

# DOKTORI ÉRTEKEZÉS

Hajdú Dávid

2023.



Pannon Egyetem

Vegyésmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskola

# DOKTORI ÉRTEKEZÉS

Sugárvédelmi betonok komplex radiológiai vizsgálatai

Hajdú Dávid

DOI:10.18136/PE.2024.892

Témavezetők: Dr. Zagyvai Péter és Dr. Somlai János

2023.

## Tartalmi összefoglaló

A disszertáció a neutronsugárzásnak kitett sugárvédelmi betonokban végbemenő változásokkal, a besugárzás következményeivel és a következmények minél pontosabb becslésével foglalkozik három témakört feldolgozva.

Először az Európai Neutronkutató Központnak (ESS) készült beton felaktiválódási kutatás kerül bemutatásra. Ennek keretében olyan méréseken alapuló betonösszetételeket állítottam össze, melyek lehetővé teszik a karbantartó személyzet bomlási gamma-sugárzástól származó dózisének pontosabb becslését. Az általam készített anyagösszetételekkel futtatott szimulációk 30-70%-kal nagyobbak a dózisteljesítmény értékeket eredményeztek a névleges összetételen alapuló becslésekhez képest, rávilágítva a pontos anyagösszetétel ismeretének fontosságára aktivációval kapcsolatos értékelésekben.

A második téma az atomreaktorok körüli sugárvédelmi betonok felaktiválódásának szimulációjával foglalkozik. Ennek keretében számos különböző modell felépítése és kiértékelése után létrehoztam egy modellt, mely lehetővé teszi pontforrásból kiindulva a reaktortartályok körüli beton védelmek mélyebb rétegeiben történő felaktiválódás szimulálását is. A modellezés eredményeit szakirodalmi mérési eredményekkel összevetve validáltam. Az eredmények segítségével pontosabban becsülhető a különböző hulladékosztályokba sorolandó, radioaktív hulladékká vált betonok mennyisége.

A disszertáció utolsó egysége a neutronok betonöregítő hatásával foglalkozik: a Budapesti Kutatóreaktor ilyen jellegű kísérletekre való alkalmasságát vizsgálja. Bár a szakirodalomban kritikusnak tekintett  $10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> fluens a reaktormag körül elérhető körülbelül egy hét alatt, problémát jelent a maximális besugározható mintaméret, illetve a csatornák hűtése hűtését is kihívást jelent.

Összefoglalásként elmondható, hogy a bemutatásra kerülő kutatások a mérések és szimulációk együttes használatának lehetőségeit dolgozzák fel különböző sugárvédelmi esettanulmányokon keresztül, támpontot nyújtva a két módszer szinergiájának kihasználásán alapuló hatékony mérnöki munkához.

**Kulcsszavak:** sugárvédelem, beton, MCNP, Cinder, neutronaktiváció, radioaktív hulladék, bomlási gamma-dózis

## Abstract

The subject of the thesis is the changes taking place in shielding concretes exposed to neutron radiation, the consequences of such irradiations and the accurate estimation possibilities of these consequences, touching on three topics.

First, concrete activation studies prepared for the European Spallation Source are presented. Within this framework, I compiled measurement-based concrete compositions to facilitate more accurate dose rate estimations of the maintenance staff exposed to decay gammas. Simulations, which were performed with the material compositions I assembled, resulted dose rates 30-70% higher compared to the nominal composition-based estimates, highlighting the importance of detailed knowledge of material composition in activation-related issues.

The second topic is activation simulations of shielding concretes around nuclear reactors. After creating and evaluating several different models, I achieved a model with which, starting from a point source, activation can be determined in deeper layers of shielding concretes around reactor tanks. I validated the model against published measurement results. With the established model, it is possible to determine the waste categories of the activated concrete fractions more accurately.

Finally, concrete aging due to neutron irradiation was investigated: the suitability of the Budapest Research Reactor was examined for such experiments. Although the fluence of  $10^{19}$  neutrons/cm<sup>2</sup> - considered critical in the scientific literature - can be achieved around the reactor core in about a week, the applicable sample size is a limiting factor, and cooling of the irradiation channels must also be solved.

As a summary, the studies presented in the thesis demonstrate the opportunities in the common use of measurements and simulations in various radiation protection-related case studies, serving as a guideline for effective engineering work exploiting the synergies of the two methods.

**Keywords:** radiation protection, concrete, MCNP, Cinder, neutron activation, radioactive waste, decay gamma dose rate

## Tartalomjegyzék

1	Bevezetés.....	6
1.1	Az értekezés háttere, célkitűzések .....	6
1.2	Neutronsugárzás kölcsönhatása az anyaggal .....	8
1.2.1	Neutronaktiváció és sugárvédelmi következményei .....	8
1.2.2	Neutronaktiváción alapuló mérés technikák .....	11
1.2.3	Neutronok betonöregítő hatása.....	12
1.3	A sugárvédelemben használt betonok jellemzése.....	14
1.4	Szimulációk alkalmazása a sugárvédelmi tervezésben.....	17
1.4.1	A modellezés előnyei a sugárvédelemben.....	17
1.4.2	Az alkalmazott szimulációs kódok működése.....	19
2	Bomlási gamma-sugárzások hatása felaktivált sugárvédelmi betonok környezetében .....	22
2.1	Az Európai Neutronkutató Központ bemutatása .....	22
2.2	Vizsgált beton minták összetétel mérései .....	24
2.2.1	NAA mérések .....	25
2.2.2	PGAA mérések.....	26
2.2.3	XRF mérések.....	27
2.3	A sugárzási teret meghatározó izotópok azonosítása .....	28
2.4	A szimulációkban használt betonösszetételek bemutatása .....	29
2.4.1	Az anyagkártyák összeállításának szempontjai.....	30
2.4.2	Az anyagkártyák validációja .....	31
2.5	Beton összetétel hatása a karbantartó személyzet dóziséra .....	35
3	Atomerőművi betonok felaktiválódásának szimulációja, mint a radioaktív hulladékkezelés egyik alapvető kérdése.....	39
3.1	Radioaktív hulladékokok kezelésének jogszabályi háttere.....	39
3.1.1	A szabályozás nemzetközi háttere.....	40
3.1.2	A hazai szabályozás és gyakorlati következményei.....	44
3.2	Nemzetközi tapasztalatok betonok radioaktív hulladékosztályba sorolása kapcsán.....	47
3.2.1	Sugárvédelmi betonok meghatározó radioizotópjai .....	47
3.2.2	Reaktor körüli betonaktiváció modellezésének kihívásai .....	51
3.2.3	Betonaktivációs kísérletsorozat TRIGA Mark II. Kutatóreaktorban 52	
3.3	Modell fejlesztés betonaktiváció szimulációjához .....	57
3.3.1	A kiindulási modell felépítése.....	57
3.3.2	A modellezés eredményei, a modell optimalizálása.....	62
3.3.3	A modellezés tapasztalatai .....	76
4	Atomerőművi betonok öregedésének vizsgálata.....	79

4.1	Nehézségek a neutronok betonöregítő hatásának vizsgálatában .....	79
4.2	Öregedés vizsgálatok lehetőségei és korlátai a Budapesti Kutatóreaktorban.....	82
5	Összefoglalás.....	86
	Köszönetnyilvánítás .....	89
	Irodalomjegyzék.....	90
	Mellékletek.....	100

# 1 Bevezetés

A dolgozat a sugárvédelmi célú betonokban sugárzás hatására (elsősorban neutronsugárzás) végbemenő változásokkal és ezek hatásaival foglalkozik. A bevezetésben először a témaválasztás aktualitását és célkitűzéseit fejtem ki (1.1. fejezet). Ezt követően az 1.2-es fejezetben a sugárzás-anyag kölcsönhatásának elméleti hátterét tekintem át, majd az árnyékolásként alkalmazott betont, mint a vizsgálat tárgyát mutatom be az 1.3-as fejezetben. Mivel az elvégzett kutatásokban fontos szerepet töltek be a különböző szimulációs eljárások, ezért a bevezetés záró, 1.4-es fejezetében azok jelentőségéről és működéséről nyújtok egy összefoglalót.

## 1.1 Az értekezés háttere, célkitűzések

Mesterségesen előállított, jelentős neutronsugárzás földi körülmények között atomerőművekben és különböző kísérleti létesítményekben fordul elő. Utóbbiakat általában anyagvizsgálati célokkal létesítik. A rendelkezésre álló infrastruktúra folyamatos megújulását biztosítani kell a kutatások fenntartása és az energiabiztonság szavatolása érdekében, így szükség van új létesítmények építésére, az üzemben lévők karbantartására, üzemidőhosszabbítására, illetve az élettartamuk lejártát követően e létesítmények biztonságos leszerelésére.

Ezekben a folyamatokban mindben nagy szerepe van a betonnak, hiszen ez a rendkívül népszerű építőanyag a neutronsugárzást keltő létesítményeknek is alapvető építőelemei. Mivel a nukleáris létesítményekben használt betonoknak az építésügyi minőségi szabványokon felül sugárvédelmi követelményeknek is meg kell felelniük, ezért a disszertáció célja ezeknek a sugárvédelmi elvárásoknak a bemutatása, és a gyakorlatban is minél szélesebb körben hasznosítható hozzájárulás ezeknek a sugárvédelmi célrendszereknek a teljesítéséhez.

A dolgozatban csak érintőlegesen foglalkozom a betonok alapvető sugárvédelmi feladatával, a radioaktív sugárzás gyengítésével, hiszen ez egy mostanra kellő alapossággal kutatott téma, melynek becslésére jól használható szabványok, adatbázisok és szimulációs kódok állnak rendelkezésre. Kevésbé feltárt téma a betonok felaktiválódásának és a felaktiválódás következményeinek a kérdésköre: a bomlási gamma-sugárzás személyzetre gyakorolt hatása és a



radioaktív hulladékok kezelése. A bomlási gamma-sugárzásokat illetően a 2. fejezetben azt mutatom be az Európai Neutronkutató Központ példáján keresztül, hogy hogyan lehet mérések és szimulációk együttes használatával az üzemeltető (karbantartó) személyzet sugárvédelmi betonoktól származó dózist minél pontosabban megbecsülni, vagy akár e célt szem előtt tartva optimalizálni a betont. A 3. fejezet atomerőművek sugárvédelmi betonjainak felaktiválódás becslésével foglalkozik, célul tűzve ki, hogy a becslés pontosságának növelésével optimalizálható legyen egy létesítés előtt álló atomerőmű sugárvédelmi betonja radioaktív hulladékkezelési szempontokat is figyelembe véve. Végül a 4. fejezet a neutronok betonöregítő (szerkezetet roncsoló) hatásaival foglalkozik, teljessé téve a neutronok betonokra gyakorolt hatásainak sorát. A fejezet betonöregedési kísérletek Budapesti Kutatóreaktorban való kivitelezésének lehetőségeivel, feltételeivel foglalkozik.

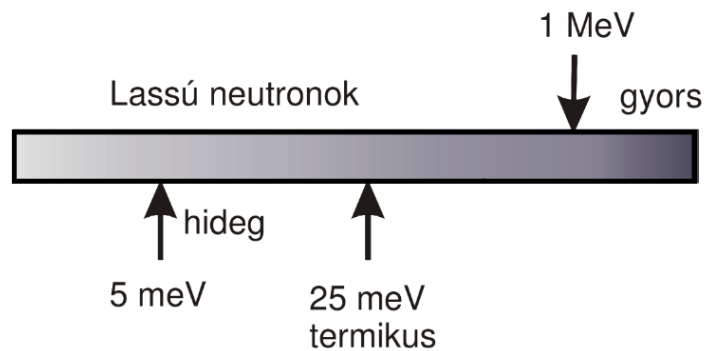
## **1.2 Neutronsugárzás kölcsönhatása az anyaggal**

Mivel a dolgozatban vizsgált jelenségek a neutronok anyaggal való kölcsönhatásainak következményei, ezért ebben a fejezetben röviden ezen folyamatok elméleti háttérét foglalom össze. Sugárvédelmi szempontból a neutronsugárzásnak kitett anyag felaktiválódásának van a legnagyobb jelentősége, de kellően nagy neutronfluens esetén az anyagszerkezet-károsító hatás sem elhanyagolható. E két témával foglalkozik az 1.2.1-es és az 1.2.3-as fejezet. A sugárvédelmi tervezésben működési elvüknél fogva kiemelt szerep jut a neutronaktiváción alapuló mérés technikáknak, így azok elméleti háttérét is áttekintem az 1.2.2-es fejezetben.

### **1.2.1 Neutronaktiváció és sugárvédelmi következményei**

A neutronok a neutronaktiváció folyamatában erős kölcsönhatásba lépnek a célmaggal. Tekintve, hogy az erős kölcsönhatás hatótávolsága kicsi, ezért az atommagot körülbelül  $10^{-13}$  cm-re meg kell közelíteni a neutronoknak, hogy kölcsönhatás jöhessen létre [1].

Mivel a kölcsönhatások típusa és valószínűsége nagymértékben energiafüggő, ezért szokás a neutronokat energiájuk szerint csoportosítani. Többféle csoportosítás létezik, az egyiket az 1. ábra mutatja be. Eszerint 1 MeV fölött gyors, alatta lassú neutronokról beszélünk. A lassú neutronok tartománya több részre osztható: 5 meV energia alatt hideg neutronok vannak, 25 meV-en, vagyis szobahőmérsékleten a neutron termikus egyensúlyban van a környezetével, ezért ezeket a neutronokat termikus neutronoknak szokás nevezni. A termikus és gyors tartomány között az epitermikus tartomány található [2]. E tartományban van 0,5 eV-nál kadmium cut-off (levágás) energia: míg a 0,5 eV-nál kisebb energiájú neutronokat abszorbeálja a kadmium, az annál nagyobbakat nem [3]. Ennek különböző mérések, kísérletek során van jelentősége, mivel a kadmium széleskörben használt neutron abszorber.



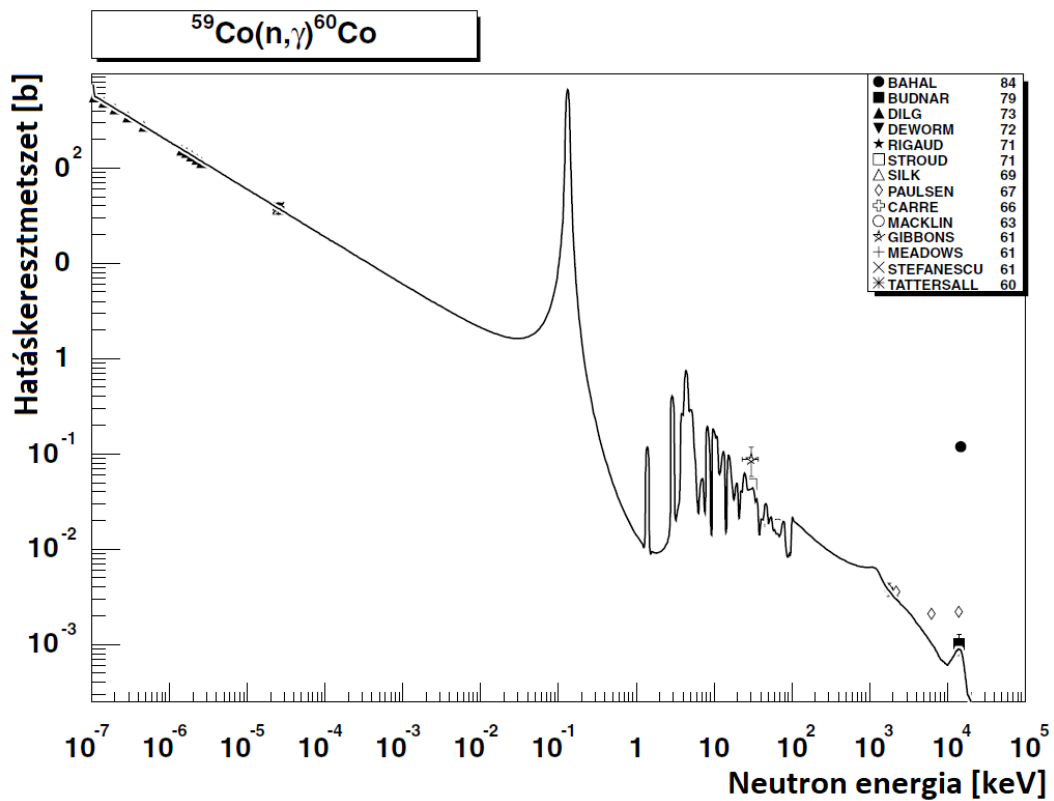
1. ábra: A neutronok energia szerinti csoportosítása [2]

A neutronok kétféle kölcsönhatásban vehetnek részt az atommaggal: szóródhatnak rajta, illetve befogódhatnak. A neutron energiájának függvényében a szórás lehet rugalmas (lassú neutronok esetén) vagy rugalmatlan (gyors neutronok esetén, 1 MeV fölött). Rugalmatlan szórás esetén a neutron kölcsönhatásba lép az atommaggal és az atommag gerjesztett állapotba kerül, melyből szekunder sugárzás kibocsátása mellett jut ismét alapállapotba. A folyamat során a neutron energiát veszít. Rugalmas szórás esetén az ütközési partnereknek csak a kinetikus energiája és a mozgásuk iránya változik meg, gerjesztés nem történik. A neutronszórás sugárvédelmi jelentőségét az adja, hogy az ütközések során a neutronok termikus energiaszintre lassulnak, ezzel növelve a neutronbefogás valószínűségét. Neutronokat termalizáló közegnek elsősorban kis rendszámú anyagok (főképp a hidrogén) alkalmasak, mivel azok mérettartománya közel esik a neutronokéhoz [1].

A szórással ellentétben neutronbefogás esetén a neutron és az atommag között lejátszódó reakció eredményeként új izotópok keletkeznek. Amennyiben a keletkezett izotóp radioaktív, a folyamatot felaktiválódásnak nevezzük. E folyamatot szekunder részecskék kilépése kíséri. A neutronbefogás lejátszódásának valószínűsége függ a neutron energiájától. Ennek a valószínűségnek a kifejezésére a reakció hatáskeresztmetszete szolgál. A hatáskeresztmetszet az a neutron irányára merőleges kiterjedési síkon elfoglalt (fiktív) terület, amelyet az ütköző részecskék egymásnak célfelületként nyújtanak az ütközési kölcsönhatás szempontjából, mintha klasszikus kiterjedt részecskék lennének. Jele:  $\sigma$ , mértékegysége barn.  $1 \text{ barn} = 10^{-28} \text{ m}^2$  [4].

A neutronenergia függvényében többféle neutronbefogással járó reakció is lejátszódhat, melyek hatáskeresztmetszete is energiafüggő. Ezek közül a lassú

neutronok abszorpciója a legnagyobb valószínűségű kölcsönhatás típus, azonban ennek a hatáskeresztmetszete is nagymértékben izotóp- és energiafüggő. Az energiafüggés szemléltetésére egy sugárvédelem szempontjából fontos reakció, a  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  hatáskeresztmetszetének változását mutatja be a 2. ábra. A legtöbb elem esetében az abszorpciós hatáskeresztmetszet kisebb energiákon a neutronok sebességével fordított arányban növekedő tendenciát mutat, ez az  $1/v$  szabály. Ennek oka, hogy minél lassabb egy neutron, annál több időt tölt egy atommag közelében, tehát annál nagyobb a valószínűsége, hogy kölcsönhatásba lépnek egymással. Számos reakciónál - így például a  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ -nál is -megfigyelhetők rezonanciák. Ezek olyan viszonylag szűk energiatartományok a termikus energiatartomány felett, ahol hirtelen nagyságrendeket nő, majd csökken (visszatér az  $1/v$  típusú energiafüggéshez) a neutronbefogási hatáskeresztmetszet [5].



2. ábra: A  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$  reakció hatáskeresztmetszete [6]

Kellően nagy energiájú neutronok képesek küszöbenergiás reakciók kiváltására, mint  $(n,p)$ ,  $(n,2n)$ ,  $(n,\alpha)$ ... Ezek szintén neutronbefogással és töltött részecske kibocsátással járó reakciók. Ezekről a reakciókról általánosságban elmondható, hogy nagyságrendekkel kisebb a hatáskeresztmetszetük, mint az  $(n,\gamma)$  reakcióknak,

azonban kiugróan nagy hatáskeresztmetszetű rezonancia tartományok ezen reakciók esetében is előfordulhatnak [1].

A neutronaktivációhoz kapcsolódó sugárvédelmi problémák 2 csoportra oszthatók. Egyrészt üzemeltetés közben biztosítani kell a neutronaktivációhoz kapcsolódó másodlagos sugárzások és bomlási sugárzások (lásd részletesebben 1.2.2. fejezet) elleni védelmet, másrészt biztosítani kell a hosszútávon is radioaktív anyagok megfelelő tárolását - ideértve a sugárvédelmi funkció betöltése során felaktiválódott anyagokat is.

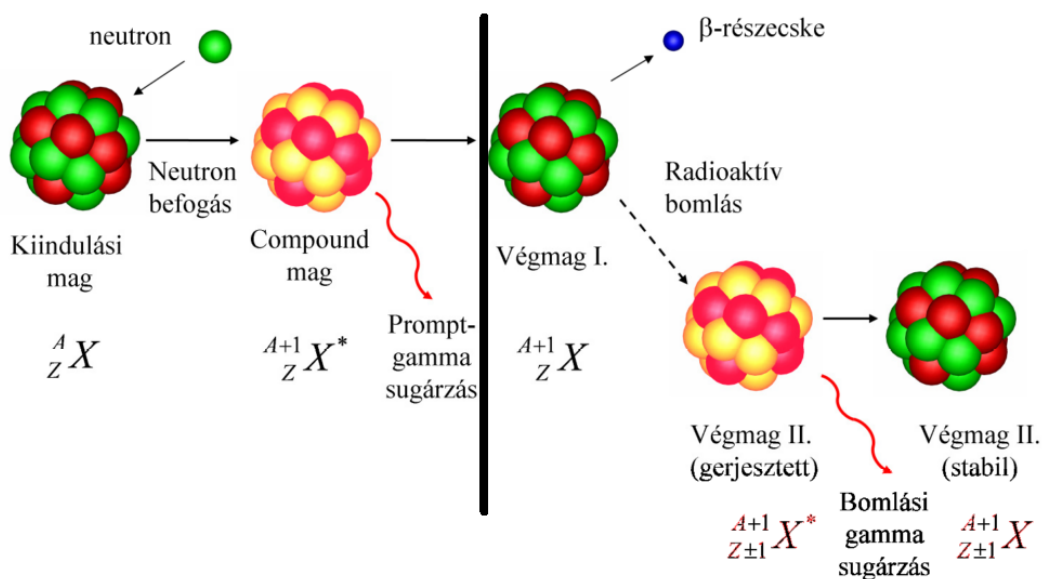
### **1.2.2 Neutronaktiváción alapuló mérés technikák**

Az előző fejezetben többször említésre kerültek a neutron-anyag kölcsönhatásokat kísérő másodlagos sugárzások. Ezek közül sugárvédelmi szempontból legnagyobb jelentősége a gamma-sugárzásnak van. A gamma-sugárzásnak számos elemanalitikai szempontból előnyös tulajdonsága van, mint az energiaszelektivitás vagy az alacsony detektálási határ, így több eljárás is épül a gamma-sugárzás mérésére. Ezen mérés technikák nagy előnye, hogy számos sugárvédelmi szempontból kritikus elem esetén jóval alacsonyabb (kedvezőbb) kimutatási határral rendelkezik mint más mérési eljárások [7].

A két, neutronaktivációt követő gamma-sugárzáson alapuló mérési eljárás, melyeket az elemanalitikai vizsgálatok során is alkalmaztam, a Neutron Aktivációs Analízis (NAA) és a Prompt-Gamma Aktivációs Analízis (PGAA). A két eljárás elméleti háttérét a 3. ábra mutatja be. Neutronbefogás esetén a neutronok elnyelődnek a célmagokban, melynek következtében a felszabaduló kötési energia miatt a magokból gerjesztett, átmeneti mag alakul ki. Ebből alapállapotba prompt-gamma sugárzás kibocsátása mellett jutnak el. PGAA során ezt a prompt-gamma sugárzást detektáljuk, és vonunk le belőle az azt kibocsájtó izotópra és annak kiindulási izotópjára vonatkozó minőségi és mennyiségi következtetéseket. A prompt-gamma sugárzás kibocsájtása után az alapállapotba került mag lehet stabil vagy instabil. Mivel neutronbefogás esetén az adott rendszámhoz tartozó stabilitást biztosító neutron-proton arány felborul, ezért az instabil izotópok a legtöbb esetben  $\beta$ -bomlók. Amennyiben a  $\beta$ -bomlás a leánymag egy gerjesztett nivójára történik,

a gerjesztett nívó és az alapállapot közti energiának megfelelő bomlási gamma foton(ok) lépnek ki. Ezeket a karakterisztikus gamma-sugarakat detektálva és elemezve az NAA keretében a PGAA-hoz hasonlóan elemi összetételre vonatkozó információk nyerhetők. A két technika által analizálható elemek köre és kimutatási határa eltérő [7].

A doktori kutatás keretében végzett PGAA és NAA mérések részletesebb leírását és eredményeit a 2.2.1 és 2.2.2 fejezetek tartalmazzák.



3. ábra: Neutronok által indukált magreakciók és az azokat kísérő sugárzások [2]

### 1.2.3 Neutronok betonöregítő hatása

Bár jóval kevesebb figyelmet kap, hiszen kisebb mennyiségű sugárvédelmi betont érint, a neutronok amellet, hogy a beton szerkezeteket felaktiválják, öregítik is azokat, vagyis olyan (kristály) szerkezeti károkat okoznak bennük, melyek a beton szilárdságának csökkenéséhez vezetnek. Ez a probléma hagyományosan a reaktortartályok körüli beton védelmeket érinti, mivel ezek kapnak akkora neutronfluenst élettartamuk alatt, ami felett már számottevő lehet a szerkezeti elváltozás. A reaktorok mellett erre a kérdésre érdemes lehet figyelmet fordítani a napjainkban egyre szaporodó nagyteljesítményű, gyorsító vezérelt neutronforrások esetén is.

A neutronok betonkárosító hatása előtt röviden a gamma-sugárzás betonra gyakorolt hatásaira is érdemes kitérni. Nagy neutronfluxusú dózisterekben mindig jelen van a gamma-sugárzás is, mint a neutronkölsönhatások kísérő sugárzása, de akár más forrásból származó gammák is megjelenhetnek – például reaktortok esetén a reaktortartályban lejátszódó kölcsönhatások folyamányaként is éri gamma-sugárzás a védelmi betont. A gamma-sugárzás a cementkőben radiolízist okoz, melynek következménye a beton kúszási- és zsugorodási jellemzőinek megváltozása, illetve a radiolízis gáz fejlődése. Tartós kitettség esetén a szilárdság és a rugalmassági modulus is csökken, észrevehető káros hatás azonban csak  $10^8$  Gy dózis fölött várható [8]. Ez a hatás viszonylag könnyen vizsgálható (és vizsgált is) nagyteljesítményű gamma-besugárzó létesítményekben, így a kutatás során a neutronok betonkárosító hatására és annak vizsgálati lehetőségeire fókuszáltam.

A neutronsugárzás a jól kristályosodott, sűrű anyagokra gyakorol jelentősebb negatív hatást, szemben a porózus, rendszertelen szerkezetekkel. Betonokban a cementkő képezi a kikristályosodott fázist, tehát ennek a belső szerkezetében okoznak nagyobb károsodást a neutronok, szemben az adalékanyagokat tartalmazó fázissal [9]. Szilárdságváltozáshoz (leginkább szilárdságcsökkenéshez) jellemzően a cementkő hidrolízise és a C-S-H kötések sérülése vezet. Ebben fontos szerepet játszik a cementkő magasabb víztartalma az adalékanyagok víztartalmához képest. Adalékanyagokban a neutronok a rácscok atomjaival ütközve megnövelik a rácsállandót, és a rácshibák eredőjeként az adalékanyag tágulásához vezetnek. Az adalékanyagok és a cementkő eltérő térfogati változásai miatt a köztük lévő kohézió gyengül, ami miatt hosszabb távon repedések jelennek meg a betonban [10].

Ezt a folyamatot erősítheti a magreakciók nyomán jelentkező magas hőmérséklet ( $70-80^\circ\text{C}$  felett), amennyiben az érintkező anyagok hőtágulási együtthatói jelentős mértékben eltérnek egymástól. A magas hőmérséklet a gázok felszabadítását is serkenti. Ez inhomogén eloszlású nyomás növekedéshez vezet a betonban, melynek nyomán az kitágul, és repedéseket jelennek meg, illetve növekednek tovább [9].

### **1.3 A sugárvédelemben használt betonok jellemzése**

A beton egy több ezer éves múltra visszatekintő építőanyag, mely ma a világ legnagyobb mennyiségben felhasznált, mesterségesen előállított anyaga. A beton egyszerűen megfogalmazva egy kötőanyag, adalékanyag és víz keverékéből álló, hidratáció hatására megszilárduló építőanyag. A kötőanyag általában cement, az adalékanyag pedig kavics és homok. Emellett napjainkban széleskörűen elterjedt a különböző adalékszerek alkalmazása is [11].

A frissbeton a fenti alkotóelemek összekeverése után először a kötés, majd a szilárdulás szakaszába lép. A keverékekben felhasználandó cement klinker hidratációja során a kalciumhidroxid-kalciumszilikát-kalciumaluminát gélrendszerből szilárd kristályos hidrát termékek válnak ki, és összefüggő vázszerkezetet alkotva kialakul a szilárd cementkő. A hidratációs termékek kialakulásához víz és hely kell, ezért ha a víz-cement tényező kisebb, mint 0,32 – 0,36, akkor kellő mennyiségű víz és kapilláris pórus hiányában gátolt hidratáció lép fel. A gélréteg kezdetben duzzad, majd vízvesztés közben a cementkővé szilárduló cementpép (cement + víz) zsugorodik [12].

A megfelelő hidratációs folyamat óriásmolekulájú kristályos molekulákat hoz létre, amelyek megszakítások nélkül összezáródnak. A szilárdulás folyamán az első időkben kolloid méretű gélszerű állapot áll elő. Ezek növekedésével rostos hálózat keletkezik, melyek között víz helyezkedik el (fizikailag – adszorpciós erővel és hidrogénhidakkal – kötött víz). A cement kötése és szilárdulása exoterm folyamat; ez a hő hajtja ki a felesleges vizet [11].

A sugárvédelmi betonok neutronárnyékolása három lépésre bontható gyors neutronok esetén:

1. neutronok termalizálása
2. neutronok abszorpciója
3. a keltett gamma-sugárzás árnyékolása.

Amennyiben a neutronspektrumban vannak gyors neutronok (például reaktorok körüli védelem esetén), azokat célszerű először termalizálni, hogy ezzel megnöveljük a neutronabszorpció valószínűségét (lásd részletesebben az 1.2.1. fejezetben). Erre a legalkalmasabbak a kis rendszámú elemek, mint a hidrogén [13]. Mivel a hidrogén nagy része víz formájában van jelen a betonokban,



ezért a betonok víztartalma, és a víztartalom megtartásának képessége fontos paraméter sugárvédelmi célra használt betonoknál. Szimulációk esetén is fontos a víztartalom minél pontosabb ismerete, hiszen az nagyban befolyásolja a neutronteret – különösen a beton mélyebb rétegeiben. Magas hidrogéntartalom más úton is elérhető: a PE-B4C-beton esetén például polietilén adagolásával érik el.

Az imént részletezett módon lelassult neutronok már nagyobb valószínűséggel fogódnak be a beton mélyebb rétegeiben. Bár rendkívül eltérő hatáskeresztmetszettel, de neutronabszorpció bármely elemi betonalkotó részecskén történhet. Árnyékoló betonok összetételének optimalizációja során az abszorbeáló anyagok mérlegelésénél két szempontot kell figyelembe venni: egyrészt célszerű nagy neutronbefogási hatáskeresztmetszettel rendelkező elemeket alkalmazni (például bór a bóros betonokban vagy a PE-B4C-betonban) és figyelembe kell venni a keletkező radioaktív termékek tulajdonságait is. Elsősorban ezen szempontok mérlegelését, kvalitatív és kvantitatív becslését támogatják a 2. és 3. fejezetben részletezett kutatások.

A sikeres neutronárnyékolás utolsó lépése, hogy a magreakciók által keltett másodlagos sugárzásokat – ezalatt alapvetően a gamma-sugárzásra kell gondolni - is leárnyékolja a védelmi beton. A gamma sugárzás árnyékolását a következő összefüggés írja le [13]:

$$I = B * I_0 * e^{-\mu x} \quad (1)$$

ahol:

- $I_0$  a gyengítetlen nyaláb intenzitása [részecske/s]
- $x$  a homogén közeg vastagsága [m]
- $\mu$  a lineáris gyengülési együttható [1/m]
- $B$  a felhalmozódási tényező (build-up factor) [-].

Gamma-sugárzás esetén a lineáris gyengülési együttható egyenesen arányos az anyag sűrűségével, vagyis minél nagyobb egy anyag sűrűsége, annál jobb a gamma-árnyékoló képessége. Emiatt elterjedt a nagy sűrűségű, úgynevezett nehézbetonok alkalmazása ilyen célra. Mivel a sugárvédelmi betonok jellemzően vastagok, ezért általában a felhalmozódási tényezővel is számolni kell (vékonyabb árnyékoló rétegek esetén elhanyagolható). A felhalmozódási tényező azt fejezi ki, hogy a Compton-szórás következtében szórt fotonok lépnek ki a szórás helyéről

irányváltotatással és lecsökkent energiával, melyek egy része azonban ugyan úgy a vizsgálat tárgyát képező térrész irányába halad, így az intenzitás egy, a rétegvastagsággal egyre növekvő hányadát a szórt fotonok teszik ki. Ezt a többletet a B felhalmozódási tényezővel fejezzük ki, amelynek értéke a definíciónak megfelelően csak 1-nél nagyobb szám lehet [1].

A disszertációban két neutronárnyékolásra tervezett betonnal foglalkoztunk részletesebben: egy barit betonnal és a PE-B4C-betonnal.

A 3.3. fejezetben Žagar és munkatársai [14] nyomán egy barit betont vizsgáltunk, melynek fő összetevői az 1. táblázatban láthatók, összehasonlítva egy általános nehézbetonnal. Egy általános nehézbeton főleg mészkövet és szilícium-oxidot tartalmaz, míg a barit betonok aggregátumai főleg bárium tartalmú vegyületeket, mint a barit (bárium-szulfát) és witherit (bárium-karbonát). A bemutatott betonokban Portland cementet használtak.

<b>Általános nehézbeton</b> ( $\rho = 3,1 \text{ g/cm}^3$ )	<b>w%</b>	<b>Barit beton</b> ( $\rho = 3,5 \text{ g/cm}^3$ )	<b>w%</b>
Aggregátum - főleg mészkő	61	Barit	60
Homok	11	Limonit	22
Portland cement	13	Portland cement	11
Víz	15	Víz	7

**1. táblázat: A Žagar és munkatársai által publikált általános nehézbeton és barit beton fő összetevői [14]**

A 2. fejezetben kerül részletes elemzésre a PE-B4C-beton. Ebben az Európai Neutronkutató Központban kifejlesztett betonban egy általános normál beton kavics tartalmának egy részét cserélik le úgy, hogy a végső összetétel körülbelül 0,76 w% B<sub>4</sub>C-t és 10,2 w% polietilént tartalmazzon [15]. Ezek az összetevők a fentebb részletezett módon járulnak hozzá a neutronok termalizálódásához és abszorpciójához. A PE-B4C-beton neutronárnyékoló képességének növekedését a nem adalékolt betonokhoz képest a következő cikkben vizsgálták részletesen: [16].

## **1.4 Szimulációk alkalmazása a sugárvédelmi tervezésben**

A szimulációs kódok használata egyre elterjedtebb a sugárvédelem minden területén, hiszen számos előnyük van. Ezeket az előnyöket részletezi a 1.4.1. fejezet. A rákövetkező, 1.4.2. fejezet ezen kódok működési elvét mutatja be, illetve a kutatásokban használt kódok működésének gyakorlati részleteit is ismerteti.

### **1.4.1 A modellezés előnyei a sugárvédelemben**

A számítógépes kapacitások növekedése és a szimulációkban használható programok fejlődése révén napjainkban egyre inkább a modellezés felé tolódik el a sugárvédelmi tervezés, hiszen számos előnye van mind az analitikus számításokkal, mind a mérésekkel szemben.

Az analitikus számítások továbbra is jól használhatók egyszerű geometriájú szerkezetek esetén nagyságrendi sugárvédelmi becslésekhez, vagy akár a modellszámítások során kapott eredmények ellenőrzéséhez is. Bonyolultabb elrendezések, például labirintusok, vagy lokálisan eltérő védelem esetén azonban, mint faláttörések, hézagok, ajtók esetén már általában nem szolgálnak kellően pontos eredménnyel. Szintén problematikus az analitikus dózisszámítás összetett dózisterek esetén (például több forrás) vagy sok komponensű, több paramétertől függő esetekben, amilyen tipikusan egy anyag felaktiválódásának számítása. Egy következő nehézség (számítás szempontjából), hogy egy folyamatosan üzemelő sugárforrás környezetében nagyon alacsonyan kell tartani a dózisteljesítményt ahhoz, hogy az éves dózismegszorításnak meg lehessen felelni, főleg akkor, ha a közelében állandó jelleggel tartózkodik nem sugaras munkavállaló is. Ilyen alacsony dózisterek számításánál is megmutatkoznak az analitikus számítások korlátai. Ezen tényezők, és a sugárvédelmi gyakorlatban alkalmazott konzervativizmus miatt az analitikus számítások túltervezéshez vezethetnek: a felelősségteljes tervezők analitikus számításokra alapozva a szükségesnél több védelem alkalmazását írhatják elő, mely többletkiadásokat jelent. Ezen problémák kiküszöbölésére jó megoldás a szimulációk alkalmazása, mely pontosabb számításokkal nagyban hozzájárulhat a sugárvédelem optimalizálásához.

Az analitikus számítások mellett továbbra is a sugárvédelmi gyakorlat részét képezik a mérések, kísérletek, azonban ezek is egyre inkább visszaszorulóban vannak a szimulációk térnyerése miatt. A szimulációknak a kísérletekkel szemben is számos előnyük van. Az első és legfontosabb előnyük, hogy olyan konfigurációk, körülmények is modellezhetők, melyek mérési megvalósítása lehetetlen vagy túlságosan költséges. Ilyen a nagy méretű egységek modellezése, melyeket nem lehet betenni a valóságnak megfelelő méretű sugárzási térbe: például egy 1-2 méter vastagságú árnyékoló beton metszet nem helyezhető be egy kellően nagy fluxusú reaktormag környéki besugárzó csatornába. A megfelelő besugárzási idő elérése is nehézségekbe ütközhet: teljes élettartamot vizsgáló problémák esetén (például felaktiválódás egy atomerőmű vagy kutatási létesítmény élettartama alatt) nagyon hosszadalmas lenne a megfelelő fluens elérése egy kísérlet során. Összetettebb sugárzási terek (ideértve egy széles energiaspektrummal rendelkező neutronforrást is) esetén az eredeti neutronspektrum kísérleti közelítése is bonyolult, ráadásul általában csak a fluxus további csökkenése mellett oldható meg. Kísérleti vizsgálatok során az optimalizáció is rendkívül erőforrás igényes feladat: az érzékenységvizsgálatok számos minta előkészítését, besugárzását, mérését és kiértékelését igénylik, míg szimulációkban akár egyetlen modellen belül is definiálni lehet az érzékenységvizsgálat paramétereit.

Maradtak azonban olyan területek, ahol továbbra is elengedhetetlenek a mérések, kísérletek, vagy jól kiegészítik a modellezést. Ilyenek a nukleáris analitikai mérések: az 1.2.2. fejezetben részletezett NAA és PGAA méréseket például nem lehet modellezéssel helyettesíteni – bár hatékonyabbá tenni igen -, viszont fontos elemösszetétel adatokkal szolgálnak a modellezéshez. Azt is fontos kiemelni, hogy a manapság használt szimulációs szoftvereket mérésekkel validálták, méréseken alapuló könyvtárakkal dolgoznak, és továbbra is hasznos visszajelzést nyújthatnak a mérések, kísérletek, amennyiben a szimulációk eredményeit lehetőségünk van összehasonlítani azokkal. A mérés és modellezés szinergiái jól kamatoztathatók nehezen mérhető radioizotópok esetén is: ha elemanalitikai mérésekkel meghatároztuk egy hulladékcsomag összetételét és a könnyen mérhető radioizotópokat (tipikusan a gamma-sugárzó izotópok), modellezéssel meg tudjuk becsülni a nehezen mérhető (például alfa vagy béta-sugárzó) radioizotópokat is.

## 1.4.2 Az alkalmazott szimulációs kódok működése

A kutatások során két, működési elvben alapvetően eltérő kódot használtam: egyrészt egy részecsketranszport kódot, ami a részecskék térben való mozgását, és az útjuk során bekövetkező prompt reakciókat modellezi, másrészt egy dedikáltan felaktiválódás és bomlás számításához fejlesztett kódot is alkalmaztam.

Jelenleg számos részecsketranszport kód elérhető, melyek közül az MCNP (Los Alamos) [17] és a Geant4 (CERN) [18] a legelterjedtebb, de a PHITS [19] és a FLUKA [20] is széles felhasználói körrel rendelkezik, illetve egyre nagyobb népszerűsége tesz szert a nyílt forráskódú Open-MC [21]. Ezek mind Monte Carlo-alapú kódok, melyek részecskékkel lejátszódó folyamatokat modelleznek sztochasztikus szimulációkban. A Monte Carlo (MC) módszer lehetőséget teremt arra, hogy olyan összetett geometriákon és nagy távolságokon is átjuttassunk kevés, de nem elhanyagolható mennyiségű részecskét, melyek determinisztikus számítások segítségével nem lennének elfogadható pontossággal meghatározhatók [22]. Ez úgy lehetséges, hogy a szimulációkban a részecskék útját az elemi kölcsönhatási részfolyamatok hatáskeresztmetszeteit tükröző valószínűségi mezőből sorsolt események sorozata határozza meg, így nagyon kis valószínűségű eseménysorozatok eredményei is meg tudnak jelenni az eredményekben. MC szimulációkban gyakran szükséges szóráscsökkentő eljárások alkalmazása olyan esetekben, amikor csak a részecskék elenyésző hányada jut el a probléma szempontjából releváns térfogatba. Szóráscsökkentés lehetséges például a mintavétel torzításával, bizonyos térfogatok súlyfaktorának módosításával, vagy a probléma szempontjából irreleváns részecskék (nem megfelelő részecske típus, túl alacsony energia) kiiktatásával. Szóráscsökkentő módszereknél nagyon fontos, hogy az eredmény torzítatlan maradjon, vagyis hogy ne változzon az eredmény várható értéke, csak a szórása csökkenjen [17].

A részecsketranszporttal szemben az izotópok felaktiválódásának és bomlásának számítása, illetve a bomlásuk által generált gamma-dózistér meghatározása determinisztikus módszerekkel történik. Ezekre részben azért van szükség, mert a részecsketranszport kódok egy részében nem megoldott az idő, mint változó kezelése vagy meglehetősen erőforrás igényes. Izotópleltár számítására

alkalmas kódok többek között a Cinder [23], a FISPACT [24], az ORIGEN-S [25] és az ACTYS [26]. Ezek a kódok a következő (2) Bateman-Rubinson-egyenletrendszerrel oldják meg [27], [28]. Az egyenlet az egyes izotópok mennyiségének változását írja le az idő függvényében, és két tagból áll: a forrás tag a vizsgált izotóppá való alakulást írja le, a fogyás tag pedig a vizsgált izotóp más izotóppá történő alakulását:

$$\frac{dN_m(t)}{dt} = -N_m(t)\beta_m + Y_m + \sum_{k \neq m} N_k(t)\gamma_{k \rightarrow m} \quad (2)$$

ahol:

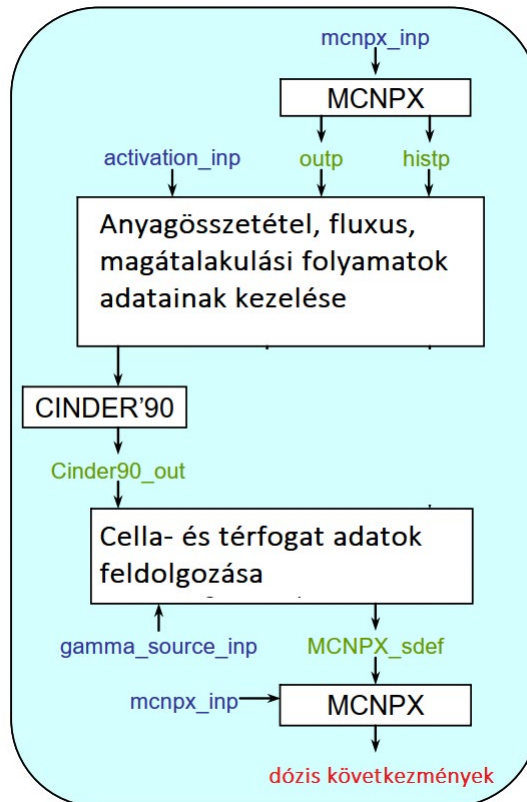
- $N_m$  az  $m$  atom atomsűrűsége [ $1/\text{cm}^3$ ]
- $t$  az idő [s]
- $\beta_m$  az  $m$  nuklid átalakulásának összesített valószínűsége
- $Y_m$  a számítás energiatartományán túli energiájú részecskék járuléka  $m$  atom keletkezéséhez
- $N_k$  az  $k$  atom atomsűrűsége [ $1/\text{cm}^3$ ]
- $\gamma_{k \rightarrow m}$  annak a valószínűsége, hogy  $k$  atom  $m$  atommá alakul (bomlással vagy abszorpcióval)

A disszertációban bemutatott szimulációkat MCNP (MCNPX [29] és MCNP6 [17]) és Cinder1.05 [23] kódok segítségével végeztem. A két kód együttes használata alkalmas izotópleltár számítására, vagy egy felaktiválódott anyagdarab környezetében adódó dózistér meghatározására. A két program egymásba kapcsolódását a 4. ábra mutatja. A folyamat első lépésben az MCNPX átlagos neutronfluxust számol egy általunk megadott (felaktiválni kívánt) mintatérfogatra. Ehhez 4 bemenő paraméterre van szüksége:

- a probléma geometriájára, vagyis a valóság 3D-s leképezésére,
- az tereket kitöltő anyagok összetételének meghatározására,
- a sugárzási forrástagn definiálására és
- és a szimulációban használt fizikai modellek, könyvtárak kiválasztására. (Az alapbeállításként rendelkezésre álló fizikai paraméter beállítások konvencionális problémák esetén megfelelően működnek, nem szükséges rajtuk változtatni.)

A második lépésben a Cinder kiolvassa a fluxust közvetlenül az MCNPX által generált output fájlokból, és elvégzi az adott térfogatban található izotópleltár kiszámítását az általunk definiált besugárzási- és hűtési időkre. A 3. fejezetben részletezett kutatásban csak ezeket a lépéseket használtam, hiszen abban az esetben az adódó izotópleltár volt a kívánt végeredmény.

A folyamat harmadik lépése – melyet 2. fejezetben bemutatásra kerülő kutatásban alkalmaztam – a bomlási gamma-sugárzások dóziskövetkezményeinek kiszámítása. Ehhez a Cinder generál egy olyan bomlási gamma-sugárzást tartalmazó új forrástagot, melyet az MCNP képes lefuttatni egy újabb részecsketranszport szimulációban.



4. ábra: Az MCNPX és a Cinder1.05 kapcsolódási pontjai [23]

## **2 Bomlási gamma-sugárzások hatása felaktivált sugárvédelmi betonok környezetében**

Mint azt az 1.2.1-es fejezetben részletesen bemutattam, a neutronsugárzás hatására felaktiválódó izotópok jelentős része radioaktív, így ezen izotópok bomlását kísérő (jellemzően gamma) sugárzások elleni védekezésre is fel kell készülni. (A továbbiakban a „sugárterhelés” fogalmát „külső sugárterhelés”-ként használjuk. Lehetséges, például baleseti helyzetben, vagy a létesítmény leszerelése során, hogy a betonból keletkezett por inkorporálódása miatt a belső sugárterhelés lehetőségét is vizsgálni kell.) Mivel a prompt sugárzások mindig nagyságrendekkel nagyobbak, ezért a bomlási sugárzások elsősorban olyan helyeken jelentenek problémát, melyek normál üzemi körülmények között elzárt területek a túl nagy prompt sugárzás miatt, időszakosan azonban karbantartásra szorulnak.

Ebben a fejezetben az Európai Neutronkutató Központ (angol nevén European Spallation Source, rövidítve és a továbbiakban ESS) egy ilyen területének sugárvédelmével kapcsolatos kutatást mutatok be. A kutatásban azt vizsgáltam, hogy a sugárvédelmi betonok pontos, elemi szintű összetételének alkalmazása hogyan befolyásolja a bomlási gamma-dózisteret a névleges, alapvetően főkomponenseket tartalmazó betonösszetétellel futtatott szimulációkhoz képest. A kérdés azért merült fel, mert a legtöbb sugárvédelmi szimulációkhoz javasolt betonösszetétel könyvtár (például [30]) nem tartalmaz nyomszennyezőket, mivel azoknak nincs jelentős szerepük az árnyékolásban, azonban a nagy neutronbefogási hatáskeresztmetszetű nyomszennyezők meghatározóak lehetnek a bomlási dózistérben [31] [32].

A kutatás eredményeit az alábbi, *Applied Radiation and Isotopes* folyóiratban megjelent cikkben foglaltuk össze [33].

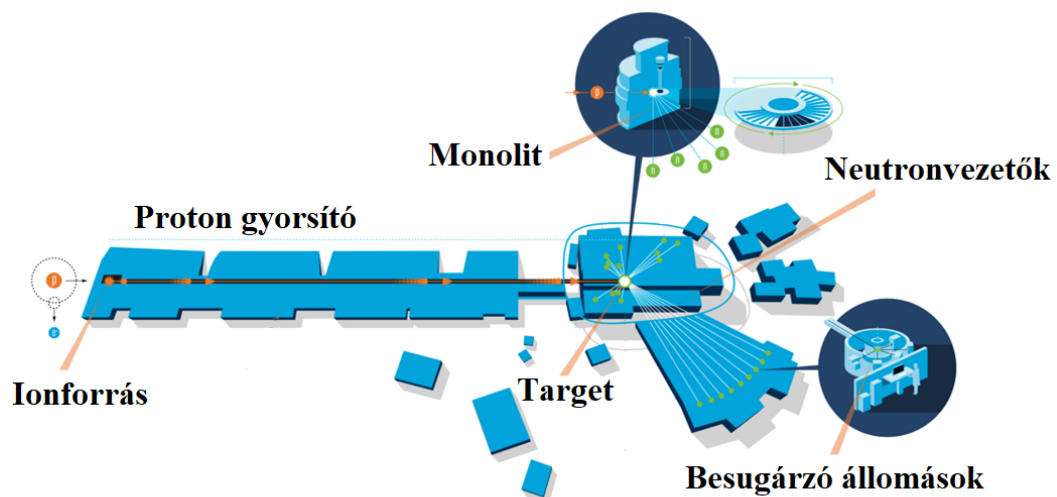
### **2.1 Az Európai Neutronkutató Központ bemutatása**

A 20. század közepétől a világ számos országában létesítettek az atomerőművek mellett kutatási célú, reaktoralapú neutronforrásokat is. Ezek üzemideje a 2000-es évektől elkezdett lejárni, és napjainkban is folytatódik az elavult kutatóreaktorok leállítása. A problémát érzékelve az OECD országok 1998-ban 3 nagy protongyorsító alapú neutronforrás létrehozása mellett döntöttek,



melyek közül az egyik az Európai Neutronkutató Központ. A gyorsítóalapú neutronforrások előnye a reaktoralapúakkal szemben, hogy nem szükséges hozzájuk hasadóanyag, így a kapcsolódó biztonsági kockázatok - és ezáltal a fizikai védelemre fordítandó kiadások is - jelentősen alacsonyabbak. Emellett általában nagy aktivitású hulladék sem keletkezik bennük, így leszereléskor is jelentős megtakarítás érhető el. Az ESS építése 2014-ben kezdődött a svédországi Lundban, a próbaüzem 2025-től várható [34].

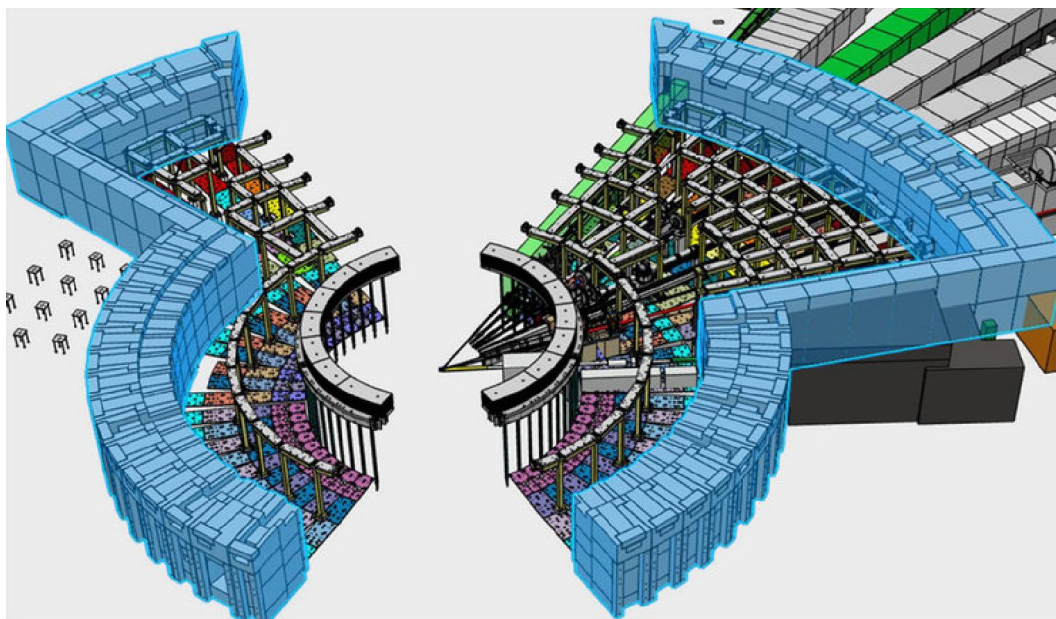
Az ESS felépítését az 5. ábra mutatja be. A berendezés első egysége az ionforrás, mely protonokat generál. A létrehozott protonok egy többlépcsős, összesen közel 600 m hosszú lineáris protongyorsítóban érik el végleges, 2 GeV-es energiájukat. Ezt követően egy szilárd, forgó volfrám targetbe (céltárgyba) ütköznek, és spallációt váltanak ki, azaz a volfrám atommagból kisebb részeket kihalászva nagy mennyiségű, tipikusan 20-30 neutronot is felszabadítanak reakciónként. A keletkezett neutronokat moderátorok lassítják le, majd neutronvezetőkön keresztül jutnak el besugárzó állomásokra, ahol különböző anyagvizsgálatokat végeznek a velük. A kezdeti szakaszban 15 állomás lesz elérhető és további 7 tervezése előrehaladott állapotban van. A neutronkivezetések összesen 42 állomás létesítését teszik lehetővé [34].



5. ábra: Az Európai Neutronkutató Központ felépítése [34]

Mivel a kutatásban a Bunkernek nevezett térrész sugárvédelmi betonját vizsgáltam, ezért a Bunkert kicsit részletesebben is bemutatom (lásd 6. ábra). A targetet tartalmazó egységet Monolitnak nevezik. Ez egy henger alakú, alapvetően

nehézbetonból készült szerkezet, a közepén a targettel. Ebből a neutronok lassítás után neutron kivezetéseken keresztül jutnak ki (szürkével jelölt félkör alakú részek a 6. ábra közepén). Ezek a kivezetések neutronvezetőkben folytatódnak. A neutronvezetők első 6,5 vagy 12 méteres szakasza, továbbá a neutron shutterek (a neutronvezetők lezárására, a neutronok megállítására szolgáló eszközök) található a Bunkerben. A Bunker 4 szektorra osztható az égtájaknak megfelelő elnevezéssel. A Bunker normál üzem közben elzárt terület, kizárólag karbantartás alatt közelíthető meg a moduláris bunkertető egy részének eltávolításával [35]. Mivel a Bunkerben eleve nagy a különböző felaktivált komponensek bomlási sugárzásból származó dózis, ezért fontos, hogy a betonfalak dóziszjáruléka minél kisebb mértékben járuljon hozzá a karbantartó személyzet dóziséhoz, és ez a járulék minél pontosabban becsülhető legyen.



6. ábra: 3D modell az ESS Bunkerről. A két belső, szürke, félkör alakú egység a neutron kivezetéseket tartalmazza, onnan kezdődik a Bunker. A kézzel jelölt görbült sugárvédelmi falak 3 m vastagok [36].

## 2.2 Vizsgált beton minták összetétel mérései

A kutatásban három beton vizsgálatára került sor: egy, az ESS-ben számos helyen használt, a Skanska cég által készített általános betonéra [37] (a továbbiakban Skanska beton), az 1.3. fejezetben részletesen jellemzett PE-B4C-

betonéra [15] illetve a PE-B4C-beton alapjául szolgáló, de polietilén és bór-karbid adalékot még nem tartalmazó betonéra (a továbbiakban Referencia beton). A mérésekhez használt mintákat az ESS-től kaptuk örölt beton formában.

Mivel a minták elemösszetételéről teljeskörű képet szerettem volna kapni, az aktiváció szempontjából fontos elemekről pedig minél pontosabb mérési adatokat szerettem volna, ezért NAA, PGAA és XRF technikával is végeztünk méréseket a mintákon. Az egyes mérési technikákat a 2.2.1 - 2.2.3. fejezetekben mutatom be részletesen.

### **2.2.1 NAA mérések**

A Neutron Aktivációs Analitikai (NAA) mérések elméleti hátterét a 1.2.2. fejezetben foglaltam össze. Az NAA mérés előnye, hogy elvéből fakadóan pont azokat az izotópokat méri legnagyobb érzékenységgel, melyek a kutatás szempontjából lényegesek: a neutronbesugárzás után bomlási gamma-sugárzást kibocsátókat, melyek alapvetően határozzák meg a karbantartó személyzet dózisértékét.

A méréseket a Budapesti Kutatóreaktor NAA mérőállomásán végeztük el. A mérőállomás részletes leírását az alábbi publikáció foglalja össze: [38]. A mérésekhez 0,1 g körüli örölt beton mintákat mértem ki kvarc ampullákba. Két sorozatot készítettem a mintákból. Az egyik a Termikus-, a másik a Gyors csatornában került besugárzásra 2 órás időtartamra. Az elemanalízishez szintén szükséges fluxus meghatározása 'Bare Triple-Monitor' módszerrel történt [39]; az ehhez szükséges komponensek szintén a besugárzott csomag részét képezték. A besugárzott mintákat először 4 nap hűtés után, összesen pedig 5 alkalommal mértem egy 3 hetes periódus során HPGe detektorral, alacsony háttérű kamrában, a minta aktivitásához illesztve a mérési paramétereket (mérési idő, minta-detektor távolság) [33] [40]. Egy mérésről készült kép a 7. ábraszerepel. A spektrumok kiértékelése és az elemi összetétel meghatározás Hypermet-PC [38] és KayZero for Windows 3.06 [41] programok segítségével történt.

A beton minták NAA összetétel mérési eredményeit a melléklet 7. táblázat- 9. táblázatai tartalmazzák.



**7. ábra: Az NAA során használt alacsony háttérű mérőkamra benne egy beton mintával (saját kép)**

### **2.2.2 PGAA mérések**

A Prompt-Gamma Aktivációs Analitikai (PGAA) mérések elméleti háttérét a 1.2.2. fejezetben foglaltam össze. A PGAA jól alkalmazható az NAA kiegészítő mérési módszereként, hiszen számos olyan elemet – a csekélyebb érzékenység miatt elsősorban fő komponenseket – lehet vele meghatározni, melyeket NAA-val nem.

A minták a Budapesti Kutatóreaktor PGAA mérőállomásán kerültek besugárzásra és mérésre. A mérőállomás részletes leírását az alábbi publikáció foglalja össze: [42]. A mérésekhez 6 g-os mintákat sugaraztunk be. A kilépő gamma-sugarakat BGO szcintillációs kristállyal körülvett HPGe detektorral detektáltuk, a teljesenergiacsúcsokra vonatkozó relatív érzékenység növelése érdekében. A jelfeldolgozás Canberra AIM 556A analizátor és Hypermet-PC szoftver segítségével történt [43]. Az elemek azonosítása ProSpeRo programmal történt Molnár és munkatársai [44] prompt-gamma könyvtárai alapján [33]. A beton minták PGAA összetétel mérési eredményit a melléklet 7. táblázat- 9. táblázatai tartalmazzák.

### 2.2.3 XRF mérések

XRF méréseket elsősorban azért végeztünk, mert számos elem (olyanok is, melyek se NAA-val, se PGAA-val nem mutathatók ki) precízen mérhető vele viszonylag gyorsan és egyszerűen [45]. Így amellet, hogy egy teljesebb összetevő listát kapunk, arra vonatkozó következtetéseket is levonhatunk, hogy az XRF mennyire lehet alkalmas helyszíni, minőségbiztosítási célokat szolgáló mérésekre.

A mintákat az előkészítés során finomabbra őröltük, majd 2,5 grammos pelleteket préseltünk belőlük, beton típusonként 3-3 darabot, hogy párhuzamos méréseket tudjunk végezni. A kapott beton minták és a belőlük készült pelletek a 8. ábra láthatók.



8. ábra: őrölt beton minták és a belőlük XRF mérésekhez készült pelletek [46]

A mérésekhez egy Epsilon 5 EDXRF készüléket használtunk [47]. A készülékben több másodlagos céltárgy is található, lehetővé téve a különböző elemcsoportok mérését. A több céltárgy hatékony méréseket tesz lehetővé az oxidált állapotban jelenlévő elemekre a nátriumtól az uránig [48], ideértve a lantanidákat is. Mivel a spektrumok jelentősen átlapolnak a Ca-Sc illetve a Fe-Co elempárok esetében, ezért a szkandiumot és a kobaltot külön mértük meg WDXRF segítségével [49], de az európium meghatározását is ez tette lehetővé. Ez azért fontos, mert mint azt a következő fejezetben részletesen kifejtésre kerül, a vizsgált betonokban a két legfontosabb hosszú felezési idejű gamma-sugárzó radioizotóp a kobalt és az európium felaktiválódásából keletkezik.

A beton minták XRF összetétel mérési eredményeit a melléklet 7. táblázat- 9. táblázatai tartalmazzák.

### 2.3 *A sugárzási teret meghatározó izotópok azonosítása*

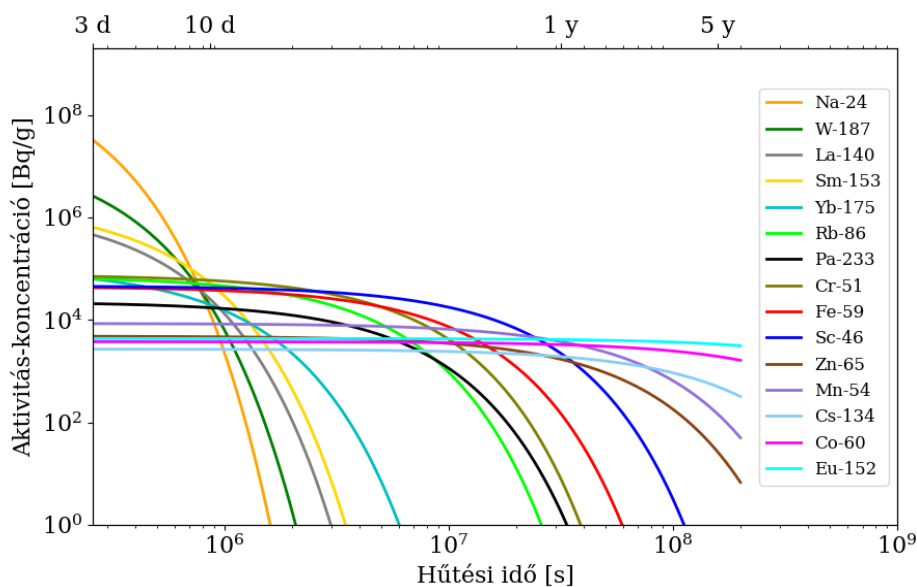
A 2.2.1. fejezetben leírt NAA méréseket nem kizárólag elemanalitikai mérésekre használtam, hanem az azonosított gamma-sugárzó izotópok közül meghatároztam a dózisteret leginkább meghatározó, legfontosabbakat izotópok körét is, melyekre a későbbiekben kulcsizotópként fogok hivatkozni. A kulcsizotóp listának kettős célja van: egyrészt egy ilyen lista önmagában is hasznos a Cinder által generált aktivációs termékeket tartalmazó eredményfájlok kiértékeléséhez, hiszen egy ilyen eredményfájlból akár ezer fölötti (nagy részét irreleváns) izotóp is megjelenhet, másrészt a kulcsizotópok anyaelemeit meghatározva egy olyan elemlistát is létrehoztam, melyek figyelembevételére javasolt a neutronaktivációval kapcsolatos problémák modellezéséhez használt anyagkártyák összeállításához.

Összesen 15 kulcsizotópot azonosítottam egy többlépcsős folyamatban, melyek aktivitáskoncentrációját a 9. ábra lehet követni egy 3 nap és 5 év közötti időintervallumban. A 9. ábra a PE-B4C-betonra vonatkozó adatokat ábrázoltam ki, de a kulcsizotópok megállapításakor mindhárom beton aktivitását figyelembe vettem.

Mivel a mérési adatok csak körülbelül az első két hetes időintervallumot fedték le, ezért először azokat extrapoláltam egy 5 éves időintervallumra, hogy ne csak a karbantartó személyzet sugárvédelmének szempontjából fontos izotópok jelenjenek meg a listában, hanem a hulladékkezelés szempontjából fontos izotópok is. A kiválasztott 15 kulcsizotóp a teljes vizsgált időtartományban az összes aktivitás (a 28 azonosított gamma-sugárzó izotóp) legalább 83%-át adta. A legfontosabb időszakokban pedig, mint a kezdeti, néhány nappal hűtés utániban, illetve az 5 év hűtés utániban pedig az összes aktivitás több, mint 90%-áért feleltek ezek az izotópok [33] [50]. A 9. ábra jól elválnak 3 izotópcsoport 5-5 radioizotóppal. Az első csoport tagjai körülbelül az első 10 napban határozzák meg a betonok aktivitását. Ezek nagyjából 2 hét alatt bomlanak le teljesen. A második csoport tagjai ezt követően dominálnak, és körülbelül 1 év alatt tűnnek el az izotópleltárból. Végül 5 izotóp marad, melyek 5 év után is mérhető aktivitáskoncentrációval rendelkeznek. Az első csoportból kiemelkedik a  $^{24}\text{Na}$  és a  $^{187}\text{W}$ , melyek az első néhány napban dominálnak, így ezeknek kiemelt szerepük van az elsőként megjelenő karbantartó

személyzet dózisének értékelése szempontjából. Az utolsó csoportba tartozó izotópok közül a legnagyobb aktivitáskoncentrációja és leghosszabb felezési ideje a  $^{60}\text{Co}$ -nak és az  $^{152}\text{Eu}$ -nek van, összhangban más kutatók hasonló témában publikált eredményeivel [51] [52].

A 15 kulcsizotóp 14 anyaeleme (a vasból 2 kulcsizotóp is keletkezik), melyek figyelembevétele javasolt beton aktivációval foglalkozó szimulációk anyagkártyáinak összeállításakor a következő: Na, W, La, Sm, Yb, Rb, Th, Cr, Fe, Sc, Zn, Cs, Co, Eu. A legtöbb esetben a radioizotópok ugyanazon elem egy másik izotópjából keletkeztek (n, $\gamma$ ) reakcióval. Kivételt a  $^{54}\text{Mn}$  és a  $^{233}\text{Pa}$  képez, melyek rendre a vas és a tórium aktivációs termékei [33].



9. ábra: A 15 kulcsizotóp bomlásgörbéje a PE-B4C-beton Budapesti Kutatóreaktorban való besugárzását követően [33][50]

#### 2.4 A szimulációkban használt betonösszetételek bemutatása

A korábbi fejezetekben bemutatott anyagösszetétel mérések és kulcsizotópok ismeretében elkészítettem a betonok felaktiválódásának modellezéséhez javasolt anyagkártyákat. Az anyagkártyák az MCNP [17] által olvasható formátumú, kémiai elemekre bontott anyagösszetételeket jelentenek. A 2.4.1. fejezet az összeállítás szempontjait mutatja be, a 0. fejezet pedig az elkészült anyagkártyák validációjáról szól.

#### 2.4.1 Az anyagkártyák összeállításának szempontjai

Az anyagkártyákon szereplő elemeket két csoportra lehet osztani: egyrészt szerepelnek rajtuk azok az elemek, melyek szerepeltek a névleges összetételben is (elsősorban főkomponensek), másrészt olyan, jellemzően ppm nagyságrendben jelen levő elemek, melyek a kulcsizotópok anyaelemeiként azonosításra kerültek a 2.3. fejezetben.

Mivel számos elemre több összetétel mérési adat is rendelkezésre állt, ezért ezekben az esetekben az alábbi szempontok szerint választottam a mérési adatok közül [33]:

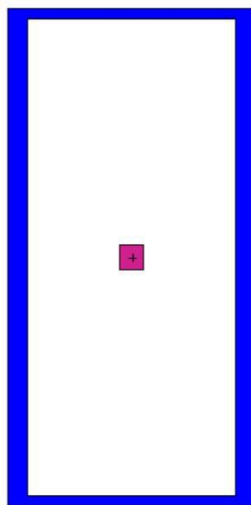
- Mivel az XRF esetén 3 párhuzamos mérés volt minden mintából, ezért ezeknek a méréseknek jobb volt a reprodukálhatósága, így ezeket a méréseket részesítettem előnyben.
- Nagyon kis mennyiségben jelen levő elemek esetén azonban (jellemzően  $10^{-4}$  w% alatt) az NAA méréseket tekintettem reprezentatívnak, mivel az NAA-nak ezekre az elemekre kedvezőbb volt a kimutatási határa. Amikor az XRF és az NAA eredmények között – vélhetően a minták inhomogenitása miatt – jelentősebb eltérések voltak, a sugárvédelemben általánosan elfogadott konzervativizmus elvét követve a nagyobb mérési eredményt használtam az anyagkártyákon.
- Néhány főkomponens esetén csak PGAA mérési eredmények álltak rendelkezésre, ilyenkor ezeket használtam.
- Végül 'puffer elemként' az oxigént használtam. Mivel az oxigén jellemzően a betonok 50 w%-át tette ki, ezért a teljes 100 w%-nyi összetevőből kivonva a többi elemet határoztam meg az oxigéntartalmat. Az oxigénnek nincs szerepe a felaktiválódásban, a többi elem viszont így torzítatlanul jelent meg az anyagkártyákon.

A felsorolt szempontok alapján összeállított anyagkártyákat a melléklet 10. táblázata és 11. táblázata tartalmazza. Az anyagkártyák alkalmazhatóságát egy esettanulmányban, a 0-ös fejezetben mutatom be.

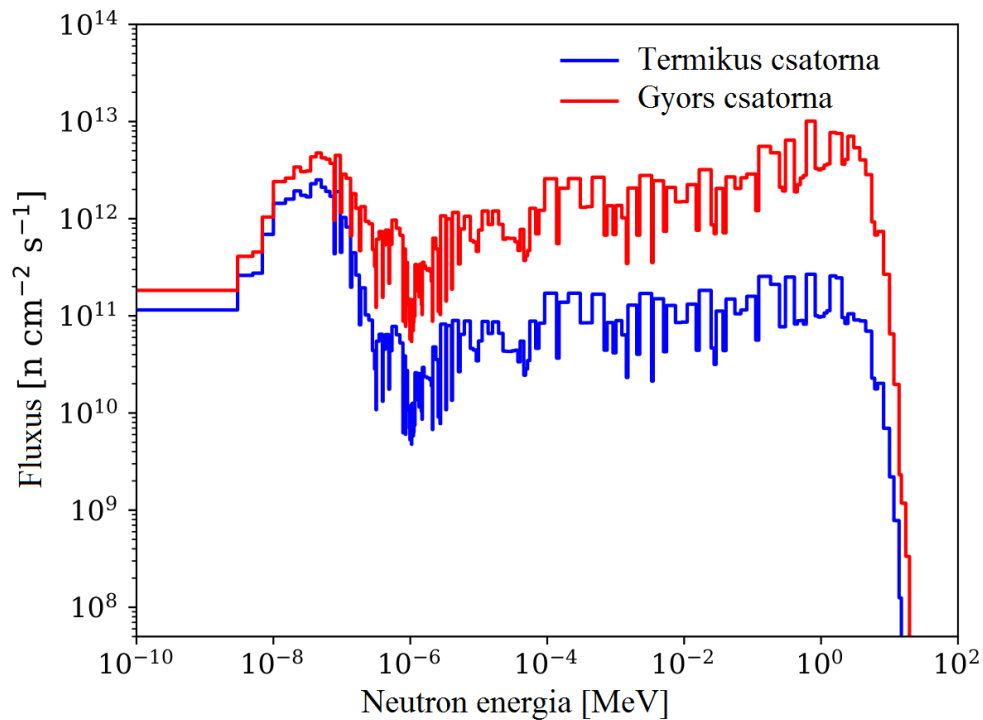


## 2.4.2 Az anyagkártyák validációja

Ahhoz, hogy meggyőződjek róla, hogy az elkészített anyagkártyák megfelelően működnek szimulációkban, megpróbáltam reprodukálni a BKR-ben végrehajtott aktivációs kísérleteket. Ehhez egy egyszerűsített modellt készítettem, ami a 10. ábra látható. A modellben szerepel a 10 cm magasságú, 2,1 cm belső - és 2,5 cm külső sugarú alumínium mintatartó (kék színnel jelölve az ábrán), és maga a minta, melyet egy 0,5 cm élhosszúságú kockának vettem fel az mintatartó közepén (lila színnel jelölve az ábrán). A mintatartó egy 20 cm élhosszúságú kocka közepén volt. Ez a kocka jelentette a modellezett világ határait. A forrás egy homogén térfogati forrás volt, melynek határait a világ határai jelölték ki. A neutronok energiaeloszlása a 11. ábra bemutatott energiaeloszlásokat követte. A modellezés kiterjedt mind a Termikus-, mind a Gyors csatornában végzett besugárzásokra [33] [40].



10. ábra: A méréseket reprodukáló szimulációkhoz használt elrendezés [33]



11. ábra: A BKR Termikus- és Gyors csatornájának neutronspektruma [53]

A szimulációk és a mérések eredményeinek összehasonlítását a PE-B4C-beton esetén a 2. táblázat tartalmazza, felezési idő szerint növekvő sorrendben. Az eredmények hasonlóak voltak a többi beton esetén is, ezért azok táblázatait nem mutatom be külön. A táblázatban található értékeket  $t_0$  időpontban, vagyis a közvetlenül besugárzás utáni, hűtés nélküli időpontban hasonlítottam össze. A mért eredmények így a mérésekből a bomlási egyenlettel erre az időpontra visszszámolt eredmények. Ez az eljárás a szakirodalomban elterjedt módszer hasonló problémák esetén, hiszen nincs olyan valódi mérési pont, ahol az összes izotópnak megfelelően alacsony bizonytalansággal mérhető lenne az aktivitáskoncentrációja egy besugárzás után: a mérés elején a rövid felezési idejű izotópok nagy beütésszáma miatt nagy a hosszú felezési idejű izotópok bizonytalansága (ha látszódnak egyáltalán a spektrumban), később pedig a rövid felezési idejű izotópok teljesen elbomlanak, így nem mutathatók ki.

Izotóp	TERMIKUS CSATORNA			GYORS CSATORNA		
	Mérés [Bq/g]	Szimuláció [Bq/g]	Eltérés [%]	Mérés [Bq/g]	Szimuláció [Bq/g]	Eltérés [%]
Na-24	2.65E+08	3.53E+08	33	9.15E+08	7.59E+08	-17
W-187	4.51E+06	3.95E+06	-12	1.80E+07	1.51E+07	-16
La-140	3.90E+05	5.96E+05	53	1.46E+06	1.32E+06	-9
Sm-153	4.13E+05	3.06E+05	-26	1.92E+06	1.44E+06	-25
Yb-175	3.46E+04	2.40E+04	-31	1.08E+05	5.00E+04	-54
Rb-86	1.28E+04	1.50E+04	17	7.08E+04	7.02E+04	-1
Pa-233	4.45E+03	3.88E+03	-13	2.24E+04	1.60E+04	-29
Cr-51	3.16E+04	3.55E+04	12	7.70E+04	7.60E+05	0
Fe-59	1.75E+04	1.63E+04	-7	4.47E+04	3.77E+04	-16
Sc-46	1.71E+04	1.94E+04	13	4.61E+04	4.12E+04	-11
Zn-65	1.85E+03	1.87E+03	1	4.83E+03	4.76E+03	-1
Mn-54	2.69E+02	2.89E+02	7	8.53E+03	1.27E+04	49
Cs-134	6.06E+02	5.97E+02	-1	2.69E+03	2.49E+03	-7
Co-60	1.38E+03	1.41E+03	3	3.76E+03	3.47E+03	-8
Eu-152	1.60E+03	1.67E+03	5	4.35E+03	3.58E+03	-18

2. táblázat: A kulcsizotópok mért- és szimulált aktivitáskoncentrációja a PE-B4C-beton esetén,  $t_0$  időpontban [33]

A 2. táblázat adatait elemezve az első levonható következtetés, hogy a mérés és szimuláció közti eltérés az esetek jelentős részében 20% alatt maradt, de van néhány kivétel. Különösen a Termikus csatorna eredményein figyelhető meg a trend, hogy a rövidebb felezési idejű izotópok esetén nagyobbak az eltérések. Ezt a mérések nagyobb bizonytalansága okozta, melynek háttérében az áll, hogy a rövid felezési idejű izotópoknál a magas beütésszám megnövelte a holtidőt, ráadásul a legtöbb mért izotóp aktivitása nagyságrendekkel kisebb volt a  $^{24}\text{Na}$  aktivitásánál; vagyis egy  $^{24}\text{Na}$  által jelentősen dominált spektrumban kellett a rövid felezési idejű izotópok mennyiségi meghatározását elvégezni.

Egy másik általános hibaforrás a minták inhomogenitásából fakadt. A betonok alapvetően meglehetősen inhomogén anyagok, különösen a nyomszennyezők tekintetében, így amennyiben nem az NAA mérésből származott egy elemre vonatkozó, anyagkártyán szereplő mennyiségi információ, hanem az XRF mérésből (vagyis nem a reaktorba tett mintadarab összetétele szerepelt az

anyagkártyán, de a reaktorba tett mintadarab mért aktivitásával hasonlítottuk össze a szimuláció eredményét), az átlagosnál nagyobb eltérések adódhattak. Erre jó példa a  $^{140}\text{La}$  esete: a lantán XRF-fel meghatározott mennyisége körülbelül 50%-kal haladta meg az NAA-val mértét. Ez a többlet megjelent a szimulációkban is.

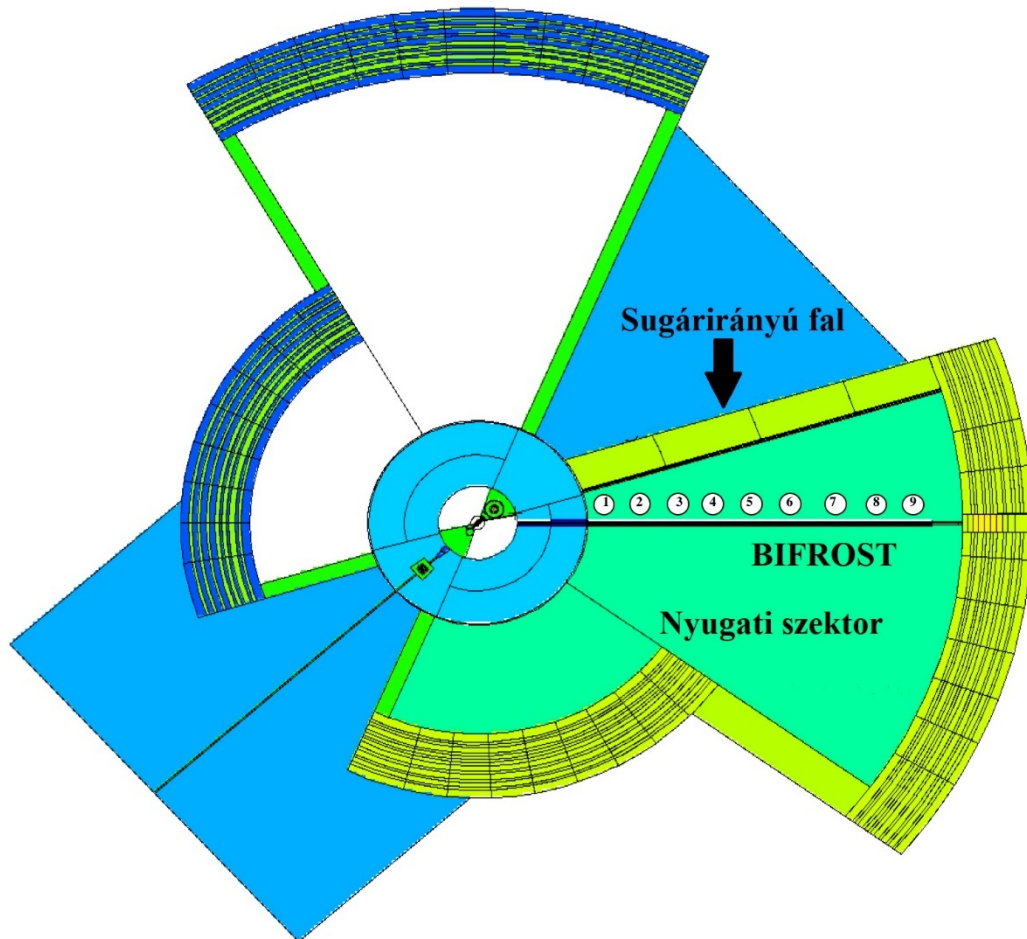
Ezen általános trendek mellett van két izotóp, melyek esetén a nagyobb mért és szimulált értékek közti eltérés oka az izotópok keletkezéséhez vezető reakciókban keresendő; ezek a  $^{54}\text{Mn}$  és a  $^{233}\text{Pa}$ . Míg a legtöbb vizsgált izotóp (n, $\gamma$ ) reakcióval keletkezett, a  $^{54}\text{Mn}$  gyorsneutron-aktivációval (n,p) reakcióban. Valószínűleg e reakció hatáskeresztmetszet könyvtárának nagyobb a pontatlansága. A  $^{233}\text{Pa}$  sem „sima” (n, $\gamma$ ) reakcióval keletkezik, hanem az (n, $\gamma$ ) reakcióval keletkező  $^{233}\text{Th}$  ( $T_{1/2} = 22$  perc) leányeleme. Ez mind az elemi összetétel kiszámításában mind pedig a szimulációkban okoz bonyodalmakat (a  $t_0$  besugárzás utáni időpillanatban a  $^{233}\text{Pa}$  és a  $^{233}\text{Th}$  egyszerre van jelen a besugárzás időtartamától is függő arányban), ami kevésbé pontos eredményhez vezet [33] [40].

## 2.5 *Beton összetétel hatása a karbantartó személyzet dóziséra*

Ebben a fejezetben azt mutatom be, hogy a korábbi fejezetekben részletesen leírt és összeállított anyagkártyáknak milyen hatásuk van a szimulációkra: alkalmazásuk jelent-e kimutatható változást a szimulált bomlási gamma-sugárzások dóziskövetkezményeinek tekintetében az általánosan elérhető, leginkább főkomponenseket tartalmazó beton anyagkártyákhoz képest. A vizsgált forgatókönyv az ESS Bunkerhez kapcsolódik, melyről a 2.1. fejezetben írtam részletesebben. Ez egy olyan terület, mely normál üzem közben nem hozzáférhető, kizárólag karbantartás során. Egy ilyen karbantartási forgatókönyv esetén vizsgáltam a karbantartó személyzet egy betonfaltól származó dóziséját a mérés alapú és a névleges összetételű beton anyagkártyák esetén. (Mint már említettem, csak külső sugárterhelés kialakulásával foglalkoztam, inkorporációval nem, mert ez a karbantartás során az alapvető sugárvédelmi viselkedési szabályok betartásával elkerülhető.)

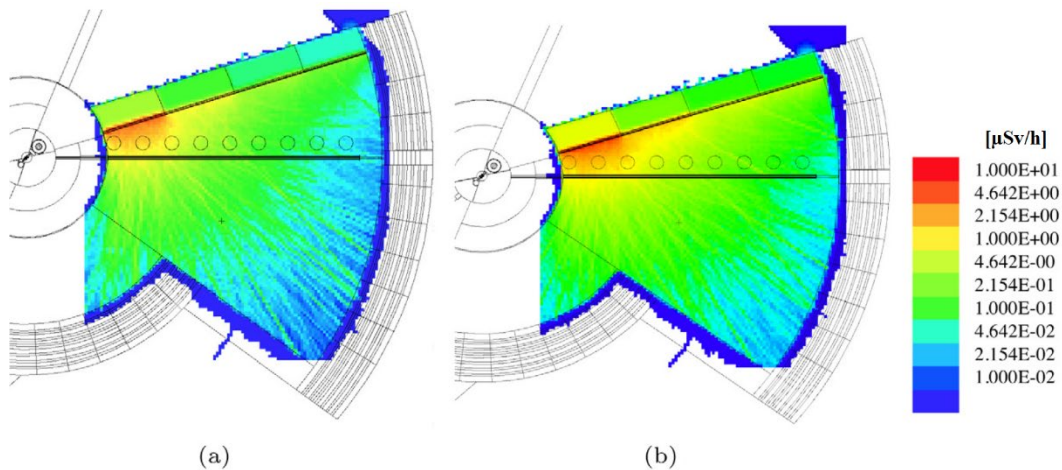
A modell elrendezést a 12. ábra mutatja. A szimulációkhoz az ESS MCNP modelljei jelentették az alapot [54] [35], ezeket módosítottam az aktuális forgatókönyvnek megfelelően. A modellezés során az 1.4.2. fejezetben részletesen leírt MCNPX és Cinder1.05 kódokat használtam. Első lépésben a spallációban keletkezett neutronok transzportját futtattam le MCNPX segítségével [55], és vettem fel a neutronspektrumot a 36 szegmensre osztott sugárirányú falban. (A többi, nehézbetonból tervezett fal felaktiválódását és dóziszjárulékát nem vizsgáltam.) A forgatókönyvben azt feltételeztem, hogy ESS először 10 évig átlagos energián üzemel ( $0,616 \times 5$  MW), ami egy ciklikus üzemeltetést-leállítást modellez, majd fél év maximális energián történő üzemelés (5 MW) után 3 napos hűtési periódust követően jelennek meg a karbantartók a Bunkerben. A neutroneloszlás ismeretében a fal felaktiválását, a 3 napos hűtését, és a hűtés után a falból származó gamma dózisteret Cinder1.05 [23] kóddal határoztam meg. Ezt a folyamatot a Referencia beton névleges és mérés alapú összetételére is elvégeztem. Az ezt követő gamma-transzportot, és a 9, BIFROST neutronvezetője mentén felvett pontban adódó dózisteljesítményt (karbantartók dózisa) ismét MCNPX alkalmazásával határoztam meg [33]. A Nyugati szektor zölddel színezett területe

a karbantartó személyzet által hozzáférhető terület, ahol a BIFROST mellett további neutronvezetők is lesznek.



**12. ábra: A modellezett karbantartási forgatókönyv az ESS Bunkerben [33]**

A modellezés eredményeit a 13. ábra jelenítettem meg. Az ábráról leolvasható, hogy a mérés alapú összetétel esetén (jobb oldali, b eset) nagyobb dózisok jelentek meg felaktivált betonfal környezetében. Talán a legszembetűnőbb a zöld színnel jelölt  $0,1 \mu\text{Sv/h}$  körüli dózisteljesítményű területek nagyobb kiterjedése (a számított és megjelenített eredmények nettó, tehát a helyi természetes háttér felett adódó értékek).



**13. ábra: Az ESS Bunker felaktivált sugárirányú falának bomlási gamma-dózistere a Referencia beton (a) névleges és (b) mérés alapú összetétele esetén [33]**

Az eredmények számszerű összehasonlítását a 3. táblázatban mutatom be. Az eredményekhez tartozó bizonytalanságok az MCNP beépített bizonytalanság meghatározó funkciójából származnak. A mérés alapú összetétellel számolt eredmények 30-70%-kal, átlagosan körülbelül 50%-kal haladták meg a névleges összetételű szimulációk eredményeit. Ez a növekmény a pontos összetétel ismeretnek volt köszönhető: elsősorban a névleges összetételben nem szereplő nyomszennyezők járuléka okozta a dózistöbbletet. Ez azt jelenti, hogy hagyományos anyagkártyák használatával a modellezés körülbelül 50%-kal becsüli alá a dóziskövetkezményeket a vizsgált esetben. Figyelembe véve a dózisznövekmény viszonylag nagy szórását, illetve a betonok inhomogenitásából fakadó eltéréseket, ez egyes helyeken akár kétszeres dózisokat is jelenthet a névleges betonösszetétellel számolt becslésekhez képest [33].

Dózispont	NÉVLEGES ÖSSZETÉTEL		MÉRÉS ALAPÚ ÖSSZETÉTEL		Növekedés [%]
	Dózisteljesítmény [μSv/h]	Bizonytalanság [%]	Dózisteljesítmény [μSv/h]	Bizonytalanság [%]	
1	1,89	7	2,73	6	45
2	1,79	8	2,37	6	33
3	0,94	9	1,32	7	41
4	0,50	11	0,65	7	29
5	0,25	9	0,40	7	59
6	0,19	9	0,30	7	61
7	0,12	10	0,21	8	72
8	0,08	12	0,13	8	72
9	0,06	27	0,10	17	71

**3. táblázat: A sugárirányú betonfaltól származó dózisteljesítmény alakulása a 9 vizsgált dózispontban ESS Bunker karbantartása során névleges összetételű és mérés alapú anyagkártya alkalmazása esetén**

Mivel az ESS Bunkert nagy mennyiségű beton veszi körül, ezért a megfelelő anyagösszetétel figyelembevétele alapvetően határozza meg a bomlási sugárzásból származó dózisbecslések pontosságát. Emiatt egyrészt szimulációk előtt javasolt minden beépíteni kívánt beton részletes összetételének megismerése – esetleg ennek hiányában nagyobb biztonsági faktorok alkalmazása a sugárvédelmi szempontból lényeges eredmények esetén. Másrészt javasolt egy minőségbiztosítási rendszer működtetése is, melynek segítségével meg lehet arról bizonyosodni, hogy valóban a várakozásoknak megfelelő a ténylegesen beépítésre kerülő betonok összetétele.



### **3 Atomerőművi betonok felaktiválódásának szimulációja, mint a radioaktív hulladékkezelés egyik alapvető kérdése**

A dolgozatban érintett sugárvédelemi betonokat az 1.3. fejezetben gyűjtöttem össze, azok radioaktív hulladékká válásának folyamatáról pedig a 1.2.1. fejezetben írtam részletesebben.

Ebben a fejezetben arra helyezem a hangsúlyt, hogy az atomerőművekben a reaktor körül elhelyezkedő, biológiai védelemként szolgáló betonok felaktiválódásának modellezésére milyen lehetőségek vannak, mely paraméterektől függ a modellezés, és hogyan lehet egy optimális modellt felépíteni. A minél pontosabb modellezés jelentőségét az adja, hogy egy jó modell építendő létesítmények esetén segítséget nyújthat az aktiváció szempontjából optimális beton recept meghatározásában, leszerelés előtt álló létesítmények esetén pedig az eltérő radioaktív hulladékosztályba sorolandó betonok lehatárolását támogathatja. A fejezet a radioaktív hulladékok osztályozásának jogszabályi hátterével foglalkozik először, majd a nemzetközi szakirodalom összefoglalása után az általam végzett kutatás kerül részletesebb bemutatásra.

#### **3.1 Radioaktív hulladékokok kezelésének jogszabályi háttere**

A radioaktív hulladék fogalmának meghatározására számos sugárvédelmi tárgyú tudományos, illetve szabályozási dokumentumban megjelenik. Ezek az alábbi mondatban foglalhatók össze röviden: További felhasználásra nem szánt, emberi tevékenység (ionizáló sugárzás alkalmazása) eredményeképpen létrejött radioaktív anyag, amelyet sugárbiztonsági szempontból kezelni szükséges, mert az általa kezelés nélkül okozható dózis kockázata meghaladná az elfogadható szintet [13].

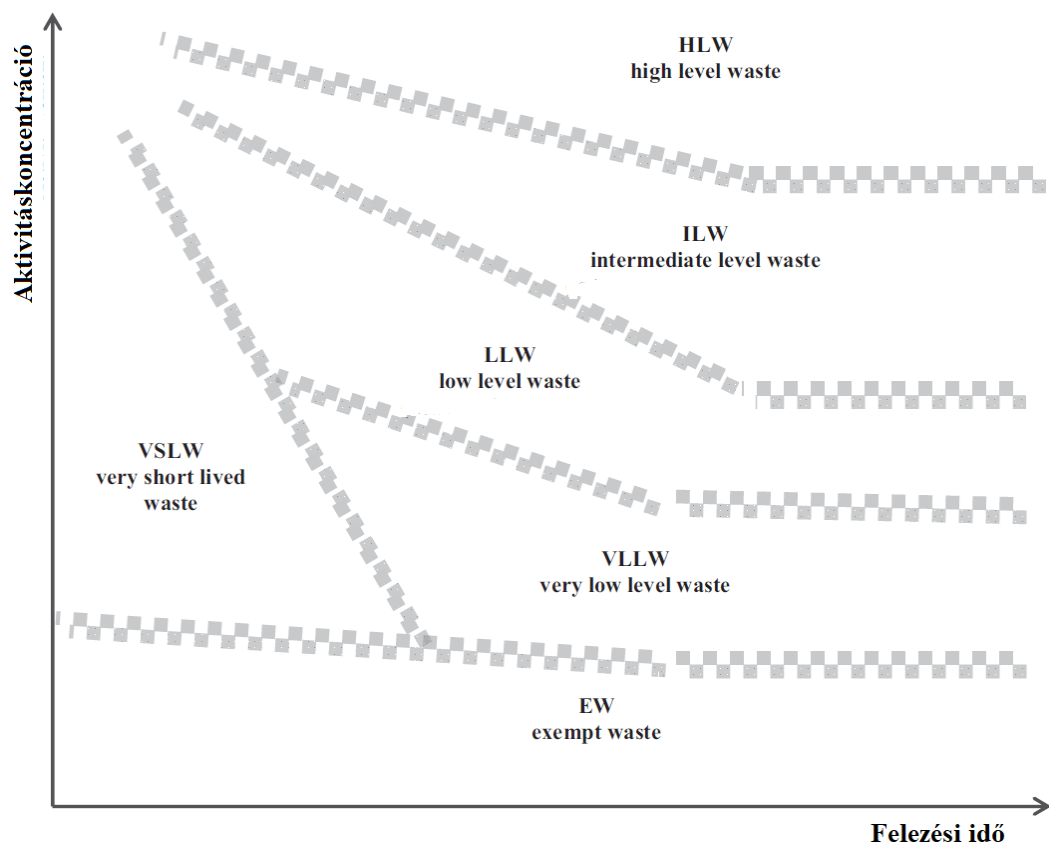
Tekintve, hogy a radioaktív hulladékok kezelését részletesen szabályozza a magyar jogrend, ezért a hulladékok osztályozásához, tervezéséhez kapcsolódó tudományos tevékenységet is a 3.1.2. fejezetben bemutatott jogszabályok mentén érdemes folytatni. Mivel a magyar jogszabályok nagymértékben építenek nemzetközi jogszabályokra, ajánlásokra, ezért először ezeket ismertetem a 3.1.1. fejezetben. A nemzetközi jogharmonizációnak köszönhetően a radioaktív hulladékok kezelésére világszerte hasonló követelmények vonatkoznak, így a hazai

kutatások nemzetközileg is hasznosíthatók, illetve a hazai megoldások kialakítása során építhetünk a nemzetközi kutatásokra, tapasztalatokra, jó gyakorlatokra.

### **3.1.1 A szabályozás nemzetközi háttere**

A radioaktív hulladékok jelenleg alkalmazott osztályozásának egyik legfontosabb alap dokumentuma a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség (NAÜ vagy International Atomic Energy Agency – IAEA) által kiadott általános biztonsági útmutató: a „General Safety Guide” (GSG-1) [56]. Ebben két fontos ajánlást fogalmaztak meg:

- Javaslatot tettek a hulladékban lévő radionuklidok felezési idejétől és aktivitáskoncentrációjától is függő, egységes osztályozási rendszerre (lásd 14. ábra), bár a rendszeren belüli kategóriák határoló értékeire a kiadványban még nem tettek konkrét ajánlást;
- Megkülönböztették ezt az egységes használatra javasolt osztályozást a radioaktív hulladékokat végleges elhelyezésre befogadó két létesítménytípus, a felszíni – felszínközeli lerakók, illetve a mélygeológiai lerakók által egyedileg meghatározandó átvételi kritériumoktól. Ezzel nyilvánvalóvá tették, hogy a hulladékok elhelyezésének biztonságát is egyedileg, az adott tároló természeti környezetének sajátosságait és a befogadott hulladék feldolgozása során létrejött mérnöki gátak visszatartó képességét együttesen jellemző terjedési számításokkal kell igazolni.



14. ábra: A radioaktív hulladékok osztályozásának általános sémája az IAEA GSG-1 szerint [56]

A GSG-1 [56] által javasolt hulladékosztályok (14. ábra):

- HLW – high level waste – nagy aktivitású hulladék (magyar rövidítéssel NAH), amelynek végleges elhelyezésére mélygeológiai lerakók alkalmasak.
- ILW – intermediate level waste – közepes aktivitású hulladék (KöAH), amelynek befogadására „közepesen mély” elhelyezésű lerakót javasolnak.
- LLW – low level waste – kis aktivitású hulladék (KAH), amelynek elhelyezésére felszínközeli kialakítású lerakók alkalmasak.
- VLLW – very low level waste – nagyon kis aktivitású hulladék (NKAH), amelyet a felszínen korábban kialakult mélyedések feltöltésére („landfill”) is felhasználhatnak. Mivel ez a lerakótípus is radioaktív hulladékokat fogad be, hatósági engedéllyel és felügyelettel, a hulladék és a befogadó terület nem mentesített.

- VSLW – very short lived waste – nagyon rövid felezési idejű hulladék (NRFH), amelyet lebomlásig a keletkezés helyén vagy annak közelében lehet tárolni. Az ilyen hulladéknak nem kell hatósági engedéllyel és felügyelettel rendelkező lerakót kialakítani, mert a tárolás alatt (ami valószínűleg a keletkezés helye is) aktivitása a mentességi szint alá fog csökkenni.
- EW – exempt waste – mentesített (felszabadított) hulladék (MH), amelynek radioaktivitását nem kell figyelembe venni az elhelyezésről vagy újrafelhasználásról szóló döntésnél, és további hatósági felügyelet fenntartása vele kapcsolatban már nem indokolt.

Ezek a hulladékosztályok jelen vannak a hatályos magyar szabályozásban is, a felosztás kritériumairól részletesen a következő, a magyarországi jogi-hatósági szabályozással foglalkozó 3.1.2. fejezetben írunk.

Szintén a NAÜ által kiadott, meghatározó dokumentum az International Basic Safety Standards GSR Part 3 (IBSS) [57]. Ez egy, a sugárvédelem gyakorlatilag minden területére kiterjedő követelményrendszer, amelyet a 2015-ben kiadott magyar sugárvédelemi kormányrendelet-csomag (487 – 491/2015. kormányrendeletek, újabban 2/2022. OAH rendelet) is jelentős mértékben felhasznált forrásműként. Az IBSS az ICRP-103 ajánlásokra [58] épült (ICRP - International Commission of Radiation Protection), azoknak a sugárvédelmi szabályozásban és a napi gyakorlatban való alkalmazását kívánta a nemzeti szabályozórendszerekbe beépíthető módon követelményekbe foglalni.

Az IBSS kormányzati, illetve hatósági feladatként jelöli meg a mentesség, illetve a felszabadítás engedélyezését. A mentességet sugárforrásokra és ionizáló sugárzásokkal kapcsolatos tevékenységekre, a felszabadítást sugárveszélyes (tehát korábban nem mentesített) tevékenységekből származó anyagokra és tárgyakra értelmezi. Az IBSS a mentességi és felszabadítási szinteket is tartalmazza. Ezek kiinduló pontja annak belátása és elfogadása, hogy bizonyos, rendkívül kicsi kockázattal járó sugárterheléseknél már indokolatlan minden intézkedés, ami az okozható dózis csökkentésére irányul. Az általános mentességi (felszabadítási) szinteket így ennek az „elhanyagolhatónak” tekintett 10  $\mu\text{Sv}/\text{év}$  effektív dózist okozó eseményeket leíró forgatókönyvekből, illetve igen kis valószínűségű, de

továbbra is a tervezett besugárzási helyzetekhez sorolt, 1 mSv/év effektív dózist okozó eseményeket leíró forgatókönyvekből vezették le.

A radioaktív sugárzások szabályozásával az Európai Unió (EU) is foglalkozik. Az EU sugárvédelmi irányelve, a Basic Safety Standards (EU BSS) [59] szintén az ICRP-103-ban [58] közölt sugárvédelmi ajánlások teljeskörű, gyakorlatorientált összefoglalására törekedett, és így tartalma meglehetősen hasonló az IBSS-hez [57]. Az új EU BSS minél pontosabb átvétele a 2015 végén megjelent magyarországi sugárvédelmi rendelet, valamint az arra alapozott szabályozási tevékenység fontos célja volt.

A korábban használatos előzetes mentesség – utólagos felszabadítás disztinkció megtartása mellett az új EU BSS-ben már megjelent a radioaktív hulladékok mennyiségéhez illeszkedő felosztást elsődlegesnek tekintő megfogalmazás. Az általános mentesség fogalmához csak aktivitáskoncentrációkat rendel a direktíva, melyek azonosak az IAEA IBSS-ben 1 t-nál nagyobb anyagmennyiséghez („bulk”) javasolt általános mentességi szintekkel. A mérsékelt („moderate”) anyagmennyiségekhez javasolt mentességi aktivitások és aktivitáskoncentrációk is megegyeznek a korábbi EU BSS-ben [60] közölt, az általános szinteknél 10 – 1000-szer nagyobb „rég” mentességi szintekkel.

A radioaktív hulladékok osztályozásával kapcsolatos legfontosabb meghatározást, melyre a következő fejezetben bemutatott magyar szabályozás épül, szöveges formában közli az EU BSS VII. melléklete. Ez a hivatalos magyar fordításban az alábbi: „Mesterséges radionuklidokat tartalmazó keverékek esetében az egyes (ugyanabban a hordozóban lévő) radionuklidokra vonatkozó aktivitás- vagy aktivitáskoncentráció-értékek súlyozott összegéből és a megfelelő mentesítési értékből képzett hányadosnak egynél kisebbnek kell lennie.” Ennek alapján a mentességi- illetve hulladékindex (MI vagy HI) a következő:

$$MI = HI = \sum_{i=0}^n \frac{AK_i}{VAK_i} \quad (3)$$

ahol:

- $AK_i$  az  $i$ -edik radionuklid aktivitáskoncentrációja [Bq/g]
- $VAK_i$  a vonatkoztatási aktivitáskoncentráció [Bq/g] Ezt a [59] VII. mellékletének „A” (általános mentesség = nagy mennyiségű anyagok felszabadítása) vagy „B” (kis mennyiségű anyagok mentessége vagy felszabadítása) táblázatából vehetjük.

A (3) egyenlet így egy olyan mentességi mutatót (mentességi index, MI) ad eredményül, aminek nincs mértékegysége, és közvetlenül alkalmas két, adott esetben egymástól különböző radionuklidokat tartalmazó anyagkeverék veszélyességének összehasonlítására. Megjegyzendő, hogy az MI számértéke felfogható úgy, hogy ennyiszor  $10 \mu\text{Sv}/\text{év}$  dózist okozna a radioaktív hulladék nem ilyen anyagként történő kezelése által a leginkább érintett (reprezentatív) személynek.

### 3.1.2 A hazai szabályozás és gyakorlati következményei

Bár a radioaktív hulladékokkal kapcsolatos tevékenységek szabályozására vonatkozó legmagasabb szintű hazai jogszabály, az 1996. CXVI. törvény („Atomtörvény”) [61], a legfontosabb jogszabály a 487/2015 (XII.30.) kormányrendelet, valamint az azt megújító 2/2022. OAH rendelet [62] (Svr.). Ez szabályozza a radioaktív hulladékká minősítés, az osztályozás, a tárolás és az elhelyezés kérdéseit. Az Svr. legfontosabb, azt a radioaktív hulladékokat illetően több tekintetben is jelentősen bővítő módosítása a 27/2018 (II. 28.) kormányrendelet [63]. A módosított Svr. 41. paragrafusa, valamint az Svr. 1. és 12. melléklete alapján az alábbiakban összefoglalom a radioaktív hulladékok kategóriáit, az osztályozáshoz felhasználandó adatokat.

Az Svr. alapján a hulladékindexet az (3) egyenlet szerint kell számolni. A képletben szereplő vonatkoztatási aktivitáskoncentráció lehet általános mentességi aktivitáskoncentráció (ÁMEAK) vagy specifikus mentességi aktivitáskoncentráció (SMEAK). A mentességi szintek táblázatában közölt ÁMEAK azonos az IBSS-ben

[57] és az EU BSS-ben [59] közölt felszabadítási, illetve nagy mennyiségű anyagra alkalmazandó „szigorú” mentességi szinttel (Bq/g-ban kifejezve). A SMEAK és a mentességi aktivitás (MEA, Bq-ben kifejezve) pedig azonos a régi, még az ICRP-60-hoz [64] kapcsolódó 96/29/EURATOM [60] irányelvben megadott „megengedő” mentességi szinttel. A rendelet a „megengedő” mentességi szinthez (SMEAK) köti a kis- és közepes aktivitású radioaktív hulladékok értéktartományát. A rendelet alapján a hulladékosztályok a következők:

- Kis aktivitású hulladék (KAH): a (3) egyenlet szerinti hulladékindex (HI), ahol a nevezőben a SMEAK értékek szerepelnek,  $\leq 1000$ .
- Közepes aktivitású hulladék (KöAH): a (3) egyenlet szerinti HI, ahol a nevezőben a SMEAK értékek szerepelnek,  $> 1000$ , és aminek a hőtermelése kisebb, mint  $2 \text{ kW/m}^3$ .
- Nagy aktivitású hulladék (NAH): „amelynek hőtermelését a tárolás és elhelyezés tervezése és üzemeltetése során figyelembe kell venni. Mindenképpen ide sorolandó az a radioaktív hulladék, amelynek hőtermelése nagyobb, mint  $2 \text{ kW/m}^3$ ” [62]. Emellett az MSZ 14344-1:2004 „Radioaktív hulladékok. Fogalm meghatározások és osztályozás” [65] szabvány kimondja, hogy ha a (3) egyenlet szerint hulladékindex  $HI > 10^6$ , szintén NAH-nak kell minősíteni a radioaktív hulladékot. A nagy aktivitású radioaktív hulladékokkal további jogszabályok is foglalkoznak, ezeket azonban nem részletezem, mert sugárvédelmi betonok esetén ez a kategória nem releváns.

Az Svr. a HI mellett a radioaktív hulladékok élettartamát is felhasználja a minősítés során az IAEA GSG-1-nek [56] megfelelően – lásd 14. ábra. Rövid élettartamú radioaktív hulladék az a KAH-nak vagy KöAH-nak már besorolt hulladék, amelynél a 30 évnél hosszabb felezési idejű komponensekre az adott radionuklidok SMEAK-értékeinek felhasználásával, a (3) egyenlettel számított rész-hulladékindexe  $HI \leq 1$ . Az erőművi radioaktív hulladékok egyik leginkább jellemző komponense, a  $^{137}\text{Cs}$  kerekített felezési ideje 30 év, tehát itt csak a  $^{137}\text{Cs}$ -nál hosszabb felezési idejű komponensekre vonatkozó analitikai eredményeket kell felhasználni. Ha ez a feltétel nem teljesül, akkor a hulladék hosszú élettartamú

radioaktív hulladék. Ezek alapján lehet meghatározni a negyedik hulladékkategóriát:

- Nagyon kis aktivitású radioaktív hulladék (NKAH): csak rövid élettartamú radioaktív hulladéokra alkalmazható minősítés. Két feltétele van: a SMEAK-ok felhasználásával, a (3) egyenlet szerint a 30 évnél nem hosszabb felezési idejű összetevőkre számított rész-hulladékindex  $\leq 50$  kell, hogy legyen, és a 30 évnél hosszabb felezési idejű összetevőkre az ÁMEAK-ok felhasználásával számított rész-hulladékindex  $\leq 1$  kell, hogy legyen.

Az Svr. alapján a fentebb tárgyalt osztályba sorolás ismeretében különféle sugárvédelmi megfontolások alkalmazhatók a radioaktív hulladékok munkahelyi tárolását illetően. A 65 napnál rövidebb felezési idejű, illetve adott esetekben a 65 és 100 nap közötti felezési idejű NKAH, KAH és KöAH minősítésű hulladékokat azok lebomlásáig, azaz a mentesíthetőség (felszabadíthatóság) elérésig helyileg kijelölt radioaktív hulladék-tárolóban lehet átmenetileg elhelyezni. Ezekről különböző radioaktív hulladékok helyi tárolása legfeljebb 5 évig megengedett.

Az atomerőművekben sugárvédelmi árnyékolási célra elhelyezett, a szakirodalomban elterjedten „biológiai védelemnek” nevezett betonfalak szennyezettsége (köztük elsősorban a reaktortartályt körülvevő árnyékolás) akkora aktivitáskoncentrációt az eddigi tapasztalatok és az elvégzett közelítő számítások alapján nem érhet el, hogy nagy aktivitású hulladékként kelljen elhelyezni őket, így besorolásuknál a fentiek közül az NKAH, KAH és KöAH kategóriák alkalmazhatóságát kell részletesen vizsgálni. A viszonylag újonnan megjelent nagyon kis aktivitású hulladék osztályába sorolással, vagy a felszabadítható (nem radioaktív hulladékként kezelendő) mennyiség pontos becslésével jelentős összegek takaríthatók meg. Ehhez azonban a szabályozás következtében elengedhetetlen a lerakni kívánt beton pontos, izotóp szintű összetétele, hiszen akár egy-egy izotóp is eredményezheti a hulladék magasabb osztályba sorolását. Ebben jelenthetnek hatékony támogatást az aktivációt modellező eljárások akár építés előtt álló, akár leszerelésre váró atomerőművek esetén.



### ***3.2 Nemzetközi tapasztalatok betonok radioaktív hulladékosztályba sorolása kapcsán***

Mint azt a 3.1-es fejezetben bemutattam, a radioaktív hulladékok megfelelő elhelyezéséhez először radioaktív hulladékosztályokba kell sorolni azokat, mely osztályba sorolásnak a hulladékok izotópleltárának pontos ismeretén kell alapulnia. Az építés előtt álló létesítményekben használandó betonok pontos felaktiválódás becslésének két feltétele van: az összetételt (alapanyagokat) részletesen, elemi szinten kell ismerni és a becslés során használt módszernek (analitikus számítás vagy modellezés) a valóságot a lehető legjobban kell leképeznie. E két feltétel nemzetközi szakirodalmával foglalkozik a 3.2.1-es és a 3.2.2-es fejezet. Leszerelésre készülő atomerőművek esetén a radioaktív hulladékcsomagok mérése is információval szolgál a hulladék megfelelő radioaktív hulladékosztályba sorolásához, ez azonban csak mint a szimulációk validációját lehetővé tevő módszer jelenik meg az értekezésben (a mérés alapú pontos osztályzás kívül esik a dolgozat keretein). A 3.2.3-as fejezet egy ilyen, szimulációkat mérésekkel összehasonlító kísérletsorozatot mutat be.

#### **3.2.1 Sugárvédelmi betonok meghatározó radioizotópjai**

Ahhoz, hogy felaktivált betonok izotóp leltárát megfelelően tudjuk becsülni akár szimulációkkal, akár egyéb eljárásokkal, egyrészt pontos elemi összetétel adatokkal kell rendelkezünk, másrészt ismernünk kell azon izotópok körét, amit a hulladékcsomagunkban várunk.

Az elemi összetétel megállapítása már kiöntött betonok esetében a legegyszerűbb közvetlenül a beton minták mérésével. Erre egy példa az ESS beton mintáinak a 2.2-as fejezetben bemutatott méréssorozata. Épülés előtt álló létesítmény esetén azonban célszerűbb a leendő beton alapanyagait megmérni, és az alapján optimális beton receptet összeállítani. Ehhez előzetes iránymutatást nyújthatnak a szóba kerülő alapanyag kőzetekről rendelkezésre álló összetétel információk, publikált mérési eredmények, például [51], [66], [67]. Bár a témában számos mérési eredmény érhető el, konkrét beton optimalizációs feladat esetén javasolt saját méréseket végezni, mivel akár egyes nyomelemek is jelentősen befolyásolhatják az adódó hulladékosztályt [33], [68].

Beton összetevők elemi összetétel adatai mellett a felaktivált betonokban jellemző radioizotópokról is számos kutatási beszámoló elérhető. Amellett, hogy ezekben a publikációkban gyakran rövidebb felezési idejű, hulladékkezelés szempontjából jelentéktelen izotópok is megjelennek, nagyobb általános probléma ezekkel a mérésekkel, gyűjtésekkel, hogy a gamma-sugárzó radioizotópok felülreprezentáltak bennük. Ennek mérés technikai okai vannak: a gamma-sugárzó izotópokat sokkal egyszerűbb mérni az alfa- vagy béta-sugárzóknál, és a méréshez szükséges berendezések is több helyen állnak rendelkezésre. Ezek az állítások igazak az általam végzett, 2. fejezetben bemutatott kutatásra is – bár abban a felaktivált betont elsősorban nem mint radioaktív hulladékot, hanem mint munkahelyi külső sugárforrást vizsgáltam.

A nem kizárólag gamma-sugárzó aktivációs termékekről érkező cikkekre jó példa a Hee Dong Sohn és munkatársai [68] által írt tanulmány, mely egy 40 éve üzemelő atomerőmű felaktiválódott szerkezeteit vizsgálja. Bár ez a kutatás nem kizárólag betonokról szól, azok főbb aktivációs termékeit is összegyűjti. Az általuk legfontosabbnak vélt izotópok és a hozzájuk tartozó felezési idők a 4. táblázatban találhatóak. A táblázatban mind termikus- mind gyors neutronok által kiváltott magreakciók reakciótermékei szerepelnek.

Célmag	Magreakció	Aktivációs termék	Felezési idő [év]
${}^7\text{Li}$	(n,a)	${}^3\text{H}$	12,3
${}^{14}\text{N}$	(n,p)	${}^{14}\text{C}$	5730
${}^{54}\text{Fe}$	(n,p)	${}^{54}\text{Mn}$	0,85
${}^{56}\text{Fe}$	(n,2n)	${}^{55}\text{Fe}$	2,7
${}^{59}\text{Co}$	(n, $\gamma$ )	${}^{60}\text{Co}$	5,3
${}^{62}\text{Ni}$	(n, $\gamma$ )	${}^{63}\text{Ni}$	100
${}^{63}\text{Cu}$	(n,p)	${}^{63}\text{Ni}$	100
${}^{60}\text{Ni}$	(n,2n)	${}^{59}\text{Ni}$	76000
${}^{92}\text{Mo}$	(n, $\gamma$ )	${}^{93}\text{Mo}$	3500
${}^{153}\text{Eu}$	(n, $\gamma$ )	${}^{154}\text{Eu}$	8,6

4. táblázat: A Hee Dong Sohn és munkatársai [68] által meghatározott legfontosabb aktivációs termékek egy 40 éve üzemelő atomerőmű szerkezeti elemeiben

Atomerőművi betonok aktivációs termékeivel foglalkozott Žagar és munkatársai is; ők egy általános nehézbetont és egy barit betont vizsgáltak először gamma-spektrószkópiával [14], [69]. A méréseik első periódusában - körülbelül 1 hónap - a  $^{42}\text{K}$ ,  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{47}\text{Ca}$ ,  $^{51}\text{Cr}$  és a  $^{46}\text{Sc}$  aktivitáskoncentrációja volt domináns a gamma-spektrumban. Később 5 hosszabb felezési idejű radioizotóp maradt a spektrumban: a  $^{46}\text{Sc}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  és a  $^{54}\text{Mn}$ . A barit betonban 2 további, báriumtól származó radioizotóp is megjelent. A 11,5 napos felezési idejű  $^{131}\text{Ba}$  a rövid felezési idejű izotópok között tűnt fel meglehetősen nagy kezdeti aktivitással, a  $^{133}\text{Ba}$  pedig a 10,5 éves felezési idejével a lassan bomló radioizotópok közé tartozik [14].

Egy későbbi, átfogóbb tanulmányban Žagar és munkatársai [69] már csak a hosszú felezési idejű, nem kizárólag gamma-sugárzó radioizotópokat gyűjtötték össze. Ezeket a radioizotópokat, az egyes izotópok keletkezéséhez vezető reakciókat, és az izotópok felezési idejét az 5. táblázat tartalmazza. A listában a korábban dokumentált  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  és  $^{133}\text{Ba}$  mellett két további gamma-sugárzó izotópot is megjelenik: a  $^{134}\text{Cs}$  és a  $^{154}\text{Eu}$ . Bár az egyes izotópok többféle reakcióval is keletkezhetnek, a fő keletkezési útvonal a termikus neutronok által kiváltott  $(n,\gamma)$  reakció. A kivételt - mint azt már korábban is láttuk - a  $^{54}\text{Mn}$  képezi, amely elsősorban vasból ( $^{54}\text{Fe}$ -ből) keletkezik  $(n,p)$  reakcióval gyors neutronok hatására. A korábban Žagarék által összegyűjtött [14] gamma-sugárzó izotópokon felül számos egyéb izotóp is megjelent a táblázatban, ami rámutat arra, hogy a viszonylag egyszerű és széles körben alkalmazott gamma-spektrószkópiai méréseknek megvannak a határai ezen a területen. Gamma-spektrószkópiával ugyanis nem mérhető többek között a  $^{41}\text{Ca}$ , a  $^{45}\text{Ca}$  és a  $^{55}\text{Fe}$ , melyek mind hosszú felezési idejű izotópok, ezáltal meghatározó szerepük lehet a hulladékosztályba sorolásnál.

A szakirodalmi adatokat áttekintve megállapítható, hogy a számos elérhető, sugárvédelmi betonokban potenciálisan megjelenő, hosszú felezési idejű izotópokat listázó gyűjtemény közel sem egységes, így bár támpontként használhatók a radioaktív hulladékok osztályba sorolásához, egy átfogó, teljeskörű gyűjtemény létrehozása hasznos lenne a leszereléssel foglalkozó közösség számára.

Izotóp	Magreakciók - magreakciót kiváltó neutron (termikus/gyors)	Termék felezési ideje
$^{45}\text{Ca}$	$^{44}\text{Ca} (n,\gamma) ^{45}\text{Ca}$ – termikus $^{48}\text{Ti} (n,\alpha) ^{45}\text{Ca}$ – gyors $^{45}\text{Sc} (n,p) ^{45}\text{Ca}$ – gyors	162 nap
$^{65}\text{Zn}$	$^{64}\text{Zn} (n,\gamma) ^{65}\text{Zn}$ – termikus $^{66}\text{Zn} (n,2n) ^{65}\text{Zn}$ – gyors	244 nap
$^{54}\text{Mn}$	$^{55}\text{Mn} (n,2n) ^{54}\text{Mn}$ – gyors $^{54}\text{Fe} (n,p) ^{54}\text{Mn}$ – gyors	313 nap
$^{134}\text{Cs}$	$^{133}\text{Cs} (n,\gamma) ^{134}\text{Cs}$ – termikus $^{134}\text{Ba} (n,p) ^{134}\text{Cs}$ – gyors	2,06 év
$^{55}\text{Fe}$	$^{54}\text{Fe} (n,\gamma) ^{55}\text{Fe}$ – termikus $^{58}\text{Ni} (n,\alpha) ^{55}\text{Fe}$ – gyors	2,73 év
$^{60}\text{Co}$	$^{59}\text{Co} (n,\gamma) ^{60}\text{Co}$ – termikus $^{59}\text{Ni} (n,p) ^{60}\text{Co}$ – gyors $^{63}\text{Cu} (n,\alpha) ^{60}\text{Co}$ – gyors	5,27 év
$^{154}\text{Eu}$	$^{153}\text{Eu} (n,\gamma) ^{154}\text{Eu}$ – termikus	8,8 év
$^{133}\text{Ba}$	$^{132}\text{Ba} (n,\gamma) ^{133}\text{Ba}$ – termikus $^{136}\text{Ce} (n,\alpha) ^{133}\text{Ba}$ – gyors $^{134}\text{Ba} (n,\alpha) ^{133}\text{Ba}$ – gyors	10,7 év
$^{152}\text{Eu}$	$^{151}\text{Eu} (n,\gamma) ^{152}\text{Eu}$ – termikus $^{152}\text{Gd} (n,p) ^{152}\text{Eu}$ – gyors $^{153}\text{Eu} (n,2n) ^{152}\text{Eu}$ – gyors	13,6 év
$^{39}\text{Ar}$	$^{39}\text{K} (n,\gamma) ^{39}\text{Ar}$ – termikus $^{40}\text{Ar} (n,2n) ^{39}\text{Ar}$ – termikus $^{39}\text{K} (n,p) ^{39}\text{Ar}$ – gyors $^{42}\text{Ca} (n,\alpha) ^{39}\text{Ar}$ – gyors	269 év
$^{41}\text{Ca}$	$^{40}\text{Ca} (n,\gamma) ^{41}\text{Ca}$ – termikus $^{42}\text{Ca} (n,2n) ^{41}\text{Ca}$ – gyors	103.000 év
$^{40}\text{K}$	$^{39}\text{K} (n,\gamma) ^{40}\text{K}$ – termikus $^{40}\text{Ca} (n,p) ^{40}\text{K}$ – gyors Természetes radioizotóp	1,27E+9 év

5. táblázat: Sugárvédelmi betonokban előforduló hosszú felezési idejű radioizotópok, felezési idejük és keletkezési módjaik [69]

### 3.2.2 Reaktor körüli betonaktiváció modellezésének kihívásai

Amennyiben rendelkezünk információkkal a sugárvédelmi betonok besugárzás előtti elemi összetételéről, illetve felállítottuk azon aktivációs termékek listáját, melyeket figyelembe kell venni a leszerelendő beton hulladékosztályba sorolásánál, a hulladékosztály modellezéssel történő becsléséhez létre kell hoznunk egy megfelelő modellt is. Ez egyben segítséget jelent a hulladékfeldolgozási műveletek tervezéséhez is. Egy jó modell két fontos ismérve, hogy a valóságot az elvárt pontossággal képezze le, és hogy minél egyszerűbb legyen (véges számítási kapacitással is viszonylag gyorsan lefusson, így számos változat lefuttatható, összehasonlítható legyen).

Elérhető néhány tanulmány, mely leszerelés előtt álló létesítmények szimulációkon alapuló radionuklid becsléséről szól. Egy friss tanulmányban Rätty és munkatársai [70] a finnországi FiR 1 TRIGA Kutatóreaktor biológiai védelmének radionuklid leltárát vizsgálta. A szimulációk során a rendelkezésükre álló teljes reaktormodellt használták forrástagként, és így becsülték az egyes hulladékfrakciók mennyiségét. A tanulmány következtetése az lett, hogy a modellszámítás eredményei jelentősen felülbecsülték a mért aktivitás értékeket. Az eltérések elsődleges okaként a neutron forrástag bizonytalanságait (ideértve az évtizedes üzemeltetési adatokat is) azonosították a szerzők.

A tanulmány [70] amellett, hogy rávilágít egy ilyen retrospektív elemzés nehézségeire, inherensen megmutatja azt is, hogy milyen további kihívások adódhatnak egy jövőre vonatkozó elemzésnél, milyen problémák lehetnek egy építés előtt álló erőmű biológiai védelmének szimulációs optimalizációjával:

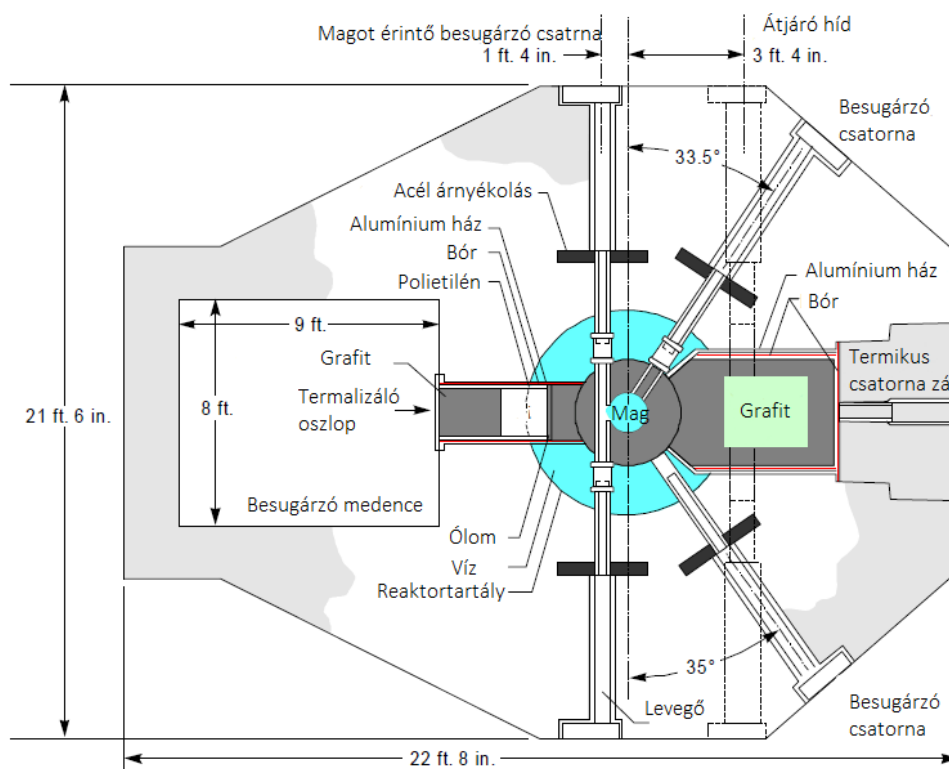
1. Mivel várhatóan a beton optimalizációt végzők számára nem áll rendelkezésre a teljes reaktor modell (és ha rendelkezésre is áll, annak futtatása meglehetősen időigényes), ezért jó lenne egy ennél egyszerűbb modell alkalmazása – akár csak egy sima beton hasáb is a reaktor legnagyobb neutronfluxusú magasságában elhelyezve.
2. Ezzel az egyszerűbb modellel minél pontosabban kellene modellezni a beton védelem teljes mélységében a neutronok mennyiségét és energiaeloszlását.

Reaktortartályon kívüli neutronokról azonban meglehetősen kevés adat érhető el a nemzetközi szakirodalomban. Általános tendencia, hogy a reaktormagtól kifelé haladva gyorsan csökken az elérhető adatok mennyisége és minősége is. Emiatt a reaktortartály környékén, a beton árnyékolás tartályhoz közeli részein már leginkább csak neutronfluxus vagy fluens adatok érhetők el, energiaeloszlásra vonatkozó adatot csak elvétve lehet találni [71], [72]. Emiatt a 3.3. fejezetben bemutatásra kerülő kutatás azt tűzte ki célul, hogy támpontot adjon olyan esetekben, amikor a kiindulási neutronfluxusra vonatkozóan limitált mennyiségű és minőségű adattal rendelkezünk, és abból szeretnénk minél pontosabb izotóp leltár becslést végezni reaktortartály körüli sugárvédelmi betonokban. Mivel a kutatás erőteljesen épít a témában az egyik legjobbnak talált, Žagar és munkatársai által a 2000-es években publikált eredményekre, ezért azokat külön, a 3.2.3. fejezetben foglalom össze az általam végzett szimulációs munka bemutatása előtt.

### **3.2.3 Betonaktivációs kísérletsorozat TRIGA Mark II. Kutatóreaktorban**

Reaktorok körüli biológiai védelmi betonok felaktiválódásával, mint a hulladékosztályozást meghatározó problémával átfogóan foglalkozott és publikált a 2000-es években Tomaž Žagar és munkatársai [73]. A kutatás kiterjedt a jogi szabályozás áttekintésére és kapcsolódó javaslatok megfogalmazására, beton minták besugárzására, mérésére a ljubljanaei JSI TRIGA Mark II. Kutatóreaktorban, illetve szimulációkat is végeztek. A kutatás legértékesebb része a kellő részletességgel dokumentált beton besugárzási kísérletsorozatuk, és felaktiválódás méréseik. Az általuk publikált adatok alkalmasak arra, hogy egy olyan szimulációs munka alapját képezzék, ami választ adhat a 3.2.2. fejezet probléma felvetésére, vagyis annak vizsgálatára, hogy milyen egyszerű modell alkalmas leginkább reaktorok körül található sugárvédelmi betonok aktivációjának mélyebb rétegeire is kiterjedő modellezésére, és hogy hogyan befolyásolják az eredményeket a különböző modellezési paraméterek. A modellezés bemutatása előtt azonban részletesebben ismertetem a már említett és referenciaként használt kutatást [73].

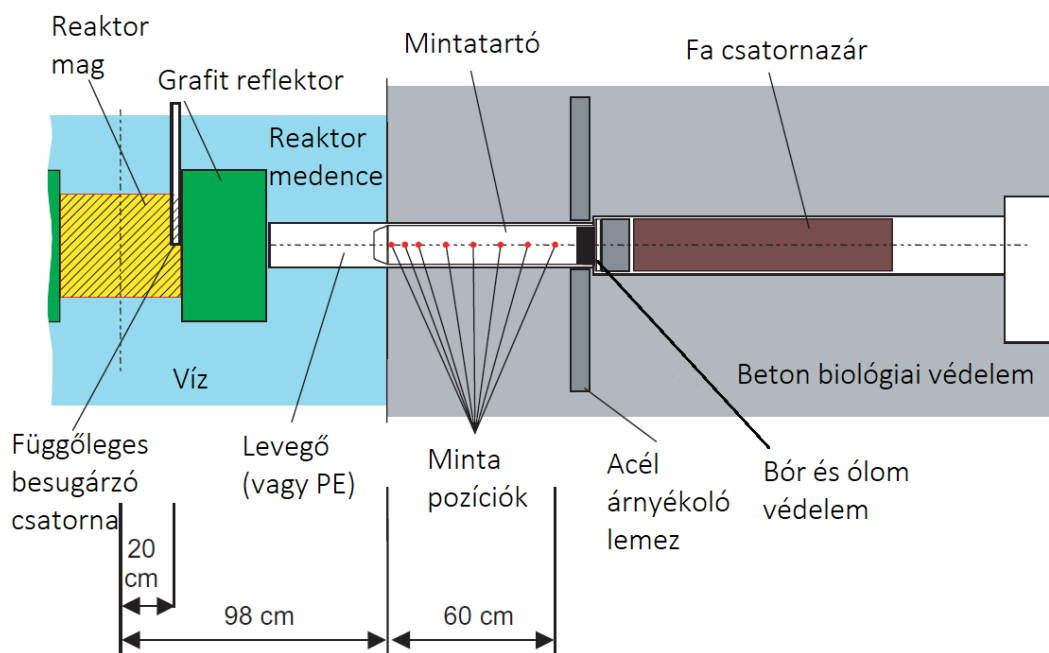
Az 1966. óta üzemelő TRIGA Mark II. Kutatóreaktor a szlovéniai Jožef Stefan Intézethez tartozik. A 250 kW teljesítményű könnyűvíz hűtésű reaktor felülnézeti metszete a 15. ábra látható. A reaktortartály felül nyitott, 2 m átmérőjű; a reaktorzóna a vízfelszín alatt 6,25 m-rel található. A reaktor biológiai védelmének alsó, reaktorzóna magasságában lévő, így nagyobb neutronfluxusnak kitett része barit tartalmú nehézbetonból készült, felső része pedig közönséges könnyűbetonból. A zóna körül számos vertikális és horizontális besugárzó csatorna található (15. ábra) [74] [75].



15. ábra: A TRIGA Mark II. kutatóreaktor felülnézeti metszete [75]

Žagar és munkatársai [73] az egyik besugárzó csatornában kialakítottak egy betonok felaktiválódásának vizsgálatára alkalmas kísérleti elrendezést, melyet a 16. ábra mutat be. A cél az volt, hogy az eredeti beton árnyékolás aktivációs viszonyait a lehető legpontosabban képezzék le a kísérleti elrendezéssel. Mivel a 3.3. fejezetben az itt végzett kísérletsorozatot próbáltam meg reprodukálni, ezért ezt a kísérleti elrendezést részletesebben is bemutatom. A besugárzó csatorna a zóna mellé illesztett grafit reflektortól indul, arra merőlegesen helyezkedik el, áthatolva a reaktor medencén és a beton árnyékoláson. A csatorna kezdeti szakaszába készült

egy polietilénnel töltött mintatartó. Ez nagy hidrogén tartalma miatt a primerköri víz termalizáló hatását hivatott helyettesíteni. Ezt követi az alumínium mintatartó, melybe 8 minta helyezhető, lásd 16. ábra. A minták 1 cm átmérőjű és 1,2 cm hosszúságú ampullákba töltött homogenizált beton minták voltak az itt végzett kísérletek során. Mivel a csatorna megléte jelentősen csökkentette a sugárvédelmi beton vastagságát, ezt egy bór bevonatú ólom dugóval kompenzálták. A csatornát egy fából készült dugó zárta le [73], [76]. A kialakított besugárzó csatornát későbbiekben mások – többek között a bécsi Műszaki Egyetem TRIGA reaktorának munkatársai is – használták különböző mérésekhez [77], [78].

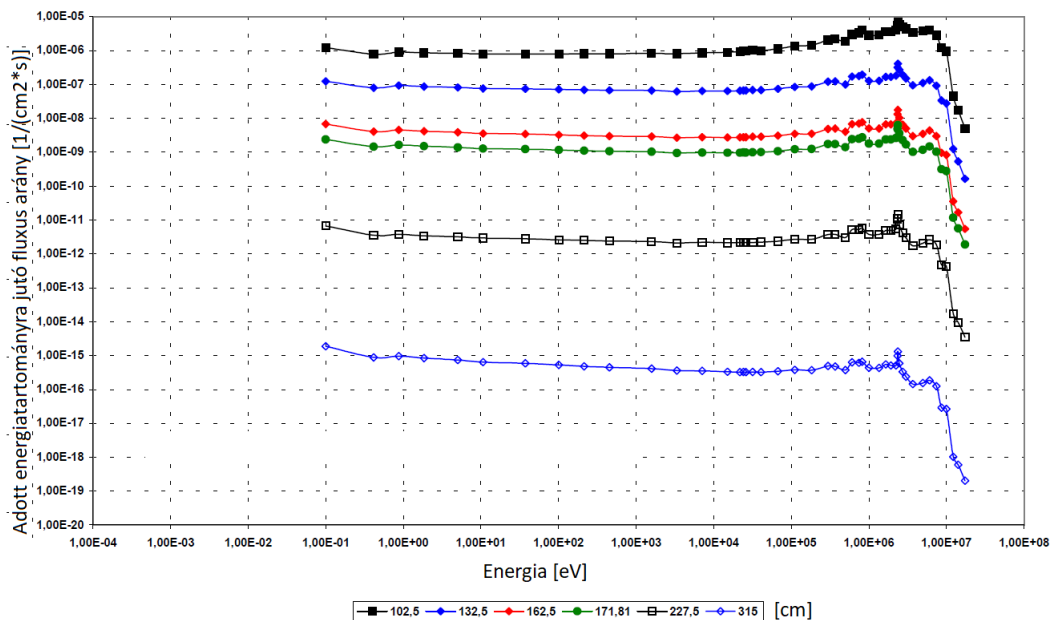


**16. ábra: A TRIGA Mark II. Kutatóreaktor beton minták felaktiválásának vizsgálatához összeállított kísérleti elrendezés [73]**

A besugárzó csatornában a korábban azonosított 7 hosszú felezési idejű, gamma-sugárzó radioizotóp: az  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  és  $^{133}\text{Ba}$  (lásd 3.2.1. fejezet) aktivitását mérték jellemzően 100 óra besugárzási idő után az összes mintapozícióban [76]. A barit beton besugárzása után végzett aktiváció mérési eredményeit a 18. ábra mutatja. Az egyes izotópok aktivitáskoncentrációja megközelítőleg exponenciálisan csökkent összhangban a neutronsugárzás intenzitásának sugárgyengülési (1) egyenlettel jellemezhető csökkenésével.



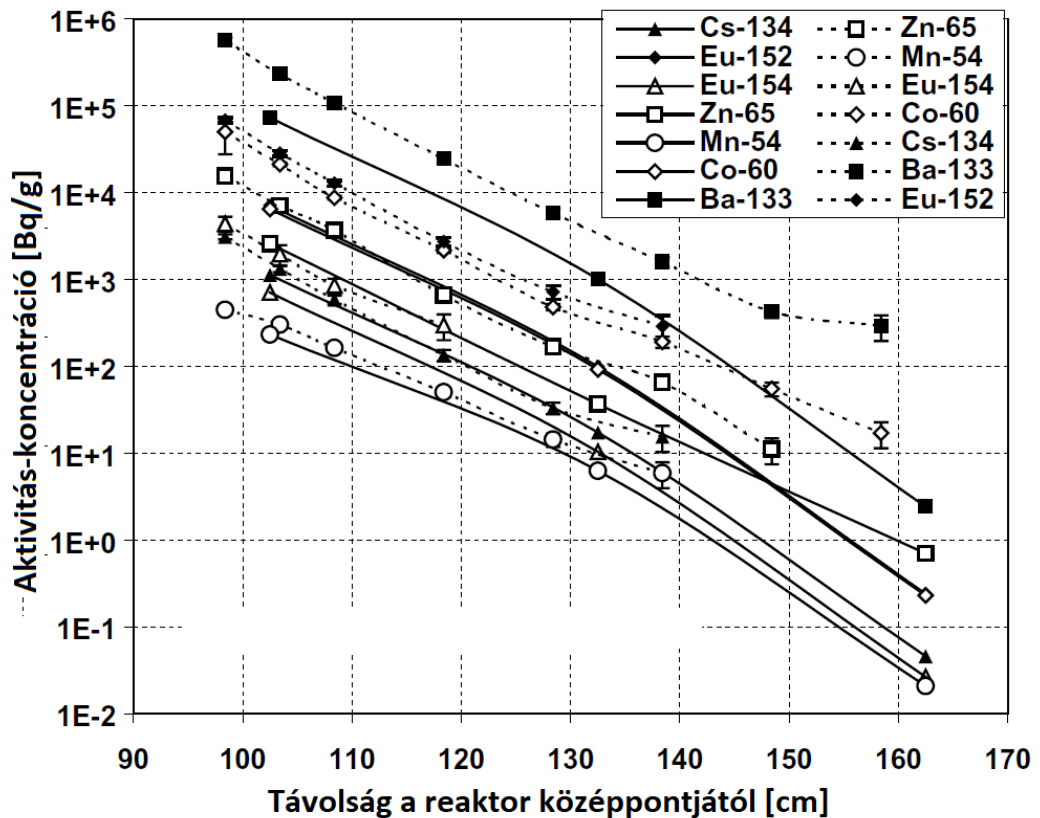
Ezeknek a méréseknek azonban az elsődleges célja nem a felaktivált beton izotópösszetételének kvantitatív meghatározása volt, hanem olyan mérések megvalósítása, melyek szimulációk által reprodukálhatók, és ezáltal hozzá tudnak járulni a szimulációk fejlesztéséhez. Ehhez a radioizotópok mennyiségi meghatározása mellett kellően részletes neutronfluxus mérési és szimulációs tevékenységre is szükség volt. Ezt a következő két cikk tárgyalja részletesen: Žagar és munkatársai [79], Božič és munkatársai [71]. A mérési eredményekkel támogatott, szimulált neutronfluxus adatokat a BUGLE-96-nak megfelelő, 47 energiacsoportha osztott struktúrában közölték [80]. A különböző beton mélységekben szimulált BUGLE-96 spektrumokat a 17. ábra mutatja.



**17. ábra: BUGLE-96 energiafelosztás szerinti neutronspektrumok a TRIGA Mark II. Kutatóreaktor védelmi betonjának különböző mélységeiben [71]**

Végül a létrehozott adatokat felhasználva Žagar és munkatársai az eredményeik szimulációs reprodukcióját is elvégezték, majd összehasonlították a mérési eredményeikkel; ez látható a 18. ábra [73]. A legtöbb izotóp esetében a szimulációs eredmények alulbecsülték a méréseket egy körülbelül 2-5-ös faktorial. (Ez egyébként ellentétes a szakirodalmi áttekintésben szintén bemutatott, Rätý és munkatársai által írt aktivitáskoncentráció méréseket és szimulációkat összehasonlító publikáció következtetéseivel, ahol a szimulációk felülbecsülték a mérési eredményeket [70].) Bár a 2-5-szörös eltérés meglehetősen nagynak tűnik a

legtöbb mérnöki tudomány pontossági követelményeihez képest, egy ilyen összetett neutronaktivációs feladat esetén ez jó szimulációs eredménynek számít. A cikk szerzői az eltérések okát részletesen nem vizsgálták, azonban a hasonló mértékű, egyirányú eltérések szisztematikus hibára utalnak a rendszerben. A szimulációk bemenő paramétereit közül a megfelelő energiaeloszlással rendelkező neutronfluxus generálása a legösszetettebb feladat, ráadásul erre a paraméterre nagyon érzékenyek az eredmények a neutronbefogási hatáskeresztmetszet jelentős neutronenergia függése miatt (lásd részletesebben 1.2.1. fejezet), így valószínűleg ez volt a probléma forrása.



18. ábra: A TRIGA Mark II. Kutatóreaktorban végzett beton besugárzások mérési (pontozott görbék) és szimulációs (folytonos kitöltésű görbék) eredményei [73]

### 3.3 Modell fejlesztés betonaktiváció szimulációjához

A vonatkozó szakirodalom áttekintése alapján (3.2. fejezet) arra a következtetésre jutottam, hogy jelenleg nem elérhető olyan publikáció, amely átfogóan foglalkozna azzal a kérdéssel, hogy a jellemzően reaktortartály környékén elérhető neutronfluxus adatokból hogyan lehet viszonylag egyszerű szimulációkkal közelítő becslést adni a reaktortartály körüli beton mélyebb rétegeinek felaktiválódására. A védelmen kívüli rendszeres tevékenység, pl. a kísérleti rendszerek karbantartása előzetes sugárvédelmi tervezést igényel, ennek fontos része lehet egy pontosabb szimuláció. Az e fejezetben részletesen bemutatásra kerülő kutatás így ezt tűzte ki célul: azt elemezi, hogy az egyes szimulációs paraméterek, elrendezések hogyan befolyásolják a beton aktiváció alakulását a sugárvédelmi betonok mélyebb rétegeiben.

A fejezet három részből áll: a 3.3.1-es fejezetben a létrehozott alap modell és annak validációjához használt adatok kerülnek bemutatásra, a 3.3.2-es fejezet a modell optimalizációjának folyamatát mutatja be, végül pedig a 3.3.3. fejezet összegzi a kutatás tapasztalatait. A fejezet alapját képező eredményeim a *Radiation Protection Dosimetry* folyóiratban kerültek publikálásra [81].

#### 3.3.1 A kiindulási modell felépítése

A modellezés során a Žagar és munkatársai [73] által elvégzett aktivációs kísérletek szimulációs reprodukcióját tűztem ki célul egy egyszerű geometria és neutronforrás alkalmazásával. A szimulációkhoz MCNPX [29] és Cinder 1.05 [23] kódokat használtam, melyek működését részletesebben az 0. fejezet tárgyalja. Egy ilyen modell felépítéséhez három kulcsfontosságú paramétert kell definiálni: a modell geometriáját (a vizsgált egység 3 dimenziós leképezését), a sugárzás forrástagját és az anyag összetételeket a kapcsolódó hatáskeresztmetszet könyvtárakkal.

A geometriát illetően a 16. ábra bemutatott besugárzó csatornát szerettem volna leképezni egy egyszerű modellben. A felépített modell a 19. ábra látható. A 65 cm hosszú, 1,2 cm átmérőjű hengeres betontest egyik végén található a neutronforrás (az ábrán a bal oldalon, sárga pöttyökkel jelölve). A barit betonban (kék színnel jelölve az ábrán) 0, 5, 15, 25, 35, 45, 55 cm mélységben található a

2 cm vastag, szintén barit betonból készült mintázott térfogatok (pirossal jelölve az ábrán), melyekre a későbbiekben 5, 10, 20...60 cm-es mintavételi pontokként fogok hivatkozni. A számozásban tapasztalható eltérés okára a forrás leírásánál térek ki. A betont határoló, illetve körülvevő térrész kitöltésére több verzió is született a modellezés során; tulajdonképpen ennek optimalizációja jelentette a modell optimalizációt a következő, 3.3.2-es fejezetben [81].



**19. ábra: A sugárvédelmi betonok felaktiválódását szimuláló MCNP modell felépítése [81]**

Forrásként egy, a besugárzott beton hengerrel megegyező sugarú, és a beton irányába mutató nyaláb neutronforrást alkalmaztam. Bár ez valójában egy felületi forrás, kis mérete miatt tekinthető egy kvázi pontforrásnak is. A neutronok energiaeloszlását Žagar és munkatársai publikációjának megfelelően [71] vettem fel. Žagarék kétféle energiafelosztásban is meghatározták a neutronspektrumot: BUGLE-96 és VITAMIN-B6 szerinti felosztásban is közölték azt [80]. Előzetes szimulációkat végeztem mindkét spektrum alkalmazásával, azonban mivel nem voltak számottevő különbségek az eredményekben, kizárólag a BUGLE-96 formátumban közölt kiindulási neutronspektrummal folytattam a szimulációkat. Az eredeti neutronspektrum a 17. ábra látható.

Mivel a spektrumok kizárólag grafikus formában voltak elérhetőek a cikkben [71], a WebPlotDigitizer [82] nevű online program segítségével energiatartományokhoz rendelt neutronintenzitás adatsort generáltam a 17. ábra bemutatott diagram 102,5 cm-hez tartozó görbéjéből. Ez a görbe az első mintázott beton szelet előtti neutronspektrumnak felel meg. Ez az oka annak, hogy a szimulációkban a 0 ponttól induló beton minta T. Žagar és munkatársai publikációjában [73] az 5 cm-en található mintának felel meg: az első nem mintázott 5 cm-t kihagytam a szimulációkból neutronforrás adatok hiányában. A neutronok energiaeloszlásán felül mennyiségi információra is szükség volt a forrástag felállításához. Ehhez a szintén publikált arany fólia besugárzásokat [73] reprodukáltam szimulációk segítségével. A neutronfluxus súlyozó faktorát az arany fóliák egyensúlyi aktivitásának segítségével határoztam meg [81].

Az anyagok összetételét illetően részletes információk csak a barit betonról (sűrűség: 3,7 g/cm<sup>3</sup>) voltak elérhetőek a besugárzott betonok közül a feldolgozott cikkekben [73], így annak az összetételét használtam a szimulációk során, az alapján állítottam össze a beton anyagkártyáját. Mivel aktivációs problémáknál kulcsfontosságú a neutronbefogási keresztmetszetet definiáló könyvtár, így annak kiválasztását sem bíztam az MCNP-re. Az MCNP vonatkozó útmutatójából [83] a legfrissebb, ENDF/B-VII.1 könyvtárat választottam minden izotóp esetében. Ebben több, eltérő hőmérsékletekhez tartozó adatsor is elérhető. Mivel egy reaktorcsarnokban szobahőmérséklethez közeli a hőmérséklet, így a szobahőmérséklethez tartozó adatokkal dolgoztam. Az ezen elvek mentén előállított, MCNP által már közvetlenül felhasználható anyagkártyát a 6. táblázat tartalmazza.

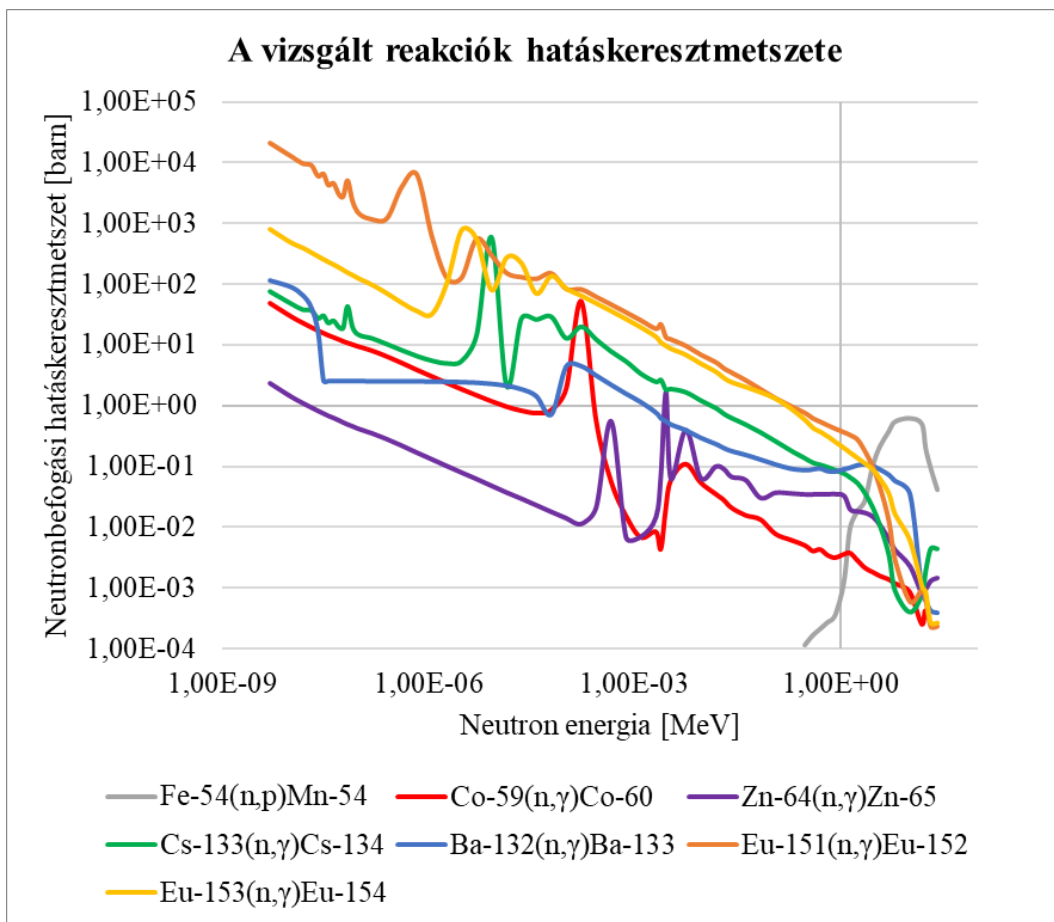
8016.80c	-3.75E+01	\$ O
12024.80c	-1.50E+00	
12025.80c	-1.90E-01	
12026.80c	-2.09E-01	\$ Mg
14028.80c	-1.29E+00	
14029.80c	-6.56E-02	
14030.80c	-4.33E-02	\$ Si
16032.80c	-7.12E+00	
16033.80c	-5.70E-02	
16034.80c	-3.22E-01	
16036.80c	-1.50E-03	\$ Si
20040.80c	-6.50E+00	
20042.80c	-4.33E-02	
20043.80c	-9.05E-03	
20044.80c	-1.40E-01	
20046.80c	-2.68E-04	
20048.80c	-1.25E-02	\$ Ca
26054.80c	-3.97E-02	
26056.80c	-6.24E-01	
26057.80c	-1.44E-02	
26058.80c	-1.92E-03	\$ Fe
27059.80c	-3.92E-04	\$ Co
30064.80c	-8.21E-03	
30066.80c	-4.76E-03	
30067.80c	-6.97E-04	
30068.80c	-3.23E-03	
30070.80c	-1.07E-04	\$ Zn
55133.80c	-1.23E-04	\$ Cs
56130.80c	-4.70E-02	
56132.80c	-4.47E-02	
56134.80c	-1.07E+00	
56135.80c	-2.92E+00	

56136.80c	-3.48E+00	
56137.80c	-4.98E+00	
56138.80c	-3.18E+01	\$ Ba
62144.80c	-2.33E-06	
62147.80c	-1.14E-05	
62148.80c	-8.54E-06	
62149.80c	-1.05E-05	
62150.80c	-5.61E-06	
62152.80c	-2.03E-05	
62154.80c	-1.73E-05	\$ Sm
63151.80c	-8.13E-06	
63153.80c	-8.87E-06	\$ Eu
90232.80c	-1.18E-04	\$ Th
92234.80c	-6.00E-09	
92235.80c	-8.64E-07	
92238.80c	-1.19E-04	\$ U

**6. táblázat: Az MCNP szimulációkban használt anyagkártya**

A szimulációk során 7 radioizotóp egyensúlyi aktivitáskonzentrációját vizsgáltam a védelmi beton korábban leírt mélységeiben. A vizsgált izotópok a  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  és az  $^{154}\text{Eu}$  voltak. Mérési referenciaként a 18. ábra aktivitáskonzentráció értékeit használtam. Mivel ezek az adatok sem voltak elérhetőek számszerű formában, ezeket az adatokat is a WebPlotDigitizer [23] program segítségével konvertáltam számokká [81].

Ahhoz, hogy a mérési eredmények és a szimulációk közti eltéréseket a későbbiekben megfelelően tudjam értékelni, a vizsgált izotópok Cinder által használt neutronbefogási hatásmetszet könyvtárait is bemutatom a 2.2.1. fejezetben (Wilson és munkatársai [23]). A 7 izotóp közül 6 (n, $\gamma$ ) reakcióval keletkezik. Ezen reakciók hatáskeresztmetszetének energiafüggése átlagosnak mondható: a hatáskeresztmetszet az  $1/v$  szabálynak megfelelően (lásd részletesebben: 1.2.1. fejezet) a neutron energia növekedésével csökken, helyenként kiugró rezonancia tartományokkal. A 6 izotóp közül az  $^{152}\text{Eu}$  neutronbefogási hatáskeresztmetszete tolódik el leginkább az alacsonyabb energiatartományok felé. A reakciók közül természetesen „kilóg” a  $^{54}\text{Mn}$  keletkezéséhez vezető (n,p) reakció. Ez egy 300 keV-es küszöbvel rendelkező reakció, MeV-es tartományba eső maximummal.



20. ábra: A kutatásban vizsgált radioizotópok jellemző reakcióinak hatáskeresztmetszete a neutronenergia függvényben [23], [81]

### 3.3.2 A modellezés eredményei, a modell optimalizálása

Mint arra már korábban utaltam, a reaktortartály körüli sugárvédelmi betonok mélységi felaktiválódásánál egyszerű modellek esetén a legnagyobb kihívás a vizsgált beton szelet környezetének megfelelő figyelembevétele, vagyis az, hogy hogyan lehet egy általában rendelkezésre álló neutron pontforrásból a valóságot közelítő mélységi felaktiválódást becsülni. Ennek vizsgálatához számos különböző elrendezést kipróbáltam, melyeket ebben a fejezetben részletezek.

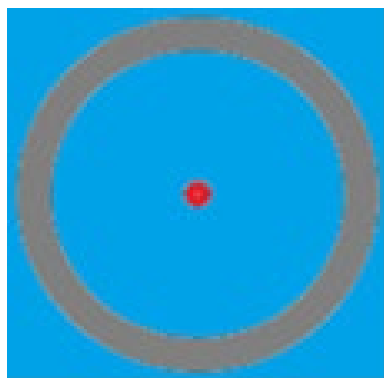
Először 4 egyszerű esetet vizsgáltam, melyek referenciaként is szolgáltak a későbbi, összetettebb esetek értékeléséhez. Ezek a következők voltak [81]:

1. Csupasz Modell: ebben a legegyszerűbb esetben azok a neutronok, melyek elhagyták a vizsgált beton hengert (lásd 19. ábra), megszűntek létezni. Emiatt a várakozás az volt, hogy a beton mélyebb rétegeiben a modell jelentősen alá fogja becsülni a valós felaktiválódást a hiányzó neutronok miatt.
2. Beton Gyűrűs Modell: ebben az esetben a vizsgált beton hengert (lásd 19. ábra) egy 1 m vastag beton gyűrűvel vettem körbe. Ennek célja a visszaszóródott neutronok figyelembevétele volt, így itt az előzőnél jobb eredményekre számítottam. Azokat a neutronokat azonban, melyek nem visszaszóródásból, hanem eredendően a mintázott térfogatot körülvevő betonból származnának (ezek forrását azok a reaktorból kilépő neutronok képezik, melyeket az egyszerűsített neutron forrásunk ezen a ponton még nem tartalmaz), ez a modell sem veszi figyelembe, így továbbra is a mérési eredményeket alulbecslő szimulációs eredményekre számítottam. Mivel a visszaszóródás figyelembevétele minden esetben fontos és indokolt, így ezt az 1 m vastag beton gyűrűt az összes későbbi modell is tartalmazta.
3. Tükröző Mintafelületű Modell: ebben az esetben a vizsgált beton hengert egy neutronokat teljes mértékben visszaverő (tükröző) felülettel vettem körbe. Ez az elrendezés azt volt hivatott modellezni, hogy a mintázott térfogatot körülvevő térfogatban ugyanazok a folyamatok játszódnak le, mint a mintázott térfogatban, így azokból ugyanannyi neutron lép be a mintázott térfogatba, mint amennyi kilép belőle. Ez a



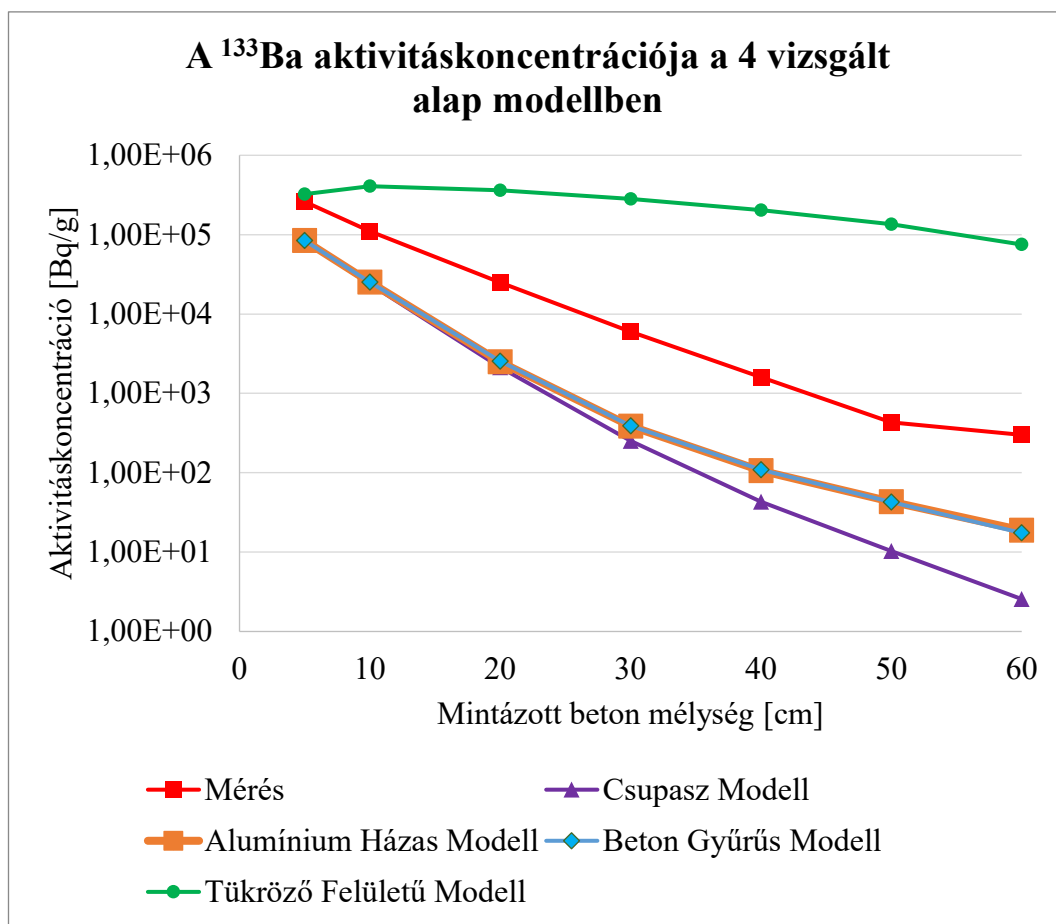
modell 2 jelenséget nem vesz figyelembe: egyrészt azt, hogy a reaktormagtól kifelé haladva az egységnyi térfogatra jutó neutronok száma csökken, mivel a koncentrikus védelmi beton szeletek egyre nagyobb térfogatúak, másrészt vannak nem a reaktormag síkjában található beton szegmensek is, melyekben szintén kisebb az egységnyi térfogatra jutó neutronok aránya. Ez a két tényező miatt a várakozás az volt, hogy a szimulációs eredmények felül fogják becsülni a mért adatokat.

4. Alumínium Házas Modell (21. ábra.): ebben az elrendezésben egy 1,5 cm vastag alumínium ház (az ábrán szürke) vette körül a 6,5 cm sugarú vizsgált beton hengert (kék, illetve piros a mintázott rész). Itt a cél kísérleti elrendezés torzító hatásainak vizsgálata volt. Ezt a modellt meg is jelenítettem a



21. ábra: Az Alumínium Házas Modell keresztmetszeti nézete [81]

A leírt 4 eset hatását az aktivációs termékek keletkezésére a 22. ábra szemlélteti a  $^{133}\text{Ba}$  izotóp példáján keresztül. Az eredmények bemutatása során azért részesítettem előnyben a  $^{133}\text{Ba}$  értékeket, mert a  $^{133}\text{Ba}$  a mérési és szimulált eredmények arányainak tekintetében hasonlóan viselkedik a legtöbb vizsgált izotóphoz, és vannak rá vonatkozó mérési eredmények minden vizsgált beton mélységben.



**22. ábra: A  $^{133}\text{Ba}$  aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében a 4 alap modell esetén összehasonlítva a mérési eredményekkel [81]**

Az első, egészen evidens, bár nagyon fontos megfigyelés az, hogy a mérési eredmények görbéje a különböző szimulációs eredmények görbéi között futott, vagyis a modellek alapvetően nem rosszak, alulról és felülről becsülik a mérési eredményeket, így azok finomhangolásával van esély a mérési eredményeket pontosabban lekövető modell létrehozására.

A második lényeges megállapítás, hogy az Alumínium Házas Modell nagymértékben átfed a Beton Gyűrűs Modellel. Ez azt jelenti, hogy a kísérletben használt alumínium toknak nem volt jelentős hatása a mérés kimenetelére, a mérési eredmények valóban reprezentatívnak tekinthetők a sugárvédelmi betonok felaktiválódása szempontjából. Ezzel az esettel így a továbbiakban nem is foglalkoztam.

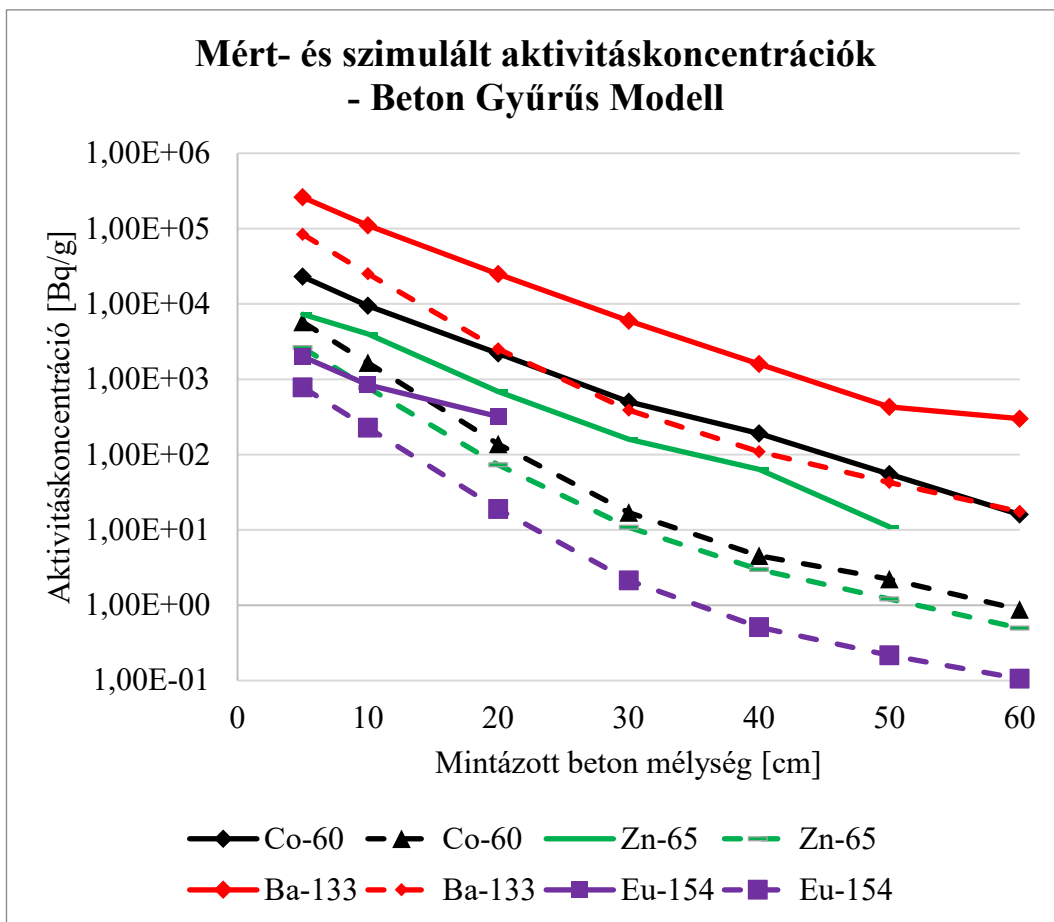
A harmadik megfigyelés, hogy a várakozásoknak megfelelően mind a Csúpasz Modellel, mind pedig a Beton Gyűrűs Modellel kapott eredmények alábecsülték a

mérési eredményeket. Az is egyértelmű, hogy a Csupasz Modell alábecslése jóval nagyobb volt, és természetesen egyre inkább növekedett a beton mélyebb rétegei felé haladva. 60 cm-es mélységben már 100-szoros volt az alábecslése, míg a Beton Gyűrűs Modellnek csak 17-szeres. A kettő közötti különbség a visszaszóródott neutronokból adódik [81].

Végül a Tükröző Mintafelületű Modell görbáját vizsgálva kijelenthető, hogy ez volt az egyetlen modell, amelyik már az első pontban is felülbecsülte a mérési eredményeket. A teljes neutron visszaverődés miatt az első és az utolsó mintázott pont között mindössze negyedére esett a felaktiválódás mértéke a szimulációkban, ezzel jelentősen felülbecsülve a mért értékeket a teljes szakaszon. Érdekesség, hogy a vizsgált szakasz elején még nőtt is a felaktiválódás egy ideig, ami az epitermikus és gyors neutronok termalizációjának tudható be.

Mivel az eddigi elrendezések közül a legjobb eredményt a Beton Gyűrűs Modell adta, ezért azokat a szimulációs eredményeket a többi izotóp esetében is összehasonlítottam a mérési eredményekkel, lásd 23. ábra és 24. ábra.

A korábban részletezett  $^{133}\text{Ba}$  eredményekhez hasonlóan alakultak a  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$  és az  $^{154}\text{Eu}$  szimulációs és mérési görbéi is, melyeket a 23. ábra mutat be. Mivel a 7-ből ez a 4 izotóp hasonlóan viselkedett, ezért a későbbiekben elsősorban ezt az izotópcsoportot tekintettem viszonyítási alapnak. Ezekre az jellemző, hogy kezdetben 2-4-szer akkorák a mérési eredmények, mint a szimuláltak, majd a különbség a mélyebb rétegekben 10-20-szorosra növekszik. Bár még a kezdeti, 2-4-szeres eltérés is nagynak tűnhet, Žagar és munkatársai [73] is hasonló eredményeket értek el, amikor megpróbálták reprodukálni a méréseiket szimulációkkal. Ez nagy valószínűséggel a neutron adatsorokban lévő szisztematikus hibára vezethető vissza, vagyis feltételezhetően már a modell kezdeti szakaszán leírt neutronfluxus sem egészen egyezett meg a valós fluxussal. Mivel ezeknek a hibáknak a feltárása nem témája a disszertációnak (hiszen ezeknek a méréseknek a problémáit lehetőségem sincs feltárni), ezért a modell optimalizálás célkitűzése egy alacsony, de stabil, azaz a legtöbb komponensre kb. azonos eltérést adó mérés-szimuláció arány biztosítása a teljes modellezett tartományon [81].



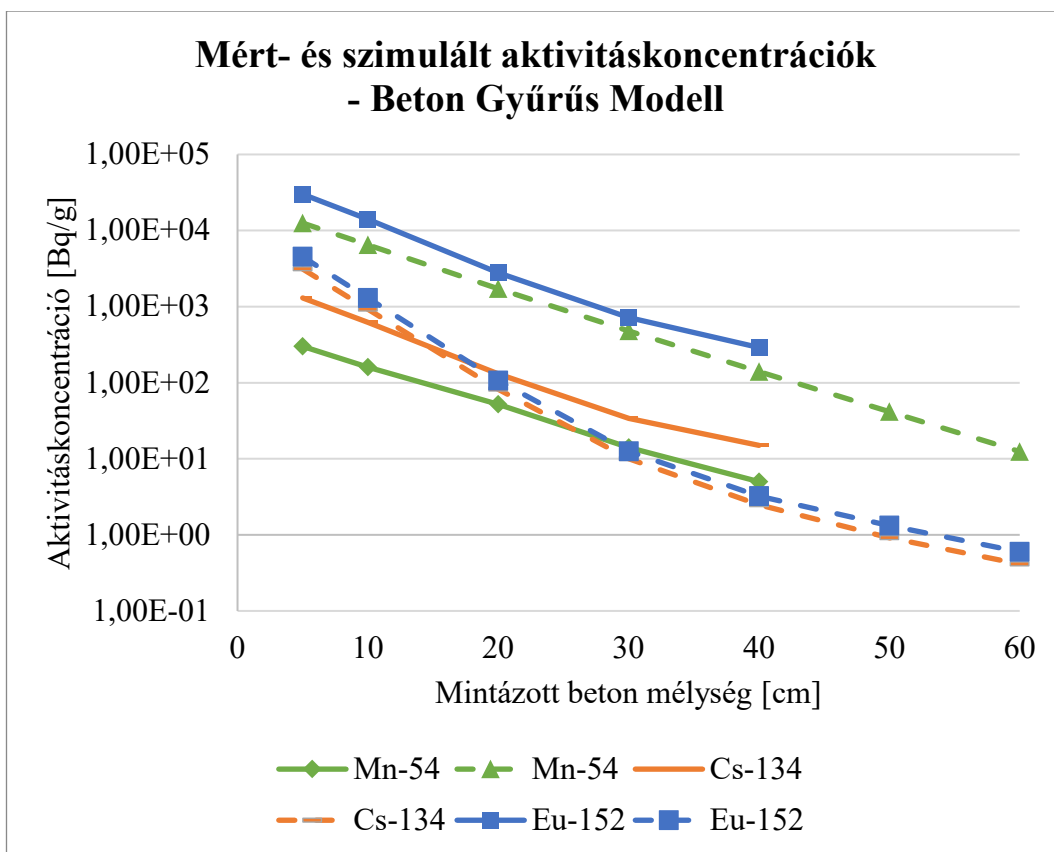
**23. ábra: Hasonlóan viselkedő izotópok mért- és szimulált aktivitáskonzentrációinak alakulása a mintázott beton mélység függvényében a Beton Gyűrűs Modellben.**

**A folytonos vonalak a szimulált-, a szaggatottak pedig a mért eredmények.**

Az első izotópcsoporthoz hasonló eredményeket produkált a  $^{152}\text{Eu}$  is, lásd 24. ábra, viszont a mérés és szimuláció közti eltérés valamelyest nagyobb volt: már az első mintázott pontban is 6-7-szer nagyobb volt a mért érték a szimulálnál. Mivel az  $^{152}\text{Eu}$  keletkezésében játszanak legnagyobb szerepet az alacsony energiájú neutronok, ezért ez a nagyobb eltérés ezen alacsony energiájú neutronok alulreprezentáltságára utalhat a neutronspektrumban [81].

Két izotóp esetén voltak nagyobbak a szimulált eredmények a méréseknél: a  $^{54}\text{Mn}$ -nél és a  $^{134}\text{Cs}$ -nél, lásd 24. ábra. A  $^{54}\text{Mn}$ -nél az eltérés 30-40-szeres volt a teljes mintázott tartományon. Ez a stabil különbség visszavezethető arra, hogy a  $^{54}\text{Mn}$  nagy energiás neutronok hatására vasból keletkezik - mint azt a 20. ábra is mutatja -

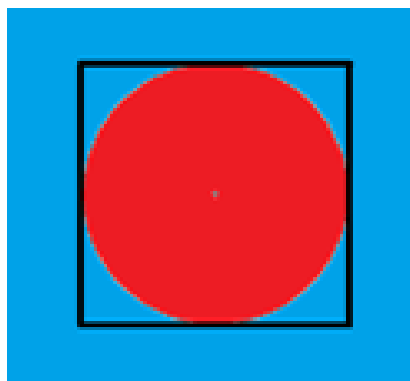
, így a visszaszóródott neutronok nincsenek nagy hatással a keletkezés mértékére.<sup>1</sup> A kimagaslóan nagy eltérésnek két oka lehet. Az egyik, hogy lehet, hogy erre az (n,p) reakcióra kevésbé pontos a hatáskeresztmetszet könyvtár, mint az már a 0. fejezetben is felmerült. A másik ok az lehet, hogy a neutronspektrum valamelyest pontatlan volt, és felülreprezentáltak voltak benne a nagyenergiás neutronok. A <sup>134</sup>Cs esetén a szimuláció eredményei csak 2,5-szer voltak nagyobbak az első vizsgált pontban a méréseknél, azonban ez azt jelenti, hogy a szimulált eredmények 10-szeresei a legtöbb izotóp szimulált eredményeinek. Mivel a cézium nyomszennyező, így ennek az eltérésnek a legvalószínűbb oka az anyagösszetétel mérések során használt minta és a besugárzott minta eltérő cézium tartalma [81].



24. ábra: A 'rendhagyó' izotópok mért- és szimulált aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében a Beton Gyűrűs Modellben. A folytonos vonalak a szimulált-, a szaggatottak pedig a mért eredmények

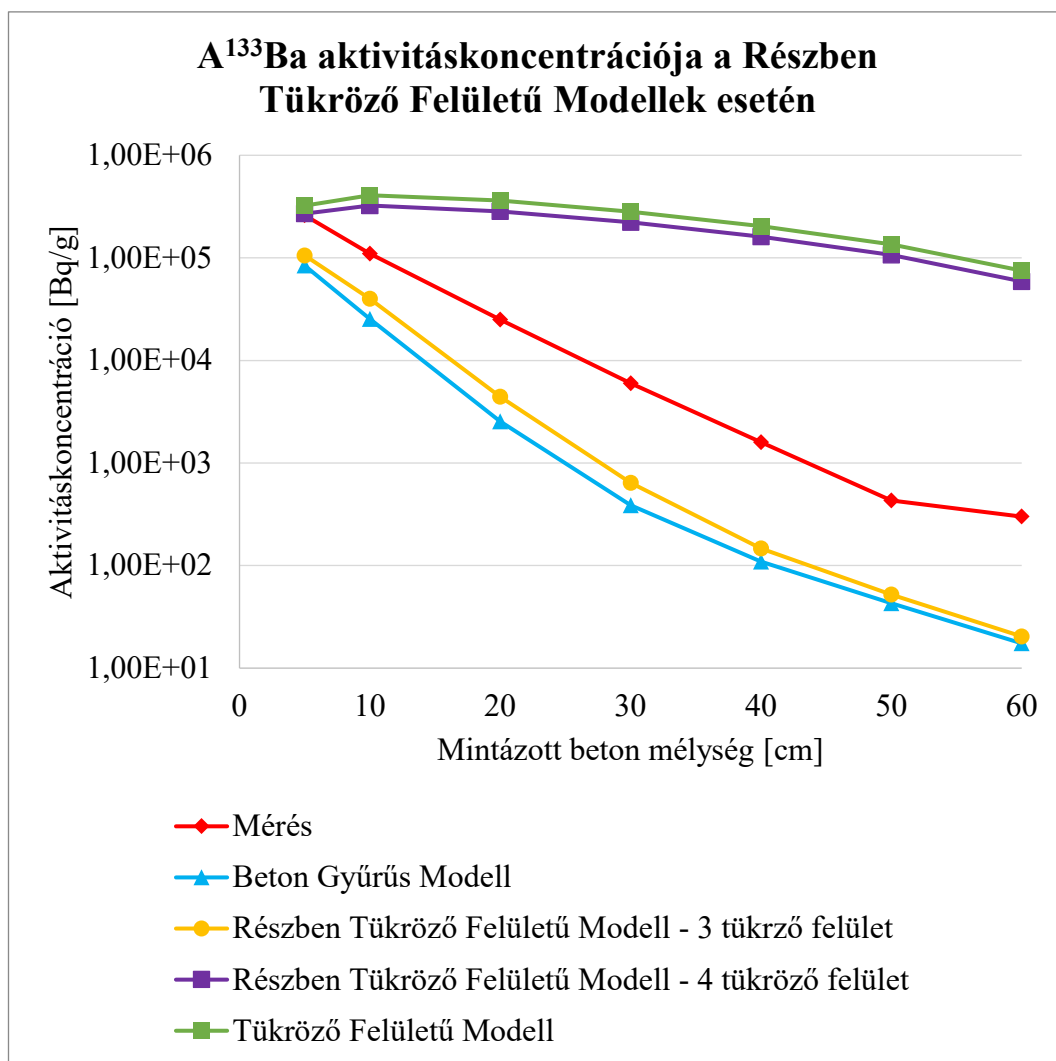
<sup>1</sup> A precizitás kedvéért megjegyzendő, hogy a <sup>54</sup>Mn (n,2n) reakcióval mangánból is keletkezhethet. Mivel azonban az eredeti összetételben nem volt mangán, így a szimulációkban sem, tehát ez a reakcióút nem befolyásolhatta a modellezés eredményeit.

Az egyszerű, alap modellek után összetettebb modellekkel kísérleteztem jobb eredmények elérése érdekében. Az első ilyen modell a Részben Tükröző Felületű Modell volt. Ebben a mintázott hengert körülvettem egy 1,2x1,2 cm élhosszúságú négyzet alapú hasábal, melyben a neutronokat visszaverő felületek száma 1-től 4-ig nőtt (így tehát összesen 4 változata volt ennek a modellnek), lásd 25. ábra. Emögött a modell mögött a fizikai megfontolás az volt, hogy valahogy jó lenne a modellen kívülről érkező neutronokat is figyelembe venni, de kevésbé túlzó módon, mint az Tükröző Mintafelületű Modell esetén történt [81].



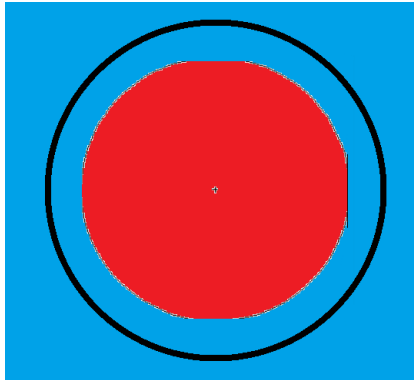
**25. ábra: A Részben Tükröző Felületű Modell keresztmetszete. Pirossal a mintázott barit betont jelöltem, kékkel pedig a nem mintázott barit betont. A fekete vonal a tükröző felületeket jelöli [81].**

A Részben Tükröző Felületű Modell eredményeit a 26. ábra mutatom be. Mivel az 1-3 tükröző felülettel rendelkező modell eredményei nagyon hasonlóak voltak, ezért ezek közül csak a 3 tükröző felülettel rendelkező modell eredményeit ábrázoltam ki. Ezek az eredmények nagyon hasonlítottak a Beton Gyűrű Modell eredményeire. Ahhoz képest az első vizsgált pontban 25%-kal növelték a felaktiválódást, míg az utolsóban csak 15%-kal, nem kínálva megoldást arra a problémára, hogy a beton mélyebb rétegeiben volt eleve túl nagy az eltérés a mérések és a szimulációk között. Négy tükröző felület esetén az eredmények a Tükröző Mintafelületű Modell eredményeihez álltak közel, azonban mivel a visszaverő felület távolabb helyezkedett el, így ebben az esetben némileg közelebb estek a szimulált eredmények a mérésekhez [81].



26. ábra A <sup>133</sup>Ba aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében a Részben Tükröző Felületű Modellek esetén [81]

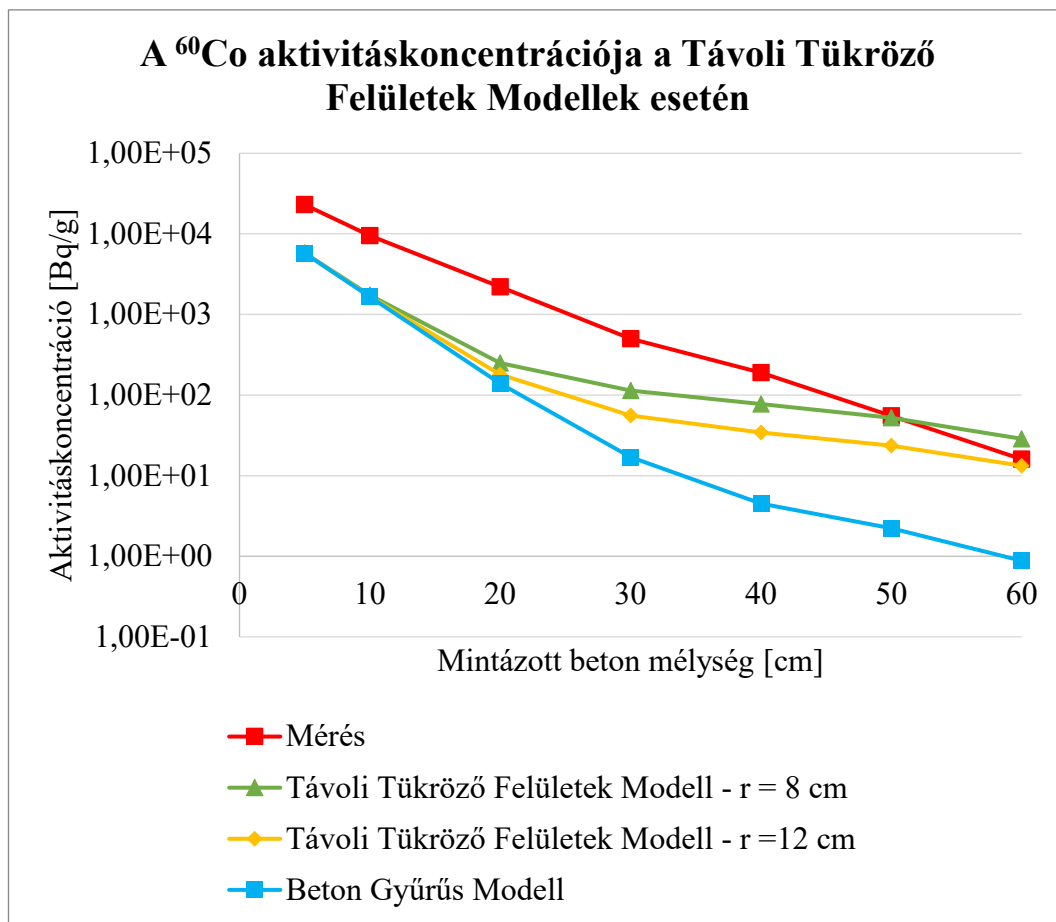
A Részben Tükröző Felületű Modell 4 tükröző felületű változatának tapasztalatai alapján kipróbáltam, hogy milyen hatással van az eredményekre, ha a tükröző felületeket távolabb helyezem el a modelltől. Ez az összeállítás a Távoli Tükröző Felületek Modell nevet kapta. A modellben a mintázott hengereket eltérő sugarú, neutronokat visszaverő hengerekkel vettem körbe, mint azt a 27. ábra szemlélteti. Ennek a modellnek a célja a mintázott térfogat végén megjelenő neutrontöbblet csökkentése volt az extra beton réteg abszorpciója által [81].



**27. ábra: A Távoli Tükröző Felületek Modell keresztmetszete. Pirossal a mintázott barit betont jelöltem, késsel pedig a nem mintázott barit betont. A fekete vonal a tükröző felületet jelöli.**

A Távoli Tükröző Felületek Modell eredményei közül a 8- és a 12 cm sugarú tükröző felületű hengerrel készülőket jelenítettem meg a  $^{60}\text{Co}$  izotópra a 28. ábra. Míg az első néhány pontban az eredmények nagyon közel estek a Beton Gyűrűs Modell eredményeihez, 30 cm-es beton mélység körül ugrásszerű növekedésnek indultak a szimulációs eredmények, és gyorsan meghaladták a mérési eredményeket is. Vagyis a forráshoz közeli rétegekben nem jelentett kellő kompenzációt ez a modell, míg a mélyebb rétegekben túlkompensált, így kimondható, hogy ez a modell nem megfelelő [81].

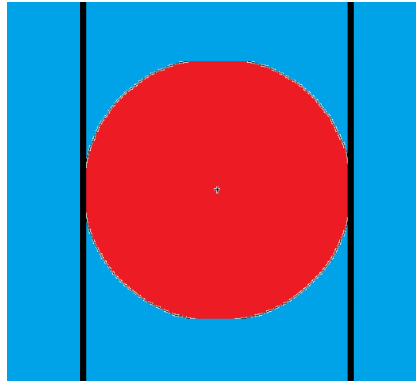




**28. ábra: A  $^{60}\text{Co}$  aktivitáskoncentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében a Távoli Tükröző Felületek Modell esetén.**

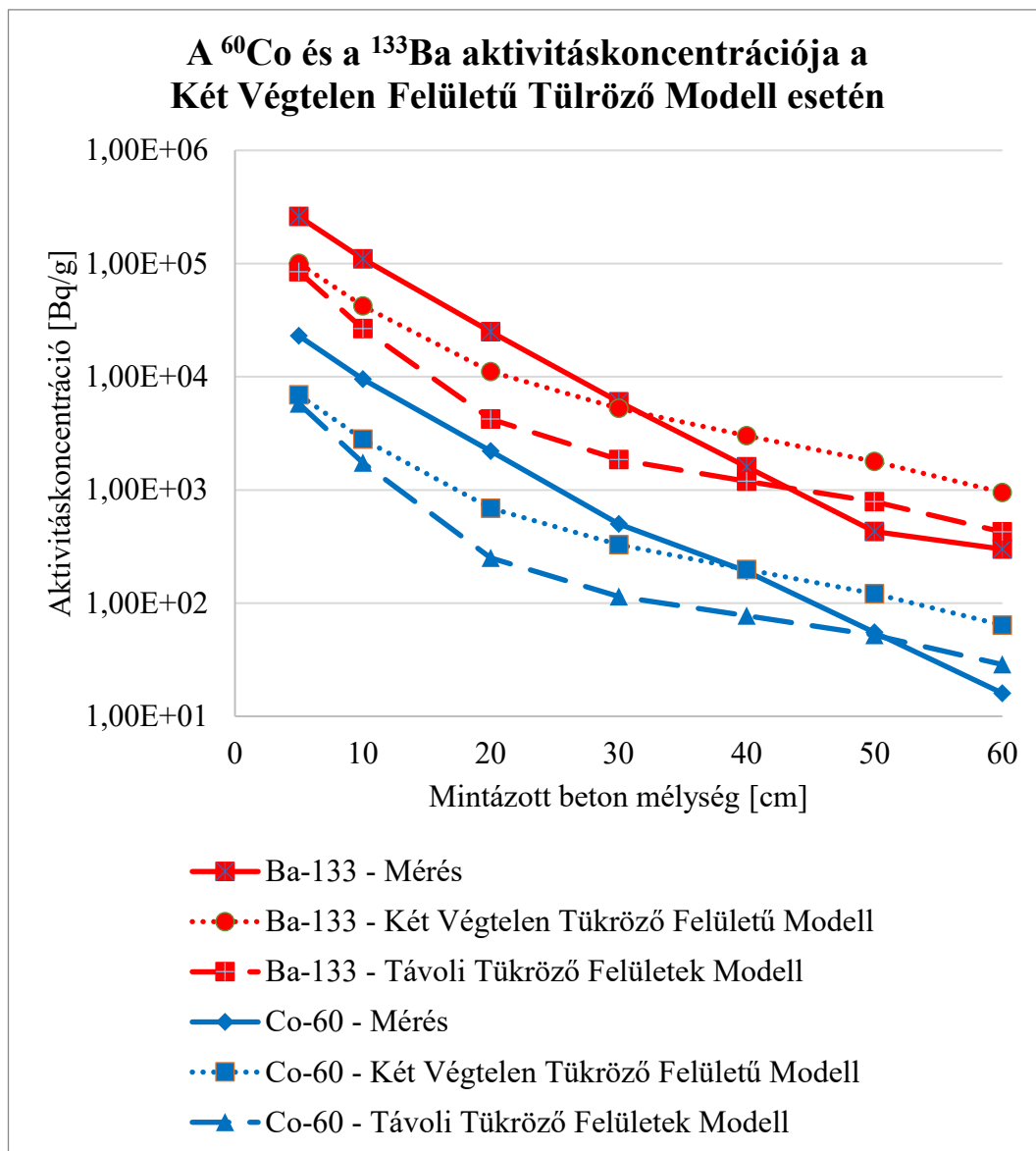
**Az  $r$  a tükröző felület sugarát jelöli [81].**

Annak a problémának a megoldására, hogy a besugárzott beton kezdeti szakaszán nem sok hatása volt az eredményekre az előző, Távoli Tükröző Felületek Modellnek, a mélyebb rétegekben pedig túlkompenzál, egy új modellt hoztam létre: a Két Végtelen Tükröző Felületű Modellt, lásd 29. ábra. A modellben a tükröző felületek egymással szemben, közvetlenül a beton henger mellett helyezkedtek el, így már a kezdeti szakaszon több visszavert neutron jelenhet meg, később pedig az előző esetekhez képest több hagyhatja el a vizsgált térfogatot a nem tükröző felületek mentén. Ez körülbelül a fizikai leképezése annak, hogy egy reaktor körüli beton védelem esetén a vízszintes síkon nagyjából azonos a neutronfluxus, e sík alatt és fölött pedig csökken, amennyiben a vizsgált sík a kritikus, legnagyobb fluxusú magasságban helyezkedik el [81].



**29. ábra: A Két Végtelen Tükröző Felületű Modell keresztmetszete. Pirossal a mintázott barit betont jelöltem, késsel pedig a nem mintázott barit betont. A fekete vonalak a tükröző felületeket jelölik.**

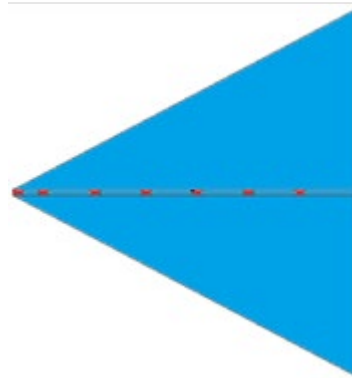
A Két Végtelen Tükröző Felületű Modell eredményeit a 30. ábra mutatja be – a  $^{60}\text{Co}$ -ra és  $^{133}\text{Ba}$ -ra végeztem el az ábrázolást. 20 cm-es mélységig a mérés-szimuláció arány elég stabil volt, utána azonban - hasonlóan az előző esethez – az arány felborult: a szimulált eredmények ismét túlságosan nagyok lettek. A könnyebb összehasonlíthatóság érdekében a Távoli Tükröző Felületek Modell eredményeit is feltettem az ábrára, így jól látszik, hogy még ahhoz képest is jelentősebb az aktivitás növekedése a mélyeb rétegek felé haladva. Ez arra utal, hogy a tükröző felületek közelebbi helyezése nagyobb mértékben járult hozzá az aktivitás növekedéshez mint az, hogy csak két felület tükrözött, a másik kettőn viszont szabadon távozhattak a neutronok.



30. ábra: A  $^{60}\text{Co}$  és a  $^{133}\text{Ba}$  aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélységének függvényében a Két Végtelen Tükröző Felületű Modell esetén

Bár a korábbi modellek közelebb vittek annak a megoldásához, hogy a mérés és a szimuláció aránya minél stabilabb legyen a vizsgált beton henger mentén, megfelelő megoldást nem kínáltak: különösen a mélyebb beton rétegekben voltak nagyon magasak a szimulált felaktiválódási eredmények. Emiatt próbáltam ki a Tükröző Csonkakúp Modellt, lásd 31. ábra. Mint az elnevezése is mutatja, itt a mintázott beton hengert egy forrástól elinduló és a mélyebb rétegek felé táguló csonkakúppal vettem körbe. Ez az elrendezés több szempontból is előnyösnek és egyben realisabbnak tűnik fizikai megfontolások alapján. Egyrészt a visszaverő felület itt is a mintázott térfogaton kívülről érkező neutronokat modellezi, másrészt

a visszaverő felület kúp alakja miatt az egységnyi térfogatra jutó neutronok csökkenését képezheti le jobban a korábbi modelleknél.

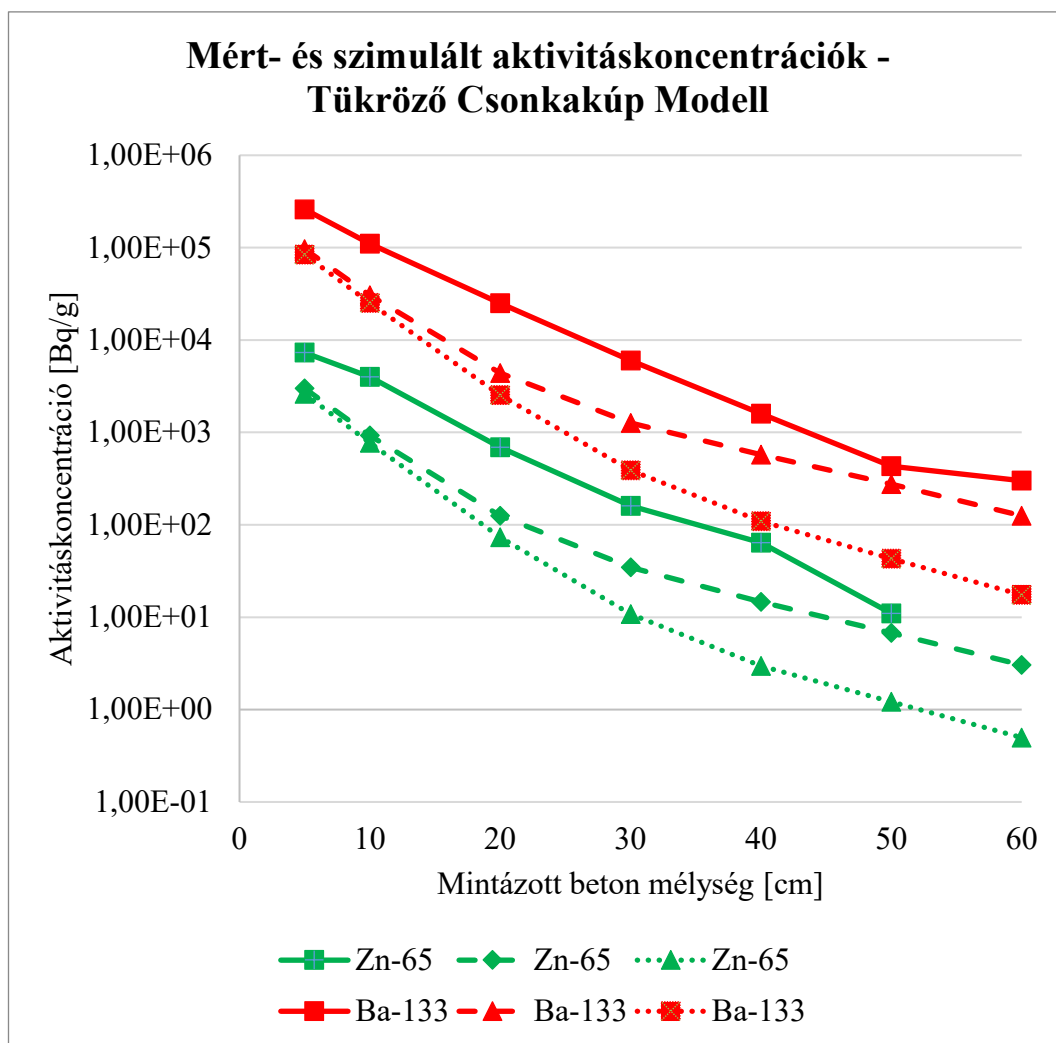


**31. ábra A Tükröző Csonkakúp Modell oldalnézeti keresztmetszete. Pirossal a mintázott barit betont jelöltem, kézzel pedig a nem mintázott barit betont.**

**A kúp palástja tükröző felületű [81].**

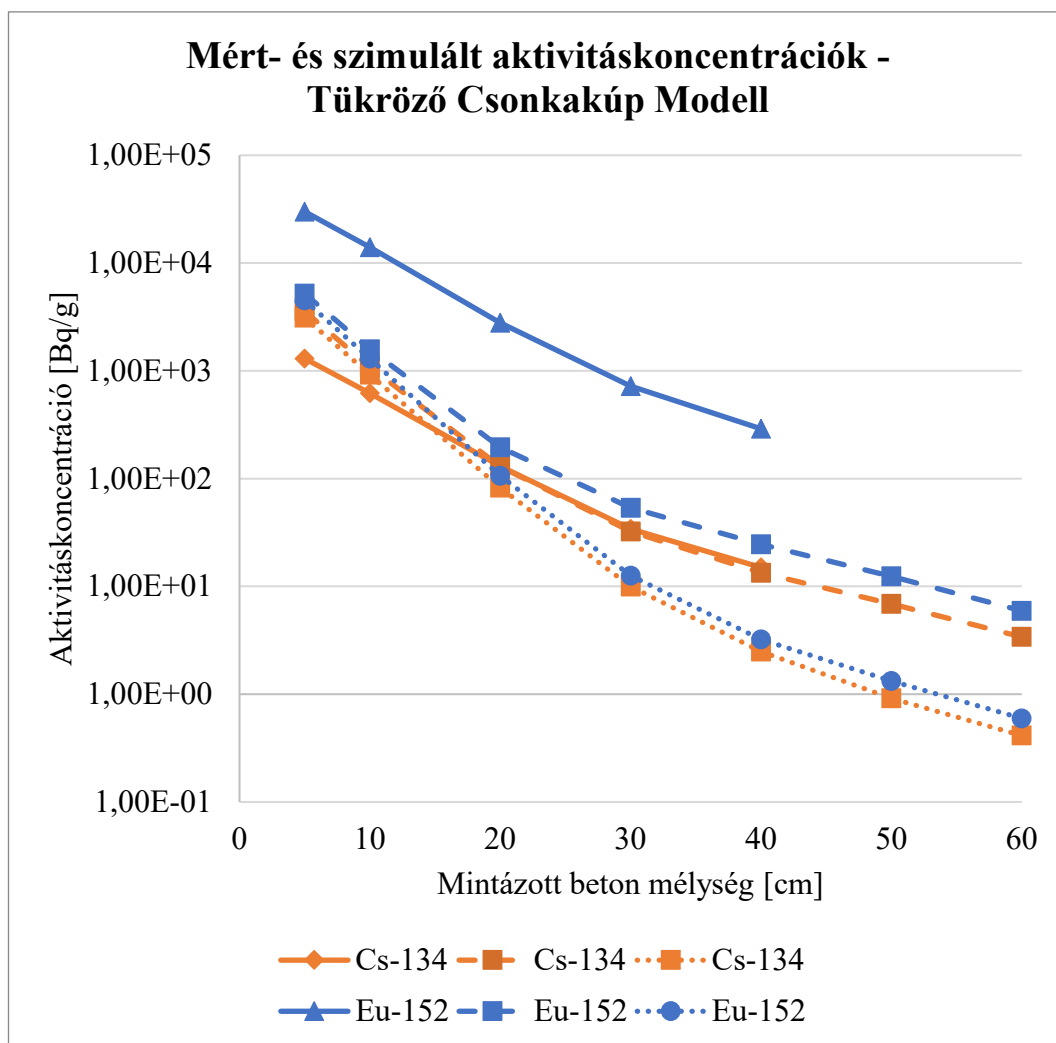
Több, eltérő nyílásszögű kúppal is próbálkoztam a szimulációk során. Összességében a legjobbnak ítélt az volt, amikor az utolsó, 60 cm-es mintánál 50 cm volt a csonkakúp alapjának sugara, így ezeket az eredményeket mutatja be a 32. ábra és a 33. ábra. Az értékeléshez referenciaként a mérési eredmények mellett a Beton Gyűrűs Modell eredményeit is kiábrázoltam.

A 32. ábra a 4 hasonlóan viselkedő izotóp ( $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ) közül a  $^{133}\text{Ba}$  és a  $^{65}\text{Zn}$  eredményeit jelenítettem meg. Ezzel az elrendezéssel 0.18-0.64 közötti szimuláció-mérés arányt sikerült elérni mindkét izotóp esetén a teljes mérési tartományon. Hasonló eredmény született a  $^{60}\text{Co}$  esetén is, az  $^{154}\text{Eu}$ -et pedig nem érdemes vizsgálni a kevés rendelkezésre álló mérési pont miatt. Mivel a beton mélyebb rétegeiben a mérések bizonytalansága is feltételezhetően nagyobb a kisebb aktivitások miatt – mely feltételezésre a mérési görbék lefutása is ráerősít -, ezért ennél pontosabb eredmények egy ilyen szimulációs vizsgálatban nem igazán várhatók.



32. ábra: A  $^{65}\text{Zn}$  és a  $^{133}\text{Ba}$  mért- és szimulált aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében. A folytonos vonalak a mérési eredmények, a szaggatottak vonalak a Tükröző Csonkakúp Modell eredményei, a pontozott vonalak pedig a Beton Gyűrűs Modell eredményei.

A 33. ábra a 'rendhagyó' viselkedésű izotópok ( $^{134}\text{Cs}$  és a  $^{152}\text{Eu}$  és  $^{54}\text{Mn}$ ) közül kettőt: a  $^{134}\text{Cs}$  és a  $^{152}\text{Eu}$  eredményeit jelenítettem meg. (A  $^{54}\text{Mn}$ -ről már korábban leírtam, hogy a keletkezéséhez vezető nagyenergiás küszöbreakció miatt nincsenek rá jelentős hatással az általam vizsgált változtatások a modellben.) A  $^{134}\text{Cs}$  esetén a szimuláció-mérés arányt 0,9-2,7 között alakult a teljes vizsgált tartományon, az utolsó 3 pontban pedig 0,9-1 között volt. Az  $^{152}\text{Eu}$  esetén ez az arány 0,07-0,17 között alakult. Ezen arányok alsó és felső határai között csupán egy hármas faktor van, tehát ezen izotópok esetén is megvalósult a célként kitűzött mérés-szimuláció arányának viszonylag szűk tartományok között tartása.



33. ábra: A  $^{134}\text{Cs}$  és a  $^{152}\text{Eu}$  mért- és szimulált aktivitáskonzentrációjának alakulása a mintázott beton mélység függvényében. A folytonos vonalak a mérési eredmények, a szaggatottak vonalak a Tükröző Csonkakúp Modell eredményei, a pontozott vonalak pedig a Beton Gyűrűs Modell eredményei.

### 3.3.3 A modellezés tapasztalatai

Az előző, 3.3.2-es fejezetben 8 különböző modellel próbáltam meg reprodukálni a Žagar és munkatársai által publikált [73] sugárvédelmi betonok felaktiválódására vonatkozó mérési eredményeket. A különböző modellezett elrendezések eredményei és azok összehasonlítása lehetővé teszi, hogy számszerűsítsük az egyes elrendezések felaktiválódásra gyakorolt hatását, ezáltal elősegítve a modell optimalizálás folyamatát. A folyamat egyik végeredménye a Tükröző Csonkakúp Modell lett, mely a legtöbb vizsgált izotóp esetén kellően stabil mért-szimulált eredmény arányt biztosított a sugárvédelmi beton mélyebb

rétegeiben is ahhoz, hogy a modell alkalmas legyen reaktortartály körüli beton védelem felaktiválódásának modellezésére. Az elért szimulációs eredmények hasonló pontossággal tudták reprodukálni a mérési eredményeket a méréseket végző, Žagar és munkatársai szimulációs eredményeihez [73] [81].

A modellezési folyamat másik nagy eredménye, hogy számos bizonytalanságot, hibát sikerült általa azonosítani. Az elvégzett kutatásban a mérési és szimulált eredmények közti eltérések okainak 3 szintjét azonosítottam, melyek az adat kinyerés, az eredeti adatok, és a modellezési környezet.

Az adat kinyeréssel kapcsolatos problémák kibuknak már a kinyerés folyamata során, nyilvánvalóvá válnak, amikor valamilyen feltételezéssel kell élni. Talán a legnagyobb ilyen jellegű probléma a neutronfluxusé volt. Mivel szögeloszlás nem tartozott a publikált neutronfluxus adatokhoz, önkényesen egy egy irányba (a beton védelem irányába) mutató nyaláb forrás mellett döntöttem, ami egyértelműen vitt be hibát a modellezés folyamatába. Egy következő hibaforrás, hogy kevés számszerű adat volt elérhető, a legtöbb mérési eredményt és a neutronok energiaeloszlását is grafiknról olvastam le a WebPlotDigitizer [82] segítségével, ami szintén növeli a folyamat bizonytalanságát. Végül pedig a modell és a valóság közötti kisebb eltérések is okozhatnak pontatlanságokat, hiszen egy ilyen kiterjedt kísérleti elrendezés sosem olyan tökéletes, mint egy rajz, modell [81].

A második szint, vagyis az eredeti adatokban rejlő pontatlanságok feltárásához hasznos, ha össze tudjuk vetni a modellezésünk eredményeit mások szimulációival, amire most meg volt a lehetőségem. Žagar és munkatársai [73] az eredményeimhez közeli szimulációs eredményeket értek el: az ő szimulációik is körülbelül 2-5-ször kisebbek lettek a mérési eredményeknél. Ez arra utal, hogy valamelyik kulcsfontosságú paraméter meghatározása pontatlan volt. Ilyen mértékű eltéréshez végsősoron csak a neutronfluens meghatározásába csúszott hiba vezethet. Az eleve nem egyszerű fluens meghatározását több tényező is nehezítette: a besugárzást több kampányon keresztül végezték, hogy meglegyen a kívánt fluens, illetve a kísérleti elrendezés létrehozása is megbolygatta az eredeti viszonyokat. A neutronok nem megfelelő energiaeloszlására utalnak többek között a  $^{54}\text{Mn}$  és az  $^{152}\text{Eu}$  szimulációs eredményei is. Míg előbbi az egyetlen kizárólag gyors neutronok hatására keletkező termék, utóbbinak a legkisebb neutronenergiákon a legnagyobb a neutronbefogási

hatáskeresztmetszete. Mivel a szimulációkban a  $^{54}\text{Mn}$  következetesen felül volt becsülve, az  $^{152}\text{Eu}$  pedig (sok más izotóphoz hasonlóan) alul, a használt neutronspektrumban valószínűleg a valóshoz képest magasabb volt a gyors neutronok aránya az alacsonyabb energiájú tartományok rovására [81].

A harmadik, modellezési környezet szinten elsősorban a hatáskeresztmetszet könyvtárak bizonytalanságai vezethetnek pontatlanabb eredményekhez. Ebben a hatáskeresztmetszet meghatározásának nehézségein túl az is szerepet játszik, hogy a kódok nem folytonos hatáskeresztmetszet spektrumokkal dolgoznak, hanem energiatartományokra átlagolt értékeket használnak. Ez különösen a rezonancia tartományokban okozhat problémát. Emellett korábbi tapasztalatok [33] is abba az irányba mutatnak, hogy a  $^{54}\text{Mn}$  keletkezéséhez vezető reakció hibája az átlagosnál nagyobb lehet a használt könyvtár esetén.

Bár a szimulációk során számos hibaforrást azonosítottam, melyek torzították az eredményt, ezek azonosítása is a kutatás egyik eredménye: bizonyítja, hogy egy valódi leszerelés során a szimulációs támogatás rávilágíthat olyan hibákra, melyek egyébként nem derülnének ki, és támpontot nyújthat a különböző hibaforrások azonosításához.

Összefoglalva az eredmények jelentőségét, a kutatás nyomán egy olyan elemzés született, mely átfogóan vizsgálja a reaktortartályok körüli sugárvédelmi betonok mélységi felaktiválódásának szimulációs becslési lehetőségeit limitált forrásadatok esetén. A munka támpontot nyújt a különböző szimulációs paraméterek felaktiválódásra gyakorolt hatását illetően, és áttekinti a lehetséges hibaforrásokat is. Az eredmények hasznosíthatók akár épülő, akár leszerelés előtt álló nukleáris létesítmények radioaktív hulladékokkal kapcsolatos kérdéseinek szimulációs támogatásához, vagy akár egy modellezést támogató mérési kampány optimális megtervezéséhez is. A kutatás egyik lehetséges folytatása egy, a felhalmozott tapasztalatokra építkező hasonló mérési és szimulációs kísérletsorozat végrehajtása, lehetőleg több, eltérő típusú beton bevonásával, ezzel biztosítva, hogy az alkalmazott modell pontosságát ne befolyásolja a vizsgált beton típusa.



## 4 Atomerőművi betonok öregedésének vizsgálata

A betonok, illetve kimondottan a sugárvédelemben használt betonok jellemzőit az 1.3. fejezetben mutattam be részletesen, a neutronsugárzás betonöregítő hatásainak fizikai-kémiai hátterét pedig a 1.2.3 fejezetben foglaltam össze. E fejezet célja egyrészt küszöbértékek rendelése a korábban részletezett, öregedés nyomán létrejövő elváltozások megjelenéséhez, illetve e küszöbértékek meghatározásának és a meghatározás nehézségeinek áttekintése (4.1 fejezet), másrészt egy öregedést tanulmányozó kísérletsorozat elméleti megvalósíthatóságának vizsgálata a Budapesti Kutatóreaktorban (4.2. fejezet).

### 4.1 Nehézségek a neutronok betonöregítő hatásának vizsgálatában

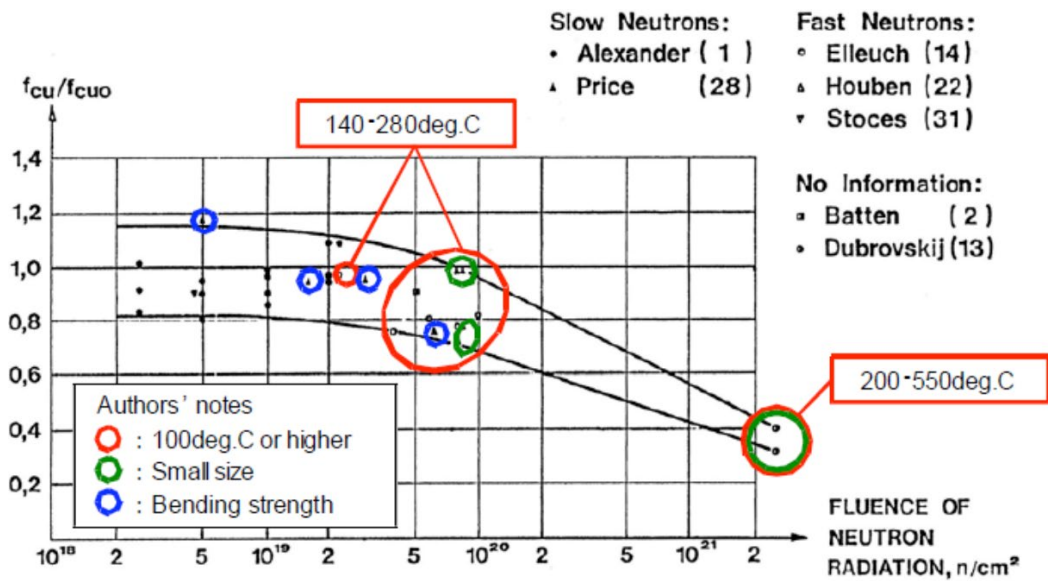
Az atomreaktorok körüli beton védelem három különböző károsító hatásnak van kitéve egyszerre: neutronsugárzásnak, gamma-sugárzásnak és megemelkedett hőmérsékletnek. Mivel ezek a hatások együtt vannak jelen, általában elég nehéz megállapítani, hogy a károsodás milyen mértékben tudható be az egyes hatásoknak [84]. Az 1.2.3. fejezetben már rendeltem küszöbértéket a gamma-sugárzás és a magas hőmérséklet beton károsító hatásának megjelenéséhez, melyek rendre  $10^8$  Gy [8] és 70-80 °C [9], így ebben a fejezetben a neutronokra fogok fókuszálni.

A témában elég sok publikáció született az atomerőművek alkalmazásának hajnalán, az 1960-70-es években, melyeket Hilsdorf és munkatársai foglaltak össze [85]. Az általuk készített ábrából azt a következtetést vonták le, hogy  $10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> fluens fölött csökken a beton szilárdsága. Mivel azóta nem végeztek számottevő kutatást a témában, az újabb tanulmányok - mint például az amerikai nukleáris hatóság által kiadott összefoglaló [9] - is nagyságrendileg hasonló megállapításokra jutnak, hiszen Hilsdorf és munkatársai munkájából indulnak ki [85].

Azóta azonban többen rámutattak Hilsdorf összefoglalójának gyenge pontjaira is, mint például Fujiwara és munkatársai [86]. Ezekben közös, hogy a Hilsdorf cikkének alapjául szolgáló publikációkkal kapcsolatban fogalmaznak meg kritikákat: egyrészt a publikált méréseket nem tartják kellően részletesen dokumentálnak, másrészt pedig a kísérleti körülményeket nem tartják elég kontrollálnak. E két hatás miatt szerintük nem lehet pontosan elkülöníteni, hogy a

károsodások milyen mértékben köszönhetők a neutronoknak illetve az egyéb hatásoknak. A kritikák összefoglalóját mutatja az 34. ábra. Az ábrán az x tengelyen a sugárzásnak kitett és ki nem tett minták nyomószilárdságának aránya szerepel, az y tengelyen pedig a neutronfluens [ $n/cm^2$ ]. Pirossal a 100 °C fölötti hőmérsékleten végzett kísérleteket jelölték, zölddel a túlságosan kis méretű mintákat, kékkel pedig azokat a pontokat, melyek hajlítószilárdság mérésből származnak. A besugárzások során alkalmazott neutronspektrumokról az ábra szövegdobozai szolgálnak információval. Az ábra alapján a következő megállapítások tehetők az eddigi mérésekkel kapcsolatban [86]:

1. A besugárzások során alkalmazott neutronok energiaeloszlásáról általában mérsékelt mennyiségű információ áll rendelkezésre, egyes források esetén pedig semennyi. Az elérhető információk alapján az is megállapítható, hogy a kísérletekben alkalmazott neutron energiaspektrumok általában nem egyeztek meg a reaktorok körüli beton védelmet érő neutronspektrumokkal.
2. A vizsgálatok nagyrésztében nyomószilárdság változást mértek, bizonyos esetekben azonban hajlítószilárdság változást. A különböző értékek egy grafikonon lettek ábrázolva.
3. A besugárzott minták olykor olyan kicsi mérettartományba estek, hogy a rajtuk végzett kísérletek nem reprezentatívak valós sugárvédelmi betonokra.
4. A legtöbb esetben, amikor jelentős szilárdságcsökkenést mértek, a kísérletek során a hőmérséklet nagymértékben meghaladta a 100 °C-ot a reaktorok hőmérsékleti viszonyai miatt. Ez azonban nem jellemző azokon a helyeken, ahol e sugárvédelmi betonokat alkalmazzák. Ráadásul, mint azt korábban is írtam, 70-80 °C fölött már bizonyított a magas hőmérséklet betonkárosító hatása [9], így ezekben az esetekben mindenképpen a neutronoknak való kitettség és a magas hőmérséklet együttes hatása került értékelésre, nem pusztán a neutronoké.



34. ábra: Problémák a Hilsdorf és munkatársai [85] által feldolgozott mérési adatsorokkal [86].

Összefoglalásként tehát elmondható, hogy bár sok kritika érte, még mindig a Hilsdorf és munkatársai [85] által jegyzett publikáció az alapja a neutronok betonöregítő hatásait feldolgozó dokumentumoknak, mivel azóta sem született megfelelő mennyiségű és minőségű adat az akkori következtetések felülvizsgálatához, így továbbra is a  $10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> fluens az általánosan elfogadott szilárdságsökkenéshez tartozó küszöbérték. Újabb mérések és publikációk azért is lennének meglehetősen kívánatosak a területen, mert egyrészt egyre több, alapvetően 40 évre tervezett atomerőmű második üzemidő hosszabbítása van terítéken, másrészt az újabb erőműtípusokat eleve 60-80 éves élettartamra tervezik. Ez a két trend abba az irányba hat, hogy egyre több sugárvédelmi beton fogja elérni a kritikus,  $10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> fluenst az erőmű élettartama során.

## **4.2 Öregedés vizsgálatok lehetőségei és korlátai a Budapesti Kutatóreaktorban**

Az előző, 4.1. fejezetben arra a következtetésre jutottam, hogy a neutronoknak a reaktortartály körüli betonvédelmet károsító hatásának küszöbértékét jó lenne felülvizsgálni újabb mérési eredmények alapján. Ilyen jellegű mérések arra is használhatók lennének, hogy ezen a területen is hozzájáruljanak szimulációs kódok ki- és továbbfejlesztéséhez validációra alkalmas adatbázisok létrehozásával, illetve a probléma mélyebb megértésének támogatásával. Újabb és jobb mérések azonban elsősorban azért nem születtek az utóbbi időben, mert ezek kivitelezése számos nehézségbe ütközik. Az első ilyen probléma, hogy a betonok inhomogén szerkezete miatt viszonylag nagy mintákra lenne szükség, hogy a mérés megfelelően leképezze a valóságot, szemben olyan kis méretben is vizsgálható, homogén anyagokkal, mint például a különböző fémek. Ez az egyik oka, hogy egyéb reaktor anyagok, mint például a reaktortartály vagy az üzemanyagpálcák sokkal részletesebben voltak tanulmányozva. (Természetesen ezeknek a komponenseknek a vizsgálatát a biztonságos üzemeltetésben betöltött kiemelt szerepük is indokolta.) A kísérletek másik kihívása, hogy a besugárzott minták szilárdságtani tesztelése során (például törésteszték) radioaktív por szabadul fel. Emiatt szükséges egy kimondottan ezeknek a méréseknek szentelt mérőhely létesítése forrókamrával, kizárólag az ilyen mérésekhez használt eszközökkel. Gondot okozhat továbbá a nagy méretű, erősen radioaktív minták kezeléséhez szükséges hosszú hűtési idő biztosítása is. Végül kulcsfontosságú az is, hogy a neutronspektrum megfelelő, egy reaktor körüli beton védelmet érőhöz hasonló legyen. Mivel a korábban felsorolt problémák jelentős része inkább gazdasági, mintsem műszaki kihívás, ezért ebben a fejezetben arra helyeztem a hangsúlyt, hogy a Budapesti Kutatóreaktor (BKR) [53] műszaki paraméterei mennyiben felelnek meg egy ilyen vizsgálatnak: mekkora minták vizsgálhatók, milyen neutronspektrum és besugárzási idő mellett [87].

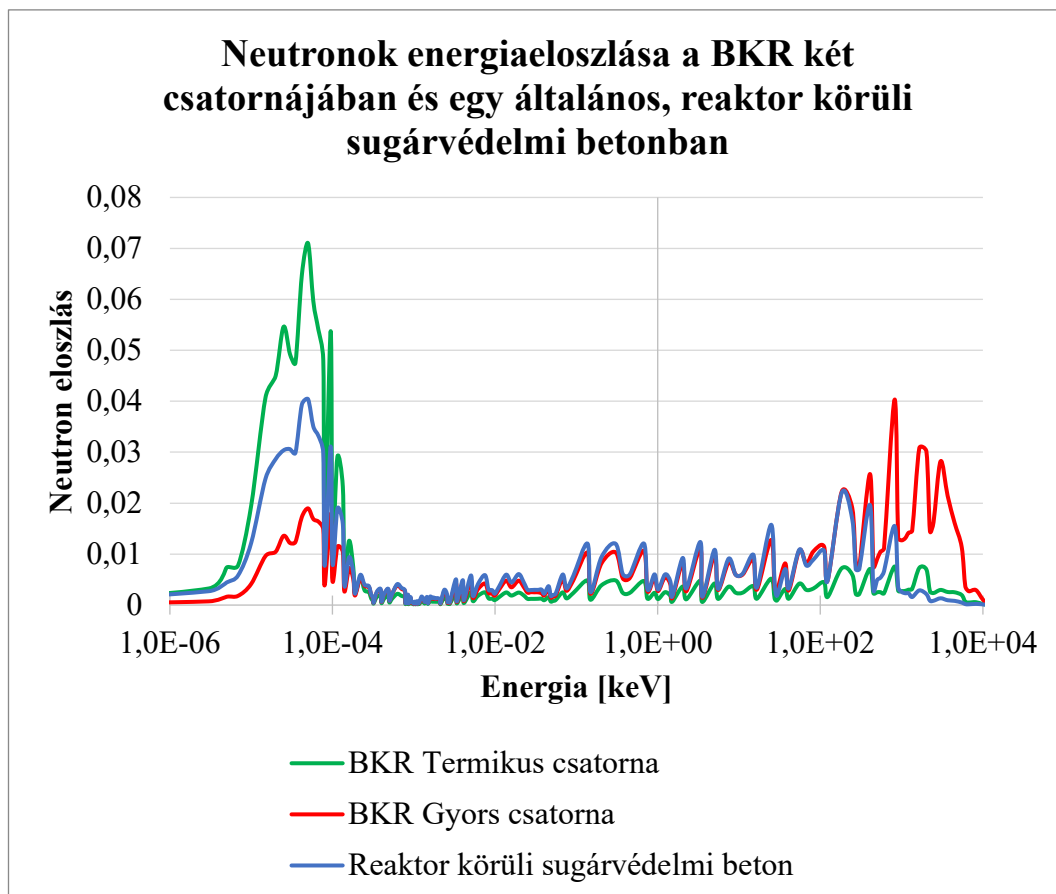
Mivel kutatóreaktorokban általában kis méretű mintákat (például körülbelül 1 g mintát NAA-nál) szoktak besugarazni, ezért a mintaméret egy meghatározó limitáló paraméter. A szabványos törésteszt elvégzéséhez 15 x 15 cm felületű minták szükségesek – bár bizonyos tesztek ennél kisebb mintákon is elvégezhetők. A BKR-ben jelenleg maximum 5 x 10 cm-es minták sugározhatók be

egy reaktormagtól távolabb elhelyezkedő besugárzó helyen. Ezen a helyen körülbelül  $1,1 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>s moderált neutronfluxus van, amivel 3-4 hónap besugárzás alatt is csupán  $10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> fluens érhető el. Ez nagyságrendekkel kisebb, mint a szakirodalomban kritikusnak tekintett  $10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> fluens [85][87].

Ahhoz, hogy a kívánt fluens elérhető legyen, a mintákat a reaktor magjához közelebb kell helyezni. Vannak csatornák a reaktor magban, ahol a maximális minta méret 3,2 x 6 cm. Egy ilyen, jól karakterizált csatorna a 'Gyors csatorna', ahol NAA mérések keretében végeznek besugárzásokat. Itt a neutronfluxus körülbelül  $2,5 \times 10^{14}$  neutron/cm<sup>2</sup>s. A reaktormagon kívül helyezkedik a szintén NAA mérésekhez használt 'Termikus csatorna', melynek fluxusa  $3,5 \times 10^{13}$  neutron/cm<sup>2</sup>s. Ilyen fluxusokkal a  $10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> fluens kevesebb, mint 1 hét alatt elérhető [38][87].

A neutronfluens nagysága mellett az energiaeloszlás is egy fontos faktor, hiszen az eltérő energiájú neutronok eltérő mértékben károsítják a beton szerkezetét. Emiatt elvégeztem a Gyors csatorna, a Termikus csatorna, és egy reaktor körüli védelmi beton felületét érő neutronspektrum összehasonlítását, melyet a 35. ábra meg is jelenítettem. A betont érő megfelelő neutronspektrumot publikus adatbázisokban elérhető információk és szimulációk segítségével állítottam elő a következő eljárással [87]:

1. A FISPACT adatbázisában elérhetőek információk a reaktortartály  $\frac{1}{4}$  vastagságánál megfelelő felbontásban [72].
2. MCNP6.2 [17] szimulációk segítségével (melyek működési elvéről részletesebben az 1.4.2. fejezetben írtam) felépítettem egy modellt, melyben a neutronok a reaktortartály további  $\frac{3}{4}$  részét képező, körülbelül 15 cm-es távolságot megteszik acélban.
3. A modellben a tartályon kívül található árnyékoló beton felső 10 cm-én monitoroztam a neutronspektrumot. Ennek a folyamatnak az eredménye látható a 35. ábra.



**35. ábra: Neutronspektrumok a BKR Gyors- és Termikus besugárzó csatornájában, illetve egy általános atomerőmű reaktortartálya körüli sugárvédelmi betonban [87]**

A 35. ábra elemezve a következőket figyelhetjük meg:

1. Mindhárom görbe esetén van egy csúcs a 25 meV-es, termikus energiaszinténél. A csúcs a legnagyobb a Termikus csatornában, ettől elmarad a sugárvédelmi betoné, a legkisebb pedig a Gyors csatornában.
2. Ezt követően a körülbelül 500 keV-es határig együtt fut a Gyors csatorna és a sugárvédelmi beton neutroneloszlásának görbéje. A Termikus csatornái is hasonló lefutású, de jóval elmarad az előzőektől.
3. Az utolsó energiatartományban körülbelül 20 MeV-ig figyelhetőek meg neutronok, elsősorban a Gyors csatornában. A Termikus csatornában és a sugárvédelmi betonban minimális a nagy energiájú neutronok aránya.

Mivel a BKR-ben két eltérő karakterisztikájú besugárzó csatorna is rendelkezésre áll, melyek bizonyos energiatartományokon hasonló energiaeoszlással rendelkeznek egy atomerőmű reaktorát körülvevő beton védelmet érő neutron spektrumhoz, ezért érdemes lenne mindkét besugárzó helyen méréseket végezni,

mert akkor kvantifikálni lehetne az eltérő energiájú neutronok betonöregítő hatását. Mivel ma már rendelkezésre állnak fejlett szimulációs eszközök is, ezek bevonásával is érdemes lenne támogatni a mérések kiértékelését. Valószínűsíthető például, hogy a károsodás jobban korrelál az egységnyi betonban leadott energiával vagy a dpa-val (dpa – displacement per atom: egy adott fluensnek kitett anyag atomjainak átlagos elmozdulási száma [elmozdulás/atom]), mint a jelenleg általánosan elterjedt fluenssel. Új mérések esetén ilyen, vagy ezekhez hasonló mutatókat is létre lehetne hozni szimulációs támogatással, jelentősen megnövelve egy-egy mérés tudományos értékét.

Összefoglalásként elmondható, hogy napjainkban az épülő új atomerőművek illetve az üzemidő hosszabbítások miatt valós igény mutatkozik reaktorok körüli sugárvédelmi betonok neutronsugárzás hatására bekövetkező öregedésének vizsgálatára. Ilyen vizsgálatok kivitelezésére bizonyos megszorítások és fejlesztések mellett a BKR-ben lehetőség lenne. Ebben a fejezetben a neutronfluxus vizsgálatára helyeztem a hangsúlyt. A BKR egyes besugárzó csatornáiban rendelkezésre áll olyan, az atomerőművi sugárvédelmi neutronokat érő sugárzáshoz hasonló energiaeoszlású neutronfluxus, mellyel körülbelül 1 hetes besugárzási idő alatt elérhető lenne a jelenleg kritikusnak tekintett  $10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> fluens. Erősen limitált viszont a besugározható minták mérete, melyeken így csak a szabványostól eltérő szilárdságtani tesztek lennének elvégezhetőek. Egy ilyen kísérletsorozathoz mindenképpen szükség lenne egy dedikált, megfelelően felszerelt forrókamrára is a meglehetősen aktív minták kezeléséhez. Továbbá praktikus lenne megoldani a minták hűtését is a besugárzások alatt, hiszen a korábban végrehajtott kísérletek leggyengébb pontja, hogy a neutronok degradáló hatása nem elkülöníthető a magas hőmérséklet károsító hatásától [87].

## 5 Összefoglalás

A disszertációban bemutatott kutatások a neutronsugárzásnak kitett betonokban végbemenő változásokat és azok sugárvédelmi következményeit vizsgálták, építve az egyre inkább terjedő szimulációs lehetőségekre. A dolgozat három nagyobb témakör köré épül, melyek a felaktivált betonok bomlási gamma-dózistere, a betonok radioaktív hulladékká válása, illetve a sugárvédelmi betonok öregedése.

Betonok bomlási gamma-dózistérének pontos becslése kapcsán egy, az ESS-hez kapcsolódó kutatási programot hajtottam végre. Ebben megtörtént a beépítésre szánt betonok részletes elemanalitikai feltérképezése, és a külső sugárterhelésben kiemelt szerepet játszó radioizotópok körének meghatározása. E két információ felhasználásával MCNP által közvetlenül használható anyagkártyákat készítettem, melyek jól alkalmazhatók felaktiválódással kapcsolatos szimulációkban. Az elkészített anyagkártyákat a Budapesti Kutatóreaktorban végzett besugárzásos kísérletek reprodukálásával validáltam is. Az anyagkártyákat felhasználva szimuláltam egy ESS karbantartási forgatókönyv során a felaktivált betonból származó bomlási gamma-sugárzás dózisteljesítményét, és összehasonlítottam a névleges betonösszetétellel szimulált értékekkel. Az általam készített anyagkártyákkal 30-70%-kal növekedtek a szimulált dózisteljesítmény értékek a névleges anyagösszetételekkel szimuláltakhoz képest, rávilágítva a pontos anyagösszetétel ismeretének fontosságára, ideértve a nyomszennyezőket is, aktivációval kapcsolatos kérdések kapcsán. Az elkészített anyagkártyák az ESS-en kívül más neutronforrások esetén is felhasználhatók, illetve a bemutatott folyamat mintaként szolgálhat saját, egyedi beton anyagkártyák elkészítéséhez.

A pontos felaktiválódás becslésnek a bomlási gamma-dózistér meghatározása mellett a radioaktív hulladékkezelésben is kiemelt szerepe van a radioaktív hulladékindexen keresztül. Ehhez kapcsolódóan arra kerestem a választ, hogy adathiányos környezetben, amikor az atomreaktorok körül adódó neutronfluens csak egy-egy pontban ismert, hogy lehet minél egyszerűbben és pontosabban modellezni a tartály körüli betonvédelem felaktiválódását. Összesen 8 különböző modell esetén vizsgáltam 7 aktivációs termék aktivitáskonzentrációját



5-60 cm közötti betonmélység tartományban és vettem össze mérésekből származó adatokkal. A kutatás számszerűsítette a vizsgált modellek mélységi betonaktivációra gyakorolt hatását a vizsgált izotópok esetén, továbbá sikerült létrehozni egy olyan modellt, melyet alkalmazva a mérés-szimuláció arány stabil volt a teljes vizsgált beton mélység tartományon. A legtöbb izotóp esetén a mérés-szimulációs arány körülbelül 2-5 közötti értéket vett fel, ami hasonló a szakirodalomban fellelhető szimulációs eredményekhez. A vizsgált radioizotópok eltérő neutronbefogási hatáskeresztmetszete és a számos modellezett elrendezés együttesen arra is rávilágított, hogy a mérési és szimulációs eredmények közti eltérés fő oka a kiindulási neutronspektrum által a rendszerbe vitt szisztematikus hiba. A kutatás eredményei hasznosíthatók nukleáris létesítmények radioaktív hulladékokkal kapcsolatos kérdéseinek szimulációs támogatásához, vagy akár egy modellezést támogató mérési kampány optimális megtervezéséhez is.

A disszertáció utolsó fejezete nem aktivációhoz kapcsolódó problémákkal, hanem a neutronok betonöregítő hatásával foglalkozik, teljessé téve a képet a mérnöki szempontból fontos, neutronok által betonokban kiváltott anyagszerkezeti változások vonatkozásában. Tekintve, hogy a témában elenyésző mennyiségű naprakész publikáció van, amelyek mérési adatokról számolnak be, ezért a BKR ilyen jellegű kutatásokra való alkalmasságát vizsgáltam. A szakirodalomban kritikusnak tekintett  $10^{19}$  neutron/cm<sup>2</sup> fluens csak a reaktorzóna körül érhető el észszerűen rövid idő alatt. A részletesebben vizsgált Termikus és Gyors csatornában az ehhez szükséges besugárzási idő körülbelül 1-10 nap. Ezekben a csatornában a neutronok energia szerinti eloszlása is hasonló képet mutat egy biológiai védelmi betonban találhatóhoz. Megállapítottam, hogy a neutronfluxuson túl kulcsfontosságú, limitáló paraméter a maximális besugározható mintaméret is. Míg a reaktor kellően nagy fluxusú részein jelenleg 32x60 mm a maximális behelyezhető mintaméret, addig sztenderd töréssztekben 150x150 mm-es beton mintákat alkalmaznak. Az eddigi tudományos eredményekhez képest új, kiemelkedő publikációhoz a minta hűtése is elengedhetetlen lenne, mivel a jelenleg

közzétett vizsgálati adatok leggyengébb pontja, hogy nem elválasztható bennük egymástól a neutronok- és a magas hőmérséklet anyagkárosító hatása.

Összefoglalva az eredményeket, a disszertációban átfogó képet kívántam adni a nagy neutronfluensnek kitett - alapvetően sugárvédelmi céllal alkalmazott - betonokban funkciójuk betöltése során létrejövő anyagszerkezeti és -összetételi változásokról. A dolgozat e változások minél pontosabb becslésére vonatkozó módszereket ismerttet, melyek ötvözik a modellezés és a mérés szinergiáiból adódó lehetőségeket. A demonstrált eljárások alkalmazásával lehetőség nyílik a mérések költségeinek csökkentésére szimulációs támogatás révén, vagy a szimulációk pontosságának növelésére mérési adatok bemenő paraméterként-, vagy validációra szolgáló adatként való felhasználásával.

## **Köszönetnyilvánítás**

Szeretném megköszönni az Energiatudományi Kutatóközpont Környezetfizikai Laboratórium munkatársainak és a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézeti Tanszék munkatársainak a doktori tanulmányaim során nyújtott segítséget, támogatást. Továbbá köszönöm Gméling Katalinnak és az EK Nukleáris Analitikai és Radiográfiai Laboratórium további munkatársainak a mérésekben való közreműködést.

## Irodalomjegyzék

- [1] D. Bódizs, *Atommagsugárzások mérés technikái*. Budapest: Typotex, 2009.
- [2] L. Szentmiklósi and Z. Kasztovszky, *Prompt gamma aktivációs analitikai gyakorlat*. Budapest: MTA Izotópkutató Intézet, 2010.
- [3] “Cadmium cut-off.” [Online]. Available: [https://ns.ph.liv.ac.uk/~ajb/radiometrics/glossary/cadmium\\_cut\\_off.html](https://ns.ph.liv.ac.uk/~ajb/radiometrics/glossary/cadmium_cut_off.html). [Accessed: 27-Nov-2023].
- [4] M. Fábrián, J. Osán, and P. Zagyvai, *Magfizika*. Budapest: Edutus Főiskola, 2012.
- [5] G. L. Molnár, *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis : with Neutron Beams*. Springer US, 2004.
- [6] IAEA, *IAEA-TECDOC-1285 Reference neutron activation library*, vol. 4, no. April. 2002.
- [7] Glenn F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, no. 1. 2010.
- [8] O. Kontani, Y. Ichikawa, A. Ishizawa, M. Takizawa, and O. Sato, “Irradiation effects on concrete durability of nuclear power plants.” 2011.
- [9] K. Willam, Y. Xi, and D. Naus, “A Review of the Effects of Radiation on Microstructure and Properties of Concretes Used in Nuclear Power Plants,” *U.S. Nucl. Regul. Comm.*, p. NUREG/CR-7171, 2013.
- [10] O. Kontani, S. Sawada, I. Maruyama, M. Takizawa, and O. Sato, “Evaluation of irradiation effects on concrete structure-gamma-ray irradiation tests on cement paste,” *Am. Soc. Mech. Eng. Power Div. POWER*, vol. 2, 2013.
- [11] T. Kausay, *Betonos e könyv*. Budapest: Magánkiadás, 2020.

- [12] L. Palotás, *Építőanyagok II*. Budapest: Akadémia Kiadó, 1961.
- [13] I. Fehér and S. Deme, *A sugárvédelem*. Budapest: ELTE Eötvös Kiadó, 2010.
- [14] M. R. Tomaz Zagar, “Measurement of Neutron Activation in Concrete,” in *International Conference of Nuclear Energy in Central Europe - 2000*, 2000, pp. 1–8.
- [15] D. D. DiJulio *et al.*, “A polyethylene-B4C based concrete for enhanced neutron shielding at neutron research facilities,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 859, no. March, pp. 41–46, 2017.
- [16] D. D. DiJulio, C. P. Cooper-Jensen, I. Llamas-Jansa, S. Kazi, and P. M. Bentley, “Measurements and Monte-Carlo simulations of the particle self-shielding effect of B4C grains in neutron shielding concrete,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 147, no. December 2017, pp. 40–44, 2018.
- [17] J. T. Goorley *et al.*, “MCNP6 User’s Manual, Version 1.0, LA-CP-13-00634,” *Los Alamos Natl. Lab.*, no. LA-CP-13-00634, p. 765, 2013.
- [18] “Geant4.” [Online]. Available: <https://geant4.web.cern.ch/>. [Accessed: 18-May-2023].
- [19] T. Sato *et al.*, “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 55, no. 6, pp. 684–690, Jun. 2018.
- [20] A. Ferrari, P. R. Sala, A. Fassò, and J. Ranft, “Fluka: a multi-particle transport code (Program version 2023).”
- [21] P. K. Romano, N. E. Horelik, B. R. Herman, A. G. Nelson, B. Forget, and K. Smith, “OpenMC: A state-of-the-art Monte Carlo code for research and development,” *Ann. Nucl. Energy*, vol. 82, pp. 90–97, Aug. 2015.
- [22] I. Lux and L. Koblinger, *Monte Carlo Particle Transport Methods*. CRC

Press, 1991.

- [23] P. M. W. B. Wilson, S. T. Cowell, T. R. England, A. C. Hayes, *A Manual for CINDER'90 Version 07.4 Codes and Data LA-UR-07-8412*. Los Alamos National Laboratory, 2008.
- [24] M. Fleming, T. Stainer, and M. Gilbert, *The FISPACT-II User Manual*, no. January. Oxfordshire: UK Atomic Energy Authority, Culham Science Centre, 2018.
- [25] O. W. Hermann and R. M. Westfall, "ORIGEN-S: Scale System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and decay, and Associated Radiation Source Terms," Oak Ridge, TN, 1998.
- [26] S. C. Tadepalli, P. Kanth, G. Indauliya, I. Saikia, S. P. Deshpande, and P. V. Subhash, "Development and validation of ACTYS, an activation analysis code," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 107, pp. 71–81, Sep. 2017.
- [27] H. Bateman, "Solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations," *Proc. Cambridge Philos. Soc. Math. Phys. Sci.*, vol. 15, pp. 423–427, 1910.
- [28] W. Rubinson, "The Equations of Radioactive Transformation in a Neutron Flux," *J. Chem. Phys.*, vol. 17, no. 6, pp. 542–547, Jun. 1949.
- [29] G. Mckinney, *MCNPX User's Manual, Version 2.7.0*. 2011.
- [30] R. J. McConn Jr, C. J. Gesh, R. T. Pagh, R. A. Rucker, and R. G. Williams III, "Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling," Richlnad, 2011.
- [31] R. Tesse, F. Stichelbaut, N. Pauly, A. Dubus, and J. Derrien, "GEANT4 benchmark with MCNPX and PHITS for activation of concrete," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 416, no. December 2017, pp. 68–72, 2018.

- [32] Y. Yarar, “Activation characteristics of concrete shields containing colemanite,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, no. PART II, pp. 1511–1515, 1996.
- [33] D. Hajdú *et al.*, “Experimental study of concrete activation in MCNP safety simulations for neutron sources,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 171, p. 109644, 2021.
- [34] S. Peggs, *ESS Technical Design Report*. 2013.
- [35] E. Zanini, L.; DiJulio, D.; Santoro, V.; Bentley, P.; Klinkby, “Neutronic design of the bunker wall and roof,” 2018.
- [36] A. et. al Addazi, “New high-sensitivity searches for neutrons converting into antineutrons and / or sterile neutrons at the HIBEAM / NNBAR experiment at the European Spallation Source New high-sensitivity searches for neutrons converting into antineutrons and / or sterile n,” *J. Phys. G Nucl. Part. Phys.*, vol. 48, no. 070501, 2021.
- [37] “Skanska - Sweden.” [Online]. Available: <https://www.skanska.se/en-us/>. [Accessed: 04-Sep-2019].
- [38] L. Szentmiklósi, D. Párkányi, and I. Sziklai-László, “Upgrade of the Budapest neutron activation analysis laboratory,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 309, no. 1, pp. 91–99, 2016.
- [39] F. Corte, L. Moens, A. Simonits, A. Wispelaere, and J. Hoste, “Instantaneous  $\alpha$ -determination without Cd-cover in the  $1/E1+\alpha$  epithermal neutron spectrum,” *J. Radioanal. Chem.*, vol. 52, no. 2, pp. 295–304, Sep. 1979.
- [40] H. Dávid, Z. Péter, D. Eszter, and G. Katalin, “Betonok felaktiválódásának kísérleti- és szimulációs vizsgálata az Európai Neutronkutató Központ (ESS) sugárvédelmi tervezéséhez,” *Sugárvédelem*, vol. 14, no. 1, pp. 58–64, 2021.
- [41] F. De Corte *et al.*, “Installation and calibration of Kayzero-assisted NAA in three Central European countries via a Copernicus project,” *Appl. Radiat.*

*Isot.*, vol. 55, no. 3, pp. 347–54, Sep. 2001.

- [42] L. Szentmiklósi, T. Belgya, Z. Révay, and Z. Kis, “Upgrade of the prompt gamma activation analysis and the neutron-induced prompt gamma spectroscopy facilities at the Budapest research reactor,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 286, no. 2, pp. 501–505, 2010.
- [43] B. Fazekas, G. Molnár, T. Belgya, L. Dabolczi, and A. Simonits, “Introducing HYPERMET-PC for automatic analysis of complex gamma-ray spectra,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 215, no. 2, pp. 271–277, Jan. 1997.
- [44] G. L. Molnár, Ed., *Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis*. Boston, MA: Springer US, 2004.
- [45] M. West, A. T. Ellis, P. J. Potts, C. Strelci, C. Vanhoof, and P. Wobrauschek, “2016 Atomic Spectrometry Update – a review of advances in X-ray fluorescence spectrometry and its applications,” *J. Anal. At. Spectrom.*, vol. 31, no. 9, pp. 1706–1755, Aug. 2016.
- [46] E. Dian *et al.*, “Preparation for activation measurements of concrete and PE-B4C-concrete to be applied for shielding at the European Spallation Source,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1021, no. 1, 2018.
- [47] “Epsilon 5 integrated X-ray analysis system.” [Online]. Available: <http://www.speciation.net/Database/Instruments/PANalytical-BV/Epsilon-5-;i1663>. [Accessed: 02-Aug-2019].
- [48] U. Cevik, S. Akbulut, Y. Makarovska, and R. Van Grieken, “Polarized-beam high-energy EDXRF in geological samples,” *Spectrosc. Lett.*, vol. 46, no. 1, pp. 36–46, 2013.
- [49] “ARL™ OPTIM’X WDXRF Spectrometer.” [Online]. Available: <https://www.thermofisher.com/order/catalog/product/IQLAAHGABMFAA SMACH#/IQLAAHGABMFAA SMACH>. [Accessed: 04-Mar-2020].



- [50] D. Hajdú, P. Zagyvai, E. Dian, K. Gméling, J. Osán, and E. Klinkby, “Betonok neutron aktivációjának kísérleti vizsgálata sugárvédelmi szimulációkhoz,” in *Őszi Radiokémiai Napok 2019 konferenciakiadvány*, 2019, pp. 42-47.
- [51] S. Alhajali, S. Yousef, and B. Naoum, “Appropriate concrete for nuclear reactor shielding,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 107, pp. 29–32, 2016.
- [52] M. V. F. P. A. Lavdanskij, V. M. Nazarov, N. I. Stefanov, “Neutron activation analysis for determination of induced radioactivity in concrete of nuclear reactor shielding,” *J. Radioanal. Nucl. Chem. Artic.*, vol. 131, no. 2, pp. 261–270, 1989.
- [53] “Budapesti Kutatóreaktor – Energiatudományi Kutatóközpont.” [Online]. Available: <https://www.ek-cer.hu/budapesti-kutatoreaktor/>. [Accessed: 23-Oct-2020].
- [54] L. Zanini, D. Dijulio, S. Kennedy, E. Klinkby, and V. Santoro, “Neutronic Design of the Bunker Shielding for the European Spallation Source,” vol. 14, pp. 251–253, 2020.
- [55] D. G. Pelowitz, *MCNPX user’s manual, version 2.5.0*. 2005.
- [56] IAEA, “IAEA Safety Standards - Classification of Radioactive Waste for protecting people and the environment. General Safety Guide No. GSG-1,” Vienna, 2009.
- [57] IAEA, “Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards (IAEA GSR Part 3),” 2014.
- [58] ICRP, “ICRP Publication 103 - The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection.”
- [59] European Commission, “Directive 2013/59/EURATOM “Laying down basic safety standards for protection against the dangers arising from exposure to ionising radiation...,” Brussels, 2014.

- [60] E. Council, “Council Directive 96/29/Euratom of 13 May 1996 laying down basic safety standards for the protection of the health of workers and the general public against the dangers arising from ionizing radiation.”
- [61] “1996. évi CXVI. törvény az atomenergiáról - Hatályos Jogszabályok Gyűjteménye.” [Online]. Available: <https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=99600116.tv>. [Accessed: 23-Oct-2020].
- [62] “487/2015. (XII. 30.) Korm. rendelet az ionizáló sugárzás elleni védelemről és a kapcsolódó engedélyezési, jelentési és ellenőrzési rendszerről és 2/2022 OAH rendelet azonos megnevezéssel.” [Online]. Available: <https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=a2200002.oah>. [Accessed: 27-Nov-2023].
- [63] “27/2018. (II. 28.) Korm. rendelet az egyes atomenergetikai tárgyú kormányrendeletek módosításáról - Hatályos Jogszabályok Gyűjteménye.” [Online]. Available: <https://net.jogtar.hu/jogszabaly?docid=A1800027.KOR&txtreferer=00000001.txt>. [Accessed: 23-Oct-2020].
- [64] ICRP, “Annals of the ICRP - ICRP Publication 60 - 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection,” 1990.
- [65] Magyar Szabványügyi Testület, “MSZ 14344-1:2004 - Radioaktív hulladékok. Fogalom meghatározások és osztályozás,” 2004.
- [66] M. Kinno, K. I. Kimura, and T. Nakamura, “Raw materials for low-activation concrete neutron shields,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 39, no. 12, pp. 1275–1280, 2002.
- [67] A. Suzuki *et al.*, “Trace Elements with Large Activation Cross Section in Concrete Materials in Japan,” <http://dx.doi.org/10.1080/18811248.2001.9715065>, vol. 38, no. 7, pp. 542–550, 2012.

- [68] H. Dong Sohn, K. Soo Park, H. Woong Kim, C. Woo Kim, Y. Hwan Hwang, and J. Young Yoon, “The study for activation evaluation on activated structures in nuclear power plant with 40 years operation history,” *Ann. Nucl. Energy*, vol. 141, p. 107305, 2020.
- [69] M. Božič, T. Žagar, and M. Ravnik, “Calculation of Isotopic Composition During Continuous Irradiation and Subsequent Decay in Biological Shield of the TRIGA Mark II Reactor,” in *International Conference of Nuclear Energy in Central Europe - 2002*, 2002, pp. 1–8.
- [70] A. Rätty, M. Tanhua-Tyrkkö, P. Kotiluoto, and T. Kekki, “Validation and Optimization of Activity Estimates of the FiR 1 TRIGA Research Reactor Biological Shield Concrete,” <https://doi.org/10.1080/00295639.2021.2011671>, 2022.
- [71] M. Božič, T. Žagar, and M. Ravnik, “Comparison of Neutron Fluxes Obtained by 2-D and 3-D Geometry with Different Shielding Libraries in Biological Shield of the TRIGA MARK II Reactor,” *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, pp. 105–116, 2003.
- [72] “Reference input spectra - FISPACT-II Wiki.” [Online]. Available: [http://fispact.ukaea.uk/wiki/Reference\\_input\\_spectra](http://fispact.ukaea.uk/wiki/Reference_input_spectra). [Accessed: 06-Jul-2021].
- [73] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, “Long-lived activation products in TRIGA Mark II research reactor concrete shield: Calculation and experiment,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 335, no. 3, pp. 379–386, 2004.
- [74] T. Žagar and M. Ravnik, “Determination of long-lived neutron activation products in reactor shielding concrete samples,” *Nucl. Technol.*, vol. 140, no. 1, pp. 113–126, 2002.
- [75] V. Dean, H. C. Box, R. Jeraj, T. Žagar, and M. Ravnik, “Triga Mark II Reactor Benchmark,” 2016.
- [76] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, “Neutron Activation Measurements in

- Research Reactor Concrete Shield,” in *International Conference - Nuclear Energy for New Europe, Proceedings*, 2001, pp. 1–10.
- [77] M. Lesar, T. Žagar, and M. Ravnik, “Estimation of Waste Volumes after TRIGA Mark II Research Reactor Dismantling,” *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, pp. 779–786, 2003.
- [78] T. Žagar, M. Ravnik, and H. Boeck, “Comparison of Long-Lived Activation in Concrete Samples from Three Different Reactors,” *Int. Conf. - Nucl. Energy New Eur. - 2003*, no. January 2003, pp. 125–131, 2003.
- [79] T. Žagar, M. Božič, and M. Ravnik, “Calculation of Neutron Fluxes in Biological shield of TRIGA Mark II Reactor,” in *International Conference - Nuclear Energy for New Europe, Proceedings*, 2001.
- [80] J.E., White, D.T. Ingersoll, R.Q. Wright, H.T. Hunter and R. W. R. C.O. Slater, N.M. Greene, R.E. MacFarlane\*, “Production And Testing Of The Revised VITAMIN-B6 Fine-Group And The BUGLE-93 Broad-Group Neutron/Photon Cross-Section Libraries Derived From END/B-VI.3 Nuclear Data (NUREG/CR-6214, Revision 1) | NRC.gov,” Oak Ridge, 2000.
- [81] D. Hajdú, M. Klausz, and P. Zagyvai, “Reproduction of shielding concrete activation measurements by simulations,” *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 199, no. 8–9, pp. 689–697, 2023.
- [82] “WebPlotDigitizer .” [Online]. Available: <https://automeris.io/WebPlotDigitizer/?fbclid=IwAR1mMjUr8inZGjpTBE BwBHjmESaHT5TwbGkXYXVpFyM2fQjgE0Cou3YObsk>. [Accessed: 10-Dec-2020].
- [83] J. Lloyd *et al.*, “LA-UR-13-21822 - Listing of Available ACE Data Tables,” 2014.
- [84] Y. Le Pape, K. G. Field, and I. Remec, “Radiation effects in concrete for nuclear power plants, Part II: Perspective from micromechanical modeling,” *Nucl. Eng. Des.*, vol. 282, pp. 144–157, 2015.

- [85] H. K. Hilsdorf, J. Kropp, and H. J. Koch, “The effects of nuclear radiation on the mechanical properties of concrete,” *ACI Spec. Publ.*, vol. 55, pp. 223–251, 1978.
- [86] K. Fujiwara, M. Ito, and M. Sasanuma, “Experimental Study of the Effect of Radiation Exposure to Concrete,” in *Proc. of 20th Int. Conf. on Stru. Mech. In Reactor Tech. (SMiRT 20)*, 2009, p. 1891.
- [87] D. Hajdú, S. Török, V. Sugár, and L. Alnatour, “The Impact of Neutron Irradiation on Concrete Structures,” in *Proceedings of the International Conference Nuclear Energy for New Europe*, 2021, p. 1017.

## Mellékletek

Izotóp	Névleges	PGAA	Szórás	XRF	Szórás	NAA	Szórás
[w%]							
H	0,72	0,60	0,009				
C							
Na	1,06	2,00	0,048	1,97	0,197	1,99	0,073
Al	3,70	5,29	0,115	6,66	0,036		
Si	32,70	31,32	0,257	30,10	0,003		
S	0,24	0,28	0,011	0,17	0,015		
K	2,12	2,13	0,047	2,19	0,001		
Ca	7,12	7,08	0,196	6,63	0,001		
Ti	0,09	0,16	0,004	0,18	0,001	2,86	0,210
Mn		0,03	0,001	0,02	0,001		
Fe	1,16	1,36	0,036	1,34	0,001	1,55	0,059
O	50,80	50,24	1,223				
[mg/kg]							
B		24,9	0,30				
Cl	30	169	4				
V		70	5	55,5	0,22		
Sm		2,0	0,04			2,4	0,10
Gd		2,2	0,13				
Mg	2370			9530	2952		
Sc				7,1*	1,76	4,0	0,14
Cr				44,3	0,32	65,7	2,77
Co				7,0*	1,75	5,5	0,24
Ni				6,4	0,67		
Cu				22,4	0,47		
Zn				87,7	0,48	106,8	6,42
Ga				10,9	0,63		
Ge				3,2	0,23		
As							
Rb				76,0	0,74	86,2	5,49
Sr				380,9	1,35		
Y				12,3	0,42		
Zr				114,1	0,77		
Nb				6,2	0,06		
Mo				2,2	0,08		
In				1,3	0,07		
Sn				2,8	0,30		
Sb				1,2	0,16	1,2	0,10
Cs				3,9	0,07	2,6	0,20
Ba				665	2	641	30
La				23,7	0,29	21,4	0,83
Ce				37,0	7,91	45,8	1,84
Pr				5,5	0,55		
Nd				18,6	4,31	20,3	1,62
W				111,4	0,36	596	22
Pb				19,4	0,38		
Th				4,7	0,23	7,6	0,30
U				3,4	0,16		
Eu				0,55*	0,12	0,7	0,03
Hf						3,0	0,14
Tb						0,4	0,04
Yb							
P	454						
Ta						0,6	0,05

7. táblázat: A Referencia beton PGAA, NAA és XRF (alapvetően EDXRF, a \*-gal jelöltek esetén WDXRF) elemi összetétel mérési eredményei [33]

Izotóp	Névleges	PGAA	Szórás	XRF	Szórás	NAA	Szórás
[w%]							
H	2,31	1,26	0,04				
C	8,99	5,46	0,65				
Na	0,62	1,11	0,05	1,29	0,197	1,21	0,04
Al	2,35	3,44	0,13	5,51	0,036		
Si	28,60	21,50	0,71	27,04	0,003		
S	0,28	0,23	0,01	0,24	0,015		
K	1,26	1,39	0,05	1,95	0,001		
Ca	8,10	6,50	0,25	8,54	0,000		
Ti	0,05	0,10	0,00	0,16	0,001	2,58	0,16
Mn				0,02	0,001		
Fe	0,84	1,12	0,02	1,47	0,001	1,59	0,07
O	45,80	56,35					
[mg/kg]							
B	6000	2000	40				
Cl	36	156,0	4,21	130	10		
V		77,0	4,62	57,6	7,11		
Sm		1,5	0,09			1,6	0,06
Gd		1,6	0,16				
Mg	1960			983	295		
Sc				9,3*	2,70	3,4	0,13
Cr				82,2	1,35	94,3	3,73
Co				7,6*	3,04	5,8	0,25
Ni				11,7	0,78		
Cu				43,5	0,63		
Zn				100,1	0,86	108	6
Ga				7,8	0,43		
Ge				4,9	0,28		
As				2,9	0,14		
Rb				59,4	0,39	68,5	4,87
Sr				311,7	1,24		
Y				11,6	0,20		
Zr				91,4	0,39		
Nb				5,4	0,14		
Mo				3,0	0,13		
In				1,7	0,19		
Sn				2,8	0,05		
Sb				1,6	0,23	1,4	0,13
Cs				2,6	0,30	2,0	0,13
Ba				509	1	514	25
La				20,0	0,28	13,0	0,51
Ce				41,2	0,54	31,4	1,32
Pr				4,8	0,46		
Nd				19,5	0,22	14,2	1,41
W				164,8	0,48	75,5	3,08
Pb				18,3	0,87		
Th				3,8	0,30	4,3	0,19
U				2,7	0,37		
Eu				0,54*	0,12	0,6	0,03
Hf						2,7	0,12
Tb						0,3	0,03
Yb						1,0	0,10
P	260						

8. táblázat: A PE-B4C-beton PGAA, NAA és XRF (alapvetően EDXRF, a \*-gal jelöltek esetén WDXRF) elemi összetétel mérési eredményei [33]

Izotóp	PGAA	Szórás	XRF	Szórás	NAA	Szórás
w%						
H	0,35	0,007				
C	0,55	0,312				
Na	0,55	0,015	0,50	0,230	0,56	0,021
Al	2,59	0,069	4,90	0,769		
Si	34,12	0,451	29,90	1,286		
S	0,31	0,010	0,26	0,006		
K	1,28	0,033	1,48	0,009		
Ca	8,36	0,255	9,21	0,101		
Ti	0,16	0,005	0,19	0,005	3,38	0,191
Mn	0,05	0,002	0,05	0,001		
Fe	1,61	0,051	1,64	0,039	2,10	0,078
O	50,46	1,208				
[mg/kg]						
B	25,2	0,328				
Cl	151,0	2,718	140	9,9		
V			64	7,5		
Sm	1,7	0,033			2,3	0,09
Gd	2,2	0,132				
Mg			6360	999		
Sc			8,3*	1,83	4,8	0,17
Cr			63,6	2,23	110	4
Co			6,8*	1,50	7,7	0,32
Ni			9,3	0,59		
Cu			17,3	0,85		
Zn			53,4	1,82	65,7	5,28
Ga			4,0	0,26		
Ge			1,7	0,23		
As			2,0	0,10		
Rb			54,6	0,60	65,9	5,14
Sr			171,0	1,20		
Y			15,1	0,41		
Zr			145,0	0,44		
Nb			4,9	0,11		
Mo			3,0	0,17		
In			1,1	0,10		
Sn			1,5	0,27		
Sb			1,3	0,20	1,3	0,15
Cs			1,9	0,21	1,1	0,12
Ba			387	2	405	24
La			16,1	0,43	14,6	0,57
Ce			28,5	0,60	38,9	1,62
Pr			4,9	0,55		
Nd			16,7	0,94	17,3	1,58
W					175	7
Pb			12,6	0,59		
Th			3,0	0,23	6,1	0,25
U						
Eu			0,56*	0,13	0,6	0,03
Hf					4,7	0,28
Tb					0,4	0,04
Yb					1,7	0,09
P						
Ta					0,4	0,04

9. táblázat: A Skanska beton PGAA, NAA és XRF (alapvetően EDXRF, a \*-gal jelöltek esetén WDXRF) elemi összetétel mérési eredményei [33]



---

1 001	-6.0087E-03
5 000	-2.4900E-05
8 016	-4.8801E-01
11 000	-1.9676E-02
12 000	-9.5302E-03
13 000	-6.6560E-02
14 000	-3.0098E-01
16 000	-2.8035E-03
17 000	-3.0200E-05
19 000	-2.1899E-02
20 000	-6.6338E-02
21 000	-3.9660E-06
22 000	-1.7600E-03
24 000	-6.5710E-05
26 000	-1.5500E-02
27 000	-5.5230E-06
30 000	-1.0680E-04
37 000	-8.6160E-05
55 000	-2.5860E-06
57 000	-2.3716E-05
62 000	-2.3780E-06
63 000	-6.9960E-07
74 000	-5.9570E-04
90 000	-7.6160E-06

---

**10. táblázat: Méréseken alapuló MCNP anyagkártya a Referencia betonhoz aktivációval kapcsolatos problémák modellezéséhez. A beton sűrűsége 2,33 g/cm<sup>3</sup> [33]**

1 001	-1.2633E-02
5 000	-2.0000E-03
6 000	-5.4583E-02
8 016	-4.6618E-01
11 000	-1.2910E-02
12 000	-9.8257E-04
13 000	-5.5120E-02
14 000	-2.7037E-01
16 000	-2.3669E-03
17 000	-1.3000E-04
19 000	-1.9467E-02
20 000	-8.5427E-02
21 000	-3.4450E-06
22 000	-1.5900E-03
24 000	-9.4300E-05
26 000	-1.5870E-02
27 000	-5.7810E-06
30 000	-1.0006E-04
37 000	-6.8500E-05
55 000	-1.9830E-06
57 000	-1.9965E-05
62 000	-1.5670E-06
63 000	-5.8510E-07
70 000	-1.0260E-06
74 000	-7.5460E-05
90 000	-4.3010E-06

**11. táblázat: Méréseken alapuló MCNP anyagkártya a PE-B4C-betonhoz aktivációval kapcsolatos problémák modellezéséhez. A beton sűrűsége 1,97 g/cm<sup>3</sup> [33]**