10^{-3} - 10	Opt. log. ⁷
coef0	A polinom és <i>sigmoid</i> alakú kernel függvény konstans tényezője	10^{-5} - 10^2	Opt. log.
tol	A leállási feltétel toleranciája	10^{-5} - 10^{-2}	Opt. log.
C	Regularizációs paraméter, kisebb értékeknél a regularizáció erősebb	10^{-3} - 10^2	Opt. log.
epsilon	Az SVR modell ϵ paramétere	10^{-3} - 10	Opt. log.

Az RF modellt viszonylag sok hiperparaméter alkotja, ezek közül azonban csak néhány szorult optimalizációra (5.2. táblázat). A többi értéke vagy az alapértelmezésben volt megfelelő, vagy egy, az alapértelmezéstől különböző fixen megválasztott kategória vagy szám már kellően pontos becslési teljesítményt nyújtott.

5.2. táblázat: Az RF modell fontosabb hiperparaméterei és azok értéktartománya.

Hiperparaméter	Leírás	Érték-tartomány	Jelleg
criterion	Egy elágazás minőségének mérőszáma	<i>Sqr. error</i>	Fix
n_estimators	A véletlenszerűen generált fák száma	40	Fix
max_depth	A fák maximális mélysége	3 - 50	Opt. int.
min_samples_split	A minimális megfigyelés-szám, ami egy elágazáshoz vezet	2 - 5	Opt. int.
min_samples_leaf	Az ágvégi minimálisan szükséges megfigyelés-szám	1 - 5	Opt. int.
max_features	Az elágazások megalkotásához használt feature készlet teljes készlethez viszonyított arányának a maximuma	0,3 - 1	Opt. lin. ⁸
max_samples	A teljes megfigyelés-számhoz viszonyítva a kisorsolt megfigyelések számának aránya, amik egy fa megalkotásában rész vesznek	0,3 - 1	Opt. lin.

⁵ Kategorikus értékekre elvégzett optimalizáció.

⁶ A tartományon belüli egész számokra elvégzett optimalizáció.

⁷ A tartományon belül logaritmikus skálázással elvégzett optimalizáció.

⁸ A tartományon belül lineáris skálázással elvégzett optimalizáció.

Az ANN modellnek a becsléshez felhasznált *feature*-ök számával megegyező bemenete van, a háló végén pedig egyetlen kimenet van, ami a kiszámított paraméter értéke. A bemenet és a kimenet között 1-5 közötti számú teljesen összekötött réteg helyezkedik el, függően az optimalizálás eredményétől. A rétegenkénti neuronok száma 10-500 tartományban változhat, amit szintén az optimalizáció kimenete határoz meg. A sűrű rétegek aktivációs függvénye a „ReLU” függvény, ami pozitív bemenetre a bemeneti értéket adja vissza, negatív bemenetre pedig nullát ad. A robusztusság növelése végett a sűrű rétegekben 0-0,3 közötti valószínűséggel véletlenszerű kiejtést (*dropout*) alkalmaztam, ilyenkor a neuronoknak csak a fennmaradó része járult hozzá a végeredményhez. Az egy neuronból álló kimeneti réteg aktivációs függvénye egy szimpla lineáris függvény (5.3. táblázat).

5.3. táblázat: Az ANN modell fontosabb hiperparaméterei és azok értéktartománya.

Hiperparaméter	Leírás	Érték-tartomány	Jelleg
activation (Dense)	A teljesen összekötött sűrű rétegek aktivációs függvénye	<i>relu</i>	Fix
activation (Output)	A kimeneti réteg aktivációs függvénye	<i>linear</i>	Fix
n_layers	A teljesen összekötött sűrű rétegek száma (<i>n</i>)	1 - 5	Opt. int.
i_dense_units	Az <i>i</i> -edik teljesen összekötött sűrű réteg neuronjainak száma ($i = 1, \dots, n$)	10 - 500	Opt. int.
dropout_rate	A teljesen összekötött sűrű rétegek neuronjainak kiejtési valószínűsége	0 - 0,3	Opt. lin.
learning_rate	A tanítási veszteség függvény minimumának keresésénél használt lépésköz nagysága	10^{-3}	Init. ⁹
reduce_lr_factor	A learning_rate csökkentésére alkalmazott szorzófaktor	0,1	Fix
optimizer	A tanulási optimalizációt megvalósító algoritmus	<i>SGD</i>	Fix

A CNN modell bemeneti rétege egy 1 x 1024 méretű input vektort fogad, ez a spektrum csatornánkénti beütésszámainak vektora. Ezt követően egydimenziós konvolúciós rétegek (*Conv*) és a közvetlenül utána található összegző rétegek (*MaxPool*) következnek (5.4. táblázat). A *Conv* réteg a *filter_size* hiperparaméternek megfelelő darabszámú és *kernel_size* méretű szűrőfüggvénnyel konvolválja a spektrumot, így egy [*filter_size*×1024] méretű adattömböt állít elő. A konvolúciós réteget követő *MaxPool* réteg *pool_size*-ad részére redukálja az adattömb méretét a vektorelemek ablakon belüli maximális értékének kiválasztásával. A sorban utolsó *MaxPool* réteg után egy globális átlag összesítő (*GlobalPool*) réteg jön, ami vektorok adott sorszámú elemeinek átlagát számolja ki, így egyetlen vektort ad tovább. Végezetül egy *dense_units* darabszámú neuronból álló teljesen összekötött sűrű réteg és ezután az egyetlen elemű kimeneti réteg alkotja a neurális háló kimeneti oldalát.

⁹ Kezdeti érték, ami a tanítás során változik.

5.4. táblázat: A CNN modell fontosabb hiperparaméterei és azok értéktartománya.

Hiperparaméter	Leírás	Érték-tartomány	Jelleg
activation (Conv)	Az egydimenziós konvolúciós rétegek aktivációs függvénye	<i>relu</i>	Fix
activation (Dense)	A teljesen összekötött sűrű réteg aktivációs függvénye	<i>relu</i>	Fix
activation (Output)	A kimeneti réteg aktivációs függvénye	<i>linear</i>	Fix
n_conv_pool	A <i>Conv</i> + <i>MaxPool</i> rétegek száma	1 - 3	Opt. int.
filter_size	Az adott konvolúciós réteg szűrőfüggvényének mérete	4 - 32	Opt. int.
kernel_size	Az adott konvolúciós réteg kerneljének mérete	3 - 7	Opt. int.
pool_size	Az adott összesítő réteg ablakának mérete	2 - 8	Opt. int.
dense_units	A teljesen összekötött sűrű réteg neuronjainak száma	1 - 50	Opt. int.
learning_rate	A tanítási veszteség függvény minimumának keresésénél használt lépésköz nagysága	10^{-2}	Fix
optimizer	A tanulási optimalizációt megvalósító algoritmus	<i>Adam</i>	Fix

5.3.2. Input *feature*-ök és output *targetek*

Az input adatok a 2010-2021 évek méréseit fedik le és összesen 128 darab megfigyelést tartalmaznak. Az NLR, SVR, RF és ANN modellek esetében a spektrumok kiértékeléséből származó számszerű értékek képzik a bemenetet. A *feature*-ök nagy részét a mérésekből származó aktivitásarányok alkotják, ezek konkrétan az ^{91}Y , ^{95}Zr , ^{103}Ru , ^{106}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{144}Ce és ^{154}Eu magok aktivitásainak a ^{137}Cs aktivitásával képzett arányai, valamint a korábbi vizsgálatok alapján hasznosnak mutató $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$, $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitásarányok. Az aktivitásarányokhoz tartozó bizonytalanságok a Gauss-féle hibaterjedés alapján lettek kiszámítva. Bizonyos esetekben a kazetta paraméterek (*BU*, *CT*, *IE*) ismeretét feltételeztem, ilyenkor ezek az adatok is a *feature* vektor részét képezték. Az SVR, RF és ANN modellek input adatait standard normál eloszlás szerinti skálázóval transzformáltam.

A CNN modell különlegessége az, hogy az input maga mért gamma-spektrum, pontosabban a mért spektrum 1024 csatornára átskálázott változata. Elsőként egységesítettem az energia-kalibrációkat, mert a különböző évek mérései között voltak eltérések. A beütésekben a mérési idővel leosztva beütésszám-rátát képeztem, ezután az adott év összesített háttér-spektrumának értékeit csatornánként kivontam a kazetták spektrumaiból. Végül az átskálázást hajtottam végre, ami a ^{137}Cs 661,7 keV-es csúcsához tartozó csatornának a rögzítésével történt. A beütésszámokat Poisson-eloszlású valószínűségi változónak feltételeztem, ez alapján a bizonytalanságukat az értékük négyzetgyökével becsültem meg. A CNN modell esetén a fő kazetta paraméterek egyik esetben sem kerültek be a *feature* vektorba.

Az output *targetek*, azaz a becsülni kívánt mennyiségek egyrészt a kiégett kazetták fő paraméterei, másrészt egyes számolt urán és plutónium izotóp-koncentrációk voltak. A kiégés (*BU*) kapcsán különbség az előző fejezetkehez képest, hogy az ML módszerek tesztelésénél nincs jelentősége a kazettának a mérési magasságban fennálló kiégését használni, így a *BU* érték itt mindig a kazetta átlag kiégéssel egyezett meg. Három nehézfém izotóp-koncentráció becslésére végeztem vizsgálatokat, ezek az ^{235}U (*CU5*), az ^{238}U (*CU8*) és a ^{239}Pu (*CPU9*)¹⁰. Mind a kiégés, mind pedig az izotóp-koncentrációk a HUN-REN EK Nukleáris Biztonsági Laboratóriumában kifejlesztett KARATE-440 kódrendszerrel végzett számolásokból származnak [52]. A *target* mennyiséget minden ML modellnél minimum-maximum skálázással a [0;1] intervallumba transzformáltam, amelyeket a becslést követően a megfelelő inverz transzformációt alkalmazva visszaalakítottam. A *target* becslés bizonytalanságát az input adatok variálásával határoztam. Egy megfigyeléshez 100 darab, normál eloszlás szerint sorsolt mennyiséget generáltam. A normál eloszlás várható értéke a mennyiség ismert értéke, a standard deviációja pedig annak számolt bizonytalansága volt. A 100 darab becslésből számított *target* értékek kétszeres szórásával definiáltam a predikciós intervallumot. A CNN modellre alkalmazott input variáció végül eredménytelennek bizonyult, így ezzel a módszerrel nem sikerült predikciós intervallumokat meghatároznom.

Az ANN típusú neurális hálók kis számú megfigyelésekkel általában nehezen taníthatók be és a generalizáló képességük is alacsonyabb szinten marad. A jelen esetben rendelkezésemre álló 100-as nagyságrendű tanuló adathalmaz kis számúnak mondható. Ezt orvosolandó egyfajta „adatjavító” (*data augmentation*) technikát alkalmaztam, ami megegyezik a predikciós intervallumok meghatározásához használt variációs módszerrel [53]. Ebben az esetben minden megfigyelést megtízszereztem és az így kapott 1000-es nagyságrendű adathalmazzal végeztem a neurális háló tanítását.

5.5. táblázat: A nyolc vizsgált szcenárió jelölése, *target* mennyiségei és input *feature* adatai.

Szcenárió	Target	Feature adatok
<i>BU-SG</i>	kiégés	$IE, X/^{137}\text{Cs}$ és $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ arányok (üzemvég)
<i>BU-NF</i>	kiégés	$X/^{137}\text{Cs}$ és $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ arányok (mérés)
<i>CT-SG</i>	hűlési idő	$BU, IE, X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (mérés)
<i>CT-NF</i>	hűlési idő	$X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (mérés)
<i>IE-SG</i>	kezdeti dúsítás	$BU, X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs}), ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (üzemvég)
<i>IE-NF</i>	kezdeti dúsítás	$X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs}), ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (mérés)
<i>CPU9-SG</i>	^{239}Pu koncentráció	$BU, IE, X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs}), ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (üzemvég)
<i>CPU9-NF</i>	^{239}Pu koncentráció	$X/^{137}\text{Cs}, ^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs}), ^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ arányok (mérés)

¹⁰ A későbbi vizsgálatok alapján az ^{235}U és ^{238}U mennyiségének becslése egyik modellel sem lett sikeres, ezért az uránizotópok nem szerepelnek a felsorolt *targetek* között.

A modell tanítást és a végső modellek értékelését is meghatározott *feature-target* párosításokkal hajtottam végre, amiket scenárióknak neveztem. A *targetek* szerint négy scenáriót és ezeken belül a *feature* halmazok szerint két alesetet vázoltam fel (5.5. táblázat). A két aleset a rendelkezésre álló információ mértékében különbözik egymástól: az *SG* (*safeguards*) jelzésűnél a *target* paraméteren kívül más paraméterek is és az aktivitásarányok üzemvégi értékei az input adatok, ezzel szemben az *NF* (*nuclear forensics*) jelzésűnél kizárólag a mérés kori aktivitásarányokból számolnak a modellek. Kivétel ezek alól a *CT-SG* scenárió, ahol a hűlési idő az ismeretlen paraméter, ezért az aktivitásarányok ilyenkor értelem szerűen a mérés kori értéküket veszik fel.

5.3.3. Tanítás és hiperparaméter optimalizálás

A különféle ML modelleknél egységes tanítási eljárást alkalmaztam. A 128 darab mért kazetta adatiból ki kellett választanom a tanításra (*train*) és az ezt követő tesztelésre (*test*) szánt megfigyeléseket. Mivel az elérhető megfigyelések száma az ML módszerek tanításához kevésnek mondható, ezért a *train* és *test* adatok kijelölésének rendkívül nagy befolyása van a modellek teljesítményére. Ezt a hatást mérsékli a *K-fold* keresztvalidáció, amit a tanítás során $K = 5$ értékkel alkalmaztam. A keresztvalidáció lényege az, hogy a megfigyeléseket K egész számú részre felosztva K darab modell egymástól független tanítását valósítja meg a *train* és a *test* adatok felosztásának permutálásával. Minden szelet (*fold*) $N(K-1)/K$ darab *train* adatot és N/K darab *test* adatot tartalmaz, ahol $N = 128$ a megfigyelések száma.

A tanítás egy kitűzött célfüggvény minimalizálását jelenti. Az NLR modellnél a legkisebb hibanégyzetes regresszióból kifolyólag a célfüggvény a becsült és a *target* paraméterek közötti különbségek négyezete volt. Az SVR modell egyedi módon a hipersík és az attól ϵ -nál nagyobb távolságra található adatpontok közötti távolságot minimalizálja. Az RF modell esetében az alkalmazott célfüggvény az átlagos négyzetes hiba (*MSE*), míg a neurális hálónál az átlagos abszolút hiba (*MAE*) volt. A neurális hálók tanítása a többi tesztelt ML modellhez képest összetettebb és időben hosszabb folyamat, ezért esetükben további technikákat kellett alkalmaznom. A neurális hálók tanításánál a túltanulás elkerülése végett korai leállást (*early stopping*) használtam. Korai leállás akkor következik be, amikor egy előre megadott ciklusszámon (*epoch*), az úgy nevezett türelmi perióduson (*patience parameter*) keresztül a *test* adatok hibája nem csökken. Ekkor a tanítási folyamat befejeződik és az addig tapasztalt legkisebb *test* hibájú modell lesz a végső betanított modell. Az ANN modell türelmi periódusa 50, míg a CNN modellé 200 *epoch* volt.

Az NLR modellnek nincsenek hiperparaméterei, így ennél nem kellett optimalizációt végezni. Az SVR és RF modellek optimalizációját az *optuna* hiperparaméter optimalizációs könyvtár alkalmazásával végeztem el. A kiválasztott hiperparaméterek, értékeik tartománya és az optimalizáció jellege (tartományon belül egész szám, vagy lineáris vagy logaritmus keresés) az 5.1. és 5.2. táblázatokban látható. A legjobb hiperparaméterek azok voltak, amikkel a becslésből a *test* adathalmaz 5 szeletére átlagolt *MAE* érték minimális lett. Az SVR és RF modellek minden 5.5. táblázat szerinti scenárióra külön optimalizáláson estek át, azonban a hiperparaméterek értéktartománya egy modellre nézve azonos volt. Az ANN és CNN neurális

hálók hiperparamétereit manuális tesztelés útján állítottam be és a paraméterek értékei az összes scenárióra azonosak. A hiperparaméterek végső értékeit az 5.6. – 5.9. táblázatok foglalják össze (a keresési tartományok az 5.3. és 5.4. táblázatokban találhatók). A neurális hálók az 5.1. (ANN), illetve az 5.2. (CNN) ábrákon látható sémák szerint építettem fel. A hiperparaméterek értékeinek függvényében a *test* adatok *MAE* értékeinek konvergenciáját a μ konvergencia-sebesség jellemzi, ami az optimalizációs lépések függvényében az aktuális legkisebb *test MAE* értékekre illesztett hatványfüggvény kitevőjének abszolút értéke. Az SVR és RF modellek konvergencia-sebességeit a 5.6. és 5.7. táblázatok tartalmazzák. Az ANN modellnél az előzetes hiperparaméter optimalizációs kísérletek az RF modellhez hasonlóan 0,1-0,3 közötti konvergencia-sebességet eredményeztek.

5.6. táblázat: Scenáriótól függően az SVR típusú modellek optimalizáción átesett hiperparamétereinek végső értékei.

Szenárió	kernel	degree	gamma	coef0	tol	C	epsilon	μ
BU-SG	rbf	2	$1,1 \times 10^{-2}$	$6,8 \times 10^{-5}$	5×10^{-4}	17,2	$1,6 \times 10^{-3}$	0,8
BU-NF	rbf	2	$3,8 \times 10^{-2}$	$9,8 \times 10^{-2}$	$1,4 \times 10^{-3}$	9,8	1×10^{-3}	0,6
CT-SG	rbf	2	$5,4 \times 10^{-2}$	$2,2 \times 10^{-1}$	$1,5 \times 10^{-3}$	16,3	$2,5 \times 10^{-3}$	0,6
CT-NF	rbf	2	$2,8 \times 10^{-2}$	90,3	4×10^{-4}	7,7	$2,2 \times 10^{-3}$	0,4
IE-SG	rbf	2	$4,1 \times 10^{-2}$	$1,8 \times 10^{-3}$	$8,2 \times 10^{-3}$	5,3	$7,7 \times 10^{-3}$	0,5
IE-NF	rbf	3	$5,5 \times 10^{-1}$	5,18	3×10^{-4}	6,1	$5,3 \times 10^{-3}$	0,1
CPU9-SG	rbf	3	$3,8 \times 10^{-2}$	$1,1 \times 10^{-4}$	$3,2 \times 10^{-3}$	15,5	$4,1 \times 10^{-3}$	0,6
CPU9-NF	rbf	3	$3,4 \times 10^{-2}$	8,56	$1,1 \times 10^{-3}$	43,9	4×10^{-3}	0,3

5.7. táblázat: Scenáriótól függően az RF típusú modellek optimalizáción átesett hiperparamétereinek végső értékei.

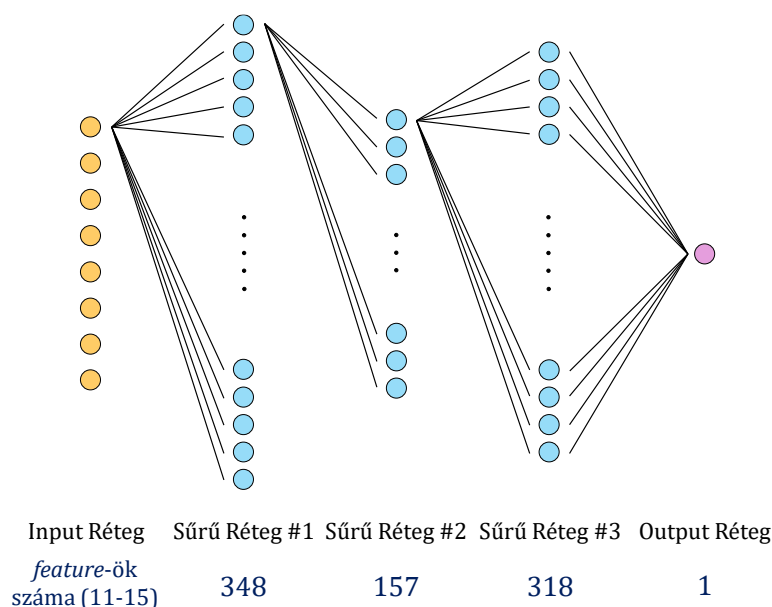
Szenárió	max_ depth	min_ samples_split	min_ samples_leaf	max_ features	max_ samples	μ
BU-SG	39	3	1	0,97	0,95	0,1
BU-NF	19	3	1	0,73	0,83	0,1
CT-SG	35	2	1	0,81	0,98	0,3
CT-NF	18	2	1	0,67	0,94	0,2
IE-SG	36	2	1	0,44	0,92	0,1
IE-NF	12	2	1	0,48	0,88	0,1
CPU9-SG	14	3	1	0,97	0,99	0,1
CPU9-NF	37	2	1	0,39	0,9	0,1

5.8. táblázat: Az ANN modell optimalizáción átesett hiperparamétereinek végső értékei minden scenárióra.

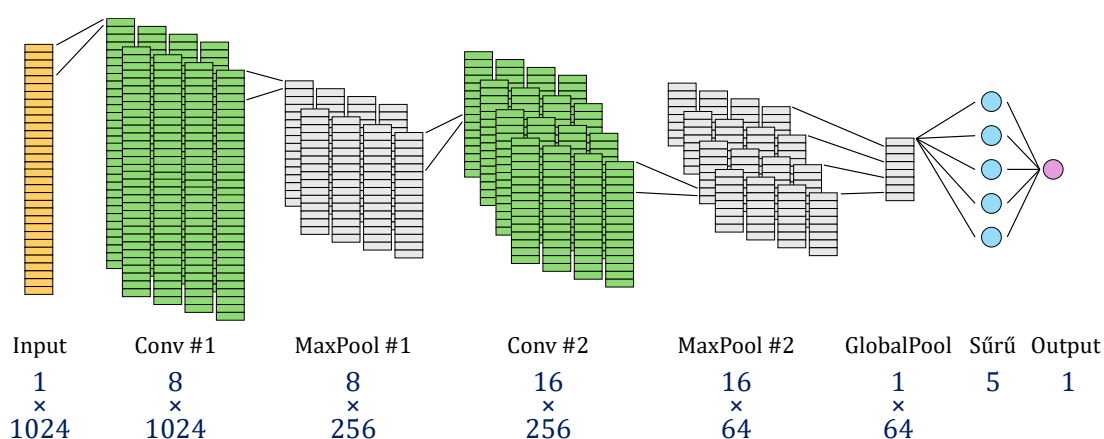
	n_layers	i_dense_units	dropout_rate
Minden scenárióra	3	[348; 157; 318]	0,06

5.9. táblázat: A CNN modell optimalizáción átesett hiperparamétereinek végső értékei minden szcenárióra.

	n_conv_pool	kernel_size	filter_size	pool_size	dense_units
Minden szcenárióra	2	[3; 3]	[8; 16]	[4; 4]	5



5.1. ábra: Az ANN modell vázlatos szerkezete. A különböző rétegek neuronjainak száma a réteg neve alatt látható, az input réteg mérete a szcenáriótól függően 11 és 15 közötti. Az input és a sűrű rétegek egymással teljesen összekapcsoltak, ezek kapcsolatai közül csak az egyetlen neuronból kiindulók vannak feltüntetve.



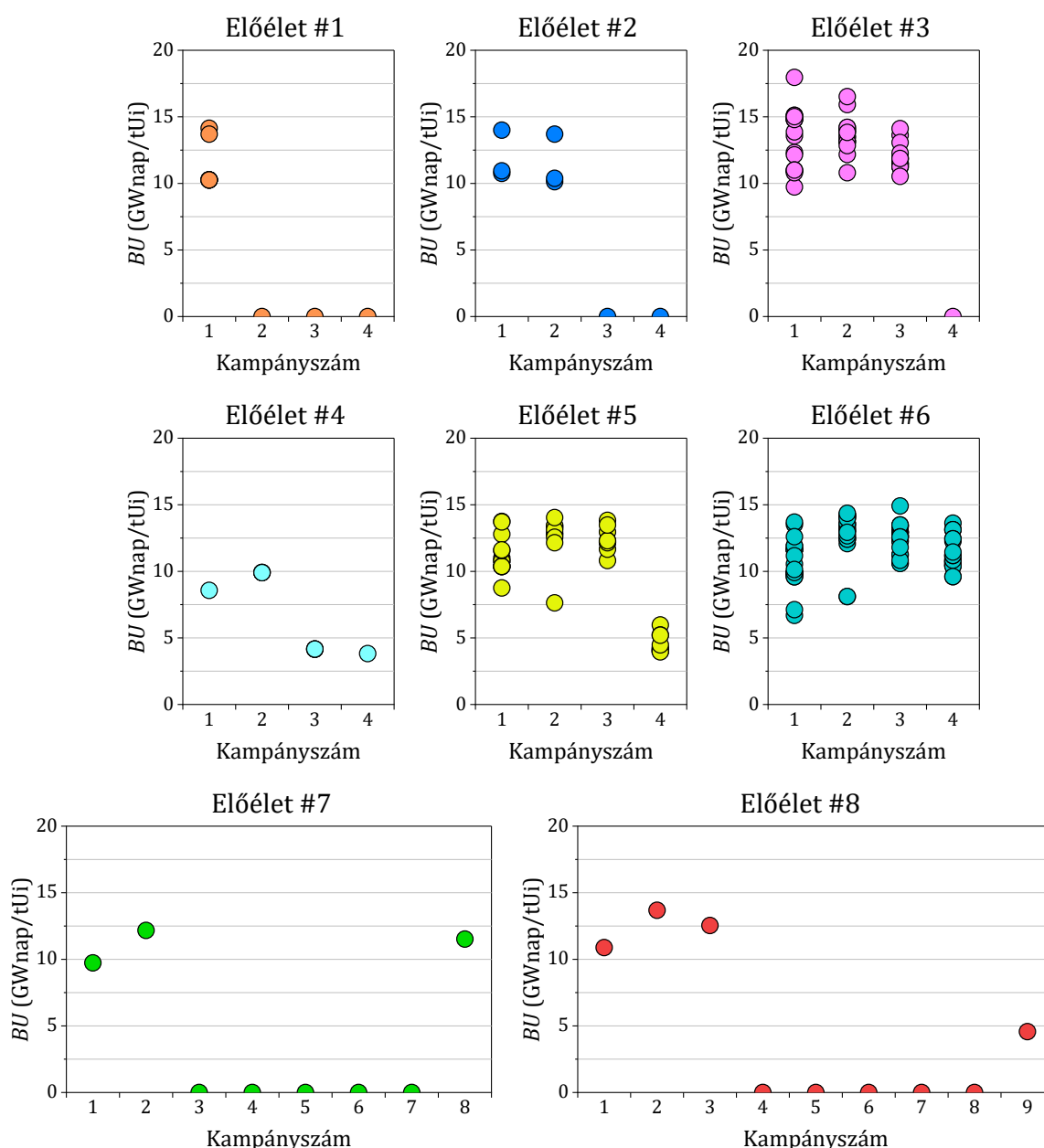
5.2. ábra: A CNN modell vázlatos szerkezete egységesen mindegyik szcenárióra. A rétegek megnevezése alatt azok mérete látható vektor × neuron formátumban. A kapcsolatok nagyon vázlatosan, csak egy vektorelemre vonatkozóan szemléltetve láthatók.

Az optimális hiperparaméterekkel rendelkező betanított modellek teljesítményének mérőszáma a *test* adatsor becsléséből származó 5 szeletre átlagolt *MAE* érték volt. A *MAE* értékek mellett másodlagos mutatóként megvizsgáltam az átlagos *test MAPE* (*Mean Absolute Percentage Error*) értékeket is, de a legjobb modell kiválasztása elsődlegesen a *MAE* alapján történt. Ki kell emelni, hogy a *train* és *test* adatoktól független validációs adatsor hiányában a *test* adatsorokból számított eltérések nem feltétlenül tükrözik a tényleges becslési pontosságokat. Erre a hármas felosztásra azonban az adatok kis száma miatt egyelőre nem volt lehetőségem, ezt a validációs célt a jövőben összegyűjtött további kísérleti adatok elégíthetik ki. Addig is az 5 szeletre átlagolt eltérések a modellek megbízhatóságának elfogadható mérőszámaiként szolgálnak.

5.4. A klaszteranalízis eredménye

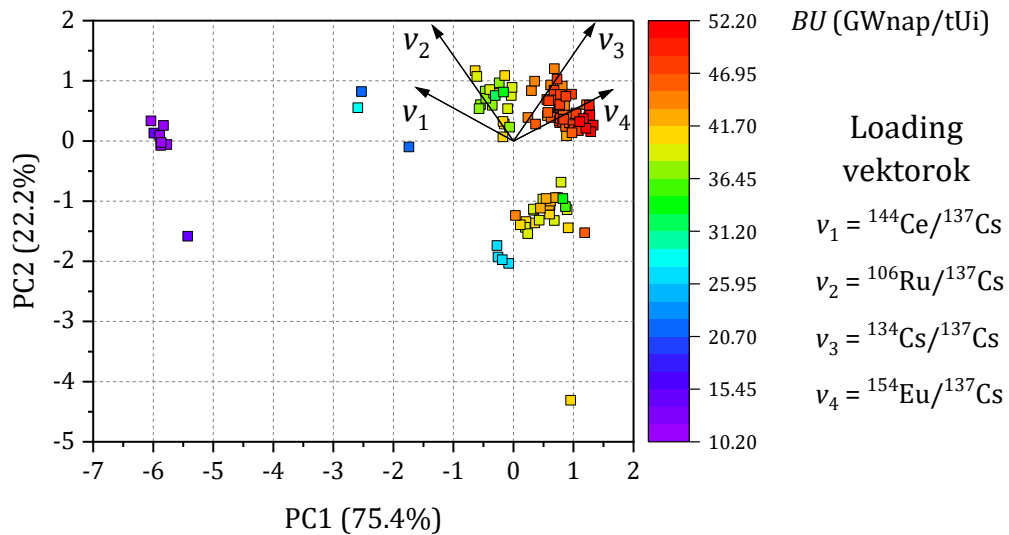
Klaszteranalízissel a vizsgált kiégett fűtőelemek közötti olyan hasonlóságok és különbségek állapíthatók meg, amikről a mért mennyiségek információt hordoznak. Ezeknek a paramétereknek a halmaza jelen esetben a kiégés, a kezdeti dúsítás és az üzemelési történet, más néven az előélet. Az első két paraméter mindössze egy-egy számmal kifejezhető mennyiség, azonban az előélet jelentése további magyarázatot igényel. Jellem kontextusban a kazetta előélet nem más, mint az üzemanyagból felszabaduló energia idő szerinti függvénye. A felszabaduló energia időintegrálja leosztva a kezdeti hasadóanyag tömegével pontosan a kiégést adja meg, tehát adott időtartamra ez a mennyiség a kiégéssel kiváltható. A legrövidebb időtartamok, amikre a kiégések számomra ismertek, azok az adott reaktor kampányainak ciklusidői. Összegezve az itt leírtakat, az előélet alatt a kampányonkénti kiégések alakulása értendő. Ebbe az időbeli szerkezetbe beleértem a kihagyott kampányokat is, mivel lényeges információ, ha egy kazetta egy teljes kampányhosszig pihent (kiégést nem szerzett) és közben a benne keletkezett hasadási termékek bomlottak. Szintén vizsgálni lehetne a kampányok közötti – azoknál jóval rövidebb ideig tartó – leállások hatását, azonban a jelen kutatás erre nem terjed ki, mivel a leállások az egy kampányt üzemelő kazettákon kívül minden más kazetta hasadási termék mennyiségeire hasonló mértékű hatást fejtenek ki.

A kampányonkénti kiégések majdnem minden kazettára eltérőek, ezért az előéletek valamiféle csoportosítást igényelnek. Ez a csoportosítás a kampányonkénti kiégések relatív nagyságán alapszik, ahol a referencia érték a csoporton belüli maximális kiégés. Ha a csoporton belüli maximális kiégés 50%-ánál nagyobb egy kampány-kiégés, akkor nagynak számít, ha viszont kisebb ennél akkor kicsinek mondható. Ilyen módon például a „nagy-nagy-nagy-kicsi” négy kampányt üzemelő kazetták előéleti csoportja különbözik a „nagy-nagy-nagy-nagy” előéleti jellegű kazetták csoportjától. A kampányszámok (egy, kettő, három vagy négy) és a kihagyott kampányok megléte, időbeli pozíciója és hossza szintén különbséget tesz az előéleti csoportok között. Figyelembe véve a felsorolt szempontokat a 2010-2020 között mért 119 darab kazettánál az 5.3. ábrának megfelelő nyolc előéleti csoport alakult ki.

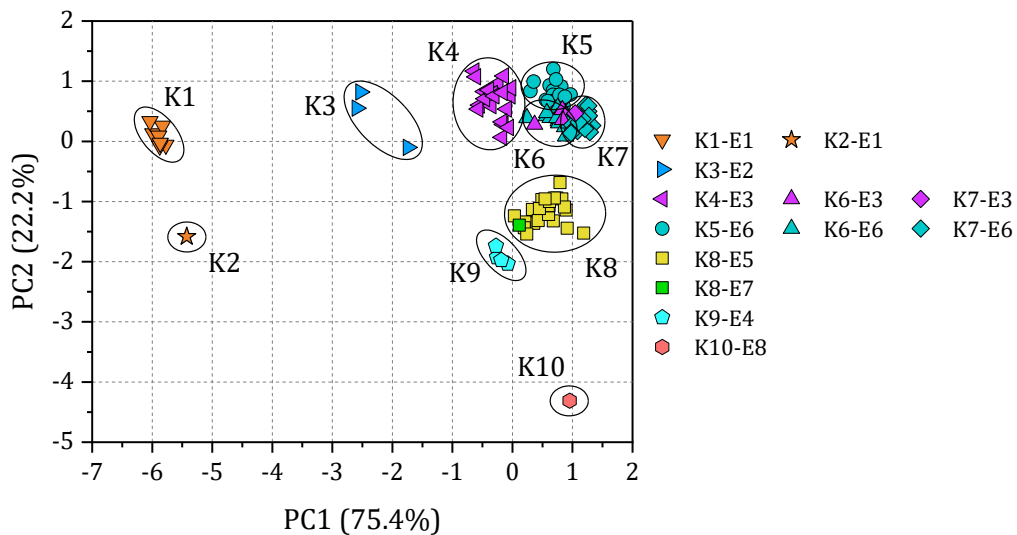


5.3. ábra: A megkülönböztetett előéleti csoportok kampányonkénti kiégés értékei a csoportba tartozó összes mért kazettára. A #4-es csoportot négy kazetta alkotja, melyek előélete a reaktorzóna szektor-szimmetriája miatt egzaktul megegyezik. A #7-es és #8-as csoportokba csak egy-egy kazetta tartozik.

A PCA és a *k-means* klaszteranalízis eredményei rendre az 5.4. és 5.5. ábrákon láthatók. A főkomponens-analízisből számított *loading* vektorok megmutatják, hogy az egyes input adatok értékének növekedése és csökkenése átlagosan milyen irányba mozdtítja el a kazetták pontjait a két legfontosabb főkomponens síkjában. A PCA eredményei alapján elegendő a PC1 és PC2 főkomponenseket használni, hiszen együtt az adatok variációjának 97,6%-át megmagyarázzák, a maradék 2,4% pedig feltehetően érdemben nem befolyásolja a klaszterek szerkezetét. Az 5.5. ábrán a klaszteranalízis eredményének és az előélet szerinti csoportosításnak az összevetése figyelhető meg.



5.4. ábra: A PCA eredménye, a kazetták pontjainak ábrázolása az első két főkomponens függvényében. A színskála az össz-kiégést mutatja, a v_1 - v_4 vektorok pedig az input adatokhoz rendelt *loading* vektorok.



5.5. ábra: A *k-means* klaszteranalízis eredménye. A klasztereket (K1-K10) a pontok szimbólumai, az előélet csoportokat (E1-E8) pedig a pontok színei jelölik. A grafikonon a klasztereket ellipszisek emelik ki.

Esetenként a klaszterek és a függetlenül megállapított előélet alapú csoportok egybevágnak, de az eredmények azt mutatják, hogy a pontos előéleti csoport megállapítását több tényező is nehezíti. Az egy és két kampányig üzemelő kazetták jól elkülönülnek a többitől (K1 és K3), bár az egy kampányos csoport egyik kazettája a nagyon hosszú hűlési ideje miatt (${}^{106}\text{Ru}$ és ${}^{144}\text{Ce}$ már nem volt detektálható) külön klaszterbe került (K2). A négy kampányt futó, de utolsó vagy utolsó kettő ciklusában kis kiégést szerző kazetták (K9) egyértelműen megkülönböztethetők a többi négy kampányos kazettától (K5, K6 és K7). Azonban az egyik három kampányig üzemelő rendhagyó előéletű, de utolsó kampányában nagy kiégést kapott kazetta pont beleesik a négy kampányos és utoljára kis kiégést kapó kazetták közé (K8), így az

előbbi kazetta klaszteranalízissel megkülönböztethetetlen a többtől. A másik rendhagyó előéletű fűtőelem (négy kampány, utolsó kampányban kis kiégés) felismerése már egyszerűbb, mivel ez teljesen elkülönül az összes többtől (K10). A legnagyobb összekeveredés a három (K4) és négy kampányt üzemelő, végig magas kiégést kapó kazettáknál lép fel. Bár a kampányszám alapján észrevehető a pontthalmazok között elkülönülés, de néhány nagy össz-kiégésű három kampányos kazetta átlóg a négy kampányosok közé. A négy kampányos kazettákat az algoritmus három klaszterbe sorolta be (K5, K6 és K7). Itt a különbség a *PC2* főkomponensben magasabb klaszter és az alatta található két klaszter között a kazetták kezdeti dúsítása. A kisebb dúsítású kazetták azonos kiégési jellegnél nagyobb *PC2* értékkel korrelálnak. A *PC2*-ben alacsonyabb két klaszter kazettái között azok paramétereiben nem fedeztem fel lényeges különbség.

5.5. A paraméterbecslések eredményei

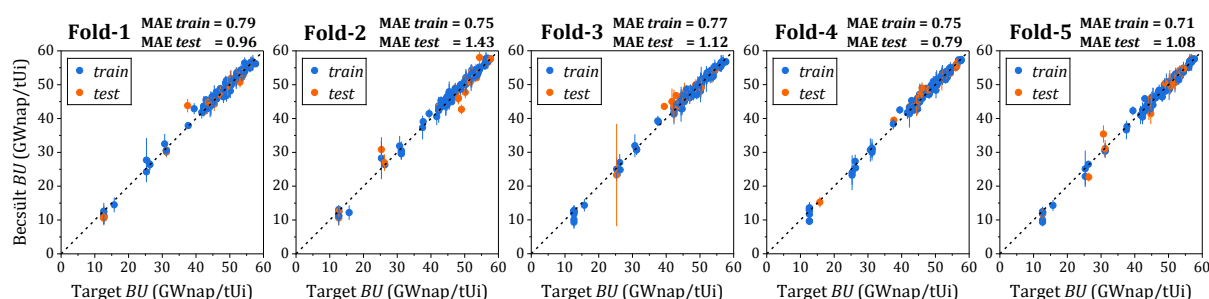
Az 5.5. táblázatban definiált nyolc scenárióra optimalizált és betanított ML modellek becslésének 5 szeletre átlagolt abszolút eltéréseit (*MAE*) az 5.10. táblázat, az 5 szeletre átlagolt abszolút százalékos eltéréseit (*MAPE*) pedig az 5.11. táblázat foglalja össze. A referencia NLR modellel csak a *BU-SG*, *BU-NF*, *CT-SG* és *CT-NF* scenáriókra sikerült eredményes számítást végezni, az utóbbi két scenárió input adatai és így a becslések eltérései is egzaktul megegyeznek. A táblázatok utolsó oszlopába bekerült egy összesített (*ensemble*) eltérés, ami az ML modellek (SVR, RF, ANN és CNN) becslött értékeinek átlagát veszi alapul. Az egyes scenáriókra a minimális eltérést produkáló modell eltérései (az összesített kivételével) vastagon szedve láthatók. Az 5 szeletre külön elvégzett becslések eredményeit az 5.6. – 5.13. ábrák mutatják be, ezeken minden scenárióra a *MAE* mérőszámban legjobban teljesítő modell becslései szerepelnek. Az ábrákon behúzott vonal az egzakt egyezést mutatja, a kék színű pontok a *train* adatsorhoz, a narancs színű pontok pedig a *test* adatsorhoz tartoznak. A grafikonok pontjainál behúzott sávok a predikciós intervallumokat szemléltetik.

5.10. táblázat: A referencia NLR és a különböző ML modellek becslési pontossága a *test* MAE mérőszámok alapján. A legjobb becslést adó modellekre a számok vastagítva láthatók.

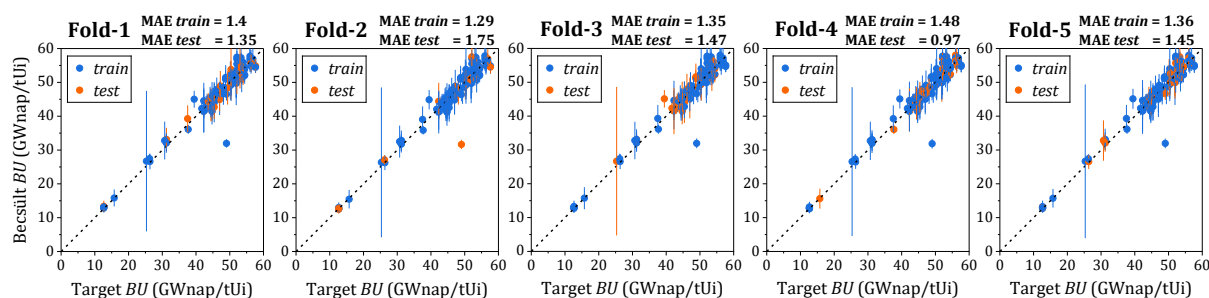
<i>Target</i>	Scenárió	<i>test MAE ± 1σ standard deviáció</i>					
		NLR	SVR	RF	ANN	CNN	Összesített
Kiégés (GWnap/tUi)	<i>BU-SG</i>	1,2 ± 0,3	1,1 ± 0,3	1,3 ± 0,5	1,1 ± 0,2	-	1 ± 0,3
	<i>BU-NF</i>	1,4 ± 0,3	1,5 ± 0,3	1,5 ± 0,4	1,5 ± 0,3	1,4 ± 0,3	1,2 ± 0,2
Hűlési idő (nap)	<i>CT-SG</i>	121 ± 13	69 ± 22	47 ± 16	80 ± 16	-	56 ± 5
	<i>CT-NF</i>	121 ± 13	77 ± 22	54 ± 19	59 ± 4	45 ± 11	61 ± 8
Kezdeti dúsítás (wt% ²³⁵ U)	<i>IE-SG</i>	-	0,13 ± 0,03	0,14 ± 0,03	0,13 ± 0,03	-	0,12 ± 0,03
	<i>IE-NF</i>	-	0,15 ± 0,04	0,15 ± 0,02	0,16 ± 0,04	0,17 ± 0,03	0,13 ± 0,03
²³⁹ Pu koncentráció (10 ¹⁷ cm ⁻³)	<i>CPU9-SG</i>	-	4,3 ± 1,2	4,3 ± 0,9	3,8 ± 0,4	-	3,4 ± 0,7
	<i>CPU9-NF</i>	-	10 ± 3,4	11 ± 1,7	11 ± 1,7	8,8 ± 1	8,6 ± 0,7

5.11. táblázat: A referencia NLR és a különböző ML modellek becslési pontossága a *test* MAPE mérőszámok alapján. A legjobb becslést adó modellekre a számok vastagítva láthatók.

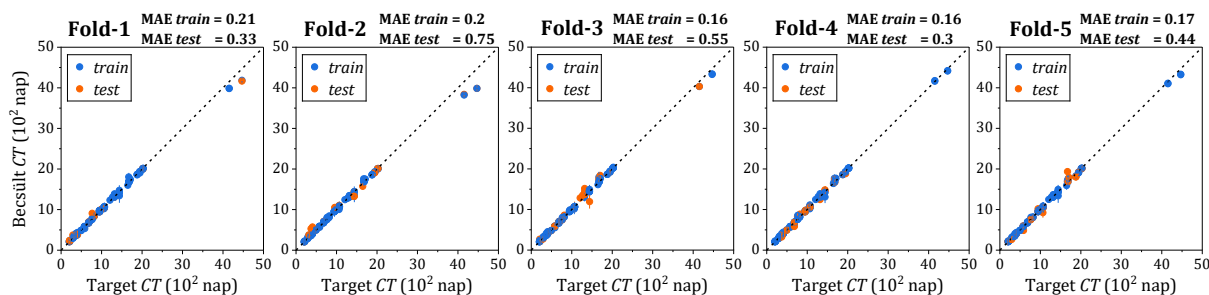
<i>Target</i>	Szcenárió	<i>test</i> MAPE $\pm 1\sigma$ standard deviáció					
		NLR	SVR	RF	ANN	CNN	Összesített
Kiegész (%)	<i>BU-SG</i>	2,9 $\pm$ 0,9	2,7 $\pm$ 0,7	3,4 $\pm$ 1,6	2,9 $\pm$ 0,7	-	2,4 $\pm$ 0,8
	<i>BU-NF</i>	3,2 $\pm$ 0,8	4,1 $\pm$ 0,9	4,4 $\pm$ 1,4	3,8 $\pm$ 0,9	4,3 $\pm$ 2,1	3,4 $\pm$ 0,9
Hűlési idő (%)	<i>CT-SG</i>	14 $\pm$ 2	22 $\pm$ 2	4,7 $\pm$ 0,8	9 $\pm$ 2,4	-	6,6 $\pm$ 1
	<i>CT-NF</i>	14 $\pm$ 2	8 $\pm$ 2	5,1 $\pm$ 0,8	6,4 $\pm$ 1,1	5,7 $\pm$ 1,3	6,8 $\pm$ 1,3
Kezdeti dúsítás (%)	<i>IE-SG</i>	-	3,9 $\pm$ 1,4	4,5 $\pm$ 1,4	4,1 $\pm$ 1,3	-	3,7 $\pm$ 1,2
	<i>IE-NF</i>	-	4,2 $\pm$ 1,2	4,9 $\pm$ 0,6	4,9 $\pm$ 1,2	5,1 $\pm$ 1,3	3,9 $\pm$ 0,8
²³⁹ Pu koncentráció (%)	<i>CPU9-SG</i>	-	1,1 $\pm$ 0,4	1,1 $\pm$ 0,2	1 $\pm$ 0,1	-	0,9 $\pm$ 0,2
	<i>CPU9-NF</i>	-	2,6 $\pm$ 1	2,7 $\pm$ 0,4	2,7 $\pm$ 0,4	2,1 $\pm$ 0,3	2,1 $\pm$ 0,2



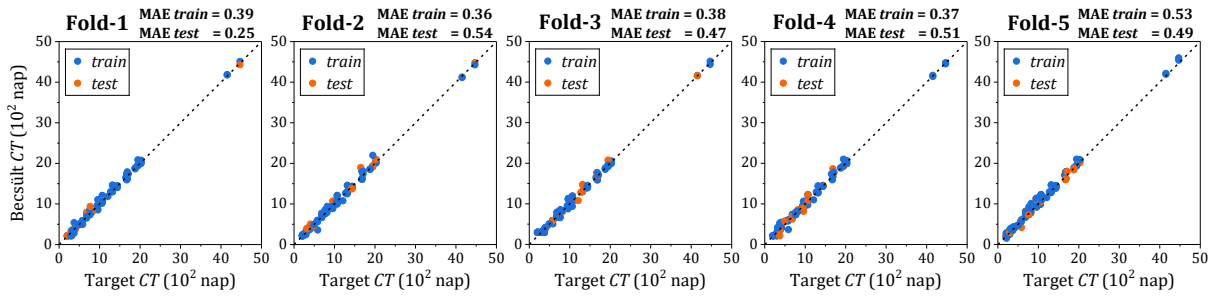
5.6. ábra: Az ANN modell 5-fold becslési eredményei a *BU-SG* szcenárióra.



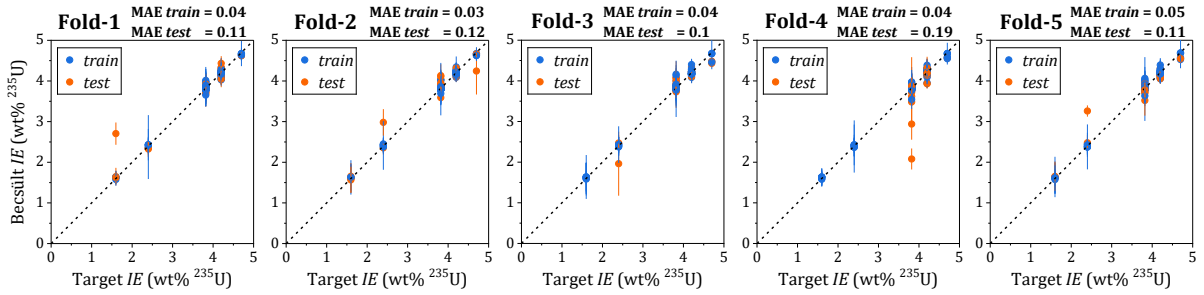
5.7. ábra: Az NLR modell 5-fold becslési eredményei a *BU-NF* szcenárióra.



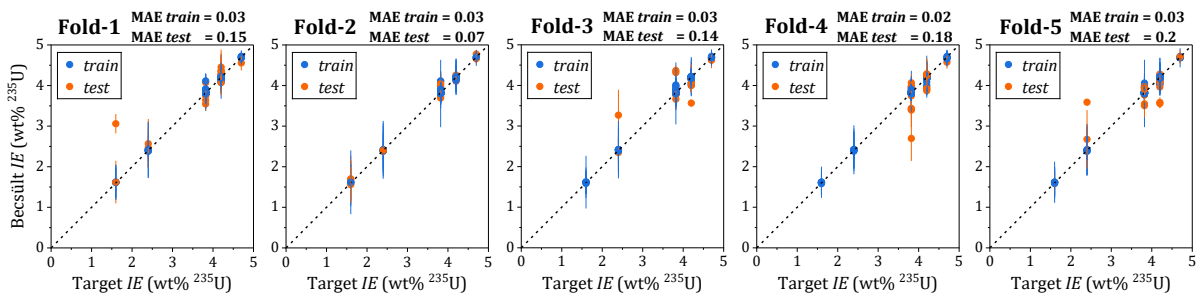
5.8. ábra: Az RF modell 5-fold becslési eredményei a *CT-SG* szcenárióra.



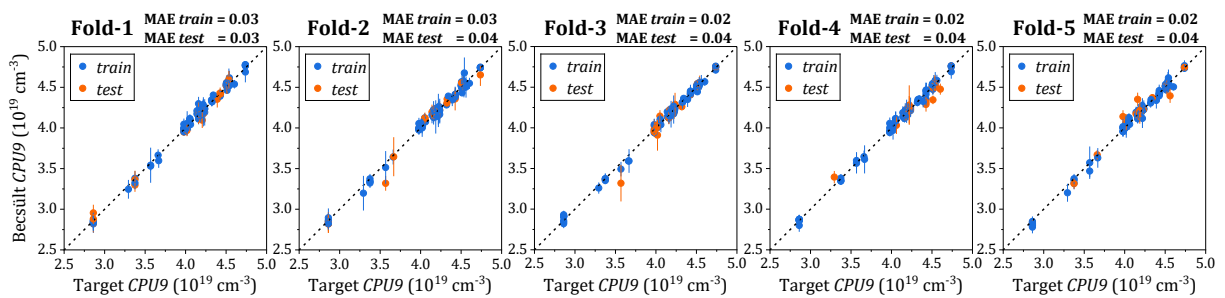
5.9. ábra: A CNN modell 5-fold becslési eredményei a $CT-NF$ szcenárióra.



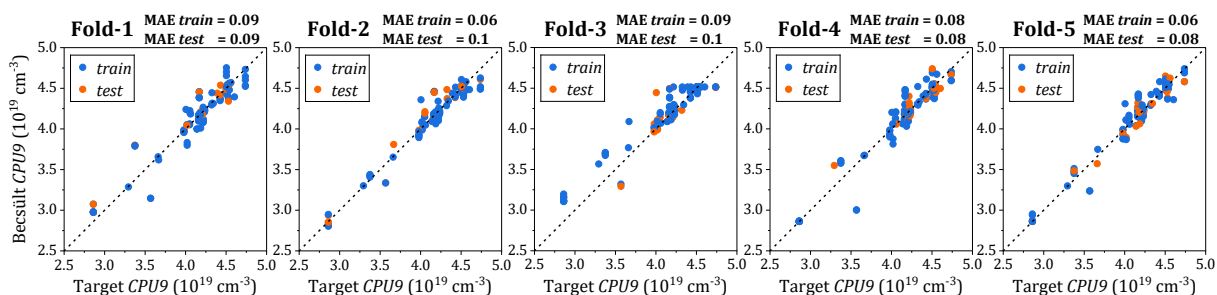
5.10. ábra: Az SVR modell 5-fold becslési eredményei az $IE-SG$ szcenárióra.



5.11. ábra: Az SVR modell 5-fold becslési eredményei az $IE-NF$ szcenárióra.



5.12. ábra: Az ANN modell 5-fold becslési eredményei a $CPU9-SG$ szcenárióra.

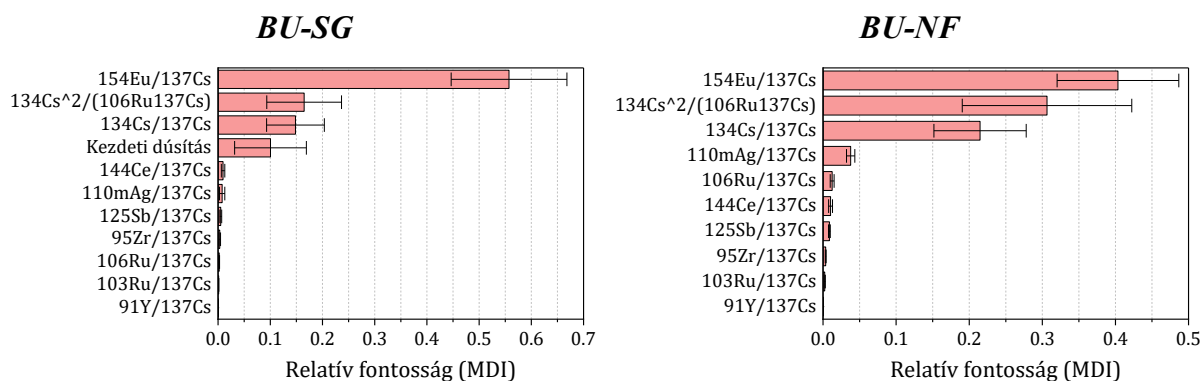


5.13. ábra: A CNN modell 5-fold becslési eredményei a *CPU9-NF* szcenárióra.

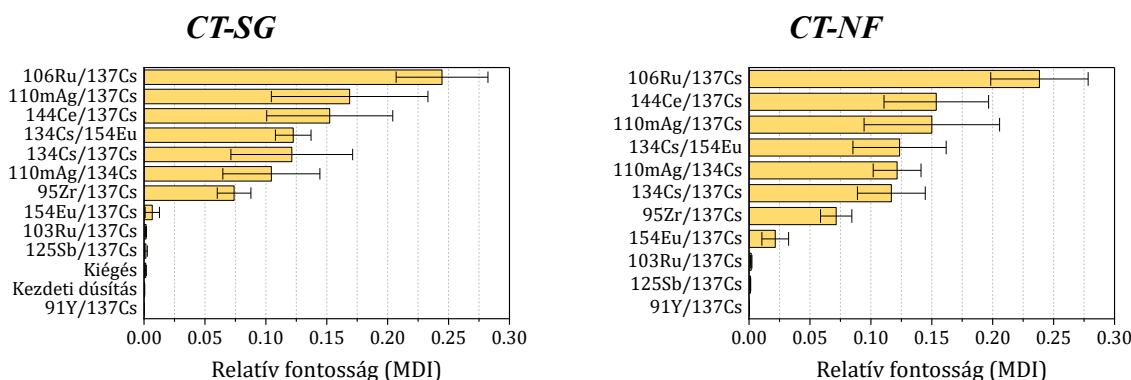
A kiégés legmegbízhatóbb becslését az ANN modellel értem el ismertnek feltételezett hűlési idő és kezdeti dúsítás esetén, azonban az NLR modellnél egyik ML módszer sem mutatott jelentős mértékű javulást. Meglepő eredmény, hogy a méréskor elérhető adatok alapján az egyszerű NLR módszer ($^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány) adta a legpontosabb becsléseket, a CNN modell eredménye ettől csak marginálisan lett pontatlanabb. A hűlési idő számolásában az összes ML modellel jelentős javulást értem el a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ aktivitásarányt használó NLR módszerhez képest. Ezek közül kiemelkedik az RF algoritmus a *CT-SG* szcenáriónál, valamint a még ennél is pontosabb becslést adó CNN modell a *CT-NF* szcenáriónál. A kezdeti dúsítást mind az *IE-SG*, mind pedig az *IE-NF* szcenáriókra az SVR modell számolása szolgáltatva a legnagyobb pontossággal. Látható azonban, hogy a kezdeti dúsítás becslésére a modellek teljesítménye szcenáriótól függetlenül közel azonos mértékű. A ^{239}Pu koncentráció becslésénél a neurális hálók teljesítménye lett kiemelkedő. Az ANN modell a többi paraméter ismerete mellett, a CNN modell pedig ezek nélkül adta a legpontosabb eredményeket. A neurális hálók jó teljesítményét a ^{239}Pu koncentráció becslésénél J.W. Bae és társainak publikációja is megerősíti [54]. Érdekesség, hogy ez a mennyiség a MAPE számok alapján a vizsgáltak közül a legkisebb bizonytalansággal becsülhető paraméter, továbbá a MAE értékek különbségei alapján nagy érzékenységet mutat a fő paraméterek ismeretének hiányára.

Az RF modellekkel számított *feature* fontosságok (MDI) képet adnak az egyes input adatoknak a becsléshez adott relatív hozzájárulásáról. Az 5.14. – 5.17. ábrák grafikonjain az MDI értékek egy kiszemelt szcenárió *feature*-jeire 1-re összegződnek, a hibasávok az 5 szeletre kiszámolt fontosságok szórását jelölik. Az eredmények értelmezése előtt ki kell emelni, hogy az MDI értékek kizárólag az RF modell számításaira vonatkoznak és más modelleknél nem feltétlenül azonos a *feature*-ök fontossági sorrendje. Ennek ellenére feltételezhető, hogy azok a *feature*-ök, amik kiemelkedően nagy vagy elhanyagolhatóan kicsi fontosságúak, más ML modelleknél is hasonló értéket képviselnek. A grafikonok tanúsága szerint a kiégés becslése csupán néhány *feature*-ön múlik, ezek a $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ és $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányok, amik mellett a kezdeti dúsítás ismerete is tényező lehet. A hűlési idő becslésénél a várakozásoknak megfelelően a kiégés és a kezdeti dúsítás egyáltalán nem fontos, sok aktivitásarány viszont hasonlóan értékesnek mutatkozik mindkét szcenáriónál. Az arányok közül egyedül a $^{106}\text{Ru}/^{137}\text{Cs}$ emelkedik ki, ami az ezzel a mennyiséggel végzett *CT* becslés korlátozott pontosságú eredményének ismeretében meglepő. A kezdeti dúsítás becslése leginkább a kiégéstől és a kiégés becslésénél is fontos aktivitásarányoktól függ. Ez

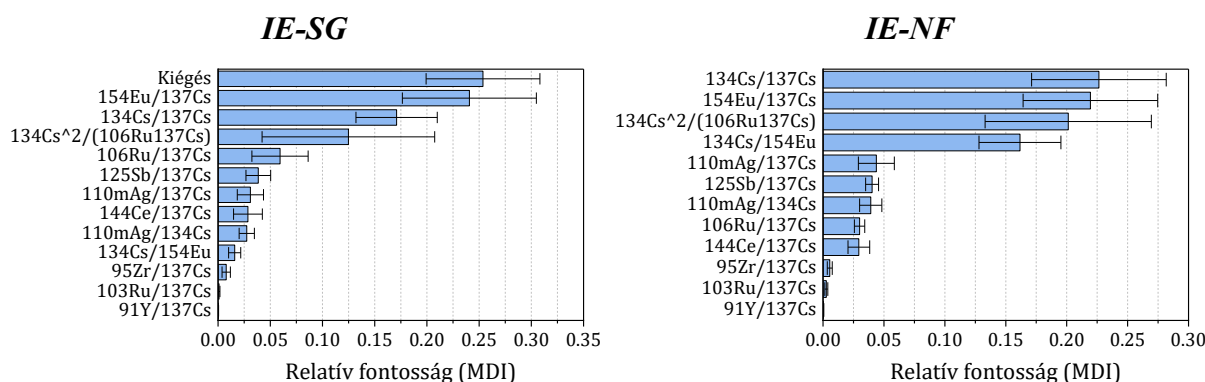
alátámasztható azzal az egyszerű magyarázattal, hogy a nagyobb kezdeti dúsítású fűtőelemek a nagyobb hasadóanyag tartalmuk miatt összességében több energiát termelhetnek, így magasabb végállapoti kiegészítést érhetnek el. A ^{239}Pu koncentráció becslésénél a kezdeti dúsítás meghatározó fontossággal bír, amit magyarázhat a kezdeti dúsítás és a kiegészítés között tapasztalt kapcsolat. A kiegészítés és a kezdeti dúsítás ismeretének hiányában a ^{239}Pu tartalom becslésénél megnő az előbbi kettő paraméter becslésénél is fontos mennyiségek értéke.



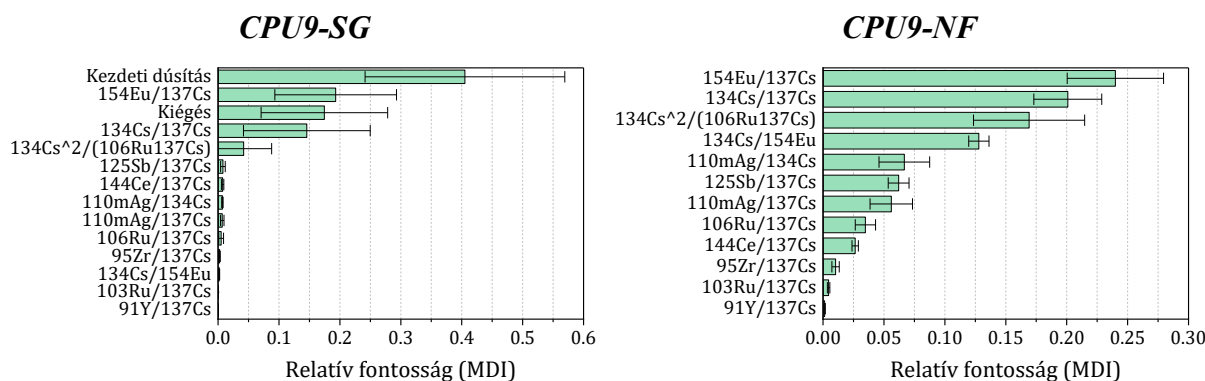
5.14. ábra: A kiegészítés becslésére használt input adatok relatív fontosságai az RF modellek alapján.



5.15. ábra: A hűlési idő becslésére használt input adatok relatív fontosságai az RF modellek alapján.



5.16. ábra: A kezdeti dúsítás becslésére használt input adatok relatív fontosságai az RF modellek alapján.



5.17. ábra: A ^{239}Pu koncentráció becslésére használt input adatok relatív fontosságai az RF modellek alapján.

5.6. Diszkusszió, következtetések

A *k-means* algoritmuson alapuló klaszteranalízissel megmutattam, hogy pusztán gamma-spektrometriai méréssel bizonyos mértékig különbséget lehet tenni az eltérő előéletű kiégett fűtőelemek között. Emellett a normálistól jelentősen eltérő előéletek – például a csak egy-két kampányt üzemelő, vagy a kampányok között hosszú idegi pihenő kazetták – közötti különbségek is megnyilvánultak. A levonható következtetések azonban az input adatok limitáltsága (kis darabszám, kevés rendhagyó előélet) miatt is jelentősen korlátozottak. További kérdéseket vet fel a módszer objektivitása kapcsán az előéletek csoportosításának módja, ami a számszerű döntési szabály követésének ellenére a szabály kiválasztásában inherensen szubjektív maradt. Összegzésül elmondható, hogy a klaszterezés a többi ML technika mellett egy hasznos segédeszköz, mert tájékoztató jellegű információt ad az előletről, de önmagában csak korlátozottan alkalmazható. A módszer potenciális alkalmazási területe az inheretikus kazetták kampányszámának megállapítása lehet [55] [56].

A paraméterbecslő ML algoritmusokkal érdemi javulást értem el az egyszerű nem-lineáris regresszióval szemben. Ez a pontosságnövekedés a kiegész becslésénél csupán mérsékelt, viszont a hűlési időnél nagyon jelentős. Az átlagosan 1,5 hónapos *CT* becslési bizonytalanság már lehetővé teheti az ismeretlen eredetű kiégett üzemanyagok reaktorblokk szintű eredetvizsgálatát. A kezdeti dúsításra és a ^{239}Pu tartalomra vonatkozó becslések sikeressége nagy előrelépés az egyetlen aktivitásarányon alapuló regresszióhoz képest, amivel bizonyítottam az ML módszerek alkalmazásának jogosultságát. Megjegyzem azonban, hogy a kezdeti dúsítás kategóriáját (1,6%, 2,4%, 3,82%, 4,2% vagy 4,7%) az átlagosan 0,15%-os bizonytalanság mellett még nehéz különbséget tenni a 3,82% és 4,2%, valamint a 4,2% és 4,7% kategóriák között. A ^{239}Pu koncentráció százalékos bizonytalansága a kiegésznél is alacsonyabb szintűnek adódott, de erre a paraméterre vonatkozóan szükség lenne kísérleti validációra, ami csak roncsolásos analitikai eljárással kivitelezhető. Ennek ellenére az ML módszerekkel elért eredményeim kétségtelenül megmutatták a gamma-spektrometriai mérés technika erejét a kiégett fűtőelemek karakterizációjánál.

Összességében a legígéretesebb ML modelleknek a neurális hálók bizonyultak. Az egyszerűbb *perceptron* modell alkalmazása safeguards jellegű vizsgálatnál ajánlott, amikor a mért adatok mellett a fűtőelemről további információ is rendelkezésre áll. Ezzel szemben ismeretlen eredetű kiégett üzemanyag esetén a konvolúciós neurális hálóval végzett számítás a gamma-spektrumból közvetlen és pontos paraméterbecslést tesz lehetővé. A neurális háló alappú modellek további vizsgálata és fejlesztése figyelmet érdemlő jövőbeli kutatási téma, ami lehet például a paraméterbecslési módszer kiterjesztése VVER-440 típustól eltérő fűtőelemekre vagy más mérési körülményekre.

5.7. [T3] Tézispont: Paraméterbecslés és előélet-vizsgálat gépi tanulási módszerekkel

Gépi tanulási modellek alkalmazásával vizsgálatokat végeztem a paraméterbecslés pontosságának növelése érdekében. A számítások hibája a kiégésre marginálisan csökkent, a hűlési időre azonban közel a harmadára esett vissza a legjobban teljesítő modelleknél. A regressziós módszerrel ellentétben sikerült a kezdeti dúsítás becslését is megvalósítani, valamint megmutattam, hogy a ^{239}Pu koncentráció mesterséges neurális hálókat használva jó pontossággal megbecsülhető. Új eredmény a konvolúciós neurális háló alkalmazásával közvetlenül a mért spektrumból megvalósított paraméterbecslés. Klaszteranalízist használva megállapítottam, hogy a kiégési előélet üzemelési ciklusok szerinti alakulása tükröződik a gamma-spektrometriával mérhető aktivitásarányokban.

A tézispontához kapcsolódó publikációk listája:

- [p1] P. Kirchknopf, I. Almási, G. Radócz, I. Nemes, P. Völgyesi és I. Szalóki, „Determining burnup, cooling time and operational history of VVER-440 spent fuel assemblies based on in-situ gamma spectrometry at Paks Nuclear Power Plant”, *Annals of Nuclear Energy*, 170, p. 108975, 2022, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2022.108975>.
- [p2] P. Kirchknopf, B. Batki, P. Völgyesi, Z. Kató és I. Szalóki, „Application of machine learning methods for spent fuel characterization based on gamma spectrometry measurements”, *Annals of Nuclear Energy*, 205, p. 110601, 2024, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110601>.

6. HASADÁSI TERMÉK AKTIVITÁSOK SZÁMÍTÁSA

A gamma-spektrometria, mint roncsolásmentes analitikai módszer használatával az előző fejezetekben bemutatott módon meghatározhatók kiégett fűtőelemekben hasadási termék aktivitásarányok. Ezek az arányok magukban hordozzák a karakterizációhoz szükséges információk egy részét, de a Bq-ben mért aktivitások önmagukban nem következnek belőlük. A mérőrendszer és a mérési elrendezés pontos ismeretében, vagy ismert aktivitású referencia sugárforrás alkalmazásával elméletben kiszámítható az abszolút hatásfok-függvény, aminek a birtokában az aktivitások is mérhetővé válnak. A hasadási termék aktivitások ismerete egyrészt újabb paraméterbecslő módszereket tesz lehetővé, másrészt ennél fontosabban sugárvédelmi és átmeneti tárolási, illetve a végső elhelyezés előtti ellenőrzések alapját képezheti [57]. Az aktivitásszámítás központi kérdése és legnagyobb nehézsége a megbízható hatásfok-kalibráció előállítása, ami természetesen rendkívüli mértékben függ a mérési geometriától, tehát minden esetben egyedileg kell elvégezni.

6.1. Az abszolút hatásfok-kalibráció lehetőségei

A 2. fejezetben bemutatott fűtőelem geometriai és anyagi felépítése komplexnek mondható. Világos tehát, hogy pontszerű referencia sugárforrással nem modellezhető, hiszen ez az egyszerűsítés rendkívüli mértékű torzítást eredményezne a hatásfokban. Így a kísérleti úton végzett kalibráció egyetlen esélye egy ismert hasadási termék aktivitásokkal rendelkező referencia kazetta mérése. Ilyen kazetta azonban Paksi Atomerőműben nem áll rendelkezésre, valamint hazánkban az eddig gamma-spektrométerrel megmért kazetták roncsolásos analízise sem kivitelezhető. Következésképpen a kísérleten alapuló hatásfok-kalibráció ötletét el kellett vetnem. Ez a továbbiakban részletezett módszer egy sarkalatos pontja, hiszen a mérési úton történő validáció jelen körülmények között semmiképpen sem valósítható meg, legfeljebb indirekt validáció, azaz hasonló kiégett üzemanyagok mérési eredményeivel való összevetés képzelhető el.

A fennmaradó lehetőségek között szerepelnek a számítógépes kóddal előállított adatokon alapuló módszerek. A feladat szempontjából ezek két típusra oszthatók fel:

- (1) A reaktorban lejátszódó magátalakulások és bomlások követésén keresztül a hasadási termék magok mennyiségének számítása.
- (2) A kiégett fűtőelemből kibocsátott gamma-fotonok szimulálásán keresztül a detektálási hatásfok közvetlen meghatározása.

Az (1) típusú kódok alkalmazásával ismertté válhatnak a mért fűtőelemeken belüli hasadási termék aktivitások. Ezután a kvantitatív analízis alapvető összefüggésével ((3.2) egyenlet) a hatásfok-függvény értékei a kiértékelt csúcsterületekből származtathatók. Ezt az eljárást az összes mért fűtőelem-konstrukcióra és mérési elrendezésre megvalósítva előállnak az aktivitás számításokhoz szükséges hatásfok-függvények.

Az előbbi stratégiával szemben a (2) módszernél nem feltétel az aktivitások előzetes ismerete. A hatásfok számításához elegendő a gamma-sugárzó magoknak a fűtőelemen belüli relatív térbeli eloszlását tudni. Részletesen kell ismerni viszont a mérési elrendezést, mind anyagi, mind pedig geometriai paramétereit tekintve. Az ilyen számítások elvégzésére használandók a Monte-Carlo részecsketranszport kódok, amik nagy számú kibocsátott részecske véletlenszerűen sorsolt életútjának végig követésével határozzák meg a keresett átlagos mennyiségeket.

Ebben a munkában a két módszer közül a választásom a Monte-Carlo szimulációra esett, így a továbbiakban kizárólag ennek a technikának az implementációjáról írok. Ennek indoka egyrészt a mérési összeállításról rendelkezésre álló információ kiaknázásának lehetősége, másrészt pedig a számításokhoz használt kódok rendelkezésre állása a HUN-REN EK SBL-ben. Megjegyzendő, hogy a hasadási termék izotópok mennyiségét számító reaktorfizikai kódok alkalmazása továbbra is egy legitim stratégia, amit a jövőben érdemes az összehasonlítás céljából megvalósítani.

6.2. Irodalmi áttekintés

A Monte-Carlo részecsketranszport módszerek gamma-spektrometriai kalibrációhoz történő felhasználásához a szakirodalomban számos példát lehet találni. Ebben az irodalmi áttekintőben a fókusz a kiégett fűtőelemekkel kapcsolatos vizsgálatokra helyeztem.

R. G. Helmer 2003-as munkája – bár nem kötődik a kiégett nukleáris üzemanyagokhoz – megmutatta, hogy a szerkezet precíz ismerete esetén egy HPGe detektor hatásfoka nagy pontossággal meghatározható Monte-Carlo technikával [58]. A cikk szerzői figyelembe vették a germánium holtrétegek hatását és a mérési összeállításuk geometriai paramétereit szkenneléses módszerrel mérték meg. A germánium kristály méreteiről és elhelyezkedéséről a gyártói adatlaptól függetlenül, Röntgen átvilágítás módszerével szereztek pontos információt. A CYLTRAN Monte-Carlo kód alkalmazásával végül széles energiatartományon belül a kísérleti értékektől 1%-nál alacsonyabb eltérésű hatásfok-kalibrációt valósítottak meg.

M. Kolečka két 2014-es és egy 2016-os publikációjában beszámol a Monte-Carlo szimulációra alapozott gamma-spektrometriai vizsgálataitól a řeži LVR-15 kutatóreaktor kiégett fűtőelemein [19] [59] [60]. A cikkekben a szerzők bemutatják a HPGe detektoruk Monte-Carlo modellezését, ami során röntgenradiográfiát is alkalmaztak. Az MCNPX kódban felépítették a mérési összeállításuk modelljét, amiben szóráscsökkentő módszerként a *weight window* és a DXTRAN technikákat is bevetették. A szimulált hatásfok kísérleti ellenőrzésére egy kazetta makettre applikált ^{110m}Ag izotópot tartalmazó fólia mérésével történt. Végül az elkészített és validált szimulációs modelljüket sikeresen alkalmazni tudták a kutatóreaktor kiégett fűtőelemeinek kiégés-ellenőrzésére.

Radócz Gábor a BME Oktatóreaktor EK-10 típusú fűtőelemeinek ^{137}Cs tartalmát határozta meg HPGe gamma-spektrométerrel elvégzett méréssel. 2019-es cikkében részletezi a hatásfok-kalibrációs eljárást, amelyet az MCNP6 Monte-Carlo kóddal végrehajtott számításokra alapozott. Az extrém kis kiégésű és extrém nagy hűlési idejű fűtőelemek mérése

lehetővé tette azok árnyékolatlan mérését (a detektor körüli ólom kollimátor alkalmazásával), amiknek köszönhetően a gamma-spektrumokban jól detektálható urán csúcsok jelentek meg. A számítások validációja az ^{235}U és ^{238}U , illetve ezen magok bomlási sorába tartozó izotópok mért és szimulált teljesenergia-csúcs hatásfokok összevetésén alapult. A detektor belső szerkezetének felderítése elengedhetetlenül fontosnak bizonyult, ezt a cikk szerzői kollimált gamma-nyalábbal végzett mérésekkel ismerték meg.

A felsorolt publikációk közös eleme a detektor és a mérési környezet geometriájának részletes ismerete. A tapasztalatok alapján a detektor esetében nem elégséges a gyártói adatlapon szereplő paraméterekből felépíteni a geometriát, mert minden műszer egyedileg gyártott és a valódi méretei a nominálistól eltérhetnek. HPGe detektoroknál gyakran alkalmazott technika az átvilágítás kollimált röntgen- vagy gamma-nyalábbal, illetve a röntgenradiográfia, amely módszer síkbeli képet ad a kristály alakjáról, méreteiről és elhelyezkedéséről.

6.3. A kiégett fűtőelem mérések Monte-Carlo modellje

A Paksi Atomerőműben végzett kiégett fűtőelem mérések Monte-Carlo szimulációját az MCNP6.2 részecsketranszport kóddal végeztem el [61]. A vizualizációhoz nélkülözhetetlen segítséget nyújtottak a Vised és a Gxsview grafikus megjelenítő szoftverek [62] [63].

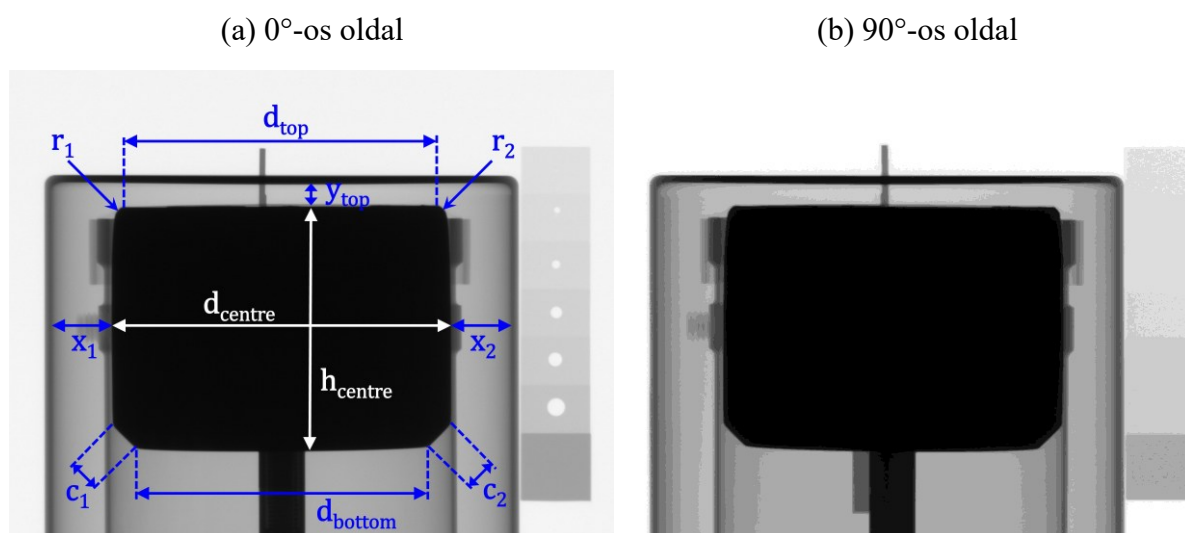
6.3.1. A HPGe detektor felépítése

A modell megalkotásának első lépése a HPGe detektor szerkezetének felépítése volt. Az évek során alkalmazott három mérőműszer közül csak az ORTEC GEM10P4-70 típusú detektort modelleztem le. Ennek oka a PGT IGC-10 gamma-spektrométer meghibásodása és emiatt a validáció lehetetlensége, valamint az ORTEC GEM-SGD-3615 detektorral a mindössze 10 darab megmért kiégett kazetta csekély száma.

6.3.1.1. Röntgenradiográfia

A detektorfejen elvégzett röntgenradiográfia feltárta a germánium kristály geometriáját. A felvételek elkészítését a HUN-REN EK Nukleáris Analitikai és Képzőmunkatársai hajtották végre a Budapesti Kutatóreaktor csarnokában található röntgenradiográfiai mérőhelyen. A röntgenforrás 200 kV-os gyorsítófeszültséggel és egy a nyaláb elé helyezett 2 mm-es alumínium szűrővel működött. A mintatartó mögötti ernyő után egy szcintillációs detektor az áthaladó röntgenfotonokat látható fénné konvertálta, amit egy CCD kamera rögzített. Egy felvétel végeredménye egy 2200×1700 pixel felbontású szürkeárnyaltos kép, amin a sötétebb részek nagyobb, a világos részek pedig kisebb fotonelnyelést indikálnak. A HPGe detektorfejről számos felvétel készült több különböző magasságban és két, egymással 90° -ot bezáró tengelymenti orientációban. A felvételekről egy-egy szemléltető kép látható a 6.1. ábra bal és jobb oldalán, a bal oldalon feltüntetve a legfontosabb geometriai paraméterekkel. A képekről a méretek az alumínium kapszula jobb oldalára rögzített alumínium referencia darab ismert méretéből kiindulva számíthatók ki. A méretek meghatározása a Fiji szoftverrel történt

[64]. A radiográfiai felvételekről leolvasott átlagos méreteket és a detektor gyári adatlapjában megtalálható értékeit a 6.1. táblázat tartalmazza. A méretek a 6.1. ábra két felvételének átlagos leolvasott értékeiként lettek megállapítva. A kristály méretein túl a kapszula és a kristálytartó falának vastagságai is a radiográfias felvételekről lettek meghatározva. A 200 keV-es maximális röntgenenergiájú fotonok nem tudtak a germánium tömbön áthatolni, ezért a koaxiális kristály központi lyuka a felvételeken nem látszódik, következésképpen itt az adatlap méreteit alkalmaztam.



6.1. ábra: A GEM10P4-70 detektorról készült röntgenradiográfias felvételek. Bal oldalon a 0°-os állásban, a jobb oldalon a 90°-os állásban elhelyezett detektorfej látható. Mindkét felvétel jobb oldalán a kapszulára applikált méretskála jelölő próbadarabok helyezkednek el.

6.1. táblázat: A GEM10P4-70 detektor germánium kristályának geometriai méretei.

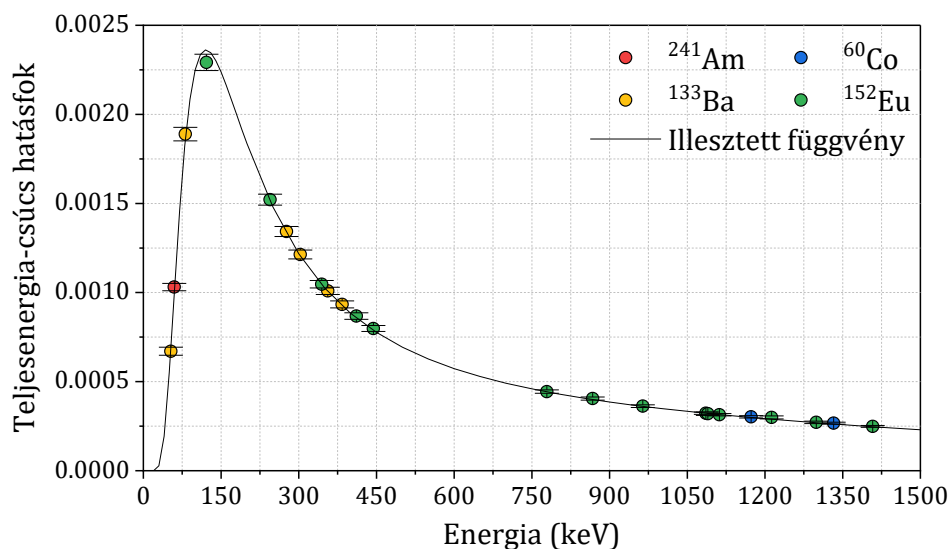
Paraméter	Adatlapi érték (mm)	Radiográfiai érték (mm)	Megjegyzés
Kristály tetejének átmérője (d_{top})	–	$48,04 \pm 0,24$	Adatlapon nem szerepel
Kristály közepének átmérője (d_{centre})	50,1	$51,04 \pm 0,3$	–
Kristály aljának átmérője (d_{bottom})	–	$43,78 \pm 0,44$	Adatlapon nem szerepel
Kristály közepének hossza (h_{centre})	36	$36,74 \pm 0,38$	–
Felső lekerekítés sugara (r_1, r_2)	8	$1,46 \pm 0,09$	Ismeretlen okú nagy eltérés
Alsó lecsapás hossza (c_1, c_2)	–	$4,83 \pm 0,11$	Adatlapon nem szerepel
Kristály oldaltávolsága a kapszulafaltól (x_1, x_2)	–	$10,07 \pm 0,48$	Adatlapon nem szerepel
Kristály távolsága a kapszula tetejétől (y_{top})	3	$3,31 \pm 0,15$	–
Központi lyuk átmérője	9,4	–	Radiográfian nem látszik
Központi lyuk mélysége	20,9	–	Radiográfian nem látszik

6.3.1.2. A detektor kísérleti hatásfok-kalibrációja

A HPGe detektor modelljének külön validációjához szükségem volt egy laboratóriumi körülmények között elvégzett hatásfok-kalibrációra. Ehhez négy darab etalon gamma-sugárforrás választottam ki, ezek az ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{60}Co és ^{152}Eu , amik együttesen lefedik a 60-1400 keV energiatartományt. A sugárforrásokat a detektor kapszulájának középmagasságában, annak felületétől 20 cm távolságra pozicionáltam. A távolság megválasztásánál a fő szempont a valódi koincidencia effektus minimalizálása volt, amely zavaró jelenség 20 cm-nél már a használt etalonforrások esetén teljes mértékben elhanyagolható [65]. A teljes mérési idők 0,5-2 óra tartományban változtak 1-3% közötti holtidők mellett. A rögzített spektrumokat az InterSpec szoftverrel értékeltem ki [66]. A gamma-emisszió gyakoriságára vonatkozó nukleáris adatokat az ENSDF bomlási táblázatokból vettem [3]. Az etalonforrások referencia aktivitásaira a gyártók által megadott bizonytalanságok $\pm 2\text{-}5\%$ közötti értékek.

A mért teljesenergia-csúcs hatásfokokra egy (6.1) formulával definiált empirikus függvényt illesztettem, amivel a kalibrációs tartományon belül tetszőleges energiára kiszámítható a hatásfok. A mérésből származó hatásfok értékek és a rájuk illesztett függvény alakja a 6.2. ábrán szerepel, az $A_0 - A_4$ illesztési paraméterek illesztési eredményei pedig a 6.2. táblázatban találhatók. A (6.2) és (6.3) formulákkal megadott mátrixok rendre az illesztett paraméterek közötti kovarianciákat és korrelációs együtthatókat adják meg.

$$\varepsilon_{\text{mért}}(E_\gamma) = e^{(A_0 + A_1 \ln(E_\gamma) + A_2 \ln(E_\gamma)^2 + A_3 \ln(E_\gamma)^3 + A_4 \ln(E_\gamma)^4)} \quad (6.1)$$



6.2. ábra: Függvényillesztés a laboratóriumban mért teljesenergia-csúcs hatásfokokra.

6.2. táblázat: Az $\varepsilon_{\text{mért}}(E_\gamma)$ függvény illesztéséből meghatározott paraméterek értékei.

Paraméter	A_0	A_1	A_2	A_3	A_4
Érték $\pm$ szórás	$-153,4 \pm 5,6$	$96,9 \pm 4,1$	$-23,5 \pm 1,1$	$2,48 \pm 0,13$	$-0,0979 \pm 0,0059$

$$\text{Cov}(A_i, A_j) = \begin{bmatrix} 32 & -23 & 6,2 & -0,74 & 0,032 \\ -23 & 17 & -4,6 & 0,55 & -0,024 \\ 6,2 & -4,6 & 1,25 & -0,15 & 0,0065 \\ -0,74 & 0,55 & -0,15 & 0,018 & -0,0008 \\ 0,032 & -0,024 & 0,0065 & -0,0008 & 0,00003 \end{bmatrix} \quad (6.2)$$

$$\rho(A_i, A_j) = \begin{bmatrix} 1 & -1 & 1 & -0,99 & 0,98 \\ -1 & 1 & -1 & 1 & -0,99 \\ 1 & -1 & 1 & -1 & 1 \\ -0,99 & 1 & -1 & 1 & -1 \\ 0,98 & -0,99 & 1 & -1 & 1 \end{bmatrix} \quad (6.3)$$

6.3.1.3. Az optimális Ge holtréteg vastagság keresése

A gamma-spektrométerként alkalmazott germánium kristályok mindegyike rendelkezik olyan felületi réteggel, amely nem érzékeny a gamma-sugárzásra. Ezt a réteget holtrétegnek (*dead layer*) nevezik, ami a beérkező foton energiájától függően jelentős mértékű hatásfok csökkenést okozhat [67]. Ezt a csökkenést kis energiákon a holtrétegben való elnyelődés, nagyobb energiáknál pedig a kisebb aktív térfogat okozza [68]. A holtréteg anyagi összetételében gyakorlatilag nem különbözik a kristály többi részétől, így például röntgen radiográfiával nem vizsgálható. Az egyetlen járható út a holtréteg vastagságának megismerésére a különböző konfigurációkkal felépített szimulációk elvégzése és az így kapott hatásfokoknak a mért hatásfok-függvénnyel való összevetése.

A holtréteggel kapcsolatban alapvető feltételezésem az volt, hogy a kristályt minden külső oldaláról bizonyos vastagsággal körbeveszi, viszont a központi lyukon belül nincs jelen. Az optimalizáció három rétegvastagság keresését jelentette, ezek az elülső (dl_1), az oldalsó (dl_2) és a hátsó (dl_3) holtréteg vastagságok. A keresési stratégiám két lépésből állt, mindkettő egy rács menti keresési algoritmuson alapul. Elsőként egy durva, 8000 pontból álló rács mentén végeztem vizsgálatokat, amiknél mindhárom rétegvastagság értéke 0,1-2 mm között, 0,1 mm-es lépéssel változott. A második szakaszban egy finomabb felosztású rács pontjain végeztem optimalizációt, összesen 12000 konfiguráció vizsgálatával. A keresési tartományok a 6.3. táblázatban találhatók. A hátsó holtréteg vastagságának tartományát ki kellett terjesztenem 2-ről 2,7 mm-re, mert az első optimalizációs körben a dl_3 értéke a durva rács tartományának maximumát vette fel.

6.3. táblázat: Az optimális holtréteg vastagságok kereséséhez alkalmazott tartományok.

Rács	Paraméter	Tartomány (mm)	Lépésköz (mm)	Keresési értékek száma (db)
Durva	dl_1	0,1 – 2	0,1	20
	dl_2	0,1 – 2	0,1	20
	dl_3	0,1 – 2	0,1	20
Finom	dl_1	0,85 – 1,04	0,01	20
	dl_2	1,13 – 1,7	0,03	20
	dl_3	1,25 – 2,7	0,05	30

Az összes szimulációt 1 millió induló részecskével és csak a fotonok transzportjának számolásával futtattam le. Holtréteg konfigurációként 50 és 1500 keV között 37 darab energián indítottam fotonokat a detektor kapszulával szemben 20 cm-re elhelyezkedő pontforrásból. A kristály holtrétegen belüli aktív térfogatában egy F8:P típusú *pulse height tally*-vel mértem a fotonok teljes energiával történő elnyelésének hányadát, amely mennyiség analóg a teljesenergia-csúcs hatásokkal.

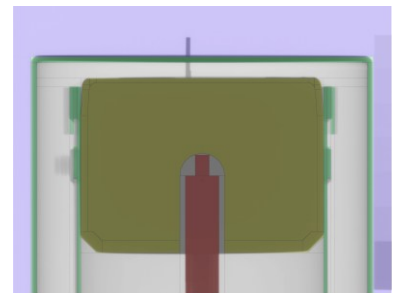
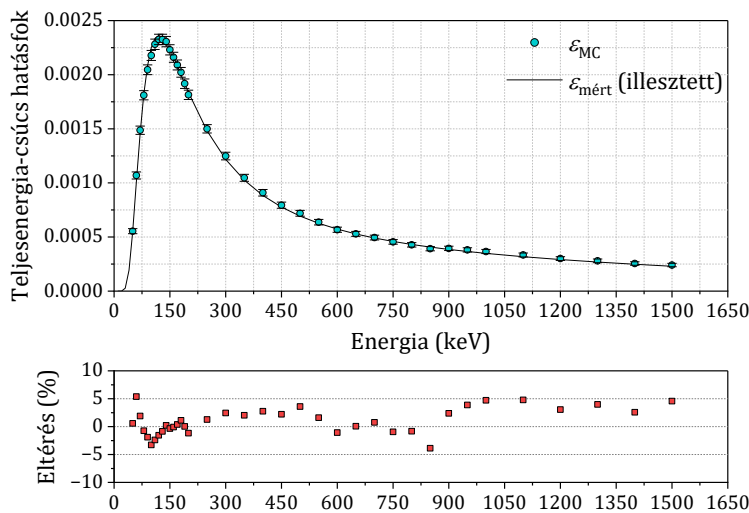
Az optimális holtréteg konfigurációt három eltérést mérő mennyiség ($RMSD$, MAE , $MAPE$) alapján képzett távolság (D) mentén választottam ki. A (6.4), (6.5) és (6.6) formulákkal definiált eltérések mind egységnyi összegre normált értékűek, a képletekben az $i = 1, \dots, m$ index a holtréteg konfiguráció indexe (a finom rácstra $m=12000$), $E = E_1, \dots, E_n$ a fotonenergián végig futó index ($n=37$) és ε_{MC} a szimulációval számolt teljesenergia-csúcs hatások. A D távolságot a (6.7) képlet adja meg. A finom rácson keresés azon konfigurációja lesz leginkább a valóságnak hű, amelyre D értéke minimális.

$$RMSD_{\text{norm}}^i = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} (\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E))^2} / \sum_{i=1}^m \left(\sqrt{\frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} (\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E))^2} \right) \quad (6.4)$$

$$MAE_{\text{norm}}^i = \frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} |\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E)| / \sum_{i=1}^m \left(\frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} |\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E)| \right) \quad (6.5)$$

$$MAPE_{\text{norm}}^i = 100 \frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} \left| \frac{\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E)}{\varepsilon_{\text{mért}}^i(E)} \right| / \sum_{i=1}^m \left(100 \frac{1}{n} \sum_{E=E_1}^{E_n} \left| \frac{\varepsilon_{\text{mért}}^i(E) - \varepsilon_{\text{MC}}^i(E)}{\varepsilon_{\text{mért}}^i(E)} \right| \right) \quad (6.6)$$

$$D^i = \sqrt{(RMSD_{\text{norm}}^i)^2 + (MAE_{\text{norm}}^i)^2 + (MAPE_{\text{norm}}^i)^2} \quad (6.7)$$

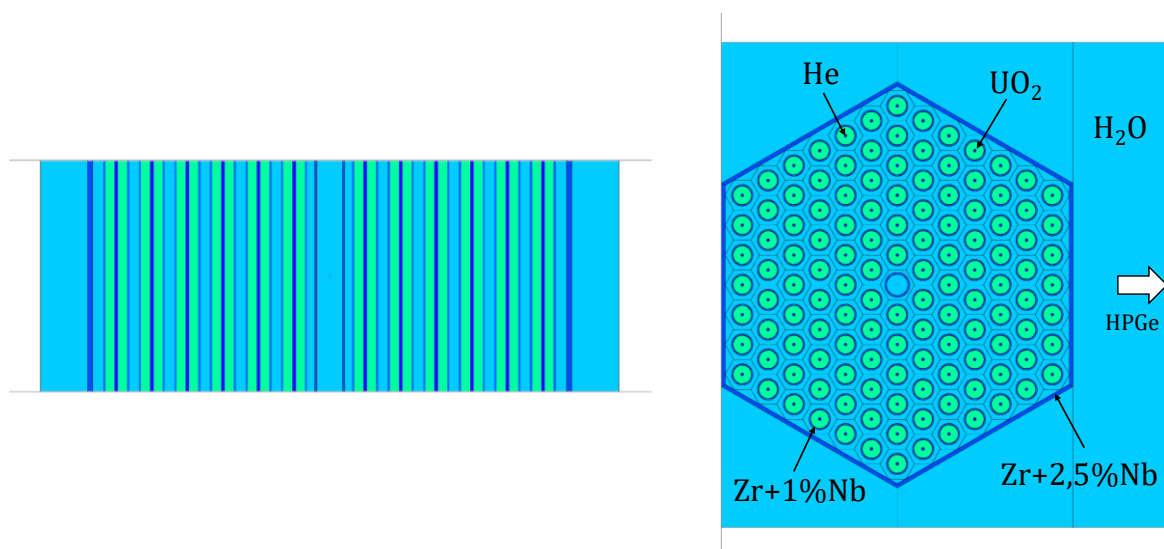


6.3. ábra: A végső, holtréteg vastagságra optimalizált detektormodell geometriája a röntgen-radiográfiai felvétel képére vetítve (jobb oldal) és a 20 cm távolságból pontforrásra számolt hatások eltérése a kísérletileg meghatározott hatások-függvényétől (bal oldal).

A legkisebb eltérését ($D = 9,7 \times 10^{-5}$) a $\{dl_1; dl_2; dl_3\} = \{0,94 \text{ mm}; 1,4 \text{ mm}; 2,5 \text{ mm}\}$ paraméterekkel rendelkező konfiguráció adta, így ez a detektormodell lett a megadott kritériumok alapján az optimális. A kiválasztott detektormodell Vised programban megjelenített metszetének és a röntgenfelvételnek az ötvözött képe a 6.3. ábra jobb oldalán, míg a 20 cm távolságban elhelyezett pontforrásra mért és szimulált hatásfokának összehasonlítása az ábra bal oldalán látható. A teljes 50-1500 keV energiatartományt vizsgálva a szimulált hatásfok mérthez képesti átlagos eltérése +1%, a százalékos eltérések szórása pedig 2,3%. Az eltérések a kísérleti validációhoz használt etalonforrások aktivitás-bizonytalanságával egyező tartományba esnek, így megállapítottam, hogy a detektormodell a rendelkezésre álló mérési pontosság mellett tovább nem finomítható.

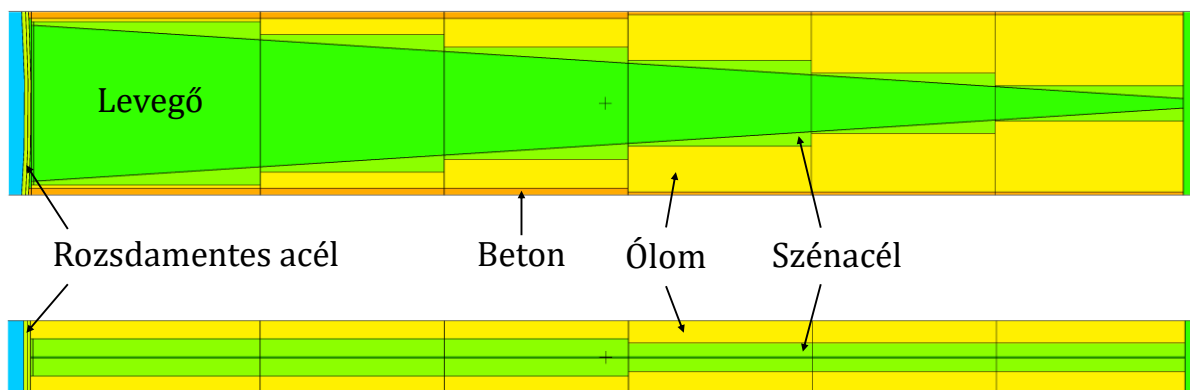
6.3.2. A kiégett kazetta és a kollimátor geometriai felépítése

A kiégett üzemanyag-köteg modellezésénél a friss üzemanyagra definiált paramétereket vettem figyelembe. Bár az üzemelés folyamán az UO_2 töltet deformálódik, repedezik és kontaktusba kerül a cirkónium burkolattal, ezek a hatások egyrészt nehezen modellezhetők, másrészt a detektálási hatásfok szempontjából lényeges változást várhatóan nem okoznak. A kiégett töltet módosult anyagi összetétele sem befolyásolja érdemben a gamma-fotonok terjedését, mivel az anyag döntő (>85 wt%) hányadát továbbra is az urán teszi ki. Ezeket a megfontolásokat figyelembe véve a kiégett kazetta Monte-Carlo modellje a 2.2.1 alfejezetben leírt friss üzemanyaggal egyezik meg. Egyetlen különbség a modell magassága, amit 8 cm-re korlátoztam a kazetta középső, axiálisan homogén tartományában. A pálcák UO_2 töltetébe a vízszintes középsíktól csak $\pm 2 \text{ mm}$ magasságon belülre definiáltam a kisorsolt részecse kiindulási pontokat, mivel a 2 mm magas fényúttal rendelkező kollimátor a más magasságokból érkező fotonokat nem engedi át. A sugárforrás pálcánkénti eloszlása a valódi kazettákban nyilvánvalóan nem homogén és izotóponként is változó. A keresett hatásfok azonban a három kazettaoldal mérés átlagspektrumára vonatkozik, így a pálcákra vonatkozóan homogén forrás-eloszlást alkalmaztam. A modellezett geometriát és az anyagi összetételt a 6.4. ábra mutatja be.



6.4. ábra: A kazetta modellezett geometriájának xz síkbeli metszete (bal oldal) és xy síkbeli metszete (jobb oldal) a Vised programban megjelenítve.

A kazetta az 1-es akna vízében található a kollimátor középvonala mentén és attól az adott mérési elrendezésnél használt távolságban (a kazettafaltól az aknafalig 23,5-53,5 cm). Az akna henger alakú acélfala 3,315 m belső átmérőjű. A rozsdamentes acélfal vastagsága 4 mm, ez egy 8 mm vastag szénacél falra van erősítve, ami mögött további árnyékoló réteg nélkül a kollimátor fényútjának belépő ablaka található. A kollimátor modellben felépített szerkezete megegyezik a 2.2.2 alfejezetben részletezett konstrukcióval, a modell metszeti képe a 6.5. ábrán látható. A HPGe detektor a kollimátor kilépő ablakának falától 5 cm-re van elhelyezve úgy, hogy a germánium kristály szimmetriatengelye egybe esik a fényút középvonalával.



6.5. ábra: A kollimátor modellezett geometriájának xy síkbeli metszete (fent) és yz síkbeli metszete (lent) a Vised programban megjelenítve.

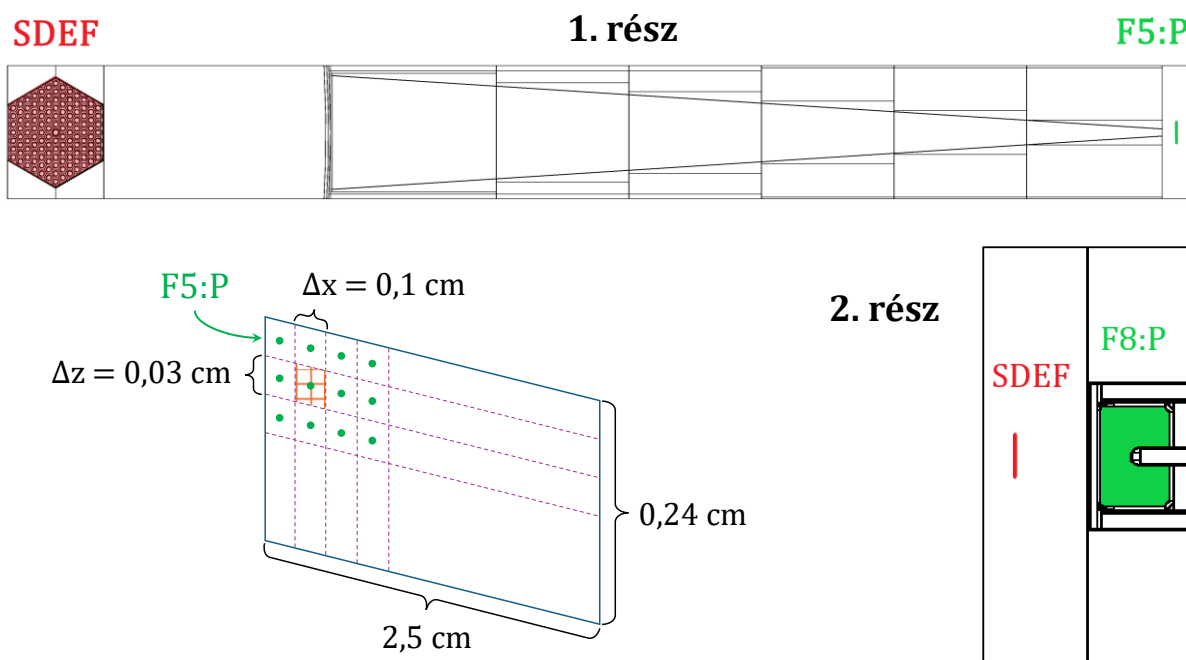
6.3.3. A szimulációs idő csökkentésére alkalmazott eljárások

A felépített szimulációs modellel végzett előzetes vizsgálatok azt mutatták, hogy a detektálási hatások legjobb esetben is 10^{-9} -es nagyságrendbe esik. Az extrém alacsony hatások – amit a vastag vízréteg és a kollimátor szűk nyílása együttesen okoz – nem váratlan eredmény, hiszen a kiégett fűtőelemek rendkívül nagy aktivitása miatt a mérés pontosan ilyen körülmények között valószínűsíthető meg. A Monte-Carlo szimuláció szempontjából azonban egy ilyen számítási probléma megoldása nagy kihívást jelent. Elfogadható ($\sim 1\%$) statisztikus hiba eléréséhez analóg szimulációt végezve futásonként nagyjából 10^{12} - 10^{13} darab induló részecskére lenne szükség, ami a hatásokkalibrációs feladat elvégzését minimum hónapos időskálára nyújtja.

A futási idő csökkentésére különféle, az MCNP6.2 kódban implementált szórás-csökkentési módszer alkalmazását teszteltem. Az induló részecskék irányának preferenciális mintavételezése a kollimátor felé mutató vektorhoz képesti irányszög exponenciális eloszlású torzításával javulást eredményezett a futási időben, de nagyságrendi csökkenést nem okozott. A *weight window* generátorral (WWG) gyártott ablakozás és a *tally* térfogat körüli determinisztikus transzport (DXTRAN) gömbök alkalmazása ugyan jelentősen meggyorsította a számolást, de mindkét módszer (külön-külön és együtt is) Monte-Carlo szempontból érvénytelen eredményhez vezetett. A két módszer a *tally* szempontjából értékes események számát növeli meg és ezzel egyenlő mértékben csökkenti ezeknek a részecskének a súlyát, elméletben torzítatlan eredményt nyújtva. Ennek ellenére a futások során megjelentek

kis számú, de az eredményt jelentősen befolyásoló nagy súlyú hozzájárulások, amik miatt a *tally* súly szerinti valószínűségi sűrűségfüggvényének meredeksége túl alacsony (< 3) lett, tehát a szimuláció nem teljesítette a kódba beépített egyik fontos statisztikai próbát. A probléma eredete egyelőre tisztázatlan, a kiküszöbölésére tett kísérleteim nem jártak sikerrel.

A szimulációhoz szükséges idő csökkentésének alternatív megoldása, ami végül sikerrel zárult, a modell kettévágása és egymás utáni csatolt futtatása volt. Az alapötlet az, hogy a modellezett tér nagy részében a szórási folyamatok elhanyagolhatók, hiszen a végeredményhez hozzájárulást csak a teljes energiával (szórás nélkül) detektált fotonok adnak. Ellenben a HPGe detektorban lejátszódó szórási és kiszökési folyamatokat figyelembe kellett vennem, mert a valóságban nem minden detektorba bejutó foton ad jelet a teljesenergia-csúcsba. A probléma első részében tehát a fotonokat át kell juttatni a vízen és a kollimátoron, a második részben pedig csak a detektorba jutási és a detektálási folyamatokat kell szimulálni. A két rész forrás és *tally* definícióit, valamint azok modellen belüli elhelyezkedését a 6.6. ábra és a 6.4. táblázat mutatják be.



6.6. ábra: A szimuláció 1. részének (fent) és 2. részének (lent, jobb oldal) geometriai határai felülnézeti metszetben ábrázolva, a források (piros) és a *tally*-k (zöld) pozícióinak jelölésével. Az F5:P *tally* mátrix szerkezete az ábra lenti részének bal oldalán látható, a 2. rész forrás mátrixa ezzel azonos pozíciót és struktúrát vet fel.

6.4. táblázat: A kettévágott szimulációs modell két részének sugárforrásra és tally-re vonatkozó információi.

Sugárforrás				Tally		
	Típus	Pozíció	Anyag	Típus	Pozíció	Anyag
1. rész	SDEF henger ($\times 126$)	Üzemanyagon belül 4 mm magas oszlop- ban, hatszögrácsban	UO ₂	F5:P ($\times 225$)	Kollimátor után 2 cm-re található xz-síkban, 25 $\times$ 9-es rácsban	levegő
2. rész	SDEF pont ($\times 225$)	Kollimátor után 2 cm-re az xz-síkban, 25 $\times$ 9-es rácsban	levegő	F8:P ($\times 1$)	HPGe kristály aktív térfogatában	Ge

A fotonokat az 1. részben a 126 pálca üzemanyag részéből indítottam el, iránytorzítás nélkül. A kód minden forrás eseménykor a kollimátor után található F5:P pontdetektor mátrix 225 darab pontjához kiszámolja az eljutási valószínűséget. A végeredmények a pontdetektorok által mért szórás nélküli fotonfluxusok (Φ_{F5}). Minden mérési elrendezésre és kezdeti fotonenergiára külön szimulációt futtattam, amik 1 millió induló részecskével számolva egyenként 15-30 óra közötti processzoridőt igényeltek.

A 2. részben a fotonok ugyanazokból a pontokból indítottam el, ahol ez 1. rész pontdetektorai voltak. A kezdeti energiájuk továbbra is a hasadási termékek által kibocsátott gamma-energiákkal egyezett meg, hiszen az 1. részben kizárólag a szóródás nélküli hozzájárulásokat számítottam ki. A 225 darab forrás-pont közötti sorsolási valószínűségek az 1. részben kiszámolt Φ_{F5} értékekkel egyeztek meg. A fotonok irányát tekintve nem volt csatolás az 1. és 2. részek között, helyette a 2. részben a kezdeti irányvektor szűk szögtartományon belüli sorsolását implementáltam. Elemi geometriai úton kiszámítható, hogy a kollimátor függőleges síkban a vízszintestől mindössze $\pm 0,1^\circ$ -kal eltérő irányban haladó fotonokat enged még át, vízszintes síkban pedig a középvonalától $\pm 2,5\text{--}3^\circ$ -kal eltérő szögtartományban érkező fotonok jutnak keresztül rajta, a kazetta távolságától függően. Emiatt a z-irányú komponens fixen vízszintesnek állítottam be, a vízszintes síkban pedig a nyílásszög 0° és $\pm\theta_{\max}$ szög között exponenciális eloszlással lett mintavételezve, ahol $\theta_{\max}$ a kazetta távolságtól függő maximális átjutási iránysszög. Az F8.P tally-vel a germánium kristály aktív térfogatában mértem a fotonok által a teljes energialeadások számát, ezt leosztva a kiinduló részecskék számával adódik a 2. rész eredménye (ϵ_{F8}). Az induló részecskék száma 10 millió volt, egy szimuláció mindössze pár perc processzoridőt vett igénybe.

A Monte-Carlo szimulációval számított teljesenergia-csúcs hatásfok (ϵ_{MC}) a kétrészben végzett futtatásból a (6.8) egylet alapján áll elő.

$$\epsilon_{MC}(E_\gamma) = \epsilon_{F8}(E_\gamma) \sum_{i=1}^{225} \Phi_{F5,i}(E_\gamma) \Delta x \Delta z \quad (6.8)$$

Az egységnyi aktivitásra vonatkozó $\Phi_{F5,i}$ fotonfluxust megszorozva a pontdetektor körüli $\Delta x \Delta z = 3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ felületegységgel megadja az i -edik pontdetektor effektív hatásfokát. Az 1. rész

F5:P *tally*-k hatásfokainak összegét megszorozva a 2. rész ε_{F8} hatásfokával megkapható a keresett ε_{MC} hatásfok.

6.3.4. A detektor pozicionálásából származó hiba

A mérőrendszer hatásfokát nagymértékben befolyásolja a gamma-spektrométer egzakt elhelyezkedése. Itt elsősorban a kollimátor hossz tengelyére merőleges síkban történő elmozdulások a hangsúlyosak, mivel a szűk nyalábnak köszönhetően a detektor és a kollimátor közötti távolság kis változása elhanyagolhatóak. Lényeges felismerés, hogy a koaxiális kristály közepén található lyuk miatt néhány mm-es pozicionálási hibáknál is jelentős hatásfok-változás várható. Ennél fogva a tökéletesen középbe helyezett detektor hatásfoka kis elmozdulások hatására biztosan növekedni fog. Az okozott hiba nagyságának vizsgálatához elegendő volt a 2. rész modelljével szimulációkat futtatnom, melyekben a detektor egészét bizonyos mértékben oldal irányban elmozdítottam.

A detektor távolság és irány szerinti pozicionálását minden mérési kampánynál lézeres mérőrendszer használata segítette, ezért a középponttól mért átlagos eltérés általam becsült értéke 2 mm x és z irányban is. Az x és z változókat, mint a középponti pozíciótól való eltérés két független normál eloszlású valószínűségi változóját használva az (x,z) pozicionálási bizonytalanság eloszlásfüggvénye a (6.9) egyenlettel megadott kétdimenziós Gauss-függvény, ahol a $\mu_x = \mu_z = 0$ mm a várható értékeket és $\sigma_x = \sigma_z = 2$ mm a szórásokat jelölik.

$$\mathbb{P}[x, z] = \frac{1}{2\pi\sigma_x\sigma_z} e^{-\left(\frac{(x-\mu_x)^2}{2\sigma_x^2} + \frac{(z-\mu_z)^2}{2\sigma_z^2}\right)} \quad (6.9)$$

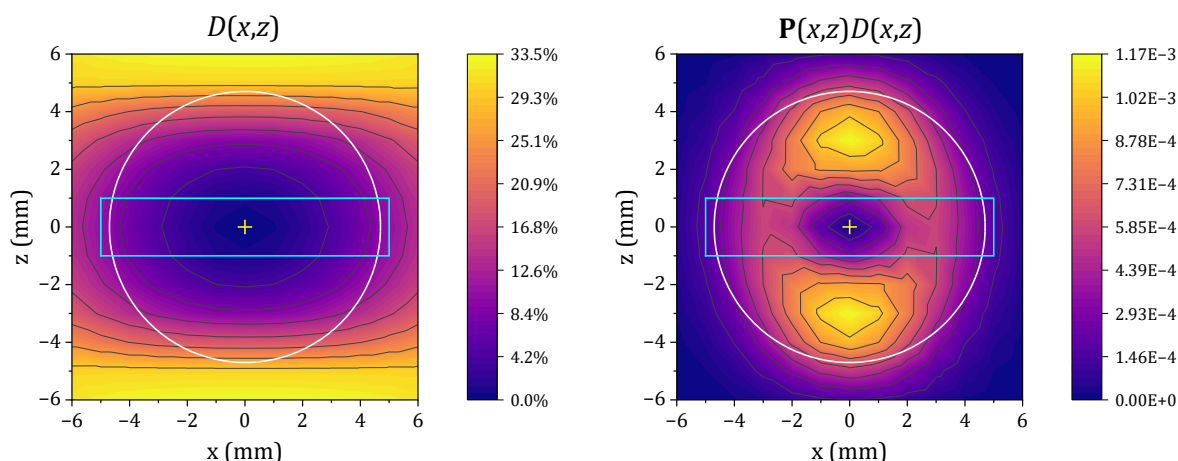
A pozicionálási bizonytalanság vizsgálatának (x,z) pontjai egy x és z koordinátában egyaránt 1 mm osztású és -6 mm-től +6 mm-ig terjedő rácsban helyeztem el, ami összesen 169 darab pontot jelentett. A mérési összeállítás xy - és yz -síkbeli tükrözési szimmetriáját kihasználva azonban csak a 0-6 mm közötti, 49 darab (x,z) eltolással transzformált szimulációs számításra volt szükség. A fotonenergiák száma összesen 32 volt, ezek a 475-1385 keV tartományon belülre estek és az itt található főbb hasadási termék magok gamma-emisszióinak energiáival egyeztek meg.

A szimulációs futtatások eredményei a $D(x,z)$ -vel jelölt energiára átlagolt, a középponti helyzethez képesti hatásfok-különbségek. Az átlagolás elvégzésének alapját a 32 energiára adott (x,z) eltolásnál végzett számítások közötti 10%-on belüli különbség adta. A hatásfokban fellépő hiba nagyságát ($\mathbb{E}[D(x,z)]$), valamint ennek szórásnégyzetét ($\text{Var}[D(x,z)]$) rendre a (6.10) és (6.11) képletek adják meg.

$$\mathbb{E}[D(x, z)] = \sum_{i=1}^{169} D_i(x, z) \mathbb{P}_i[x, z] / \sum_{i=1}^{169} \mathbb{P}_i[x, z] \quad (6.10)$$

$$\text{Var}[D(x, z)] = \sum_{i=1}^{169} \mathbb{P}_i[x, z] (D_i(x, z) - \mathbb{E}[D(x, z)])^2 / \sum_{i=1}^{169} \mathbb{P}_i[x, z] \quad (6.11)$$

Az eredményként kiszámított $D(x,z)$ és $P(x,z)D(x,z)$ értékek síkbeli eloszlását a 6.7. ábra két grafikonjának színskálája szemlélteti. A kollimátor nyílásának elnyújtott alakja miatt a mérőrendszer hatásfoka sokkal érzékenyebb a detektor függőleges irányú elmozdulására. Látható, hogy 5 mm-nél nagyobb függőleges pozícionálási hiba esetén a hatásfok $>30\%$ -kal megnő, így az ilyen nagyságú függőleges eltéréseket mindenképpen kerülni kell. 2 mm-es pozícionálási bizonytalanság mellett a (6.10) és (6.11) egyenletekkel számított hatásfok-hiba várható százalékos nagysága $+5,7 \pm 6,1\%$ lett. Ez a hibatarag az előzetes várakozásoknak megfelelően valóban nem elhanyagolható nagyságú, az aktivitásszámítás hibájához jelentős mértékben hozzájárul.



6.7. ábra: A szimulációs technikával számított $D(x,z)$ hatásfok-eltérések (bal oldal) és a $P(x,z)D(x,z)$ szorzat (jobb oldal) eloszlása az xz -síkbán. A grafikonokon az értékek nagyságát a tőlük jobbra megjelenített színskála mutatja. A berajzolt sárga kereszt a kollimátor y -irányú középvonalát, a kék téglalap a kollimátor fényútjának kilépő ablakát, a fehér kör pedig a germánium kristály lyukának méretét szemlélteti.

6.4. A szimulációs modell validációja

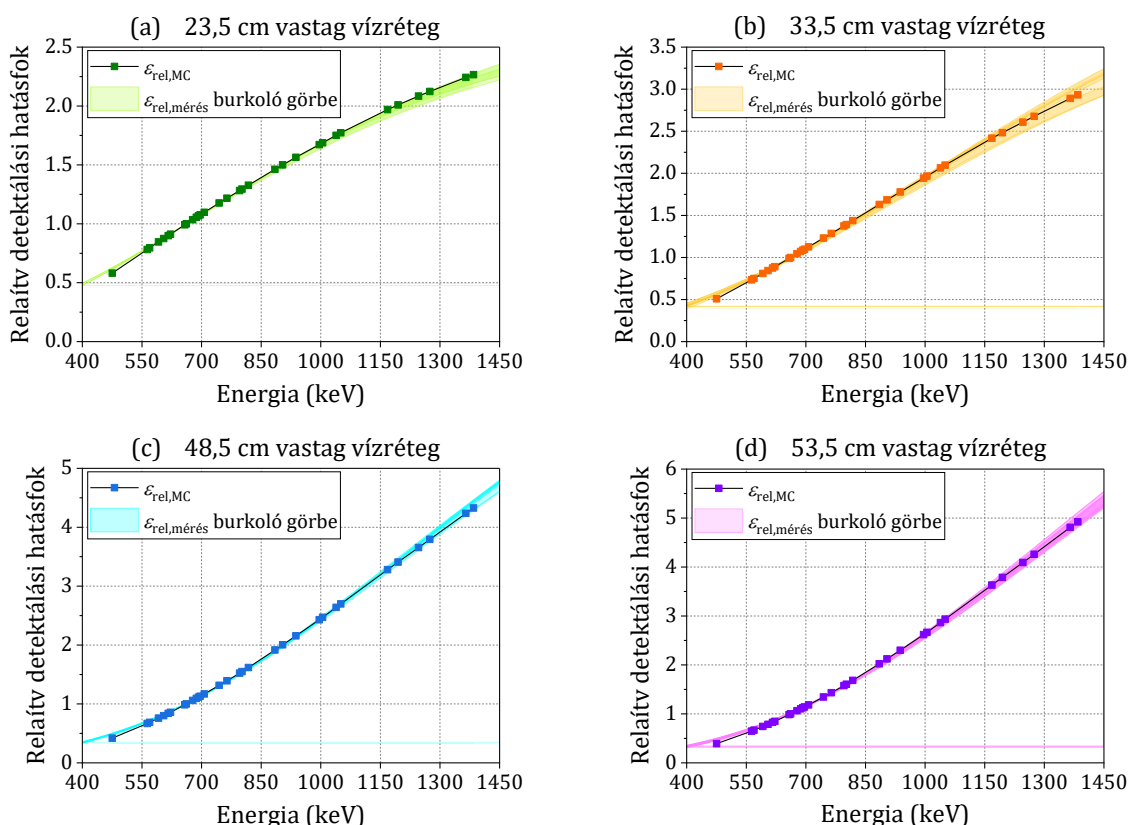
A Monte-Carlo modell közvetett kísérleti validációjára két kézenfekvő stratégia adódik: (1) a mért spektrumokból származtatott és a szimulált relatív hatásfok-függvények menetének összehasonlítása, valamint (2) a kiszámolt hasadási termék mennyiségi koncentrációk összevetése máshonnan származó VVER-440 kiégett fűtőelem mérések eredményeivel. Az (1) stratégiánál a korábbiakban már az aktivitáсарányok számításához is alkalmazott relatív hatásfok-görbe illesztését vettem alapul. A (2) stratégiánál célzottan a ^{137}Cs koncentrációk számítására és összehasonlítására törekedtem, ahol a referencia értékek az SFCOMPO adatbázisban megtalálható VVER-440 típusú kiégett fűtőelemek méréseiből származnak [27]. Hasonló közvetett modellszámítás ellenőrzést ennek az adatbázisnak az alapján a közelmúltban már végeztek kutatási célból [69].

6.4.1. A relatív hatásfok-függvények összehasonlítása

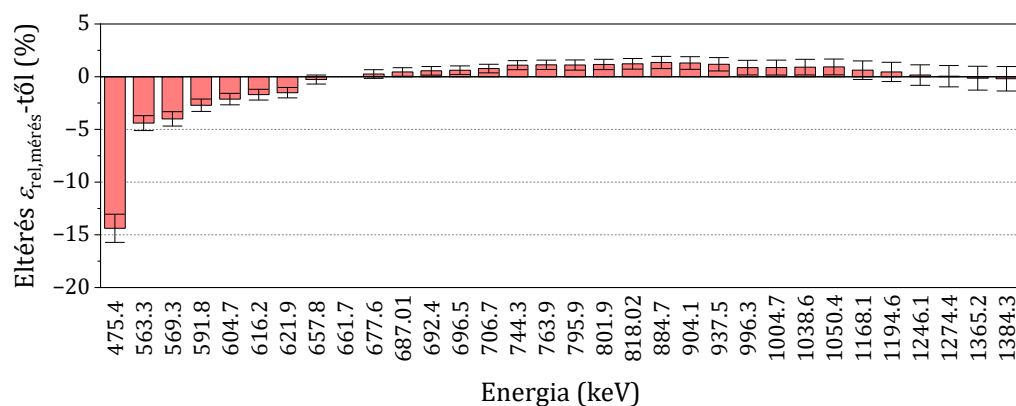
A Paksi Atomerőmű fűtőelemein elvégzett mérések esetén több kazetta távolság, azaz több árnyékoló vízréteg melletti spektrum felvétel is történt. Ezek a vastagságok számszerűen

23,5 cm, 33,5 cm, 48,5 cm és 53,5 cm voltak. Mindegyik távolságnál több kazetta is mérődött, amikre meghatároztam az átlagspektrumok átlagos relatív hatásfok-görbéjét. Ugyanezekkel a vízréteg vastagságokkal futtatott szimulációk hatásfok eredményeiből megfelelő normálással előállítottam a szimulált relatív hatásfokokat. Az itt választott normálás ^{137}Cs 661,7 keV energiáján érvényes relatív hatásfok érték 1-re való rögzítése volt. Az indított gamma-energiák továbbra is a 475-1385 keV tartományon belüli 32 darab kísérletileg kimutatható nuklidok emisszióinak energiái voltak.

Ez a módszer elsősorban arra alkalmas, hogy a szimulációs modell anyagi és az ezekhez köthető geometriai paramétereinek helyességét ellenőrizze, hiszen a fotonelnyelés erőssége leginkább az anyagösszetételi és az anyagvastagsági viszonyoktól függ. A 6.8. ábra a négy geometriai elrendezés relatív hatásfokainak vizuális összehasonlítása látható az energia függvényében. Az egyezés a 6.8. ábra grafikonjai alapján ránézésre nagyon jó. Számszerűen megvizsgálva az mérésekből származó átlagos relatív hatásfokok és a szimulált értékek energiafüggő eltérését (6.9. ábra) kiderült, hogy a legkisebb energián nagy különbség tapasztalható, a többi energián viszont az eltérés $\pm 4\%$ -on belül maradt. Az összes energiára nézve az átlagolt eltérés $-0,5\% \pm 2,9\%$ volt, ami összességében igen pontos egyezést jelent.



6.8. ábra: A Monte-Carlo módszerrel szimulált ($\epsilon_{\text{rel,MC}}$) és a mért spektrumból meghatározott ($\epsilon_{\text{rel,mérés}}$) relatív hatásfok-függvények. Az $\epsilon_{\text{rel,mérés}}$ függvények esetében az adott vízréteg vastagságnál végzett egyedi mérések közös burkológörbéi láthatók. A mérési adatsorok burkoló görbéi (a) 4, (b) 8, (c) 8 és (d) 20 egyedi hatásfok-görbéből épülnek fel.



6.9. ábra: A szimulált relatív hatásfokok százalékos eltérése a mérésből származó értékektől.

6.4.2. A ^{137}Cs koncentrációk összehasonlítása

Ennek a módszernek az alapgondolata az, hogy egy hasonló típusú és előéletű kazetta mért szegmensének ^{137}Cs koncentrációja ($C(^{137}\text{Cs})$) elméletben megegyezik a Paksi Atomerőmű kazettáiból mérési úton meghatározható értékekkel, amennyiben a kiégések azonosak. Ez a gondolat tovább vihető a ^{137}Cs mag lineáris kiégés-függésének ismeretében és több mérési adatpont rendelkezésre állása esetén: a referencia mérésekből felépíthető a $C(^{137}\text{Cs})$ -BU kalibrációs görbe. A modell pontosságát azzal ellenőrzöm, hogy a mért kazettákra elvégzett szimulációk alapján a számított ^{137}Cs koncentrációk milyen távol esnek a referencia kalibrációs görbétől.

Az SFCOMPO-2.0 adatbázisban elérhetők VVER-440 reaktorokban használt fűtőelemek izotóp-koncentráció értékei, ezek közül azonban a ^{137}Cs magra összesen csak két kazetta mintáiban található információ. A két használható kazetta a Kola-3 reaktorban üzemelt 144-46879 azonosítójú és a Novovoronezh-4 reaktorban üzemelt 13626135 azonosítójú kiégett fűtőelemek voltak (6.5. táblázat). Mindkettő esetében a ^{137}Cs izotóp koncentrációját tömegspektrometriával mérték meg. A koncentráció adatokat mg/gUi mértékegységben, tehát a kezdeti urántöltet tömegére vetítve megadott tömegben közölték. A hűlési időket ismerve a ^{137}Cs koncentrációk értékeit a (6.12) egyenlettel visszaszámoltam a kazetták utolsó üzemi ciklusának végre.

$$C(^{137}\text{Cs}, t = 0) = C(^{137}\text{Cs}, t = CT) 2^{CT/T_{1/2}(^{137}\text{Cs})} \quad (6.12)$$

6.5. táblázat: Az SFCOMPO-2.0 adatbázisban található, referenciaként használt kiégett fűtőelemek fontosabb paraméterei. A kiégés oszlop az összes minta kiégéseinek szélsőértékeit adja meg.

Reaktor	Kazetta azonosító	Kezd. dús. (wt% ^{235}U)	Ciklusok száma	Hűlési idő (év)	Minták száma	Kiégés (GWnap/tUi)
Kola-3	144-46879	4,37	7	8,2	12	31,8 – 62,7
Novovoronezh-4	13626135	3,592	4	12,7	8	22,9 – 46,3

A szimulációval kiszámított hastásfok-függvényekből a (6.13) egyenlettel meghatározhatók a ^{137}Cs aktivitások, amiket szintén visszaszámoltam a kazetták kirakásának idejére. Az aktivitásból a kezdeti urántömegre vonatkoztatott koncentrációt a (6.14) egyenlet alapján számítottam ki, ahol $m_{\text{Ui}} = 204,4 \pm 3$ g a modellezett 4 mm magasságú töltet kezdeti urántömege, $m_a(^{137}\text{Cs}) = 136,9$ u a ^{137}Cs atomtömege és N_A az Avogadro-szám.

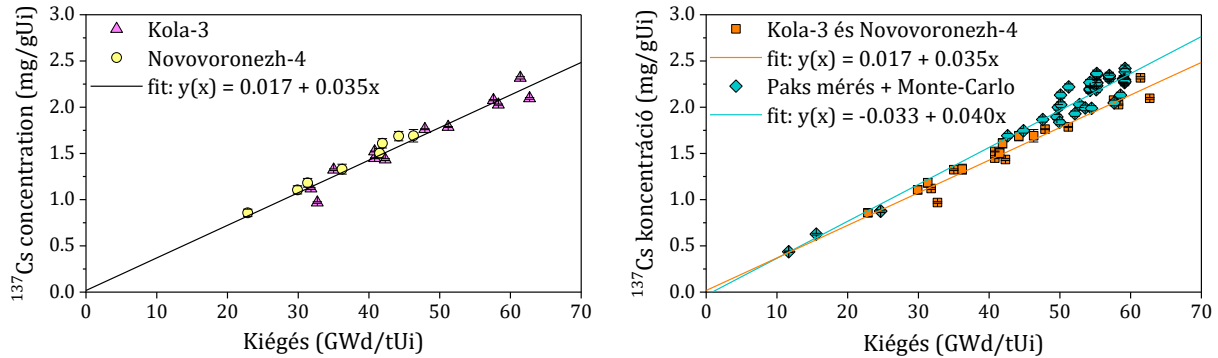
$$A(^{137}\text{Cs}, t = 0) = \frac{N(661,7\text{keV})}{t_m \varepsilon_{\text{MC}}(661,7\text{keV}) p_\gamma(661,7\text{keV})} 2^{CT/T_{1/2}(^{137}\text{Cs})} \quad (6.13)$$

$$C(^{137}\text{Cs}, t = 0) = \frac{A(^{137}\text{Cs}, t = 0)}{m_{\text{Ui}}} \frac{\ln(2)}{T_{1/2}(^{137}\text{Cs})} \frac{m_a(^{137}\text{Cs})}{N_A} \quad (6.14)$$

A két referencia kazetta mintáinak ^{137}Cs koncentrációi a kiégéseik függvényében és az adatokra illesztett egyenessel együtt a 6.10. ábra mindkét grafikonján láthatók. Az ábra bal oldalán külön színnel és szimbólummal, a jobb oldalán pedig egységesen megjelenítve szereplenek a referencia pontok. A Paksi Atomerőmű kazettáinak mérésből és Monte-Carlo szimulációból kiszámított ^{137}Cs koncentrációk a 6.10. ábra jobb oldali grafikonján láthatók, ahol a kiégések a 3. fejezetben ismertetett módon a kazetta mérési magasságára jellemző értékek. A jobb oldali grafikon két adatsorára elvégzett lineáris függvény-illesztések nagyfokú egyezést mutatnak, a két egyenes egyenletét a (6.15) és (6.16) képletek adják meg.

$$y_{\text{SF COMPO}}(x) = 0,01745 + 0,03524x \quad (6.15)$$

$$y_{\text{Paks MC}}(x) = -0,03349 + 0,03996x \quad (6.16)$$



6.10. ábra: A ^{137}Cs koncentrációk ábrázolása a mintára vagy a kazetta mérési magassági pontjára jellemző kiégés függvényében. A bal oldali grafikonon a referencia kazetták mintáinak pontjai találhatók egymástól megkülönböztetve, míg a jobb oldalon a referencia és a mért kazetták összehasonlítása látható.

A szimulációból származó és a kalibrációs illesztett egyenesek közötti különbség a kiégési szinttől függ, kis értékeknél negatív, nagy kiégésekre pedig pozitív eltérés tapasztalható. A 10-60 GWnap/tUi tartományban átlagosan $+7\% \pm 3,3\%$ a ^{137}Cs koncentráció eltérése, ami részben modellezési hibából származhat, mert a detektor pozicionálási bizonytalanság épp ellenkező előjelű eltérést eredményezne. Fontos kiemelni, hogy még a kalibrációt adó pontok

mindössze két kazettából származnak, addig az összes mérésből és szimulációból kapott adatpont egyedi kazettát reprezentál. Emiatt, valamint a mérések kivitelezésénél esetlegesen fellépő pontatlan pozicionálások következtében a 6.10. ábra jobb oldali grafikonján a paksi kazetta mérések adatai a kalibráló kazettákhoz képest nagyobb szórást mutatnak.

6.4.3. A szimuláció várható pontossága

A hatásfok-függvény esetén összesen három, az aktivitásszámításmál pedig egy hibatagot vizsgáltam meg. Az eredő pontosság az aktivitás meghatározására vonatkozik, amiben természetesen a hatásfok számításának hibája is tényező. A hibatagokat a 6.6. táblázat foglalja össze. Az E_1 , E_2 és E_3 mennyiségek az ε_{MC} hatásfok szorzótényezői, mindhárom az alkalmazott fotonenergiákra átlagolt érték. Velük szemben az E_4 hibatag közvetlenül az A_{MC} aktivitás szorzófaktorára és szigorú értelemben kizárólag a ^{137}Cs izotóp mennyiségének számításához alkalmazandó. Az Monte-Carlo szimulációval származtatott ^{137}Cs aktivitás korrigált értékét a leírtak alapján a (6.17) egyenlet adja meg, a torzítás mértékét és a végeredmény bizonytalanságát pedig rendre a (6.18) és (6.19) formula alapján becsültem meg. A számszerű eredmények azt mutatják, hogy a szimuláció segítségével számított ^{137}Cs aktivitás torzítása +5,1% és a standard deviációja $\pm 7,7\%$. A hibabecslés során a hatásfok Monte-Carlo szimulációs statisztikus hibáját elhanyagoltam, mivel az az összes fotonenergián a 0,1%-nál alacsonyabb tartományba esett. Szintén figyelmen kívül vettem a mért csúcsterület bizonytalanságát, hiszen az az adott mérés körülményeitől függ és nem a Monte-Carlo modellre jellemző hibájárulék.

6.6. táblázat: A Monte-Carlo szimuláción alapuló aktivitásszámítás pontosságának becsléséhez megvizsgált hibajárulékok.

	E_1	E_2	E_3	E_4
Leírás	Germánium kristály holtréteg optimalizálás eltérése	Detektor pozicionálásából származó hiba	Relatív hatásfok- függvény eltérése kísérletileg illesztett függvényektől	^{137}Cs koncentrációk eltérése a referencia kazetták értékeitől
Érték	$1,01 \pm 0,023$	$1,057 \pm 0,061$	$0,955 \pm 0,029$	$1,071 \pm 0,053$

$$A_{MC,korr}(^{137}\text{Cs}) = \frac{N(661,7\text{keV})}{t_m [\varepsilon_{MC}(661,7\text{keV})E_1E_2E_3] p_Y(661,7\text{keV})} E_4 \quad (6.17)$$

$$A_{MC,bias}(^{137}\text{Cs}) = \frac{E_4}{E_1E_2E_3} = 1,051 \quad (6.18)$$

$$\Delta A_{MC,korr}(^{137}\text{Cs}) = \sqrt{\sum_i \left(\frac{\partial A_{MC,bias}(^{137}\text{Cs})}{\partial E_i} \right)^2} = 0,077 \quad (6.19)$$

6.5. Eredmények és diszkusszió

Mindkét közvetett modellvalidációs stratégiával minimális különbséget mutattam ki a várt és a szimuláció eredményei között. A relatív hatásfok-függvény energia szerinti menetének jó egyezése a kísérleti kalibrációs görbékkel a modell anyagi paramétereinek valósághűségét indikálja. Emellett a geometria felépítésének helyességét az SFCOMPO-2.0 adatbázisból származó kazetták mérési adataival ellenőrizve a validáció sikeresnek bizonyult. Összességében tehát elmondható, hogy a Monte-Carlo részecsketranszport módszer alkalmazásával megnyílt a lehetőség a gamma-spektrometriai mérésből történő hasadási termék aktivitás-meghatározásra. A fennmaradó kérdés az, hogy pontosan mekkora az ilyen módon elvégzett hatásfok-kalibráció torzítása és bizonytalansága, amely kérdésnek a megválaszolására csakis egy tényleges kísérleti kalibráció lehet alkalmas.

A becsült $+5,1\% \pm 7,7\%$ -os aktivitásszámítási pontosság biztató eredmény, de az alkalmazott metódus semmiképpen sem minősülhet konzervatív becslének. Kétszeresre kiterjesztett bizonytalansági intervallumot használva a számolt érték a valós értékkel a $[-10\%; +20\%]$ tartományon belül megegyezik. A hibát befolyásoló tagok néhány elemét a fentiekben ismerttettem, azonban ezeken kívül más, egyelőre ismeretlen befolyással bíró források is vannak. Az egyik ilyen tag a kiégett kazetta radionuklid összetételének modellezési bizonytalansága, amelyre az egyszerűsítés a pálcák közötti és azokon belüli homogén elosztás volt. Egy másik, nagy jelentőségű hibatag a kollimátor szerkezetének hiányos ismeretéből származik. A modellt a kollimátor építési tervrajzából kiindulva alkottam meg, viszont a rajzok több helyen nem elég részletesek vagy egyértelműek (lásd. Függelék A). Továbbá a négy reaktorbloknál ténylegesen beépített szerkezetek a méretek ellenőrzésének szempontjából már nem hozzáférhetőek, így az esetleges tervrajzról való eltérések nem, vagy csak korlátozottan tárhatók fel. A kollimátor egyetlen hozzáférhető része a fényút végén található kilépő nyílás, aminek a mérete a helyszíni ellenőrzésem (mérőszalag és résvastagság mérő) alapján 10×2 mm. A fényút belsőbb részeinek szerkezete azonban méréssel nem vizsgálható, a 2 mm-es magasság csak a feltételezéseim szerint állandó, azonban ez nem ellenőrizhető. A modellezési hibából adódó pontosságot illető hiteles információ egy pontosan ismert összetételű kalibráló objektum (kazetta vagy *dummy* kazetta) mérésével válna elérhetővé [60].

A szimulációs számításaim legfontosabb eredményei a különböző mérési elrendezésekre jellemző, 661,7 keV energián érvényes hatásfok értékek. Ezek ismeretében lokális ^{137}Cs aktivitások határozhatók meg, az axiális ^{137}Cs profil mérésével pedig a fűtőelem teljes térfogatában jelen lévő aktivitás becslése válik lehetővé. A többi detektált hasadási termék (^{134}Cs , ^{154}Eu , ^{106}Ru stb.) aktivitása a korábbiakban részletezett aktivitásarány számítások alapján már egyszerűen előállítható. A hasadási termék izotópleltár ezen tagjainak megméréssel lehetővé válik a korlátozott körű dózisbecslés és a dózisteljesítmény időbeli vizsgálata, azonban ki kell emelni, hogy a konzervatív becsléshez elengedhetetlen a többi, a bemutatott mérési módszerrel nem kimutatható radionuklid dóziszárulékának legalább közelítő szintű ismerete. A roncsolásmentes aktivitásszámítás elért pontossága nyilvánvalóan nem veszi

fel a versenyt a roncsolásos analitikai technikák által kínált szinttel, viszont a megvalósíthatóságuk terén messze a roncsolásmentes módszer az előnyösebb.

Végezetül fontos tanulság, hogy az itt bemutatott modellezési módszer működőképes alternatívát kínál az in-situ kiégett fűtőelem mérések hatásfok-kalibrációjára. A detektor radiográfiás átvilágítása, a germánium holtréteg optimalizáció és a modellezett tér két részre vágása mind hozzájárultak az eredményeimhez. Ilyen mérési és számítási technika hasonló módon alkalmazható lehet más reaktorok (erőművi, kutató) kiégett fűtőelemeinek karakterizálásához.

6.6. [T4] Tézispont: Az aktivitásmérés megvalósítása Monte-Carlo szimulációval

Új módszert fejlesztettem ki a kiégett fűtőelemekben található gamma-sugárzó hasadási termékek aktivitásának számítására. Monte-Carlo részecsketranszport szimulációval megvalósítottam a kiégett fűtőelemek gamma-spektrometriai mérésének abszolút hatásfok-kalibrációját. Az MCNP6.2 kódhoz megalkotott szimulációs modellt pontosítottam a detektor röntgenradiográfiai képalkotásával és a germánium kristály holtréteg vastagságának precíz laboratóriumi méréseken alapuló meghatározásával. A modell validációját közvetett úton hajtottam végre, referenciaként használva a kísérleti úton kiszámított relatív hatásfokokat, valamint az SFCOMPO adatbázisban elérhető VVER-440 típusú fűtőelemek mért ^{137}Cs koncentrációit. A modellel kiszámított ^{137}Cs aktivitás a valós értékkel várhatóan a -10% és $+20\%$ közötti intervallumon belül megegyezik.

A tézisponthoz kapcsolódó publikációk listája:

- [p3] P. Kirchknopf, Z. Kató, Cs. K. Szarvas, P. Völgyesi és I. Szalóki, „Monte Carlo based absolute efficiency calibration of power reactor spent fuel NDA measurements”, *Annals of Nuclear Energy*, 211, p. 110953, 2025, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110953>.

7. ÖSSZEFOGLALÁS

A több mint egy évtized alatt összegyűjtött kísérleti adathalmaz felhasználásával lehetőséget teremtettem a VVER-440 típusú kiégett fűtőelemek nukleáris biztosítéki és törvényszéki analitikai célú karakterizálására. A bemutatott matematikai módszerek alkalmazásával nagyfelbontású gamma-spektrometriai mérés elvégzése után meghatároztam – a biztosítéki ellenőrzések pontossági elvárásán belül – a vizsgált kiégett üzemanyagok összkiegészét, méréskori hűlési idejét, a kezdeti ^{235}U dúsítását és a fennmaradó ^{239}Pu koncentrációját. Ezeken túl meghatározhatóvá tettem a fűtőelem legvalószínűbb, kampányokra lebontott üzemelési előéleti struktúrája. Nukleáris törvényszéki analitikai szempontól is előrelépést értem el, az eredményeim alapján a fűtőelem paraméterei közel ugyanolyan pontosan meghatározhatók a hűlési idő ismerete nélkül, mint ezen információ birtokában. A gamma-sugárzó hasadási termékekre vonatkozó aktivitásszámítási módszerem az elvégzett vizsgálatok alapján ígéretesnek tűnik, azonban követlen kísérleti validáció hiányában a kiszámított értékek csak tájékoztató jellegűnek minősülnek.

Lényeges új eredményem az összetett $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarány és az üzemanyag kiégése között tapasztalt szoros kapcsolatot. A vizsgálataim megmutatták, hogy a –21 éves effektív felezési időnek köszönhetően a 9 éves hűlési időn belül a $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányal számolva a hűlési idő korrekciója nélkül is elérhető a $\pm 1,5$ GWnap/tUi-n belüli számítási pontosság (1σ). A $^{134}\text{Cs}^2/(^{106}\text{Ru}^{137}\text{Cs})$ aktivitásarányra alapozott kiégésmérési módszer elsődleges alkalmazási területét a 9 évnél rövidebb ideje pihenő fűtőelemek biztosítéki ellenőrzése adja. A kiégés számításánál legjobb pontosságot adó ANN gépi tanulási módszer átlagos teljesítménye marginálisan bizonyult csak jobbnak az egyszerűbb aktivitásarányos becslésnél ($\pm 1,1$ és $\pm 1,2$ GWnap/tUi). Ennek ellenére egy jelentős eredmény, hogy szemben a nem-lineáris regressziós módszerrel, az ANN-nel kiszámított kiégések rendhagyó előélet esetén is megbízhatónak bizonyultak.

A hűlési idő számításánál a mérési eredményeim alapján megállapítottam, hogy a $^{134}\text{Cs}/^{154}\text{Eu}$ és $^{110\text{m}}\text{Ag}/^{134}\text{Cs}$ aktivitás-aránypárokból limitált precizitású, de konzisztens hűlési idő számítást lehet végezni az alkalmazhatósági időtartományokon belül. Ennél a paraméternél az összes gépi tanulási módszerrel jelentős pontosságnövekedést értem el, ezek közül is kiemeleten jól teljesítettek az RF és a CNN algoritmuson alapuló modellek. A CNN modell egy további előnye a spektrum kiértékelés kiváltása a konvolúciós technikával való összesűritéssel, így ez a számítási módszer kiváltképp alkalmas egy automatizált rendszerben integrált mérés esetén. A gépi tanulási modellek megfelelő tanításához a jövőben szükség lesz több, 2500 napnál hosszabb hűlési idővel rendelkező kiégett üzemanyag mérésre, vagy ilyen jellegű szintetikus adatok legyártására. Összegzésként elmondható, hogy a gépi tanulási algoritmusok alkalmazása lehetőséget nyújt a kiégett fűtőelemek korának számítására, amely egy kulcsfontosságú lépés az eredet meghatározásában. Az itt ismertetett mérési és elemzési technikával felvértezve a nukleáris törvényszéki analitikai vizsgálatot végző kutatók képesek lehetnek egy ismeretlen eredetű kiégett fűtőelem darab korának azonosítására.

A gépi tanulási módszerek alkalmazásának egyik legfontosabb eredménye a velük sikeresen végrehajtott kezdeti dúsítás és ^{239}Pu koncentráció becslés. Megmutattam, hogy a kezdeti dúsítás számításánál SVR típusú algoritmust használva 0,13 wt% ^{235}U átlagos eltéréssel jellemezhető pontosság adódik, amely elegendő lehet a friss üzemanyag kazetták átlagdúsítás kategóriái közötti különbségtételhez. A neurális háló alapú modellekkel végzett számításaim eredményei pedig igazolták, hogy a ^{239}Pu koncentráció gamma-spektrometriai mérésrel közvetett úton meghatározható 1-2%-os relatív eltérés mellett. A teljes hasadóanyag mennyiség méréséhez további fejlesztés szükséges, mivel az ^{235}U és ^{238}U izotópok koncentrációinak becslése eddig nem bizonyult sikeresnek. A kutatómunkám tapasztalata alapján ezen a téren a legnagyobb potenciál a neurális hálókban van, így a jövőbeli kutatásokban érdemes lesz ezekre a modellekre összpontosítani.

Az aktivitásarányok mérésén túl Monte-Carlo szimulációs technikával megteremttem a hasadási termék izotópok aktivitásának mérési lehetőségét. A szimulációval végzett hatásfok-kalibráció, illetve az ebből számolt ^{137}Cs koncentráció becsült pontossága -10% és $+20\%$ közé esik, ami a biztosítéki ellenőrzési gyakorlat elvárásait figyelembe véve elfogadható pontosságnak minősül. A referencia adatok és a mérésből a szimulációval számított aktivitások eltérését nagyobb mértékben modellezési hiba okozhatja, aminek a forrása főként a nem teljes mértékben ismert kollimátor szerkezetből adódik. Az eredményeim azt bizonyítják, hogy a szimulációval végzett hatásfok-kalibráció egy járható út az atomerőművi kiégett fűtőelemek gamma-spektrometriai mérésénél és ez a technika egy hasonló kísérleti elrendezésre közel azonos pontosság mellett alkalmazható lesz.

A kutatásom eredményei közvetlenül alkalmazhatók a Paksi Atomerőmű Zrt. kiégett fűtőelemeinek gamma-spektrometriai méréseinél, további lehetőségekhez azonban új fejlesztésekre lesz szükség. Az Atomerőmű előnyös adottsága az 1-es akna falába beépített kollimátor, ám egy ilyen szerkezet megléte más nukleáris létesítményeknél nem feltételezhető. Egy jövőbeli műszerfejlesztés tárgyát képezheti például egy HPGe detektorból és az előtte található kompakt kollimátorból felépülő rendszer, ami vízhatlan burkolatban helyezkedik el és a kiégett fűtőelemek medencéjébe eresztve oldalirányból képes mérni a gamma-spektrumot. A felvázolt hordozható műszerrel az itt bemutatott kutatási eredmények alapján elvégezhető az üzemanyag paraméterbecslése.

A munkám egy másik – jelenleg is zajló – hasznosulása a fűtőelemszivárgások vizsgálatának területén használt korbecslési eljárás továbbfejlesztése [55] [56]. A $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ arányon alapuló korszámitás ugyan jó közelítést ad a fűtőelem reaktorban töltött ciklusainak számára, viszont az ismerttetett eredményeim megmutatták, hogy ez a mennyiség nagyon érzékeny az üzemanyag előéletére. A kiégés alapú korbecslés pontossága sokat javulhat, ha a cézium izotópokon kívül más, az adott körülmények között mérhető gamma-sugárzó izotópok kiégésfüggése is ismert lenne.

KÖSZÖNETNYILVÁNÍTÁS

Elsősorban és legfőképp köszönettel tartozom a témavezetőmnek Szalóki Imrének, aki iránymutatásával és fáradhatatlan munkájával lehetővé tette a kutatómunkám eredményes befejezését, a publikációim megjelenését és ennek a dolgozatnak a megszületését. Szintén köszönöm a konzulensemnek Pokol Gergőnek a doktori képzéssel kapcsolatos adminisztratív teendők intézését.

Köszönöm Kis Dániel Péternek, hogy elvállalta a doktori értekezésem bírálatát a házi védéshez, a hozzáfűzött megjegyzései és a feltett kérdései emelték a munkám színvonalát.

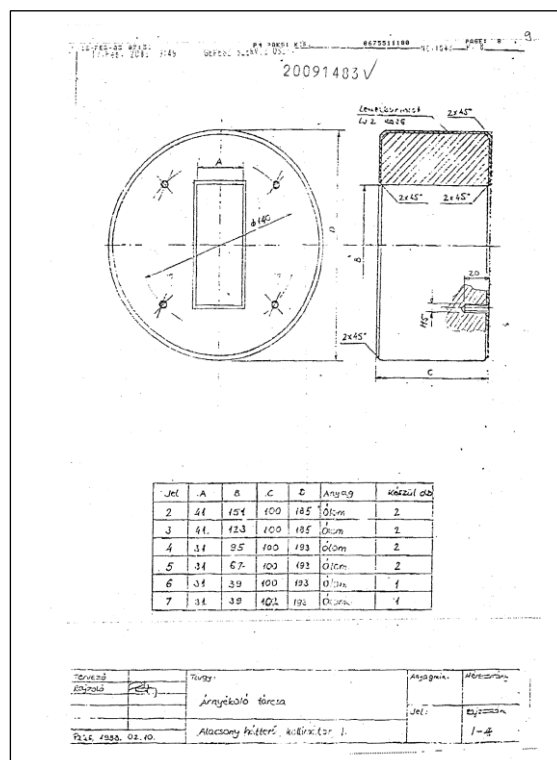
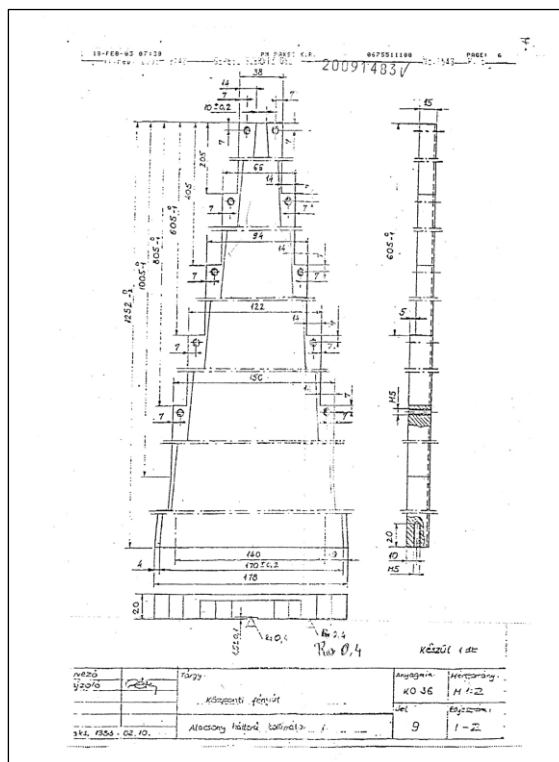
Külön köszönöm Batki Bálintnak a gépi tanulási módszerek alkalmazásában nyújtott segítségét, valamint a rendkívül izgalmas és eredményes közös munkát. Köszönöm Hegyi Györgynek, hogy megosztotta velem a Paksi Atomerőmű Zrt. fűtőelemeire végzett ^{235}U , ^{238}U és ^{239}Pu koncentrációkra vonatkozó számításait. Szintén köszönettel tartozom Kis Zoltánnak, aki lehetővé tette a méréseknél alkalmazott gamma-spektrométer röntgen-radiográfiai vizsgálatát. Köszönöm továbbá Radócz Gábor és Szarvas Csongor Kristóf társszerzői munkáját, amellyel segítették a publikációim megjelenését.

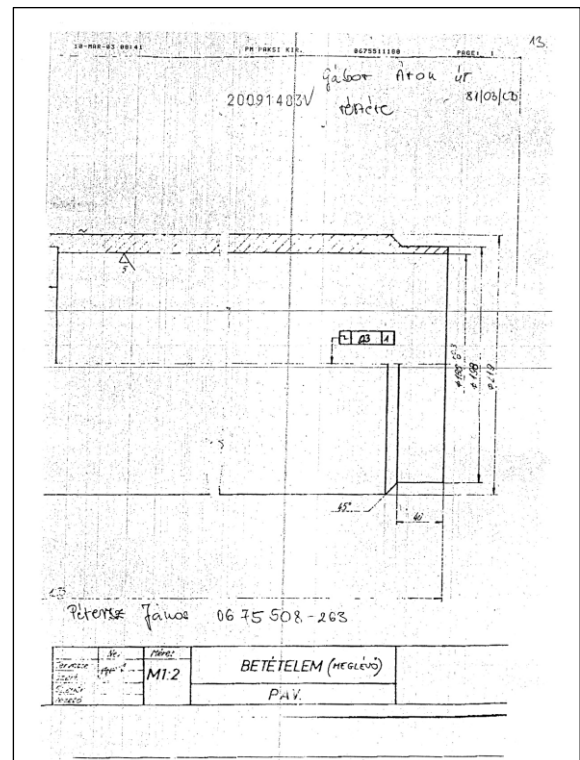
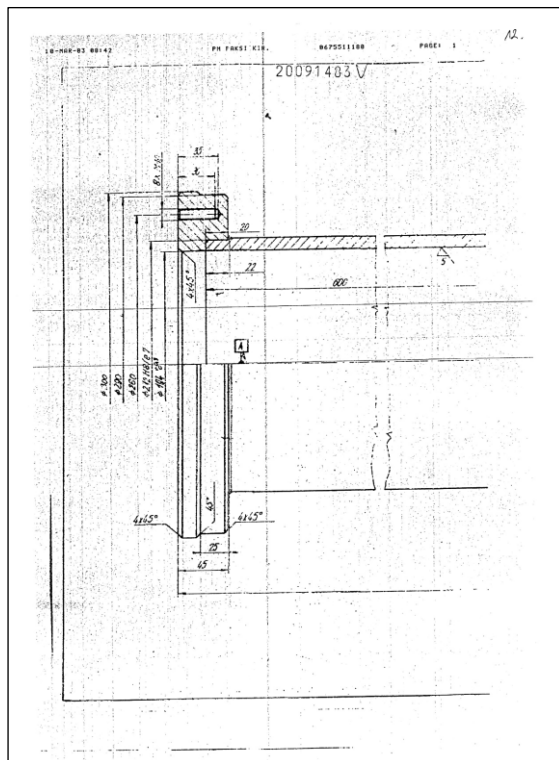
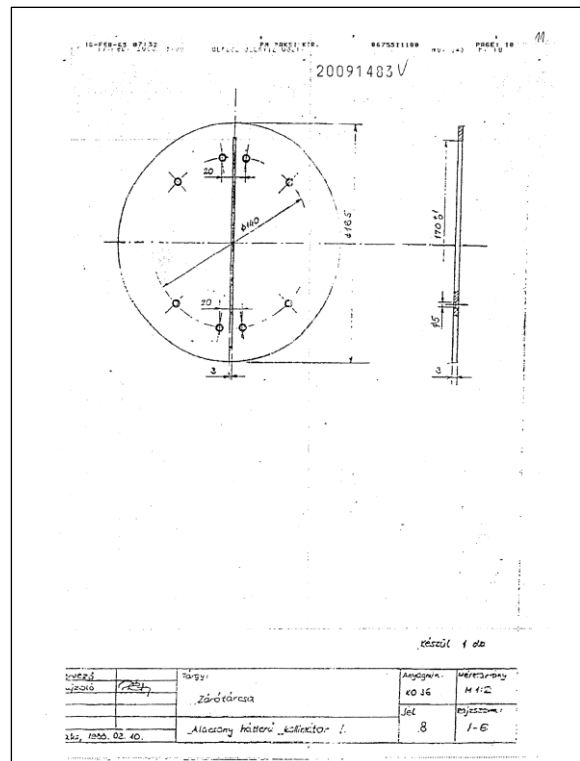
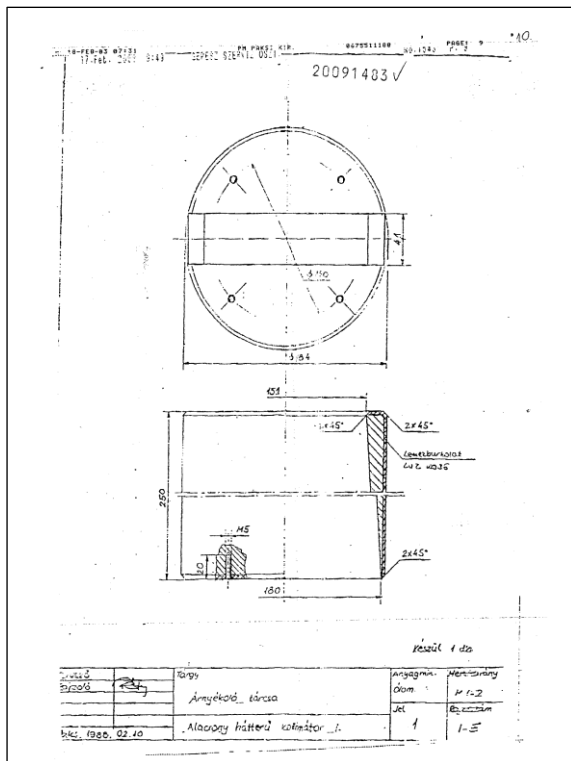
Köszönöm a mérésekben részt vevő minden jelenlegi és volt HUN-REN EK-ban dolgozó kollégámnak, hogy lehetővé tették a kutatásom alapját képező kísérleti adathalmaz gyűjtését, ők név szerint: Almási István, Dósa Gergely, Hlavathy Zoltán, Kaposy Nándor, Kerner Zsolt, Kocsonya András, Nagy György, Pető János és Völgyesi Péter. Hálával tartozom továbbá Nagy Hedvig Éva, Szabó Katalin Zsuzsanna és Széles Éva kollégáimnak a biztosítéki felügyeleti, nukleáris törvényszéki analitikai és statisztikai elemzési területeken nyújtott szakértői segítségükért.

A Paksi Atomerőmű Zrt. munkatársai közül kiemelten köszönöm Nemes Imre és Kató Zoltán munkáját, amivel hozzájárultak a publikációim megjelenéséhez. Nagyon hálás vagyok a Paksi Atomerőmű Zrt. Reaktorfizikai Osztályának, Nukleáris Fűtőanyag Üzemének és Nukleáris Felügyeleti Csoportjának amiért hosszú éveken keresztül lehetővé tették és támogatták a kiégett fűtőelem méréseket, valamint rendelkezésemre bocsátották a munkámhoz szükséges adatokat.

Végül de nem utolsó sorban köszönöm a szüleimnek a folyamatos támogatást, amit a doktoranduszi éveim során nyújtottak és akikre minden nehéz időszakban számíthattam.

A: Az 1-es akna falába épített kollimátor dokumentumai





[illegible][illegible]

HIVATKOZÁSOK

- [1] NEA, "The JEFF-3.1.1 Nuclear Data Library," OECD Publishing, Paris, 2009.
- [2] A. Croff, „ORIGEN2: A versatile computer code for calculating the nuclide compositions and characteristics of nuclear materials,” *Nuclear Technology*, 62:3, 1983.
- [3] J. Tuli, „Evaluated nuclear structure data file,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 369, pp. 506-510, 1996.
- [4] IAEA, IAEA safeguards glossary: 2022 edition, Vienna: IAEA, 2022.
- [5] E. Földesi, H. É. Nagy, Z. Stefánka és Z. Galyas-Szepes, „50 éves a hazai nukleáris biztosítéki rendszer,” Országos Atomenergia Hivatal, Budapest, 2022.
- [6] IAEA, Safeguards Techniques and Equipment: International Nuclear Verification Series No. 1 (Rev. 2), Vienna: IAEA, 2011.
- [7] J. J. Gerhart, C. Freeman, J. L. Colin, H. O. Menlove és S. J. Tobin, „Passive Neutron Albedo Reactivity with Fission Chambers,” *Journal of Nuclear Materials Management*, 40(3), pp. 45-48, 2012.
- [8] IAEA, Nuclear Forensics in Support of Investigations, IAEA Nuclear Security Series No. 2-G (Rev. 1), Vienna: IAEA, 2015.
- [9] I. Pócs, Z. Kálya, T. Parkó, M. Horváth és S. Patai Szabó, „C-PORCA 7: a nodal diffusion reactor calculation code to support off-line and on-line core analysis at Paks nuclear power plant,” *Kerntechnik*, 84, p. 228, 2019.
- [10] C. T. Nguyen, I. Almási, Z. Hlavathy, J. Zsigrai, L. Lakosi, P. Nagy, T. Parkó és I. Pócs, „Monitoring burn-up of spent fuel assemblies by gamma spectrometry,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 60 (2), pp. 1107-1110, 2013.
- [11] I. N. Vaszilcsenko, V. B. Lusin, K. J. Kurakin, N. A. Sztrebnyev és V. A. Piminov, „A nukleáris üzemanyag modernizálása és az üzemanyagciklusok tökéletesítése a Paksi Atomerőmű blokkjain az aktív zóna 1485 MW hőteljesítményen történő üzemeltetése mellett - A modernizált üzemanyag-kazetták konstrukciós, geometriai paramétereinek és anyagai tulajdonságainak leírása,” OKB "Hidropressz", 2012.
- [12] Princeton Gamma-Tech Inc., *PGT Intrinsic Germanium Coaxial Detector (IGC) Product Information and Operating Instructions*.
- [13] ORTEC, *ORTEC® GEM Series Coaxial HPGe Detector Product Configuration Guide*, <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/brochures/g/gem.pdf> (2025.05.06.).
- [14] ORTEC, *ORTEC® DSPEC® jr 2.0 Digital Gamm-Ray Spectrometer Hardware User's Manual, ORTEC Part No. 931010, Manual Revision D*, <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/manuals/d/dspec-jr-20-mnl.pdf> (2025.05.06.).
- [15] ORTEC, *ORTEC® digiDART® Portable HPGe MCA Operator Manual, ORTEC Part No. 783610, Manual Revision F*, <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/manuals/d/digidart-mnl.pdf> (2025.05.06.).

- [16] A. Lebrun és G. Bignan, „Nondestructive assay of nuclear low-enriched uranium spent fuels for burnup credit application,” *Nuclear Technology*, 135 (3), pp. 216-229, 2001.
- [17] P. Jansson, *Studies of nuclear Fuel by Means of Nuclear Spectroscopic Methods*, Uppsala: Acta Universitatis Upsaliensis, 2002.
- [18] C. Willman, A. Håkansson, O. Osifo, A. Bäcklin és S. J. Svärd, „Nondestructive assay of spent nuclear fuel with gamma-ray spectroscopy,” *Annals of Nuclear Energy*, 33 (5), pp. 427-438, 2006.
- [19] M. Kolečka, L. Viererbl, M. Marek, J. Ernest, M. Šunka és V. Miroslav, „Determination of IRT-2M fuel burnup by gamma spectrometry,” *Applied Radiation and Isotopes*, 107, pp. 92-97, 2016.
- [20] S. Vaccaro, S. J. Tobin, A. Favalli, B. Grogan, P. Jansson, H. Liljenfeldt, V. Mozin, J. Hu, P. Schwalbach, A. Sjöland, H. Trellue és D. Vo, „PWR and BWR spent fuel assembly gamma spectra measurements,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 833, pp. 208-225, 2016.
- [21] A. Favalli, D. Vo, B. Grogan, P. Jansson, H. Liljenfeldt, V. Mozin, P. Schwalbach, A. Sjöland, S. J. Tobin, H. Trellue és S. Vaccaro, „Determining initial enrichment, burnup, and cooling time of pressurized-water-reactor spent fuel assemblies by analyzing passive gamma spectra measured at the Clab interim-fuel storage facility in Sweden,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 820, pp. 102-111, 2016.
- [22] J. Fitzgerald, „FitzPeaks Gamma Analysis and Calibration Software: User Guide and Technical Manual,” JF Computing Services, 2007.
- [23] S. Brandt, „Direct Measurements of Equal or Unequal Accuracy,” in *Data Analysis: Statistical and Computational Methods for Scientists and Engineers*, Springer, 2014, p. 211.
- [24] R. W. Mills, „Fission product yield evaluation,” University of Birmingham, Birmingham, UK, 1995.
- [25] G. H. Fox, N. Gardner és C. H. Zimmerman, „Special Instrumentation development at Sellafield,” *The fourth International conference on nuclear fuel reprocessing and waste management RECOD94*, London, UK, 24-28th April 1994.
- [26] OriginLab Corporation, *OriginPro, Version 2021.*, Northampton, MA, USA.
- [27] F. Michel-Sendis, I. Gauld, J. S. Martinez, C. Alejano, M. Bossant, D. Boulanger, O. Cabellos, V. Chrapciak, J. Conde, I. Fast, M. Gren, K. Govers, M. Gysemans, V. Hannstein, F. Havlůj, M. Hennebach, G. Hordósy, G. Ilas, R. Kilger, R. Mills, D. Mountford, P. Ortego, G. Radulescu, M. Rahimi, A. Ranta-Aho, K. Rantamäki, B. Ruprecht, N. Soppera, M. Stuke, K. Suyama, S. Tittelbach, C. Tore, S. Van Winckel, A. Vasiliev, T. Watanabe, T. Yamamoto és T. Yamamoto, „SFCOMPO-2.0: An OECD NEA database of spent nuclear fuel isotopic assays, reactor design specifications, and operating data,” *Annals of Nuclear Energy*, 110, pp. 779-788, 2017.
- [28] M. R. Scott, *Nuclear Forensics: Attributing the Source of Spent Fuel Used in an RDD Event*, College Station, TX, USA: Texas A&M University, 2005.

- [29] A. E. Jones, P. Turner, C. Zimmerman és J. Y. Goulermas, „Classification of Spent Reactor Fuel for Nuclear Forensics,” *Analytical Chemistry*, 86, pp. 5399-5405, 2014.
- [30] J. Coble, C. Orton és J. Schwantes, „Multivariate analysis of gamma spectra to characterize used nuclear fuel,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 850, pp. 18-24, 2017.
- [31] C. Hellesen, S. Grape, P. Jansson, S. Jacobsson Svård, M. Åberg Lindell és P. Andersson, „Nuclear spent fuel parameter determination using multivariate analysis of fission product gamma spectra,” *Annals of Nuclear Energy*, 110, pp. 886-895, 2017.
- [32] A. M. Bachmann, J. B. Coble és S. E. Skutnik, „Comparison and uncertainty of multivariate modeling techniques to characterize used nuclear fuel,” *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, 991, p. 164994, 2021.
- [33] M. Åberg Lindell, P. Andersson, S. Grape, C. Hellesen, A. Håkansson és M. Thulin, „Discrimination of irradiated MOX fuel from UOX fuel by multivariate statistical analysis of simulated activities of gamma-emitting isotopes,” *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, 885, pp. 67-78, 2018.
- [34] M. Åberg Lindell, P. Andersson, S. Grape, A. Håkansson és M. Thulin, „Estimating irradiated nuclear fuel characteristics by nonlinear multivariate regression of simulated gamma-ray emissions,” *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, 897, pp. 85-91, 2018.
- [35] S. Grape, E. Branger, Z. Elter és L. Pöder Balkeståhl, „Determination of spent nuclear fuel parameters using modelled signatures from non-destructive assay and Random Forest regression,” *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, 969, p. 163979, 2020.
- [36] R. Rossa, A. Borella és N. Giani, „Comparison of machine learning models for the detection of partial defects in spent nuclear fuel,” *Annals of Nuclear Energy*, 147, p. 107680, 2020.
- [37] W. K. Härdle és L. Simar, „Chapter 13: Cluster Analysis,” in *Applied Multivariate Statistical Analysis*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2015, pp. 385-405.
- [38] J. Wu, „1 Cluster Analysis and K-means Clustering: An Introduction,” in *Advances in K-means Clustering: A Data Mining Thinking*, Springer Science & Business Media, 2012, pp. 1-12.
- [39] M. Kubat, „14.2 A Simple Algorithm: k-Means,” in *An Introduction to Machine Learning*, Springer International Publishing AG, 2017, pp. 277-281.
- [40] W. K. Härdle és L. Simar, „Chapter 11: Principal Components Analysis,” in *Applied Multivariate Statistical Analysis*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2015, pp. 319-358.
- [41] W. K. Härdle és L. Simar, „20.4 Support Vector Machines,” in *Applied Multivariate Statistical Analysis*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2015, pp. 519-534.
- [42] M. Kubat, „4.7 Numerical Domains and Support Vector Machines,” in *An Introduction to Machine Learning*, Springer International Publishing AG, 2017, pp. 84-85.
- [43] S. Theodoridis, „11.8 Support Vector Regression,” in *Machine Learning*, Academic Press, 2020, pp. 554-561.

- [44] L. Breiman, „Random Forests,” *Machine Learning*, 45, pp. 5-32, 2001.
- [45] C. C. Aggarwal, „Chapter 2: Machine Learning with Shallow Neural Networks,” in *Neural Networks and Deep Learning*, Springer International Publishing AG, 2018, pp. 53-104.
- [46] C. C. Aggarwal, „Chapter 8: Convolutional Neural Networks,” in *Neural Networks and Deep Learning*, Springer International Publishing AG, 2018, pp. 315-371.
- [47] S. Theodoridis, „18.12 Convolutional Neural Networks,” in *Machine Learning*, Academic Press, 2020, pp. 956-975.
- [48] R Core Team, „R: A Language and Environment for Statistical Computing,” R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria, 2020.
- [49] R. Tibshirani, G. Walther és T. Hastie, „Estimating the number of clusters in a data set via the gap statistic,” *Journal of the Royal Statistical Society Series B: Statistical Methodology*, 63 (2), pp. 411-423, 2001.
- [50] F. Pedregosa, G. Varoquaux, A. Gramfort, V. Michel, B. Thirion, O. Grisel, M. Blondel, P. Prettenhofer, R. Weiss, V. Dubourg, J. Vanderplas, A. Passos, D. Cournapeau, M. Brucher, M. Perrot és É. Duchesnay, „Scikit-learn: Machine Learning in Python,” *Journal of Machine Learning Research*, 12 (85), pp. 2825-2830, 2011.
- [51] F. Chollet, „Keras,” [Online]. Available: <https://github.com/fchollet/keras>. [Hozzáférés dátuma: 23 május 2025].
- [52] G. Hegyi, A. Keresztúri, C. Maráczy és E. Temesvári, „The 2nd Generation Fuel of VVER-440 and the Validation of the Correspondent Calculation Route,” *Proceedings of the 2012 20th International Conference on Nuclear Engineering and the ASME 2012 Power Conference*, pp. 751-758, 2013.
- [53] J. Gawlikowski, C. R. N. Tassi, M. Ali, J. Lee, M. Humt, J. Feng, A. Kruspe, R. Triebel, P. Jung, R. Roscher, M. Shahzad, W. Yang, R. Bamler és X. X. Zhu, „A Survey of Uncertainty in Deep Neural Networks,” *arXiv:2107.03342*, 2022.
- [54] J. W. Bae, A. Rykhlevskii, G. Chee és K. D. Huff, „Deep learning approach to nuclear fuel transmutation in a fuel cycle simulator,” *Annals of Nuclear Energy*, 139, p. 107230, 2020.
- [55] I. Szalóki, G. Radócz, Cs. K. Szarvas és A. Gerényi, „Time-dependent leakage model for the identification of defective fuel assemblies of VVER-type nuclear reactors, part 1: Theory,” *Annals of Nuclear Energy*, 199, p. 110233, 2023.
- [56] Cs. K. Szarvas, G. Radócz, A. Gerényi, G. Szabados, T. Pintér, P. Rozmanitz, P. Kirchknopf és I. Szalóki, „Time-dependent leakage model for the identification of defective fuel assemblies of VVER-type nuclear reactors. Part 2: Expediting the solution and applications to a nuclear power plant,” *Annals of Nuclear Energy*, 197, p. 110234, 2024.
- [57] W. H. Geist és J. Conner, „Chapter 1: The Role of Nondestructive Assay in Safeguards, Security, and Safety,” in *Nondestructive Assay of Nuclear Materials for Safeguards and Security (Second Edition)*, Springer Nature Switzerland AG, 2024, p. 5.

- [58] R. G. Helmer, J. C. Hardy, V. E. Iacob, M. Sanchez-Vega, R. G. Neilson és J. Nelson, „The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 511, pp. 360-381, 2003.
- [59] M. Kolečka, L. Viererbl és M. Marek, „Development of the MCNPX model for the portable HPGe detector,” *Radiation Physics and Chemistry*, 104, pp. 351-354, 2014.
- [60] M. Kolečka, L. Viererbl és M. Marek, „Calibration of spent fuel measurement assembly,” *Radiation Physics and Chemistry*, 104, pp. 420-423, 2014.
- [61] C. J. Werner, J. S. Bull, C. J. Solomon, F. B. Brown, G. W. McKinney, M. E. Rising, D. A. Dixon, R. L. Martz, H. G. Hughes, L. J. Cox, A. J. Zukaitis, J. C. Armstrong, R. A. Forster és L. Casswell, „MCNP version 6.2 release notes (LA-UR-18-20808),” Los Alamos National Laboratory, 2018.
- [62] A. L. Schwarz, R. A. Schwarz és L. L. Carter, „MCNP/MCNPX Visual Editor Computer Code Manual,” 2011.
- [63] S. Ohnishi, „Gxsview: geometry and cross section viewer for calculating radiation transport,” *SoftwareX*, 14, p. 100681, 2021.
- [64] J. Schindelin, I. Arganda-Carreras, E. Frise et al., „Fiji: an open-source platform for biological-image analysis,” *Nature Methods*, 9, pp. 676-682, 2012.
- [65] G. R. Gilmore, „Chapter 8: True Coincidence Summing,” in *Practical Gamma-ray Spectrometry – 2nd Edition*, John Wiley & Sons Ltd, 2008, pp. 165-181.
- [66] „InterSpec spectral radiation analysis software version 1.0.12,” Sandia National Laboratories, <https://github.com/sandialabs/InterSpec>, 2024.
- [67] J. Ródenas, A. Pascual, I. Zarza, V. Serradell, J. Ortiz és L. Ballesteros, „Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 496(2-3), pp. 390-399, 2003.
- [68] J. C. Hardy, V. E. Iacob, M. Sanchez-Vega, R. T. Effinger, P. Lipnik, V. E. Mayes, D. K. Willis és R. G. Helmer, „Precise efficiency calibration of an HPGe detector: source measurements and Monte Carlo calculations with sub-percent precision,” *Applied Radiation and Isotopes*, 56(1-2), pp. 65-69, 2002.
- [69] J. Hu, I. C. Gauld, S. Vaccaro, T. Honkamaa és G. Ilas, „Validation of ORIGEN for VVER-440 Spent Fuel with Application to Fork Detector Safeguards Measurements,” *EC JRC ESARDA bulletin*, 60, pp. 28-42, 2020.