

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

PhD tézisleírás

KIRCHKNOPF PÉTER

Témavezető: DR. SZALÓKI IMRE

BUDAPEST

2025

A kutatások előzménye

A HUN-REN Energiatudományi Kutatóközpont Sugárbiztonsági Laboratóriuma immár két évtizede foglalkozik a Paksi Atomerőmű Zrt. kiégett fűtőelemeinek vizsgálatával. A 2003-as súlyos üzemzavart követően felmerült az üzemanyag törmeléket tartalmazó zárt tokok hasadóanyag-mennyiségi meghatározásának kérdése. Gamma- és neutron mérések, valamint ép kiégett kazetták referencia adatai alapján az összes hermetikus tok hasadóanyag tömegét sikeresen meghatározták [Zsigrai, 2013]. A korábbi kísérleti tapasztalatokra támaszkodva 2010-től kezdődtek az Atomerőmű kiégett fűtőelemeinek gamma-spektrometriai mérései, amik azóta is évi egy mérési kampánnyal folytatólagosan zajlanak. Ezen vizsgálatok célja egyes kiválasztott kazetták kiégési szintjének mérése, amivel az erőmű operátornak kiégés-számítási bizonytalansága ellenőrizhető [Nguyen, 2013]. Az összegyűlt kísérleti adathalmaz már több korábbi tanulmány számára is alapként szolgált, amik a kiégett üzemanyagok üzemelési történetének meghatározására tett módszerfejlesztésekről szóltak [Kocsonya, 2016] [Kirchknopf, 2018] [Kirchknopf, 2019].

A doktori értekezésem témája a gamma-spektrometria módszerével végzett paraméterszámítás megvalósítása a VVER-440 típusú reaktorok kiégett fűtőelemeire. A paraméterek magukba foglalják a kiégést, a hűlési időt, a kezdeti dúsítást, a fennmaradó hasadóanyag mennyiséget és a mérhető hasadási termék magok aktivitásait. A nemzetközi szakirodalomban számos cikk található a jelen kutatáshoz hasonló tematikában, azonban kifejezetten a VVER-440 típusra vonatkozó tanulmányokból eddig kevés jelent meg. A kutatók gyakran alkalmaznak a paraméterek becslésére regressziós számításokat, ezen kívül a publikációk fő témája a manapság egyre elterjedtebb gépi tanulási módszerek implementálásának terén végzett vizsgálatok [Favalli, 2016] [Hellesen, 2017] [Rossa, 2020].

Hivatkozások:

J. Zsigrai et al., „Non-Destructive Determination of the Nuclear Material Content of Spent Fuel Pieces in Canisters”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 60(2), pp. 1080-1085, 2013.

C. T. Nguyen et al., „Monitoring Burn-Up of Spent Fuel Assemblies by Gamma Spectrometry”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 60(2), pp. 1107-1110, 2013.

Kocsonya A., „Kiegészített fűtőelemek előéletének meghatározása gamma-spektrometriával (1. év)”, OAH-ABA-19/16-M Kutatási Jelentés (MTA EK SBL), 2016.

Kirchknopf P. és Kocsonya A., „Kiegészített fűtőelemek előéletének meghatározása gamma-spektrometriával (2. év)”, OAH-ABA-20/17-M Kutatási Jelentés (MTA EK SBL), 2018.

Kirchknopf P., Almási I., Hlavathy Z., Völgyesi P., „Kiegészített fűtőelemek előéletének meghatározása gamma-spektrometriával (3. év)”, OAH-ABA-24/19-M Kutatási Jelentés (MTA EK SBL), 2019.

A. Favalli et al., „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.

C. Hellesen et al., „Nuclear spent fuel parameter determination using multivariate analysis of fission product gamma spectra”, *Annals of Nuclear Energy*, 110, pp. 886-895, 2017.

R. Rossa et al., „Comparison of machine learning models for the detection of partial defects in spent nuclear fuel”, *Annals of Nuclear Energy*, 147, p. 107680, 2020.

Célkitűzések

A kutatásom fő célja a nukleáris biztosítéki (safeguards) rendszer szempontjából jelentős kiégett fűtőelem paraméterek (kiégés, hűlési idő, kezdeti dúsitás, hasadóanyag tartalom) mérési módszerének kifejlesztése VVER-440 üzemanyagokra. A gyorsan és egyszerűen bevezethető, ezen felül pedig pontos paraméterszámítási módszer rendelkezésre állása a safeguards ellenőrzést kivitelező szakemberek kezében hatékony eszköz lehet a nukleáris non-proliferációs egyezmények betartásának verifikációja során. A feladat aktualitását a jelenlegi safeguards ellenőrzési módszerek hiányossága adja, mert kiégett fűtőelemekben legfeljebb a hasadóanyag jelenlétének tényét ellenőrzik a Cserenkov-fény intenzitásának vizsgálatával.

A paraméterbecslési módszer kidolgozása nukleáris törvényszéki analitikai (nuclear forensics) szempontból is jelentőséggel bír. Egy megtalált ismeretlen eredetű kiégett fűtőelem darabról mérés útján a törvényszéki eljárás keretében a lehető legtöbb eredetjelölő és a mintára jellemző mennyiséget meg kell határozni. Mindezt úgy kell sikeresen végre hajtani, hogy az elemzést végző szakember a mintáról adott esetben semmilyen előismerettel nem rendelkezik. E feladat megoldása olyan mérési és számítási módszerrel ruházná fel a nukleáris törvényszéki analitikai méréseket végző szakembereket, amik alkalmazása jelentős segítséget nyújt a talált kiégett üzemanyag darabok beazonosításában, növelve ezzel a nukleáris védeltségi képességeket.

Fontos cél továbbá a Paksi Atomerőmű Zrt. kiégésszámítási bizonytalanságának ellenőrzése, amely elegendően alacsony szint igazolása esetén lehetővé tenné a kiégésre vonatkozó mérnöki faktor csökkentését és ezáltal az üzemanyag gazdaságosabb kihasználását.

A kiégett fűtőelemben található hasadási termékek mennyisége elsősorban az atomerőművek üzemeltetői, másodsorban pedig az országos hatóság számára jelent hasznos információt. Megbízható mérési módszer birtokában lehetővé válik bizonyos hasadási termék aktivitások

meghatározása. Az aktivitások alapján elvégezhetők sugárvédelmi célú gamma-dózis számítások, illetve a fűtőelemek tárolása közben a környezetüket érő gamma-sugárzás okozta anyagváltozások mértéke is kivizsgálható lenne. A feladat jelentőségét az adja, hogy az Atomerőmű üzemanyagjain korábban még nem történtek ilyen jellegű, kísérleti adatokból végzett számítások.

Vizsgálati módszerek

A kiégett fűtőelemek roncsolásmentes kísérleti vizsgálatát a gamma-spektrometria módszerével hajtottam végre. A rendkívül aktív üzemanyag-kazetták gamma-sugárzásának mérése vastag vízárnyékolás és egy keskeny résű kollimátoron keresztül történt. Az eredmény a kazetta egy függőlegesen vékony szeletéről az 50-3000 keV energiatartományban felvett gamma-spektrum, amiben a jelentősebb gamma-sugárzó hasadási termék csúcsok azonosíthatók. A módszer korlátja, hogy a hasadóanyagok gamma-sugárzása azok kis intenzitása és jellemzően alacsony energiája miatt az adott körülmények mellett nem mérhető.

A gamma-spektrumok elemzését követően meghatároztam a kiégett üzemanyagban kimutatott hasadási termék magok aktivitásainak arányait. E mérhető mennyiségek és a fűtőelemek paraméterei között nem-lineáris regresszió módszerével empirikus összefüggéseket vizsgáltam meg. A mérési eredményekből további információ kinyerésére változatos gépi tanulási algoritmusokat alkalmaztam, amely vizsgálatok során a fő célok a paraméterbecslés pontosítása és az üzemelési történet meghatározása voltak. A hasadási termék aktivitások számításához nélkülözhetetlen határfok-kalibrációt számítás útján, Monte-Carlo szimulációval valósítottam meg, amihez a mérési elrendezés részletes modellezésére volt szükség.

Új tudományos eredmények

[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 [1].

[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 hónagnál 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 [1].

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

Gépi tanulási modellek alkalmazásával vizsgálatokat végeztem a paraméterbecslés pontosságának növelése érdekében. A számítások hibája a kiegészre 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 kiegészi előélet üzemelési ciklusok szerinti alakulása tükröződik a gamma-spektrometriával mérhető aktivitás-arányokban [1] [2].

[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 [3].

A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

- [1] **Péter Kirchknopf**, István Almási, Gábor Radócz, Imre Nemes, Péter Völgyesi, Imre 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>.
- [2] **Péter Kirchknopf**, Bálint Batki, Péter Völgyesi, Zoltán Kató, Imre 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>.
- [3] **Péter Kirchknopf**, Zoltán Kató, Csongor Kristóf Szarvas, Péter Völgyesi, Imre 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>.

További tudományos közlemények

- [4] Szarvas Csongor Kristóf, **Kirchknopf Péter**, Almási István, Dósa Gergely, Szabó Katalin Zsuzsanna, Nguyen Cong Tam, Völgyesi Péter, Radócz Gábor, Szalóki Imre, „Alacsony háttérű gamma-spektrometriai mérőrendszer HPGe detektorának modellezése törvényszéki és in-situ analitikai célokra”, *Nukleon XIV*, p. 238, 2021,
https://nuklearis.hu/sites/default/files/nukleon/14_1_238_Szarvas_0.pdf.
- [5] M. Travar, J. Nikolov, N. Todorović, A. Vraničar, P. Völgyesi, **P. Kirchknopf**, I. Čeliković, T. Milanović, D. Joković, „Detailed optimization procedure of an HPGe detector using Geant4 toolkit”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 332, pp. 817-828, 2023, <https://doi.org/10.1007/s10967-023-08810-x>.

- [6] Csongor Kristóf Szarvas, Radócz, Gábor, Anita Gerényi, György Szabados, Tamás Pintér, Péter Rozmanitz, **Péter Kirchknopf**, Imre 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, <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2023.110234>.