

Prof. dr hab. Jerzy W. Mietelski

IFJ PAN

31-342 Kraków, Radzikowskiego 152

Recenzja pracy doktorskiej mgr inż. Michała Bonczyka p.t. „Badania samoabsorpcji promieniowania gamma izotopu ołowiu ^{210}Pb w odpadach przemysłowych o podwyższonej promieniotwórczości”

Wzrastające w społeczeństwie zaniepokojenie stanem środowiska i wynikające stąd zaostrzenie norm dotyczących dopuszczalnych stężeń substancji szkodliwych w odpadach przemysłowych odnosi się też do substancji radioaktywnych zawartych w tych odpadach. W takich materiałach, z racji ich genezy – a więc stosowanych procesów technologicznych – izotopy radioaktywne z szeregu uranowego na ogół nie znajdują się w równowadze promieniotwórczej. Wyróżnia się w szeregu uranowym tzw. podszeregi, gdzie z racji stosunkowo krótkich czasów izotopów pochodnych od prekursorów względnie długożyciowych, cząstkowe równowagi promieniotwórcze dla pewnych grup radioizotopów ustalają się stosunkowo szybko. Są to podszereg uranowy (z dominującym ^{238}U), radowy (z ^{226}Ra) i ołowiowy (z ^{210}Pb). W warunkach układu zamkniętego równowaga pomiędzy szeregami ołowiowym i radowym ustala się po ponad 100 latach, a pomiędzy dwoma pierwszymi – nawet dopiero po kilkuset tysiącach lat. W rzeczywistych warunkach przechowywania odpadów równowagi mogą nie ustalać się nigdy np. na skutek ubytków lepiej rozpuszczalnych radionuklidów. Dlatego stężenia głównych izotopów z każdego z tych podszeregów muszą być wyznaczone niezależnie. Najbardziej niezawodną techniką pomiarową stosowaną do oceny tych stężeń jest obecnie wysokorozdzielcza spektrometria gamma wykorzystująca detektory germanowe. Jednak pomiar stężenia ^{210}Pb nastęrcza pewne trudności z racji niskiej energii emitowanych kwantów gamma wynoszącej jedynie 46,5 keV. Pomiar stężenia prowadzony w oparciu o promieniowanie o tak niskiej energii jest niesłychanie wrażliwe na zaburzający wpływ wywołany przez samoabsorpcję promieniowania w badanym materiale. Omawiana tu praca doktorska, przygotowana przez mgr inż. Michała Bonczyka, przygotowana pod promotorską opieką dr hab. Bogusława Michalika, profesora GIG, poświęcona jest właśnie zbadaniu tego zagadnienia. Jako cele pracy Autor określa (Rozdział 5, str. 44):

1. „Modyfikację i walidację metody eksperymentalnego wyznaczenia poprawki na samoabsorpcję promieniowania gamma izotopu ołowiu ^{210}Pb w odpadach przemysłowych
2. Określenie zakresu zmienności zjawiska samoabsorpcji w odpadach przemysłowych charakteryzujących się podwyższonym stężeniem ^{210}Pb ”.

Praca zorganizowana jest w 11 Rozdziałów. Po krótkim „Wprowadzeniu” następuje omówienie własności ^{210}Pb (Rozdział 1) oraz scharakteryzowano badane odpady przemysłowe (Rozdział 2) i występujące w nich naturalne substancje radioaktywne (tzw. NORM). Rozdział 3 poświęcony jest omówieniu technik pomiarowych stosowanych w monitoringu radioaktywności odpadów przemysłowych a Rozdział 4 ważnemu zagadnieniu zapewnienia spójności pomiarowej. W kolejnym Rozdziale 5 zaprezentowano przytoczone powyżej cele pracy i je omówiono. Rozdział 6 dotyczy samego zjawiska samoabsorpcji promieniowania gamma a Rozdział 7 zawiera przegląd istniejących metod szacowania poprawki na samoabsorpcję. Rozdział 8 rozpoczyna prezentację własnych osiągnięć Doktoranta. Omówiono w nim autorską modyfikację wybranej metody obliczania poprawki, omówiono zastosowaną aparaturę i szczegółowo opisano zastosowane metody pomiarowe. Rozdział 9 poświęcony jest przedstawieniu wyników dla kolejno badanych grup odpadów przemysłowych. Ostatnie dwa rozdziały zawierają wnioski wypływające z wykonanych pomiarów oraz podsumowanie całości prac. Pracę zwińczają spisy literatury zawierający 85 pozycji i spis ilustracji.

Osiągnięciem pracy stanowiącym nowe dokonanie o charakterze naukowym jest udoskonalenie metody Cutshalla wyznaczania poprawki na samoabsorpcję polegające w skrócie na uwzględnieniu również samoabsorpcji we wzorcu. Metodę tą zastosowano praktycznie - przebadano wiele różnych odpadów przemysłowych wyznaczając dla nich współczynniki samoabsorpcji. Bardzo ciekawym w moim przekonaniu jest wynik dotyczący istniejącego na ogół braku korelacji pomiędzy wielkością poprawki a gęstością nasypową próbki. To wyniki pozbawiający nadziei na możliwość jakiegoś łatwego uproszczenia metody.

Od strony warsztatu naukowego przeprowadzone w ramach prac nad doktoratem pomiary są w mojej ocenie bez zarzutu. Badania są wykonane bardzo starannie, wyniki przedstawiono czytelnie i z zachowaniem zasad sztuki a opracowana metoda została zwalidowana.

Praca jest starannie zredagowana od strony tak językowej jak i graficznej. Zauważyłem jedynie pojedyncze błędy typograficzne, co generalnie jest rzadkością i jest godne podkreślenia. Napisana jest bardzo dobrą polszczyzną, potoczyście, z dobrym, logicznym prowadzeniem uwagi czytelnika. Niestety – i tu przechodzę do uwag krytycznych - ta potoczność okupiona jest niekiedy pewnymi skrótami myślowymi, uproszczeniami czy też drobnymi nieścisłościami albo nie do końca prawdziwymi generalizacjami. Potoczność grozi niekiedy niestety potocznością. Poniżej przytaczam szereg takich drobnych nieścisłości, czasem mogących jednak przeradzać się nawet w błędne informacje.

Już pod koniec strony 7 i na początku strony 8 Autor zauważa, że ...” Kluczowe są tzw. efekty matrycowe, które wiążą się przede wszystkim z absorpcją promieniowania gamma w badanej próbce (samoabsorpcja). Emitowane, przez nuklidy znajdujące się w próbce, promieniowanie gamma może nie być zarejestrowane w detektorze na skutek absorpcji w materiale próbki. W oczywisty sposób prowadzi to do niedoszacowania stężenia danego materiału” ... Autor zdaje się tu nie zauważać, że samoabsorpcja zachodzi też w źródle

kalibracyjnym i ważna jest różnica w samoabsorpcji pomiędzy źródłem a próbką – co dla próbek o mniejszej samoabsorpcji niż w źródle prowadzi przecież do odwrotnego efektu, czyli przeszacowania aktywności.

Na stronie 11 wymienione są trzy stabilne izotopy Pb, nie wymieniono czwartego, ^{204}Pb . Zgadza się, że jego względna abundancja jest najniższa, jednak jest on szczególnie jako jedyny nieradiogeniczny stabilny izotop ołowiu. Dla kompletności opisu powinien być wymieniony.

Na stronie 12, w drugim akapicie jako radioizotop Pb w szeregu uranowym wymieniony jest jedynie ^{210}Pb , brak tu nawet wzmianki o ^{214}Pb .

Skrótem myślowym stającym się niestety merytorycznym błędem jest sformułowanie w trzecim akapicie na tej samej stronie: „... Obserwowane są jednak bezpośrednio rozpady {mowa o ^{210}Pb – przypis. JWM} do ^{206}Pb poprzez emisję cząstki alfa ...”. Przecież emisja cząstki alfa zmniejsza ładunek jądra o $2e$ a masę o 4 AMU, tym samym, w tym rzadkim kanale rozpadu, z ^{210}Pb nie powstaje bo nie może bezpośrednio żaden izotop ołowiu lecz krótkożyciowy ^{206}Hg , który poprzez drugi, również krótkożyciowy ^{206}Tl dopiero rozpada się na ^{206}Pb . A więc, ten mało prawdopodobny kanał rozpadu ^{210}Pb , w żadnym wypadku nie „bezpośrednio”, bo poprzez dwa jeszcze rozpady beta minus, prowadzi do ^{206}Pb . Przyznaje jednak, że dzieje się to szybko i chyba w tym potocznym rozumieniu Autor użył tu słowa „bezpośrednio”.

Niepokoi mnie również opis głównego kanału rozpadu beta minus ^{210}Pb , znajdujący się w końcowym akapicie na stronie 12 i na początku strony 13. Niepokój wynika z zawartej tu błędnej sugestii. Autor, po wymienieniu emitowanych cząstek i prawdopodobieństw rozpadu czyni uwagę na temat względnie krótkiego czasu połowicznego zaniku ^{210}Bi względem długiego dla ^{210}Pb i konkluduje, że dzięki temu można założyć równowagę promieniotwórczą pomiędzy tymi radionuklidami i w konsekwencji możliwe jest wykorzystanie spektrometrii gamma opartej na analizie linii 46,5 keV. To wszystko jest prawda ale ułożenie tych informacji sugeruje, że czas połowicznego zaniku ^{210}Bi ma tu jakiegokolwiek znaczenie. Otóż – nie ma!. Emisja elektronów konwersji czy kwantu gamma o energii 46,5 keV następują co prawda z jądra ^{210}Bi ale gdy jest ono w stanie jądra wzbudzonego, praktycznie natychmiast po rozpadzie beta minus nuklidu macierzystego. To są czasy bardzo krótkie, rzędu 10^{-12}s . Dlatego w spektroskopii jądrowej emisję w/w kwantu gamma przypisuje się ^{210}Pb , chociaż specjaliści od budowy jądra atomowego słusznie zauważają, że emituje je już jądro ^{210}Bi . Dopiero po tej de-ekscytacji powstaje stan jądra ^{210}Bi charakteryzujący się ponadpięciominutowym czasem połowicznego zaniku. Ale to już nie ma żadnego znaczenia dla wykorzystania spektrometrii gamma w pomiarach ^{210}Pb .

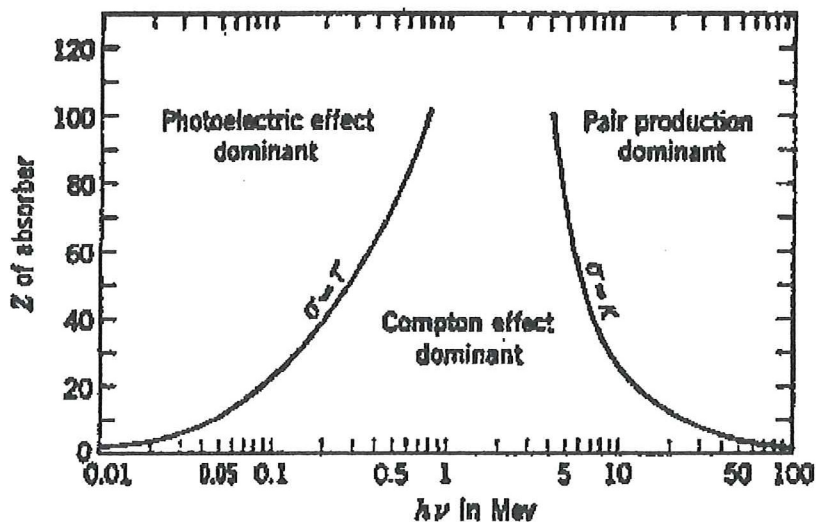
Na stronie 17, w pierwszym akapicie Rozdziału 1.3 konstrukcja zdania sugeruje, że wszystkie wymienione tam radionuklidy są produktami rozszczepienia jądra atomowego, podczas gdy dwa spośród nich (^{134}Cs i ^{241}Am) nie są nimi, tylko są produktami aktywacji. Dalej w tym samym akapicie, jako mechanizm prowadzący do powstawania nuklidów kosmogenicznych wymienia się oddziaływanie z wysokoenergetycznymi protonami promieniowania kosmicznego podczas gdy procesy te są bardziej złożone, głównymi

kanałami produkcji przynajmniej części z nich jest oddziaływanie z neutronami wtórnego promieniowania kosmicznego, a więc tylko pośrednio odpowiadają za nie wymienione wysokoenergetyczne protony.

Przy omawianiu techniki spektrometrii ciekłoscyntylacyjnej (Rozdział 3.3, strona 38) pojawia się informacja o „blisko 100%” wydajności procesu rejestracji widma. Tak wysoka wydajność jest prawdziwa dla cząstek alfa ale na pewno nie jest prawdą np. dla trytu, gdzie z trudem uzyskuje się wydajności 20%. Dla ^{210}Pb wydajności te są też znacząco niższe od 100%. Brakuje mi tu też informacji na temat możliwości wykorzystania efektu Czerenkowa dla rejestracji ^{210}Pb poprzez ^{210}Bi .

Na stronie 45, promieniowanie gamma, jako jedna z form promieniowania jonizującego nazwana jest „promieniowaniem jądrowym”. Jest to kolejny skrót myślowy, czy też nieścisłość – w rzeczywistości zarówno „promieniowania jonizujące” obejmuje inne, nie tylko fotonowe rodzaje promieniowania (np. cząstki naładowane takie jak elektrony i cząstki alfa) jak i „promieniowanie jądrowe” też obejmuje strumienie innych niż fotony cząstek.

Na stronie 47 przedstawiono graficznie wynik obliczeń dla współczynnika absorpcji uzyskany dla ołowiu. Jednak w tekście omawiającym ten rysunek Autor generalizuje, pisząc, że przy energiach ponad 5 MeV produkcja par dominuje nad efektem Comptona. Nie dodaje, że tak dzieje się dla ołowiu. A przecież granica ta silnie zależy od Z materiału, co obrazuje poniższy rysunek (zaczepnięty ze strony Uniwersytetu Wisconsin (http://www.hep.wisc.edu/~prepost/407/gamma/gamma_html.html):



Ciągłe linie na powyższym rysunku obrazują przy jakich Z i energiach fotonów sąsiadujące ze sobą efekty są tak samo intensywne. Widać, że dla bardzo niskich Z efekt Comptona dominuje przy znacznie wyższych energiach niż 5 MeV.

Trudno mi również do końca zgodzić się też z rozumowaniem przedstawionym na stronie 52, gdzie dyskutuje się możliwość rejestracji kwantu gamma rozproszonego w wyniku efektu Comptona pod dużym kątem. Autor konkluduje, że jest mało prawdopodobne, by tak rozproszony kwant dotarł do detektora. Zakłada tu chyba, że rozważamy kwanty

gamma w pierwotnie skolimowanej kolimatorem w stronę detektora wiązce, jak w swoim układzie pomiarowym a nie emitowane izotropowo. A więc ponownie mała precyzja wypowiedzi spowodowane pewnymi implicite poczynionymi a nie wypowiedzianymi założeniami.

We wzorach na obliczanie aktywności (np. 7-4) Autor używa terminu „wydajność emisyjna danej linii gamma”. Jest to termin niewłaściwy (choć nie błędny). Jednak właściwym i ogólnie przyjętym terminem jest tu raczej „prawdopodobieństwo emisji kwantu gamma o danej energii”.

Wzór 7-7 ma odnosić się rzekomo do różnicy w samoabsorpcji pomiędzy próżnią a materiałem próbki, jednak opis warunków doświadczenia pokazuje, że dotyczy to różnic pomiędzy powietrzem (nie próżnią) a próbką, i tak też później Autor go stosuje.

Na stronie 70, przy opisie zjawisk wywołanych podwyższoną obecnością ^{40}K w próbce brakuje mi wspomnienia o pikach pojedynczej i podwójnej ucieczki – pomimo, że są one widoczne (choć nie opisane) na ilustrującym zjawisku rys. 8-4. Traci na tym walor dydaktyczny pracy.

Pod koniec strony 71 jako powód stosowania wyłożenia wnętrza osłony elektrolityczną miedzią Autor podaje redukcje promieniowania hamowania cząstek beta z rozpadu ^{210}Bi . Jest to prawda tylko częściowa. Równie ważna jest redukcja promieniowania charakterystycznego X ołowiu uzyskiwana dzięki temu.

Rys 8-8 przedstawia obok FWHM też niewyjaśnioną wielkość „Low Tail”.

Na rys. 8-9 sześć punktów pomiarowych znacznie odbiega od dopasowania funkcji opisującej wydajność detektora. Autor konkluduje, że wynika to z wpływu „sumowania koincydencyjnego” (str. 76). Nie jestem przekonany co do poprawności tego wyjaśnienia. Uważam, że jest tu jakaś inna przyczyna mająca charakter prawdopodobnie błędu grubego. Nie mam niestety danych, poza własnym doświadczeniem, by moje przypuszczenie lepiej uzasadnić, jednak sumowanie koincydencyjne to efekt na ogół odpowiadający za kilkuprocentowe odchyłki a nie zaniżenia kilkudziesięcioprocentowe. Chętnie zapoznam się na obronie pracy lub wcześniej ze szczegółami tego przypadku.

Na stronie 80, w trzecim akapicie, pojawia się sformułowanie „średnica pojemnika odpowiada średnicy kryształu detektora wynoszącej dokładnie 91 mm. Porównując to zdanie ze zdjęciem układu pomiarowego na rys. 8-13 odnoszę wrażenie, że 91 mm to raczej średnica zewnętrzna obudowy (tzw. „end-cup”) detektora a nie znajdującego się w nim kryształu, która jest prawdopodobnie co najmniej o kilkanaście milimetrów mniejsza.

Mam kilka jeszcze drobnych uwag krytycznych czy też polemicznych trochę innej natury. Np. zastanawia mnie konsekwentne używanie w całej pracy w odniesieniu do radionuklidów w kontekście odpadów przemysłowych skrótu "NORM" zamiast chyba bardziej tu właściwego „TENORM”, czyli (w moim tłumaczeniu) „technologicznie podwyższonych naturalnie występujących radioaktywnych materiałów” a nie po prostu „naturalnie występujących radioaktywnych materiałów”. Przecież gdzie jak gdzie, ale w

odpadach przemysłowych mamy zawsze do czynienia z pozostałościami po jakiś technologicznych procesach. Nie mam wątpliwości, że Autor zna oba terminy i przypuszczam, że ma w tej dziedzinie jakieś istotne przemyślenia, z którymi zapozna nas na obronie doktoratu.

Inną słabością przeglądu składającego się na pierwsze rozdziały pracy jest, w mojej ocenie, dosyć przypadkowy dobór cytowanych prac. Brakuje mi tu odniesień do prac przełomowych, klasycznych, w których dane zjawiska czy procesu obserwowane były po raz pierwszy. Generalnie względnie mało intensywne cytowania prac są w moim przekonaniu dosyć widocznym mankamentem recenzowanej tu pracy. Dobrym przykładem tego niedoboru jest przeglądowa Tabela 2-1 – zawierająca podsumowanie wieloletnich wyników uzyskanych w GIG ale nie zawierająca odniesienia do tych prac omawiających te badania.

Na str. 83 brakuje mi też pełniejszego scharakteryzowania badanych materiałów pod kątem gęstości i np. policzenia średniego Z , jak również zidentyfikowania ich na rysunku 8-15.

Wymienione powyżej dosyć liczne jednak na ogół bardzo drobne uchybienia obniżają jedynie walor dydaktyczny pracy. Chcę tu podkreślić, że nie ujmuje to w żadnym stopniu mojej wysokiej merytorycznej oceny dotyczącej zawartości naukowej pracy. Oprócz udoskonalenia przez Autora pewnej klasycznej już techniki pomiarowej praca przynosi też szereg ciekawych ustaleń a wśród nich to najważniejsze – że nie ma prostego i uniwersalnego związku między gęstością nasypową a czynnikiem poprawki na samoabsorpcję.

Jestem przekonany, że oceniana tu praca spełnia wszelkie ustawowe wymogi stawiane obecnie rozprawie doktorskiej, określone w stosownej Ustawie o stopniach i tytułach naukowych i stąd wnoszę o dopuszczenie Pana magistra inżyniera Michała Bonczyka do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

KIEROWNIK
Zakładu Fizykochemii Jądrowej
IFJ PAN

prof. dr hab. Jerzy W. Mietelski