

Lokális hidrogéntartalom mérése roncsolásmentes neutronos módszerekkel cirkónium fűtőelemburkolatok hossz tengelye mentén

Kis Zoltán, Maróti Boglárka, Szentmiklósi László

Magyar Tudományos Akadémia Energiatudományi Kutatóközpont
Nukleáris Analitikai és Radiográfiai Laboratórium
1121 Budapest, Konkoly-Thege Miklós út 29-33. tel.: +36 1 392 2539

Magas hőmérsékletű felhasadást és oxidációt követően roncsolásmentes neutronos vizsgálatokkal hidrogén-cirkónium elemarányt határoztunk meg E110 és E110G típusú Zr fűtőelem-burkolatok hossz tengelye mentén. A neutronos képalkotással kombinált prompt-gamma neutronaktívációs analízissel mintegy 30 gamma spektrumot vettünk fel az egyes burkolatokon, 5 mm-es lépésekben. A CODEX-LOCA-200 és CODEX-LOCA-E4 kísérletekben a H/Zr profilok mindkét típusú burkolatnál három csoportra oszthatók. Az elsőben csak kisebb deformáció vagy repedés látható néhány száz ppm körüli tömegarány értékekkel. A második csoportban közepes mértékű volt a felhasadás, és az értékek széles skálán (200-1800 ppm) mozognak. A legmagasabb értékeket (6000-7000 ppm) a nagy repedéssel vagy teljes töréssel rendelkező harmadik csoportban tapasztaltuk.

Bevezetés

A cirkónium fűtőelem-burkolatokban kialakuló szekunder hidridizáció során a hidrogén fokozott jelenlétét tapasztalták a burkolat felfűvődött szakaszában. Ez a folyamat az anyagot rideggé, törékennyé teszi, csökkentve annak mechanikai ellenállóképességét baleseti szituációkban. Az atomeróművi hűtőközeg-vesztéses üzembiztos modellt LOCA (Loss Of Coolant Accident) szimulációk során több vizsgálat történt főleg Zircaloy-4 és E110 típusú burkolatokkal [1-4].

A burkolatok hidrogéntartalmának meghatározása általában roncsolásos módszerrel, magas hőmérsékletű deszorpció, más néven forró extrakciós eljárással történik. A vizsgálat viszonylag gyors, kimutatási határa elérheti a 0,01 ppm_m körüli értéket [5]. Az eredmények szerint a hidrogéntartalom axiális eloszlása közelítőleg szimmetrikus, jellemzően két maximuma van a felhasadás alatt és fölött [2]. A mért értékek az éppen vizsgált (általában kisméretű) anyagdarabra vonatkoznak, ezért a minta nagyobb térfogatának átlagos koncentrációjára – főként inhomogén H-eloszlás mellett – nehezen általánosíthatók.

Igény merült fel tehát roncsolásmentes, ugyanakkor lokális információt is adó vizsgálatok elvégzésére. Ezeket neutronradiográfias vagy -tomográfias módszerrel végezték néhányszor 10 μm térbeli felbontással [6,7]. A mért hidrogénkoncentráció-értékek elérték az 50 ppm_m pontosságot, és igazolták a felhasadás körüli „gallért”, vagyis a hidrogén lokális feldúsulását.

A képalkotási módszerek – a neutronnaláb intenzitásának gyengítése által – a hidrogén jelenlétére csupán közvetett bizonyítékkal szolgálnak, mert a gyengítési együttható megváltozását elvileg más nyomszennyezők, ill. kísérleti paraméterek is okozhatják. Az elem abszolút ill. a

cirkóniumhoz viszonyított relatív mennyisége kalibrációs eljárással határozható meg. A gyengítés mértéke az anyagvastagság és a neutrongyengítési tényező szorzata. A tomográfias rekonstrukció során a lokálisan jellemző ún. makroszkópikus neutrongyengítési együttható meghatározható, amely – elég jó közelítéssel – egyenes arányban van a hidrogén lokális atomi sűrűségével, amennyiben egyéb tényezők torzító hatásait korrekcióba tudjuk venni. A kalibráció során azonban a hidrogén okozta gyengítéshez tartozó abszolút hidrogéntartalmat a minta roncsolásával járó forró extrakciós eljárással határozzák meg. Következésképpen a minta elvesz egyéb vizsgálatok számára, és csak a hidrogéntartalom térbeli eloszlására kapunk megbízható adatokat.

A prompt-gamma aktivációs analízis (PGAA) ugyanakkor roncsolásmentes nukleáris analitikai módszer a minta elemösszetételének közvetlen meghatározására. A neutron befogásakor keletkező prompt gamma-sugárzás karakterisztikus, az energiaspektrumban lévő csúcsok pozíciója és területe jellemző az összetételre. A mérés mintaelőkészítést nem igényel, és ún. panoráma-analízist nyújt. A fűtőelem-burkolatok vizsgálatában kifejezetten előnyös, hogy a hidrogén jó érzékenységgel mérhető az adott Zr mátrixban.

A Paksi Atomerómű reaktorblokkjaiban is használt (E110) ill. használni tervezett (E110G) cirkónium burkolatokkal végzett LOCA (LOCA-200 és LOCA-E4) kísérletek [8,9] után végeztünk el az összetételméréseinket. A mérésekből a hidrogén cirkóniumhoz viszonyított atom- ill. tömegarányának profilját határoztuk meg a fűtőelem-burkolatok hossz tengelye mentén.

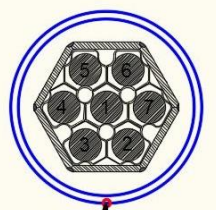
Kísérleti rész

A mintadarabok kiválasztása

Az MTA Energiatudományi Kutatóközpontban (MTA EK) folytatott ún. CODEX-LOCA kísérletek több szempontból vizsgálták a fűtőelem-burkolatok viselkedését, pl. felfúvódását, felhasadását, oxidációját és a másodlagos hidrogénezés jelentőségét [4,8–11]. A hidrogéntartalom mérésére kijelölt felfúvódott, oxidált mintadarabok kiválasztása az alábbi szempontok szerint történt:

- legyen lehetőség a hasonlóan kezelt E110 és E110G minták összehasonlítására,
- legyenek különböző mértékben oxidált minták, hogy az oxidáció hatása értékelhető legyen.

A különböző körülmények között végrehajtott kísérletek közül a VVER reaktorokra jellemző hexagonálisan kötegelt elrendezésű CODEX-LOCA-200 és CODEX-LOCA-E4-ben résztvevő darabokat vizsgáltuk. A hét-hét rúd tényleges geometriai elrendezését mutatja az 1. ábra. A LOCA-200 szcenárió a névleges teljesítményen, míg a LOCA-E4 a leállás során bekövetkező nagymértékű primerköri csőtörés hatását szimulálta. A rudakat előre meghatározott időbeli lefolyású hőmérséklet- és nyomásváltozásnak tették ki, de a kötegekben az egyes burkolatokon végigvitt szcenáriók eltérőek voltak.



a)



b)



c)

1. ábra: A hidrogéntartalom mérésére kijelölt felfúvódott, oxidált mintadarabok: (a) A CODEX-LOCA kísérletek mérési geometriája a VVER típusú reaktorokra jellemző hexagonális rúdelrendezéssel. (b) A CODEX-LOCA-200 és (c) CODEX-LOCA-E4 kísérlet 7 – 7 mintája.

A minták vizsgálata PGAI-NR módszerrel

A prompt-gamma aktivációs analízis (PGAA) roncsolásmentes nukleáris analitikai módszer, amellyel a besugárzott mintatérfogat átlagos elemi- és izotópösszetétele állapítható meg [12]. A mérés során a mintát hideg neutronokkal sugároztuk be, és a keletkező gamma-sugárzás elemzése alapján következtettünk annak összetételére. A neutronok és a gamma-sugárzás nagy áthatolóképessége lehetővé teszi kiterjedt minták vizsgálatát is.

Az elemvizsgálatot megelőzően a neutronradiográfiai (NR) technikát [13] alkalmaztuk a minta nagy felbontású, térbeli megjelenítéséhez. Ezzel gyorsan és egyszerűen megkapjuk a tárgyak geometriai jellemzőit, azonban a mért neutrongyengülés az elemösszetételről közvetlenül nem ad még felvilágosítást. Ehhez szükséges a prompt-gamma-spektrometria alkalmazása. Ekkor erősen kollimált neutronnyalábbal és gamma-detektálással egy kis térrészre (izotér fogat) leszűkítjük az analitikai jel forrását. A minta vizsgáltni kívánt részeit egy *xyzw* mozgatóasztal segítségével ide pozicionálva a lokális összetételre jellemző gamma-spektrumokat kapjuk. Ezt nevezzük prompt-gamma aktivációs leképezés (*prompt-gamma activation imaging*, PGAI) technikának [14–16].

A méréseket az MTA EK által üzemeltett NIPS-NORMA mérőhelyen [17] végeztük, ami a Budapesti Kutatóreaktor hidegneutron-forrásához kapcsolódó 3. számú neutronvezető végén található. A tárgyon párhuzamosan áthaladó neutronokat ún. szcintillációs ernyővel látható fényékkonvertáljuk (vetületi kép), amit egy igen érzékeny CCD chipet alkalmazó kamerával digitalizálunk (Andor iKon-M 934 1024×1024 pixel, 16-bites szűrkeskála). Az elért térbeli felbontás kb. 500 μm volt. A képmező mérete kb. 40×40 mm², ezért az ennél nagyobb tárgyak képe részben átlapoló képek sorozatából illeszthető össze.

A gamma fotonok detektálását ólomvédelemmel és Compton-elnyomással ellátott, 23%-os hatásfokú, n-típusú, koaxiális HPGe (Canberra GR 2318/S) spektrométerrel végeztük, melynek jellemző félérték szélessége 2,2 keV 1332 keV-nél. A mérőhelyen a termikus ekvivalens neutronfluxus $2,7 \times 10^7 \text{ n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ volt.

A burkolatok befogását speciálisan erre a célra kifejlesztett mintabefogóval oldottuk meg. A neutronnyaláb szűkítésére vízszintesen elhelyezett, $4,3 \times 20 \text{ mm}^2$ nyílású ⁶Li-polimerből készített kollimátort használtunk a mintakamra bejövő oldalán, amely a rudak helyén, a nyaláb divergenciája miatt 5 mm-es magasságú besugárzott területet biztosított. A besugárzott részek pozicionálása követte a felfúvódás elhelyezkedését a rudak mentén. A spektrumok átlagos teljes számlálási sebessége 20-30 cps (counts per second), aminek következtében a detektor holtideje mindig kisebb volt mint 0,05%. A megfelelő statisztikát adó időtartamok mérési pontonként 10000 – 17000 s közé estek. A burkolatokon 29 egymással érintkező, 5 mm-es lépésközű pozícióban vettünk fel spektrumot.

A H/Zr atom- és tömegarány számítási módszere

A PGAA előnye, hogy a könnyű elemek közül a jelen vizsgálatban fontos hidrogén jó érzékenységgel mérhető az adott mátrixban, mivel a H és a Zr neutronbefogási hatás-

keresztmetszetének aránya (H: 0,3326 b; Zr: 0,185 b) kedvező.

A promptgamma-aktivációs analízis a legpontosabb eredményeket az elemek relatív mennyiségének meghatározásakor (*relative mass fractions*) szolgáltatja, mert ekkor számos, az abszolút mennyiségek számításában jelentős, de pontatlan faktor kiesik a számításból [18]. Ezek közül legfontosabb, hogy a hidrogént ill. a cirkóniumot érő neutronfluxus hányadosa az adott mintaelemen belül pontosan egységnyi. A H/Zr atom- és tömegarányt a következő két összefüggés szolgáltatja:

$$\frac{n_H}{n_{Zr}} = \frac{t_H}{t_{Zr}} \frac{A_H}{A_{Zr}} \frac{\sigma_g(E_{Zr}) \varepsilon(E_{Zr}) f(E_H)}{\sigma_g(E_H) \varepsilon(E_H) f(E_{Zr})} \quad (1)$$

illetve:

$$\frac{m_H}{m_{Zr}} = \frac{n_H}{n_{Zr}} \frac{M_H}{M_{Zr}} \quad (2)$$

A fenti összefüggésekben n_X az atomszám, A_X a mért csúcsterület, t_X az adott pontra vonatkozó mérési idő, $\sigma_{g,X}$ az adott elem parciális gamma-keltési hatáskeresztmetszete, ε_X a teljesenergia-csúcs hatásfok, f_X az árnyékolási tényező, a m_X a tömeg és M_X a móltömeg, ahol X a hidrogént ill. a cirkóniumot jelenti. A számolásokban az elemek legintenzívebb csúcsának területét használtuk fel: H esetén a 2223 keV-es, míg Zr esetén a 935 keV-es csúcsot. A csúcsterületekből a mérési idővel történő

osztással számlálási sebességet kapunk, amelyet a rendszer spektrális háttérével és a neutronfluxus időbeli változásával korrigáltunk. Az eredmények relatív hibája (a detektált események Poisson-eloszlása miatt) csökkenthető hosszabb mérési idővel. A besugárzás során keletkező gamma-vonalak energiája elég nagy ahhoz, hogy a gamma-önárnyékolást elhanyagolhatónak tekintsük. A felhasznált paraméterek számértékei a 1. táblázatban találhatók.

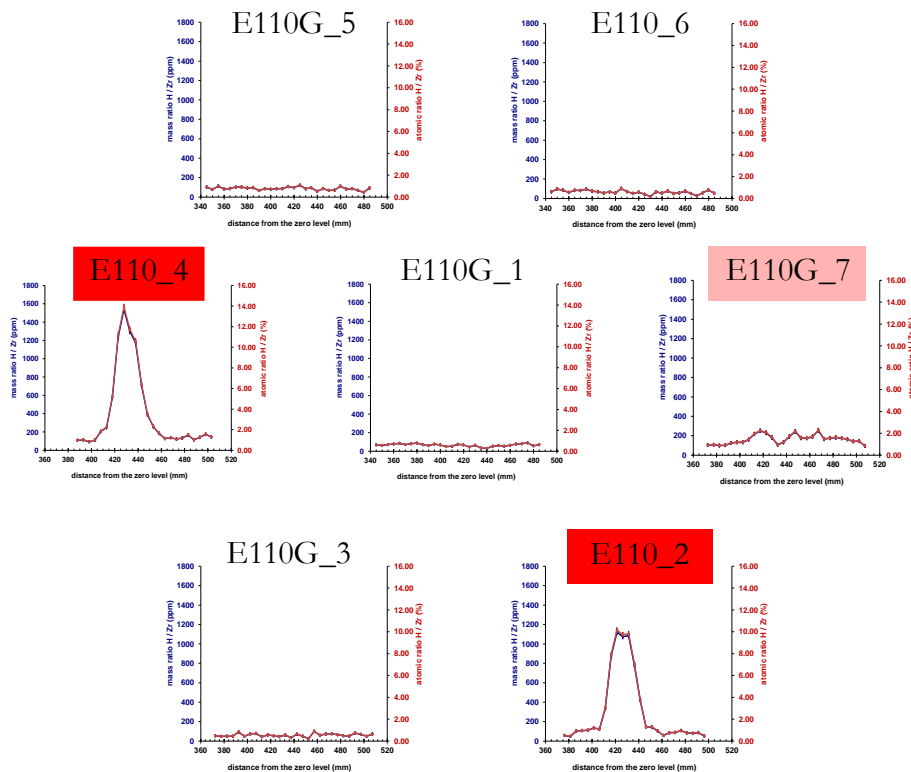
1. táblázat Az atom- és tömegarány számításban használt mennyiségek összefoglalása.

	Zr	H
M (g/mol)	91,224	1,00794
σ_γ (barn)	0,125	0,3326
ε (-)	2,07E-04	1,09E-04
f (-)	1	1

Eredmények

CODEX-LOCA-200

A H/Zr arányának méréséből származó eredmények három fő csoportra oszthatók annak függvényében, hogy a burkolatok milyen mértékű felhasadást szenvedtek el. A szemléletesebb áttekintés kedvéért a következő ábrán (2. ábra) a hexagonális elrendezésnek megfelelően ábrázoltuk a H/Zr profil eredményeit.



2. ábra: A VVER reaktorokra jellemző hexagonális elrendezésben mért burkolatok H/Zr profil eredményei a CODEX-LOCA-200 kísérletből. Az egyes kísérletekben mért értékeket a közvetlen összevethetőség érdekében azonos skálán ábrázoltuk. A pirossal kiemelt burkolatokban volt a legmagasabb a H/Zr arány. Az E110G ötvözetből készült 7-es rúd rózsaszínnel kiemelve.

Az első csoportba azok a rudak tartoznak (E110G: No. 1, 3, 5 és E110: No. 6), amelyeken a hossz tengely mentén szabad szemmel jelentős deformáció, ill. felhasadás nem látható. Itt a H/Zr arány nem mutatott kicsúcsosodó profilt. A jellemző H/Zr tömegarány a 60-100 ppm közötti tartományban ingadozott mindkét burkolattípus esetén.

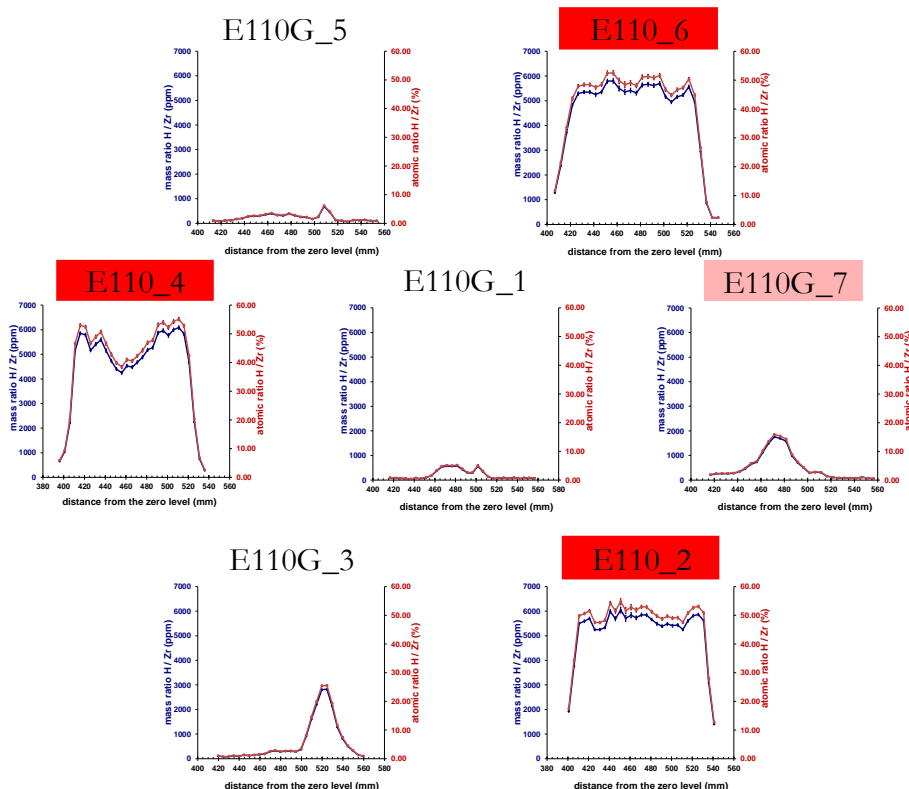
A második csoportba tartozó, a kísérlet során a megsérült fűtőelem-burkolat (E110G: 7) már két kisebb felhasadással rendelkezett, és a H/Zr arány profilja három kisebb csúcsot (100-250 ppm) mutatott. Érdekesség, hogy ezt a mintázatot korábban nem tapasztaltuk.

A harmadik csoportba azok a rudak tartoznak (E110: No. 2, 4), amelyeken a hossz tengely mentén szabad szemmel

jelentős deformáció, ill. felhasadás látható, és a H/Zr arány kicsúcsosodó profilt mutatott. A jellemző H/Zr tömegarány az E110 típus esetében a 1200-1400 ppm közötti tartományba esett.

CODEX-LOCA-E4

A H/Zr arányának méréséből származó eredmények szintén három fő csoportra oszthatók a burkolatok felhasadásának foka szerint. A szemléletesebb áttekintés kedvéért a következő ábrán (3. ábra) a hexagonális elrendezésnek megfelelően ábrázoltuk a H/Zr profil eredményeit.



3. ábra: A VVER reaktorokra jellemző hexagonális elrendezésben mért burkolatok H/Zr profil eredményei a CODEX-LOCA-E4 kísérletből. Az egyes kísérletekben mért értékeket a közvetlen összevethetőség érdekében azonos skálán ábrázoltuk. A pirossal kiemelt burkolatokban volt a legmagasabb a H/Zr arány. Az E110G ötvözetből készült 7-es rúd rózsaszínnel kiemelve.

Az első csoportba azok a burkolatok tartoznak (E110G: No. 1, 3, 5), amelyek egyértelmű deformációt szenvedtek, de rajtuk csak kisebb repedés volt látható. A jellemző H/Zr tömegarány - kisebb csúcsokkal - 400-600 ppm körül ingadozott.

A második csoportba az a burkolat tartozik (E110G: No. 7), amely csak egy, viszonylag nagy felhasadással rendelkezik. A jellemző H/Zr tömegarány egy kisebb csúcsot (1600-1800 ppm) mutatott magán a nyíláson.

A harmadik csoportba azok a burkolatok tartoznak (E110: No. 2, 4, 6), amelyeken nagy repedés és teljes törés látható. Ezek a minták jelentős mértékben oxidálódtak. A jellemző

H/Zr tömegarány a nyílás körüli hosszú sávban a 6000 - 7000 ppm tartományba esett, ami a legmagasabb a vizsgált burkolatok között. A H-profil a 4. burkolat esetén kettős csúcsot mutatott, míg a 2-es és a 6-os burkolat esetén viszonylag sima.

Az eredmények értelmezése

Az elvégzett mérések eredményei igazolták a PGAI-technika alkalmazhatóságát. A mért csúcsterületek jellemző statisztikai bizonytalansága a magasabb H-tartalmú pozíciókban akár 5 % vagy az alatti, vagyis az eredmények jól használhatók a szcenáriók jellemzésére.

A H/Zr profilok három csoportra oszthatók, amelyek alakja és amplitúdója kapcsolatba hozható az egyes burkolatokon végzett kísérletek körülményeivel.

Az első csoportban a jellemző értékek a kb. 200 ppm alatti tartományba esnek, és a burkolatokon nem vagy csak kis mértékben látható deformáció, ill. felhasadás. Ezeknek a fűtőelemeknek a belső nyomása nem volt elég magas ahhoz, hogy a burkolat sérülését idézzék elő, illetve a rövid magas hőmérsékleten töltött idő csak kismértékű oxidációt eredményezett.

A második csoportba tartozó burkolatok kisebb-nagyobb mértékű felhasadást szenvedtek, és H/Zr profiljuk egyértelmű kicsúcsosodást mutat. Amplitúdójuk széles skálát ölel fel (CODEX-LOCA-200 esetén 100-250 ppm, míg CODEX-LOCA-E4 esetén az 1600 – 1800 ppm tartományt). A hidrogéntartalom korrelált a cirkónium-csövek oxidációs állapotával, amely különböző volt a két mérésben. Az előbbi mérésnél a maximális hőmérséklet 900°C volt, míg az utóbbinál megközelítette az 1100°C-ot.

A harmadik csoportba a jelentős deformációval, felhasadással, ill. töréssel rendelkező burkolatok tartoznak. A H/Zr profiljuk egyértelmű kicsúcsosodást mutat vagy nagy értékű, de viszonylag kisimult alakú. A CODEX-LOCA-200 esetén az értékek egy kiemelkedő csúcsot (1200-1600 ppm) mutatnak a nyílás körül, ami nem az irodalomban sokszor leírt kettős csúcs.

A kettős csúcs hosszabb oxidációs folyamat eredményeként jelentkezik. A CODEX-LOCA-200 kísérlet során az oxidációs idő rövid volt, ami mindössze három percet jelentett 900°C közelében)

A CODEX-LOCA-E4 esetén az értékek a nyílás körüli hosszú sávban viszonylag állandók, de a legmagasabbak a

vizsgált burkolatok között (6000 - 7000 ppm). A nagyon magas hidrogéntartalom az E110 csöveken volt mérhető: ezeken leváló, réteges oxidaréteg képződött, ami megkönnyíti a fém hidrogén felvételét.

Összefoglaló

Megmutattuk, hogy a prompt-gamma aktivációs leképezési (PGAI) technika alkalmazható a cirkónium fűtőelem-burkolatokban kialakuló szekunder hidridizációs jelenség során felhalmozódott hidrogén mennyiségének roncsolásmentes, helyspecifikus mérésére. Bár a mérések viszonylag hosszabb időt igényelnek, előnyük, hogy megőrzi a minta integritását, ezzel biztosítva a további vizsgálatok lehetőségét egyazon mintán.

A Zr-burkolatok magas hőmérsékletű felhasadását és oxidációját követően a H/Zr tömeg- és atomarány hossz tengelymenti profiljának eredményei alapján a vizsgált mintákat három csoportba sorolhattuk. A kategorizálás segíthet a folyamatok jobb megértésében, ha a burkolatok kísérleti történetét összevetjük a ténylegesen kialakult hidrogéneloszlással.

Köszönetnyilvánítás

A munkát a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Hivatal támogatta az NVKP_16-1-2016-0014 számú projekt keretében. A szerzők köszönik továbbá a 124068 számú projekt támogatását, amely a Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból biztosított támogatással, a K_17 pályázati program finanszírozásában valósult meg. Szentmiklósi László köszöni az MTA Bolyai János Kutatási Ösztöndíj anyagi támogatását. A szerzők köszönik Hózer Zoltán és Nagy Imre (MTA EK) segítségét a mérések véghezvitelében és jelen publikáció megírásában.

Irodalomjegyzék

- [1] H. Uetsuka, T. Furuta, S. Kawasaki, *Zircaloy-4 Cladding Embrittlement due to Inner Surface Oxidation under Simulated Loss-of-Coolant Condition AU - UETSUKA, Hiroshi*, *J. Nucl. Sci. Technol.* 18 (1981) 705–717.
- [2] J. Stuckert, M. Große, C. Rössger, M. Klimentov, M. Steinbrück, M. Walter, *QUENCH-LOCA program at KIT on secondary hydriding and results of the commissioning bundle test QUENCH-L0*, *Nucl. Eng. Des.* (2013) 185–201.
- [3] M. Billone, Y. Yan, T. Burtseva, R. Daum, *Cladding Embrittlement During Postulated Loss-of-Coolant Accidents*, U.S. Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC, 2008.
- [4] Z. Hózer, C. Győri, M. Horváth, I. Nagy, L. Maróti, L. Matus, P. Windberg, J. Frecska, *Ballooning Experiments with VVER Cladding*, *Nucl. Technol.* 152 (2005) 273–285.
- [5] ELTRA GmbH, *Oxygen / Hydrogen Analyzer ELEMENTRAC OH-p*, (2019).
- [6] M. Grosse, J. Stuckert, M. Steinbrück, A. Kaestner, *Secondary hydriding during LOCA – Results from the QUENCH-L0 test*, *J. Nucl. Mater.* 420 (2012) 575–582.
- [7] M. Grosse, C. Roessger, J. Stuckert, M. Steinbrueck, A. Kaestner, N. Kardjilov, B. Schillinger, *Neutron Imaging Investigations of the Secondary Hydriding of Nuclear Fuel Cladding Alloys during Loss of Coolant Accidents*, *Phys. Procedia.* 69 (2015) 436–444.
- [8] Z. Hózer, I. Nagy, A. Vimi, M. Kunstár, P. Szabó, T. Novotny, E. Perez-Feró, Z. Kis, L. Szentmiklósi, M. Horváth, A. Pintér Csordás, E. Barsy, K. Kulacsy, M. Grosse, *High-Temperature Secondary Hydriding Experiments with E110 and E110G Cladding*, in: R.J. Comstock, A.T. Motta (Eds.), *Zircon. Nucl. Ind. 18th Int. Symp. ASTM STP1597*, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2018: pp. 1093–1113.
- [9] I. Nagy, N. Vér, M. Kunstár, R. Farkas, P. Szabó, Z. Hózer, *Leállási LOCA tervezési üzemzavar kísérleti szimulációja a CODEX berendezésen*, Budapest, 2016.
- [10] I. Nagy, M. Kunstár, Z. Hózer, N. Vér, I. Trosztel, *200%-os LOCA tranziens kísérleti szimulációja a CODEX berendezésen*, Budapest, 2015.
- [11] Z. Hózer, I. Nagy, N. Vér, R. Farkas, *Simulation of Loss-Of-Coolant Accidents in the CODEX integral test facility*, (2017) F2.7.
- [12] Z. Révay, T. Belgya, *Principles of the PGAA method*, in: G.L. Molnár (Ed.), *Handb. Prompt Gamma Act. Anal. with Neutron Beams*, Springer US, Boston, MA, 2004: pp. 1–30.
- [13] N. Chankow, *Neutron Radiography*, in: M. Omar (Ed.), *Nondestruct. Test. Methods New Appl.*, InTech, Rijeka, 2012.
- [14] T. Belgya, Z. Kis, L. Szentmiklósi, Z. Kasztovszky, P. Kudejova, R. Schulze, T. Materna, G. Festa, P.A. Caroppi, *First elemental imaging experiments on a combined PGAI and NT setup at the Budapest Research Reactor*, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 278 (2008) 751–754.

-
- [15] Z. Kis, L. Szentmiklósi, R. Schulze, E. Abraham, *Prompt Gamma Activation Imaging (PGAI)*, in: N. Kardjilov, G. Festa (Eds.), *Neutron Methods Archaeol. Cult. Herit.*, Springer International Publishing, Cham, 2017: pp. 303–320.
- [16] L. Szentmiklósi, B. Maróti, Z. Kis, Z. Kasztovszky, *Integration of neutron-based elemental analysis and imaging methods and applications to cultural heritage research*, *J. Archaeol. Sci. Reports.* 20 (2018) 476–482.
- [17] Z. Kis, L. Szentmiklósi, T. Belgya, M. Balaskó, L.Z. Horváth, B. Maróti, *Neutron Based Imaging and Element-mapping at the Budapest Neutron Centre*, *Phys. Procedia.* 69 (2015) 40–47.
- [18] Z. Révay, *Determining Elemental Composition Using Prompt γ Activation Analysis*, *Anal. Chem.* 81 (2009) 6851–6859.