

dr hab. Łukasz Świdorski
Narodowe Centrum Badań Jądrowych
Zakład Fizyki Detektorów i Diagnostyki Plazmy (TJ3)
ul. Andrzeja Sołtana 7
05-400 Otwock

**Recenzja rozprawy doktorskiej Pana mgr. Michała Stepaniuka pt.:
„Badanie przemiany beta izotopów bromu o liczbach masowych od
A=87 do A=91 z wykorzystaniem Modularnego Spektrometru Pełnej
Absorbpcji”**

Rozprawa została zredagowana pod kierunkiem prof. dr hab. Marka Karnego na Wydziale Fizyki Uniwersytetu Warszawskiego. Praca zawiera 144 numerowane strony poprzedzone 14 stronami zawierającymi stronę tytułową, streszczenia w językach polskim i angielskim oraz spisy treści, rysunków i tabel. Praca została zredagowana w języku polskim i jest podzielona na 7 rozdziałów, na które składa się wstęp; wprowadzenie do badanych zagadnień; opis układu eksperymentalnego; opis metod analizy danych; przedstawienie i omówienie wyników oraz podsumowanie. Na zakończenie autor zamieścił stabelaryzowane wartości zasilai przejść β uzyskane w wyniku opisanej analizy danych oraz bibliografię.

We wstępie autor przedstawia cel prowadzonych badań, jakim było zbadanie przemian β izotopów bromu w zakresie liczb masowych od A=87 do A=91 włącznie. Dodatkowo, do listy badanych izotopów włączono ^{91}Kr . Jako główną motywację autor podaje potrzebę dokładniejszego oszacowania ciepła powyłęczeniowego w reaktorach jądrowych oraz zwiększenie precyzji określenia strumienia antyneutrini reaktorowych. W tym celu wykorzystano możliwości, jakie daje Modularny Spektrometr Pełnej Absorbpcji (z ang. Modular Total Absorption Spectrometer – MTAS). Pomiar widm energetycznych promieniowania γ oraz cząstek β pozwala na odtworzenie schematów rozpadu badanych izotopów, co z kolei pozwala na obliczenie energii uwalnianej w danej reakcji. Ważnym aspektem rozprawy jest opracowanie metody pomiaru widm energetycznych i prawdopodobieństw emisji neutronów opóznionych oraz przedstawienie analizy wyników na zarejestrowanym zestawie danych.

Drugi rozdział zawiera opis przemian β zachodzących w badanych izotopach, z rozróżnieniem przejść do stanu podstawowego jądra-córki, przejść β - γ oraz rozpadów β , po których zachodzi emisja neutronu. Dalej autor przytacza definicję ciepła powyłęczeniowego i dyskutuje problem ilustrowany przez tzw. efekt pandemonium, na przykładzie którego przedstawione są powody, dla których ciepło powyłęczeniowe jest błędnie wyznaczane. W odpowiedzi na obserwowane rozbieżności przedstawiona jest propozycja rozwiązania problemu poprzez poprawę precyzji odtworzenia schematu poziomów wzbudzonych jąder pochodnych oraz pomiaru ich zasilai w rozpadach β . Na końcu rozdziału przedstawiona jest rola antyneutrini elektronowych, będących jednym z produktów przemiany β^- , jako

źródła danych o oscylacjach neutrin oraz potencjalnym źródle informacji nt. składu paliwa jądrowego w reaktorach. Opisana jest również metoda odtworzenia strumienia antyneutrin reaktorowych w oparciu o dane z przemian β . Zagadnienia w rozdziale 2 są przedstawione w syntetyczny sposób, jednak w wystarczającym stopniu opisujący procesy, które są istotne dla rejestracji i analizy danych.

W rozdziale trzecim znajduje się opis układu eksperymentalnego, przy pomocy którego zarejestrowano dane, z jakich korzystał autor rozprawy. Opis jest dość lakoniczny i zawiera podstawowe informacje nt.:

- wiązki wykorzystanej do produkcji jąder β^- -promieniotwórczych;
- metody transportu wyprodukowanych jonów do wnętrza detektora MTAS;
- budowy detektora MTAS wraz z krzemowymi detektorami cząstek β ;
- cyklu pomiarowego zastosowanego dla poszczególnych izotopów.

Opis jest bardzo krótki, przydałoby się aby był rozbudowany o kilka informacji dotyczących budowy spektrometru, np. zastosowane fotopowielacze, typ obudowy i jej wpływ na wydajność lub próg detekcji. Warto byłoby też poznać zakres aktywności próbek, jakie były poddane analizie w pomiarach i wynikające z tego zakresy krotności zliczeń na jednostkę czasu (prawdopodobnie – na sekundę) w różnych modułach detektora.

Czwarty rozdział przedstawia stosowane metody analizy danych. Kalibracja energetyczna, mająca istotny wpływ na identyfikację rejestrowanych przejść γ , jest wspomniana bardzo zdawkowo. Bardziej obszerny, choć nie wolny od nieścisłości, jest opis tworzenia widm energetycznych. Procedura odtworzenia widm, zarówno symulowanych (podrozdział 4.2), jak i mierzonych przy pomocy MTAS (podrozdział 4.3) jest ujęta ze szczegółami. W pierwszym kroku, dane doświadczalne z detektora MTAS były odtwarzane na podstawie znanych schematów rozpadu, przeważnie z bazy ENSDF. Następnie, w obliczu braku zgodności, schematy rozpadu były modyfikowane poprzez dodanie równo oddalonych quasi-poziomów wzbudzonych jądra-córki w jednym lub kilku przedziałach energii. Na podstawie iteracyjnego algorytmu opartego o metodę bayesowską szukano optymalnego zestawu quasi-poziomów do odtworzenia widm doświadczalnych. Bardzo wartościowe są zamieszczone w podrozdziale 4.3.3 analizy widm koincydencyjnych na przykładzie danych zmierzonych dla rozpadu β ^{89}Br , pozwalające zrozumieć złożoność problemu rekonstrukcji schematów poziomów wzbudzonych jądra-córki i wyznaczenia zasilań przejść. Równie ważny jest opis analizy składowych widm pochodzących z rejestracji neutronów opóźnionych, przytoczony na przykładzie danych z pomiarów ^{87}Br i ^{89}Br w podrozdziale 4.3.4. Ważną obserwacją wynikającą z analizy widma ^{87}Br w zakresie niskich energii jest błędna implementacja rozproszeń elastycznych i nieelastycznych neutronów w pakiecie Geant4. Rozdział 4 kończy się szczegółową analizą niepewności pomiarowych.

Wyniki pomiarów są przedstawione w rozdziale piątym. Sześć kolejnych podrozdziałów poświęconych jest omówieniu zarejestrowanych kaskad promieniowania w rozpadach β badanych izotopów. W każdym z nich znajduje się zestaw informacji nt. czasu połowicznego zaniku, ciepła reakcji, energii separacji neutronów w jądrze pochodnym oraz dotychczasowego stanu wiedzy o przemianie β danego izotopu. Następnie autor omawia, jakie modyfikacje schematów rozpadu były konieczne dla poprawnego odtworzenia widm energetycznych skonstruowanych w ramach analizy danych zebranych przy pomocy MTAS, a także porównuje wartości średnie energii promieniowania γ i β uzyskane w bieżącym eksperymencie z wynikiem z bazy ENSDF, zaś tam, gdzie to możliwe, również z wynikiem podobnego eksperymentu „Rocinante”. Analiza widm energetycznych przeprowadzona jest dla różnych konfiguracji sumowania i bramkowania, w zależności od efektu, jaki chciał zaprezentować autor. Na każdym z widm przedstawiony jest również wkład pochodzący od tła z: ewentualnych zanieczyszczeń próbki sąsiednimi izotopami promieniotwórczymi o zbliżonych okresach półrozpadu;

zdarzeń typu „pile-up” lub koincydencji przypadkowych. Każdy z podrozdziałów zakończony jest analizą skumulowanych intensywności przejść β - γ w porównaniu do wyników uzyskanych z bazy danych ENSDF oraz eksperymentu „Rocinante”, o ile było to możliwe.

Warto docenić wkład autora w rozszerzenie typowej analizy przejść β - γ o przejścia β -n oraz β -n- γ , co pozwala na pomiar widma energetycznego neutronów β -opóźnionych, a także prawdopodobieństw ich emisji w konkurencji z emisją kwantów γ ze stanów o energii wzbudzenia powyżej energii separacji neutronu. Idea pomiaru oparta jest o rejestrację widma energii kwantów γ emitowanych w kaskadzie powstałej po wychwycie neutronu w jądrze ^{127}I , będącego składnikiem scyntylatora NaI:TI. Kaskada ta niesie energię będącą sumą energii separacji neutronu w jądrze ^{128}I , energii kinetycznej wychwyconego neutronu opóźnionego oraz energii wzbudzenia poziomu, na którym znalazł się neutron po wychwycie. Wygenerowane w powyższej analizie widma porównywano z analogicznymi widmami zbudowanymi w oparciu o dotychczasowo używane biblioteki ENSDF, a w przypadku rozpadu izotopu ^{88}Br , z wynikiem eksperymentu R.C. Greenwood i K.D. Watts. Pomimo niepoprawnego zdaniem autora przetwarzania rozprożeń neutronów w symulacjach Geant4, ich rejestracja przy pomocy kaskad gamma w spektrometrze MTAS daje poprawne wyniki, zarówno jeśli chodzi o kształt widma energii jak i prawdopodobieństwo emisji.

Rozdział szósty zawiera omówienie wyników uzyskanych na potrzeby przygotowania niniejszej rozprawy. Autor przedstawia zestawienie średnich energii γ oraz β obliczone na podstawie schematów rozpadu i tabel z zasileniami stanów zaczerpniętymi z baz ENDF/B-VII.1 i ENSDF, a także po uwzględnieniu wyników własnych pomiarów przy pomocy spektrometru MTAS. Dla wszystkich badanych izotopów zaobserwowano jednakowy trend, średnie energie γ w analizie uwzględniającej dane z MTAS uległy zwiększeniu w stosunku do wcześniej dostępnych danych (tabela 6.1), natomiast średnie energie β są mniejsze (tabela 6.2). Porównanie prawdopodobieństwa emisji β -opóźnionych neutronów zmierzonych spektrometrem MTAS z obliczeniami opartymi o dane ENSDF oraz wynikami z kompilacji Liang et al. zostało przedstawione w tabeli 6.3. Warte odnotowania jest poprawne odtworzenie prawdopodobieństw emisji neutronów przy pomocy MTAS pomimo, że układ ten nie jest dedykowany pomiarom neutronów.

W podrozdziale 6.1 autor omawia szczegóły konkurencji emisji neutronów lub kwantów gamma w procesie deekscytacji jąder pochodnych w stanach wzbudzonych. Bardzo swobodne operowanie pojęciami intensywności zasilania, prawdopodobieństwa emisji oraz konkurencji emisji γ -n utrudnia zrozumienie intencji autora podczas analizy rys. 6.1 oraz tabeli 6.5. Nie jest dla mnie jasne, dlaczego w kontekście tabeli 6.5 omawiane są intensywności zasilania, pomimo iż przytoczone są prawdopodobieństwa emisji. Ponadto, prawdopodobieństwa emisji γ obliczone z danych MTAS są zestawione z prawdopodobieństwami emisji neutronów z kompilacji Liang et al. (dlaczego nie z własnymi wynikami?). Na rys. 6.1 autor z opisuje oś rzędnych z lewej strony jako $I_{\beta\gamma} / (I_{\beta\gamma} + I_{\beta n})$, co w rozdziale 2.1.1 zdefiniował jako prawdopodobieństwo emisji γ , ale w podpisie używa określenia „konkurencja emisji neutron vs. γ ”, które w dalszej części podrozdziału definiuje jako $P_{\gamma} / (P_{\gamma} + P_n)$. Argumentację przedstawioną w celu wyjaśnienia różnicy w proporcjach deekscytacji poprzez emisję neutronu lub kwantu γ w jądrach ^{87}Br i ^{88}Br , wskazującą na wzbronienie emisji neutronów po rozpadzie β , można uznać jako zasadną, niemniej nie jest w sposób jednoznaczny określone, czy autor przypisuje ten efekt jądro pochodnemu rozpadu ^{87}Br , czy ^{88}Br .

Kolejny podrozdział (6.2) zawiera analizę wpływu uwzględnienia danych z MTAS na odtworzenie ciepła powyłłączeniowego w rozszczepieniu ^{235}U i ^{239}Pu . Średnie energie β i γ z rozpadów pozostałych izotopów zaczerpnięto z bazy ENDF/B-VII.1. Tutaj pojawia się wątpliwość, z jakiego powodu autor zmienia bazy danych, na podstawie których pokazuje poprawność odtworzenia danych

doświadczalnych. W rozdziale 2.2.1 wynik doświadczalny dla ^{239}Pu porównany jest z symulacjami opartymi o dane z różnych wersji baz JEFF. Tymczasem autor porównuje wyznaczone w swojej pracy średnie wartości energii β i γ z wartościami z bazy ENSDF, zaś wpływ uwzględnienia danych z MTAS na ciepło powyłęczeniowe z wynikami z bazy ENDF/B-VII.1. Nie pojawia się przy tym wyjaśnienie, czym różnią się te bazy, ani uzasadnienie wyboru zastosowanej w danej analizie, w szczególności, kiedy dochodzi do zmiany. Jak można znaleźć na stronie www.nndc.bnl.gov, baza ENDF/B-VII.1 jest podzbiozem utworzonym na podstawie danych zawartych w ENSDF.

Z kolei dane doświadczalne obrazujące ciepło powyłęczeniowe w podrozdziale 2.2.1 pochodzą z prac Tobias *et al.* [13],[25], podczas gdy porównanie symulacji uwzględniające wyniki z MTAS przeprowadzone jest w konfrontacji z danymi z pracy Dickens *et al.* [15]. Na stronie www.nndc.bnl.gov dane z pomiarów Tobias *et al.* są na wysokim poziomie zgodne z symulacjami opartymi o bazę ENDF/B-VII.1. Autor dołożył staranności w celu ilościowej oceny jakości odtworzenia wyników doświadczalnych przy pomocy testu χ^2 , ale w obszarze >100 s dopasowanie jest bardzo dalekie od odtworzenia danych z kompilacji Dickens *et al.*, podczas gdy za stroną www.nndc.bnl.gov widzimy, że dane z kompilacji Tobias *et al.* są w tym zakresie poprawnie odtwarzane przez symulacje wykorzystujące ENDF/B-VII.1.

Konsekwencją zmiany kształtu widma energii elektronów w przemianie beta jest odpowiednia zmiana widma energii antyneutrino elektronowych. Wykorzystując znajomość przekroju czynnego na oddziaływanie w tzw. odwrotnym rozpadzie beta można obliczyć liczbę możliwych do rejestracji antyneutrino. Taka analiza została przedstawiona w podrozdziale 6.3. Jakościowy opis dostarcza właściwego uzasadnienia obserwowanego trendu, czyli zmniejszenia liczby obserwowanych antyneutrino wskutek zmniejszenia średniej energii β rejestrowanej w rozpadach, przy rosnącym z energią przekrojem czynnym na oddziaływanie antyneutrino z protonami. Tabela 6.6 przedstawia ilościowo proporcje, w jakich następuje ubytek wykrywalnych antyneutrino z izotopów badanych w niniejszej pracy po włączeniu do analizy danych z MTAS w stosunku do danych z aktualnej bazy ENSDF. W następnym kroku, korzystając ze skumulowanych prawdopodobieństw powstania produktów rozszczepienia, autor przedstawia na rys. 6.8 zależność od energii strumienia antyneutrino dla 4 składników paliwa jądrowego, tj. ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu i ^{241}Pu . Uwzględnianie danych MTAS zarejestrowanych na potrzeby tej rozprawy zmniejsza przewidywany strumień antyneutrino w największym stopniu w zakresie energii pomiędzy 8 MeV a 11 MeV. Porównanie obliczeń w oparciu o aktualną bazę ENSDF wskazuje na redukcję strumienia w tym zakresie energii od 25% dla ^{238}U do 40% dla ^{235}U . Głównym przyczynkiem do zaobserwowanej zmiany jest modyfikacja schematu rozpadu ^{90}Br , który wnosi najbardziej istotny wkład ze względu na wyjątkowo dużą wartość ciepła reakcji, prawie 11 MeV. W rezultacie całkowity deficyt obserwowanych antyneutron reaktorowych zmniejsza się o ok. połowę, z 6% do 3%.

Podsumowanie jest przedstawione w rozdziale siódmym, w którym autor skrótowo opisuje najważniejsze rezultaty i dowodzi zgodności niektórych z nich, przywołując wyniki dostępne w literaturze. Za najważniejsze osiągnięcie należy uznać wpływ zmian w schematach rozpadu na ciepło powyłęczeniowe, co prowadzi do poprawy zgodności w zakresie czasów od kilku do kilkudziesięciu sekund. Ponadto, ważną obserwacją jest zmniejszenie tzw. deficytu antyneutrino reaktorowych, w szczególności dla izotopów uranu. Podsumowanie kończy się listą wystąpień autora na konferencjach naukowych oraz publikacji z jego znaczącym wkładem, z których 2 już się ukazały, a 3 są w przygotowaniu.

Praca jest zredagowana poprawnie językowo, zdarzają się przypadki wykorzystania potocznych określeń lub skrótów myślowych często używanych w środowisku, nie przeszkadzają one jednak w prawidłowym zrozumieniu omawianej tematyki w ogólnym ujęciu. Poniższa lista uwag podzielona na

część o bardziej i mniej istotnym charakterze nie przeczy dobrej ocenie pracy, a ma jedynie na celu doprecyzowanie pewnych pojęć lub stosowanych procedur.

Lista ważnych uwag (z prośbą o udzielenie odpowiedzi):

1. str. 7: czy E_{bremss} nie zawiera się w $E_{\beta\pm}$ i E_{ce} ?
czy pomija się energię z oddziaływania antyneutrino elektronowych z protonami?
2. str. 26: co oznacza, że w kontekście widm eksperymentalnych „Założono wzmocnienie 1 keV na kanał dla monoenergetycznych przejść γ ”? Współczynnik proporcjonalności jest wyznaczany w wyniku procedury kalibracyjnej.
3. str. 26: „Kalibrację oparto głównie o aktywność pochodzącą z tła oraz o kwanty γ emitowane w rozpadach badanych izotopów. W każdym przypadku podczas analizy wprowadzono indywidualne poprawki polepszające ogólną jakość kalibracji” – jak wykonano kalibrację i jakie poprawki wprowadzono?
4. str. 26: warto byłoby dodać diagram opisujący typowe zakresy czasu od rozpadu β do emisji cząstek/kwantów, ich rejestracji i formowania sygnałów, aby uzasadnić ustalenie długości bramki na 500 ns.
5. str. 26-27: widma sumacyjne nie są jasno zdefiniowane względem widma całkowitego. Czy pojęcia te oznaczają odpowiednio „sumę widm” i „widmo sumy sygnałów”?
6. str. 29: w jaki sposób zapewniono jednakową kalibrację widm zmierzonych i symulowanych? Czy było przeprowadzane rebinowanie?
7. str. 29: odrzucenie zdarzeń o niepełnym zbieraniu światła nie redukuje szumów (skutkowałoby to zwężeniem pików), tylko podnosi próg detekcji. Jak zastosowano poprawkę z pomiaru ^{90}Sr ?
8. rys. 4.3: czy pik ok. 4,5 MeV to pik pojedynczej ucieczki ze zdarzeń pełnej absorpcji? Jeśli tak, dlaczego nie widać pików podwójnej ucieczki?
9. str. 57: warto byłoby przedstawić dodatkową analizę koincydencji 2D z odpowiednim rysunkiem, np. opisując specyfikę ^{88}Br („W przeciwieństwie do pozostałych rozpadów izotopów bromu, gdzie części neutronowa i promieniowania γ są energetycznie oddzielone, neutrony emitowane w rozpadzie ^{88}Br odkładają energię w obszarze, gdzie znajdują się również depozyty promieniowania γ ”) w porównaniu do rys. 4.2 dla ^{87}Br .
10. str. 80: dlaczego produkcja ^{91}Kr z ^{91}Br ($T_{1/2} = 0,544$ s) trwała aż 4 s? Już po 2 s mało przybywa, a już się rozpada. Czy był inny powód?
11. Jakie różnice występują pomiędzy bazami JEFF, ENSDF i ENDF/B-VII.1?
12. Jakie wnioski można wyciągnąć z porównania wyników doświadczalnych opracowanych pod kierunkiem A. Tobiasa i J.K. Dickensa?

Lista mniej ważnych uwag (bez wymaganej odpowiedzi):

13. Autor niekiedy nadużywa slangowych określeń, np:
 - str. 1: „Współczesne bazy danych wciąż borykają się z tymi trudnościami.” (daleko idąca personifikacja).
 - str. 2: „konkurencja neutron vs. kwant γ ”, lepiej zastąpić „konkurencja pomiędzy emisją neutronów w stosunku do emisji kwantów γ ”.
 - str. 3: opóźnienie dotyczy raczej „czasów pomiędzy emisją neutronu a poprzedzającym ją rozpadem β ”. Jakie są typowe zakresy czasów emisji neutronów opóźnionych?
 - str. 8: „... danych doświadczalnych, takich jak Dickens et al.”

- str. 59: sformułowanie „Chociaż wychwyt neutronu jest możliwy, rzadko zdarza się to w pełni w kryształ centralnym” jest nieprecyzyjne. Do wychwytu zawsze dochodzi w jednym z kryształów, nie może zająć nie- „w pełni”. Jak rozumiem, chodzi albo o to, że poprzedzające wychwyt rozproszenia zachodzą w różnych kryształach, bo neutron przebywa względnie duże odległości pomiędzy rozproszeniami, albo że wtórne kwanty gamma są rejestrowane w różnych modułach.
 - str. 92: lepiej napisać „... odzwierciedlają strukturę jąder pochodnych w badanych rozpadach β ”.
14. rys. 4.1: brakuje legendy, nie widać dlaczego zsumowane funkcje miałyby dobrze odtwarzać widmo doświadczalne. Nie wiadomo, dlaczego porównanie do danych z publikacji *Rasco et al.* [6], a nie własnych wyników.
15. str. 48: 6 poziomów co 50 keV pokrywa zakres 250 keV. 6200 keV - 5850 keV = 350 keV. Tabela w dodatku wskazuje górną granicę zakresu na 6100 keV.

Podsumowując, rozprawa przedstawiona przez Pana mgr. Michała Stepaniuka jest oparta o dogłębnie wykonaną analizę o niebagatelnym znaczeniu naukowym oraz praktycznym i stanowi oryginalne rozwiązanie problemu naukowego. Cel rozprawy został jasno zdefiniowany i umotywowany, a opis badanego zagadnienia został podany w sposób przejrzysty i wyczerpujący, co ma również duże znaczenie dydaktyczne. Bardzo wartościowe są szczegółowe przykłady analizy koincydencyjnej 2D, wskazujące na możliwość identyfikacji przejść γ jak i rejestracji w pośredni sposób neutronów opóźnionych. Analiza obejmuje aż sześć izotopów, stanowiąc znaczny wkład do bardziej precyzyjnego opisu ciepła powyłączeniowego oraz opisu zjawiska anomalii antyneutrino reaktorowych. Co ciekawe, autor skupił się również na różnicach w sposobach deekscytacji poszczególnych izotopów, wskazując finalnie ich względny wpływ na ilościowy opis wspomnianych zjawisk. Wysoka jakość i szczegółowy opis przeprowadzonych prac poparte publikacjami i wystąpieniami konferencyjnymi w roli pierwszego autora świadczą, iż kandydat dysponuje odpowiednią wiedzą w dyscyplinie nauk fizycznych i może samodzielnie prowadzić badania naukowe.

Biorąc pod uwagę powyższe argumenty, moja ocena rozprawy doktorskiej Pana mgr. Michała Stepaniuka jest pozytywna. Rozprawa spełnia wymagania stawiane pracom doktorskim w ustawie, zatem wnioskuję o dopuszczenie autora do dalszych etapów postępowania ws. nadania stopnia doktora.

Michał Stepaniuk