

prof. dr hab. Zenon Janas
Instytut Fizyki Doświadczalnej
Wydział Fizyki UW



Warszawa, 6 czerwca 2016 r.

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr Aleksandry Fijałkowskiej
pt. Badanie przemiany beta produktów rozszczepiania z wykorzystaniem
spektrometru pełnej absorpcji

Wprowadzenie

W reakcji rozszczepienia ciężkich jąder atomowych produkowanych jest ponad 1000 izotopów. Zdecydowana większość z nich to jądra nietrwałe, rozpadające się na drodze przemiany beta-. Ich rozpadom towarzyszy emisja cząstek beta, antyneutrin elektronowych oraz kwantów gamma deekscytujących stany wzbudzone jąder - produktów rozpadu. W warunkach normalnej eksploatacji reaktorów energia wydzielana w rozpadach beta fragmentów rozszczepienia stanowi około 10% całkowitej energii wyzwolonej w reakcji rozszczepienia. Po zatrzymaniu reakcji rozszczepienia energia uwalniana w rozpadach beta produktów rozszczepienia jest źródłem tzw. ciepła powyłłączeniowego, które ogrzewa rdzeń reaktora długo po jego wyłączeniu. Dramatyczną ilustracją znaczenia ciepła powyłłączeniowego była katastrofa reaktorów w Fukushima – w momencie rejestracji trzęsienia ziemi reakcje rozszczepienia w reaktorze zostały automatycznie zatrzymane, jednak awaria układów chłodzenia doprowadziła do stopienia rdzeni i niekontrolowanej emisji promieniotwórczych produktów rozszczepienia do środowiska. Tak więc, za wysoce niekomfortową należy uznać sytuację, w której obliczenia „ab initio”, uwzględniające wyznaczone eksperymentalnie prawdopodobieństwa produkcji izotopów w reakcji rozszczepienia oraz schematy rozpadów promieniotwórczych fragmentów, nie są w stanie odtworzyć obserwowanej ewolucji czasowej ciepła powyłłączeniowego.

Reaktory jądrowe są intensywnymi źródłami antyneutrin elektronowych ($2 \cdot 10^{20} \bar{\nu}_e/s$ na 1 GW mocy cieplnej) wykorzystywanymi w eksperymentach neutrinowych takich jak np. Daya Bay, RENO. Analiza i interpretacja wyników tych eksperymentów wymagają dokładnej znajomości rozkładu energii emitowanych antyneutrin. Dostępne obecnie dane wskazują na istnienie tzw. anomalii neutrin reaktorowych wyrażającej się ok. 6% deficytem ilości obserwowanych antyneutrin w stosunku do przewidywań.

Jako wspólne źródło problemów napotykanych w obliczeniach ciepła powyłłączeniowego oraz w obliczeniach strumienia antyneutrin wskazuje się niedostateczną znajomość schematów rozpadów produktów rozszczepienia. Dotyczy to zwłaszcza izotopów o znacznych ($>5\text{MeV}$) energiach rozpadu. Zdecydowana większość danych o rozpadach beta fragmentów rozszczepienia pochodzi z pomiarów wykonanych przy pomocy detektorów germanowych. Charakteryzują się one bardzo dobrą energetyczną zdolnością rozdzielczą, ale niską wydajnością rejestracji kwantów gamma. Uniemożliwia to obserwację wszystkich, często bardzo słabych przejść gamma z rozpadu wysoko wzbudzonych stanów zasilanych w przemianie beta. W konsekwencji, zasilania stanów wzbudzonych populowanych w rozpadzie beta wyznaczone w oparciu o pomiary przeprowadzone detektorami germanowymi nie odpowiadają rzeczywistemu rozkładowi intensywności przejść beta. Problem ten znany jest pod nazwą efektu Pandemonium.

Jednym ze sposobów przezwyciężenia ograniczeń układów detekcji o małej wydajności jest zastosowanie tzw. spektrometru całkowitej absorpcji promieniowania. W idealnym spektrometrze tego typu energie wszystkich kwantów gamma w kaskadach deekscytujących stany wzbudzone są sumowane dając sygnał, którego amplituda określa energię wzbudzenia rozpadającego się stanu i jednoznacznie wskazuje na jego zasilanie.

W swojej rozprawie doktorskiej mgr A. Fijałkowska wykorzystała technikę całkowitej absorpcji promieniowania do zbadania rozpadów beta wybranych produktów rozszczepienia zidentyfikowanych jako szczególnie ważne do wyjaśnienia niezgodności obserwowanych i obliczanych rozkładów czasowych ciepła powyłaczeniowego oraz strumienia antyneutrino reaktorowych.

Zawartość merytoryczna rozprawy

Rozprawa doktorska mgr. Aleksandry Fijałkowskiej liczy 148 stron i składa się z ośmiu rozdziałów uzupełnionych dwoma dodatkami oraz spisem bibliografii.

W rozdziale 1 autorka przedstawiła projekt badawczy, którego część stanowi recenzowana rozprawa oraz zamieściła listę czterech opublikowanych oraz dwóch wysłanych do publikacji prac stanowiących dotychczasowy dorobek tego projektu. W dwóch publikacjach mgr Fijałkowska jest pierwszym autorem, w pozostałych, wbrew kolejności alfabetycznej, jej nazwisko zostało umieszczone na początku listy autorów.

W rozdziale 2 sformułowane zostały cele pracy. Były to: i) próba wyjaśnienia problemu niezgodności czasowego rozkładu ciepła powyłaczeniowego w reaktorach jądrowych, obliczanego w oparciu o istniejące dane o rozpadach produktów rozszczepienia z danymi doświadczalnymi, ii) weryfikacja rozkładu energetycznego antyneutrino emitowanych w rozpadach beta produktów rozszczepienia oraz próba wyjaśnienia obserwowanej anomalii antyneutrino reaktorowych. Droga do realizacji tych niewątpliwie ambitnych celów wiodła poprzez badania techniką całkowitej absorpcji rozpadów nuklidów uznanych jako potencjalnie najważniejsze do wyjaśnienia niezgodności obserwowanych i obliczanych rozkładów czasowych ciepła powyłaczeniowego oraz strumienia antyneutrino reaktorowych.

W rozdziale 3 szczegółowo omówiono zjawisko emisji ciepła powyłaczeniowego w reaktorach jądrowych oraz opisano metodę teoretycznego obliczania ewolucji czasowej tej wielkości w oparciu o dane o schematach rozpadu produktów rozszczepienia. W tym samym rozdziale omówione zostały metody obliczania rozkładu energii antyneutrino emitowanych w rozpadach beta produktów rozszczepienia.

W rozdziale 4 opisany został układ doświadczalny wykorzystany do przeprowadzenia badań rozpadów produktów rozszczepienia. Bardzo skrótowo opisany został układ produkcji i separacji badanych izotopów. Ta część pracy pozostawia pewien niedosyt, zabrakło np. informacji o tym, jakie źródła jonów były wykorzystywane w badaniach poszczególnych izotopów. Uwaga autorki skupiła się na najważniejszym elemencie układu pomiarowego – Modularnym Spektrometrze Pełnej Absorpcji (MTAS). Szczegółowo opisana została konstrukcja detektora i budowa jego elementów. Kluczowe znaczenie dla dalszej części pracy mają wyniki uzyskane w podrozdziale 4.2, w którym opisano procedurę symulacji funkcji odpowiedzi spektrometru MTAS na promieniowanie gamma i beta. Do modelowania działania układu detekcyjnego wykorzystano pakiet GEANT4 rozszerzony o procedury (nieliniowej) konwersji depozytów energii w kryształach NaI(Tl) na światło. Stworzone oprogramowanie umożliwiało symulowanie funkcji odpowiedzi spektrometru MTAS zarówno dla źródeł monoenergetycznego promieniowania gamma i elektronów jak i dla

skomplikowanych rozpadów promieniotwórczych zawierających kaskady przejść gamma zasilane w rozpadach beta. Jakość symulacji sprawdzono porównując wygenerowane widma amplitud sygnałów z widmami zarejestrowanymi w pomiarach źródeł kalibracyjnych. Uzyskano bardzo dobrą zgodność widm symulowanych i mierzonych zarówno dla cząstek beta jak i kwantów gamma.

Ważnym elementem symulacji było obliczanie widm cząstek beta, których kształt determinuje rozkład energii emitowanych antyneutrin. Ten element modelowania nie został moim zdaniem dostatecznie udokumentowany w rozprawie.

W rozdziale 5 szczegółowo opisano kolejne kroki analizy sygnałów z detektora MTAS. Obejmowała ona procedurę kalibracji energetycznej modułów spektrometru, synchronizację czasową sygnałów pochodzących z różnych detektorów oraz konstrukcję widm, które poddawano dalszej analizie. Tworzono i analizowano dwa rodzaje widm: widmo sygnałów pełnej absorpcji oraz zsumowane widma sygnałów rejestrowanych przez pojedyncze kryształy detektora. W podrozdziale 5.2 szczegółowo opisano procedurę konstruowania funkcji odpowiedzi detektora MTAS dla znanych poziomów i postulowanych pseudopoziomów zasilanych w rozpadzie beta oraz procedurę wyznaczania intensywności przejść beta do stanów wzbudzonych jąder potomnych. Interesującą innowacją w analizie danych z MTAS było wykorzystanie widm sygnałów z pojedynczych kryształów do weryfikacji założeń dotyczących sposobu deekscytacji pseudopoziomów. Było to możliwe dzięki modularnej budowie spektrometru MTAS.

W analizie widm TAS rozpad do stanu podstawowego lub izomeru wymagają specjalnego traktowania, jako że nie towarzyszy im emisja promieniowania gamma. Interesująca byłaby informacja o zastosowanej przez autorkę metodzie wyznaczania zasilania stanu podstawowego/izomerycznego, tym bardziej, że w kilku przypadkach nowo wyznaczone wartości znacznie różnią się od dotychczasowych (np. dla ^{90}Kr jest to zmiana z 29% na 6.9%).

W rozdziale 6 przedstawione zostały szczegółowe wyniki analizy widm pełnej absorpcji zarejestrowanych w badanych rozpadach. W każdym przypadku szczegółowo opisano procedurę oczyszczania analizowanych widm z zanieczyszczeń pochodzących z rozpadów innych, niepożądanych nuklidów. We wszystkich badanych przypadkach otrzymano rozkłady zasilania beta stanów wzbudzonych jąder potomnych, które wykorzystano do obliczenia średnich energii promieniowania gamma i cząstek beta emitowanych w tych rozpadach oraz obliczenia uśrednionych przekrojów czynny na oddziaływanie antyneutrin z protonami.

W rozdziale 7 przeprowadzono dyskusję wpływu wyników pomiarów przeprowadzonych przy użyciu spektrometru MTAS na wyniki obliczeń ciepła powyłłączeniowego dla ^{235}U i ^{239}Pu . Dla obydwu izotopów obliczenia i porównania przeprowadzono zarówno dla składowej elektromagnetycznej jak i składowej beta ciepła powyłłączeniowego. W tym samym rozdziale zaprezentowano wyniki obliczeń rozkładów energetycznych cząstek beta i antyneutrin emitowanych w rozpadach badanych izotopów, wyznaczone w oparciu o zmierzone intensywności przejść beta. W oparciu o te dane obliczono uśrednione przekroje czynne na oddziaływanie antyneutrin z protonami. W każdym z analizowanych przypadków stwierdzono niższą wartość tak obliczonego przekroju czynnego w stosunku do przekroju czynnego obliczonego w oparciu o dane dostępne w bazie ENSDF. Największe różnice stwierdzono dla ^{89}Kr (35%), ^{90}Kr (53%) i $^{90\text{m}}\text{Rb}$ (54%).

W rozdziale 8 przedstawiono zwięzłe podsumowanie wyników otrzymanych w rozprawie oraz naszkicowano perspektywy dalszych badań.

W dodatku A zamieszczone zostały informacje dotyczące procedur kalibracyjnych spektrometru MTAS. Dodatek B zawiera tabele, w których przedstawiono rozkłady intensywności przejść beta wyznaczone przy użyciu spektrometru MTAS oraz rozkłady zaczerpnięte z bazy danych ENSDF.

Bibliografia zawiera 57 pozycji, w tym odniesienia do internetowych baz danych jądrowych wykorzystywanych w pracy.

Uwagi dotyczące redakcji pracy

Prac została zredagowana starannie. Autorka posługuje się poprawnym językiem, z użyciem właściwej terminologii. W tekście rozprawy znalazłem wprowadzić kilka błędów literowych, interpunkcyjnych i niezręczności językowych, nie psują one jednak ogólnego wrażenia starannej edycji pracy.

Zamieszczone w pracy rysunki zostały wykonane starannie, są czytelne i dobrze ilustrują prezentowane zależności. Wyjątek stanowi sposób, w jaki w rozdziale 6 przedstawione zostały zasilania poziomów w rozpadach beta badanych izotopów. Autorka zdecydowała się przedstawienie wykresów wartości skumulowanej zasilania poziomów. Wydaje mi się, że bardziej czytelne byłoby przedstawienie rozkładu zasilania w postaci różniczkowej.

Na rys. 7.4, str. 101 przedstawione zostały dwa różne rozkłady czasowe ciepła powyłaczeniowego przypisane temu samemu izotopowi - ^{90m}Rb .

Niektóre z tabel (Tabela A.2, A.3, A4) zamieszczonych w dodatku A wydają się być mało przydatne. Podane w nich współczynniki mają zastosowanie jedynie dla specyficznych i prawdopodobnie niemożliwych do odtworzenia ustawień układu spektrometrycznego.

Mam nadzieję, że dane z pomiarów MTAS umieszczone w dodatku B znajdują się w odpowiednich bazach danych i uzupełnią/zastąpią dostępne tam informacje. Przedtem jednak zalecałbym ponowne sprawdzenie zawartości tabel – np. zsumowane zasilania w tabeli B.7 przekraczają 100%.

W bibliografii, w odniesieniach do internetowych baz danych zabrakło odpowiednich adresów internetowych. Również dane bibliograficzne innych pozycji są niepełne, dotyczy to np. ref. [8], [23], [49], [57]. Niezbyt fortunnym pomysłem było podawanie pełnej listy autorów publikacji liczących kilkadziesiąt współautorów.

Ocena końcowa

Autorka rozprawy zrealizowała ambitny cel, jakim były pomiary rozkładów intensywności przejść beta w rozpadach wybranych produktów rozszczepienia przy użyciu modularnego spektrometru całkowitej absorpcji MTAS. Analiza danych z pomiarów prowadzonych przy użyciu spektrometru MTAS wymagała pełnego zrozumienia i precyzyjnego opisu oddziaływania promieniowania jądrowego z materią detektora. Autorka rozwiązała ten problem w sposób zasługujący na uznanie. Kolejnym wyzwaniem było opracowanie metody połączonej analizy widm sygnałów całkowitej absorpcji oraz widm sygnałów z pojedynczych kryształów. Tego typu analiza nie była dotąd prowadzona i stanowi oryginalny, istotny wkład autorki w metodologię badań prowadzonych techniką całkowitej absorpcji promieniowania.

Uzyskane wyniki dostarczyły nowych, wiarygodnych informacji o średniej energii promieniowania gamma i energii cząstek beta oraz umożliwiły określenie rozkładu

energetycznego antyneutrin emitowanych w rozpadach ^{86}Br , $^{89,90}\text{Kr}$, $^{89,90\text{gs},90\text{m},92}\text{Rb}$ oraz ^{139}Xe . Otrzymane wyniki potwierdziły przypuszczenia o niedoszacowaniu średniej energii promieniowania gamma emitowanego w rozpadach tych nuklidów. Uwzględnienie nowych danych w obliczeniach ciepła powyłączeniowego poprawiło zgodność obliczonej składowej elektromagnetycznej tej wielkości dla ^{235}U z danymi doświadczalnymi, stwierdzono niewielki wpływ nowy danych na składową beta. Wykorzystanie wyników pomiarów przeprowadzonych przy użyciu spektrometru MTAS do obliczenia rozkładu energii emitowanych antyneutrin zmniejszyło o około 1-1.4% wartość uśrednionego przekroju czynnego na ich oddziaływanie z protonami.

Przeprowadzone w rozprawie doktorskiej mgr A. Fijałkowskiej analiza rozkładu czasowego ciepła powyłączeniowego oraz strumienia antyneutrin emitowanych z reaktora wskazały na błędy systematyczne w ocenie rozkładu zasilania w rozpadach beta jąder o wysokiej energii przemiany jako na istotne źródło rozbieżności pomiędzy wielkościami obliczanymi i obserwowanymi. Tym samym, jako uzasadnioną należy uznać zawartą w rozprawie konkluzję o konieczności prowadzenia dalszych badań rozpadów produktów rozszczepienia techniką pełnej absorpcji.

Wyniki uzyskane w pracy doktorskiej mgr A. Fijałkowskiej należy uznać za bardzo wartościowe – istotnie rozszerzyły wiedzę o rozpadach izotopów ważnych m.in. do oceny ciepła powyłączeniowego reaktorów jądrowych. Rzetelna i staranna analiza danych oraz wnikliwa dyskusja otrzymanych wyników świadczą o talencie i naukowej dojrzałości autorki rozprawy.

Stwierdzam, że recenzowana rozprawa doktorska spełnia wymagania stawiane pracom doktorskim i wnoszę o dopuszczenie mgr Aleksandry Fijałkowskiej do dalszych etapów przewodu doktorskiego.

Ponadto, doceniając jakość i znaczenie wyników uzyskanych w recenzowanej rozprawie, wnioskuję o wyróżnienie pracy doktorskiej mgr A. Fijałkowskiej. Za najważniejsze wyniki pracy uważam:

- i) opracowanie oryginalnej metody analizy danych uzyskanych przy użyciu modularnego detektora całkowitej absorpcji promieniowania.
- ii) uzyskanie nowych, wiarygodnych danych o rozkładach natężenia przejść beta w rozpadach fragmentów rozszczepienia istotnych dla obliczeń ciepła powyłączeniowego oraz widma energii antyneutrin reaktorowych.

Zeno Jono