

Prof. dr hab. inż. Grażyna Zakrzewska-Kořtuniewicz
Instytut Chemii i Techniki Jądrowej
ul. Dorodna 16, 03-195 Warszawa
tel. +48-22504 1214
e-mail: g.zakrzewska@ichtj.waw.pl

Recenzja

rozprawy doktorskiej mgr Patrycji Dyrzc

pt. „Radiological characterization of low- and intermediate level (LL/IL) radioactive waste”

przygotowanej do obrony w dyscyplinie naukowej: Nauki Fizyczne

w dziedzinie nauk: Nauki Ścisłe i Przyrodnicze

Informacje ogólne o pracy

Praca doktorska p.t. „Radiological characterization of low- and intermediate level (LL/IL) radioactive waste” została przygotowana do obrony w Narodowym Centrum Badań Jądrowych pod kierunkiem promotorów: dr hab. inż. Łukasza Świdzkiego z Narodowego Centrum Badań Jądrowych oraz dr Matteo Magistris z Europejskiej Organizacji Badań Jądrowych CERN, w której Doktorantka wykonywała swoje badania i obliczenia.

Praca doktorska napisana została w formie monografii w języku angielskim będącej podsumowaniem stażu naukowego mgr Patrycji Dyrzc w CERN.

Rozprawa zawierająca 175 stron została przedstawiona w formie 5 rozdziałów. Część merytoryczną poprzedzają streszczenia w językach angielskim i polskim, podziękowania, oraz listy: rysunków, tablic, użytych akronimów oraz symboli. Pracę uzupełnia załącznik (Appendix A) zawierający dodatkowe dane: wyniki obliczeń i przeprowadzonego modelowania. Na końcu rozprawy zamieszczona została Bibliografia licząca 123 pozycje, do większości których zamieszczono adresy internetowe, co znacznie ułatwia przesledzenie cytowanych publikacji.

We wstępie do rozprawy (Introduction) Doktorantka nakreśliła cel swojej pracy, którym było opracowanie nowej metody charakteryzowania odpadów promieniotwórczych pochodzących z eksploatacji oraz demontażu akceleratorów cząstek w Europejskiej Organizacji Badań Jądrowych CERN. Obiektem badań były szczególnie trudne do charakteryzacji i przetwarzania odpady

metaliczne. Na podstawie uzyskiwanej charakterystyki można dokonać klasyfikacji odpadów wytwarzanych i przechowywanych w magazynach CERN, tak, aby spełniały kryteria akceptacji ustalone dla finalnego składowiska odpadów promieniotwórczych, bądź kryteria opracowane dla procesu przetwarzania, jako sposobu przygotowania odpadów przed składowaniem. Wstęp do pracy doktorskiej zawiera również opis jej struktury w postaci zwięzłego przeglądu poszczególnych rozdziałów. Oprócz tego, każdy rozdział poprzedza krótkie wprowadzenie do jego tematyki, co porządkuje opis i informuje czytelnika o jego zawartości.

Oryginalność i aktualność przeprowadzonych prac

Powstawanie odpadów promieniotwórczych jest nieodłącznym elementem działania dużych urządzeń jądrowych, takich jak elektrownie jądrowe czy wysokoenergetyczne akceleratory cząstek. Właściwa kontrola parametrów fizycznych, chemicznych i radiochemicznych odpadów w całym cyklu ich życia, analiza procesów ich zagospodarowania oraz staranne badanie jakości gotowych form i opakowań odpadów kondycjonowanych, to podstawowe elementy każdej strategii postępowania z takimi materiałami. Bezpieczeństwo związane z tymczasowym przechowywaniem i ostatecznym składowaniem odpadów promieniotwórczych w dużej mierze zależy od dysponowania pełną charakterystyką i bieżącą kontrolą jakości form odpadów. Nieprzestrzeganie procedur kontrolnych na dowolnym etapie postępowania może spowodować poważne konsekwencje, powstawanie odpadów wtórnych, a także stwarzać zagrożenia dla otoczenia. Może również skutkować generowaniem opakowań odpadów niespełniających kryteriów akceptacji dla długoterminowego przechowywania lub składowania w składowiskach ostatecznych. Poważne problemy stwarzają duże opakowania starszych odpadów kondycjonowanych, tzw. odpady odziedziczone (legacy), często nieposiadające specyfikacji, a które z uwagi na coraz bardziej restrykcyjne przepisy i wymogi bezpieczeństwa powinny być przenoszone do bardziej pewnych przechowalników lub składowisk, po uprzednim scharakteryzowaniu.

Wiele trudności sprawiają odpady metaliczne, zwłaszcza te, skażone objętościowo poprzez aktywację nuklidów obecnych w elementach konstrukcji lub aparaturze pracującej przy/w reaktorach lub akceleratorach cząstek, najczęściej o nierównomiernie rozmieszczonych obszarach radioaktywności, stanowiących „gorące punkty”, uniemożliwiające prawidłowy pomiar spektrometryczny. Niemniej problemów stwarzają duże rozmiary i skomplikowana geometria odpadów metalicznych przeznaczonych do unieszkodliwienia. Niepewność pomiaru prowadzonego metodą spektrometrii promieniowania gamma ze względu na niepewności w składzie, gęstości i geometrii próbek, powodują niedokładności przy szacowaniu dawek. Wszystkie te cechy sprawiają, że odpady

metaliczne są w wielu krajach zaliczane do tzw. odpadów problematycznych, choć często ścieżki ich unieszkodliwiania są opracowane i stosowane. Znajomość charakterystyki odpadów metalicznych ważna jest nie tylko z powodu konieczności spełnienia kryteriów przyjęcia na składowiska, ale również w celu zgodności z kryteriami obowiązującymi dla wcześniejszych etapów przetwarzania, np. przez przetapianie. Wśród licznych problemów należy wspomnieć również typowe trudności napotymane w przypadku charakteryzacji wielu innych, nie tylko metalicznych odpadów, związane z pomiarem stężeń określonych radionuklidów, tzw. difficult to measure (DTM) i impossible to measure (ITM), niedających się oszacować za pomocą bezpośrednich pomiarów spektrometrii gamma/beta. Wymagają one żmudnych obliczeń współczynników skalowania z uprzednim zdefiniowaniem tzw. kluczowego radionuklidu, którego stężenie pozostaje w relacji z radionuklidem trudnym do zmierzenia, a następnie pośredniego oszacowania stężeń.

Tym wszystkim zagadnieniom poświęcona jest rozprawa doktorska p. mgr. Patrycji Dyrzc. Cel pracy doktorskiej został nakreślony w rozdziale wstępnym „Introduction”. Było nim, wg Doktorantki, opracowanie procesu charakteryzacji odpadów nisko i średnio aktywnych wytwarzanych w CERN, przeznaczonych do składowania w składowisku odpadów promieniotwórczych, zarządzanych przez Francuską Narodową Agencję Gospodarki Odpadami Promieniotwórczymi, ANDRA. Odpady metaliczne pochodzące z akceleratorów cząstek, przed oddaniem na składowisko są najczęściej przetapiane w celu redukcji objętości. O ile materiały przetopione są homogeniczne i nie sprawiają dużych trudności w charakteryzacji radiologicznej, to odpady przeznaczone do topienia, wymagające również scharakteryzowania w CERN nastroczają wielu problemów.

Oceniając ważkość podjętej w rozprawie tematyki dla gospodarki odpadami promieniotwórczymi, konieczność zapewnienia bezpieczeństwa instalacji towarzyszących energetyce jądrowej i jego znaczenia dla akceptacji społecznej składowisk odpadów promieniotwórczych, należy przyjąć, że jest to tematyka stale aktualna i rozwijająca się. Pełna i dokładna charakteryzacja odpadów promieniotwórczych na wszystkich etapach postępowania wymaga opracowania i badania nowych schematów i nowoczesnych metod, projektowania wyspecjalizowanego sprzętu pomiarowego oraz narzędzi obliczeniowych pozwalających szybko ocenić cechy tych odpadów i pochodzące od nich zagrożenia. Badania przeprowadzone przez mgr Patrycję Dyrzc wpisują się w bieżące tendencje nauki światowej, która obok celów technicznych stawia przed sobą wyzwania społeczne budowy zaufania do metod i sposobów postępowania z odpadami promieniotwórczymi. To zaufanie można osiągnąć poprzez posiadanie niezawodnych aparatów i narzędzi umożliwiających bezpieczne gospodarowanie substancjami promieniotwórczymi. Eksperymenty prowadzone w CERN są na najwyższym światowym poziomie. Zatem praca w zespole Europejskiej Organizacji Badań Jądrowych umożliwiła dostęp do

najnowszych metod pomiarowych i obliczeniowych pozwalających na rozwinięcie własnego warsztatu eksperymentalnego Doktorantki, z czego skorzystała przygotowując niniejszą pracę.

Wyniki i osiągnięcia

Dwa początkowe rozdziały rozprawy zarysowują obszar i tematykę badań. Pierwszy z nich zaznacza nas z organizacją i zadaniami CERN, jako instytucji europejskiej prowadzącej badania jądrowe w oparciu o bogaty aparat eksperymentalny składający się z kompleksu akceleratorów liniowych, synchrotronów protonów, wzmacniacza synchrotronu protonowego, aż po Wielki Zderzacz Hadronów (LHC). Całość instrumentarium uzupełniają urządzenia, takie jak: spowalniacz antyprotonów, urządzenie n-TOF oraz separator izotopów ISOLDE wytwarzający wiązki radioaktywnych jonów dla eksperymentów prowadzonych w CERN. W rozdziale tym Doktorantka wprowadziła pojęcia dynamiki wiązki i mechanizmów jej strat; wyjaśniła je na przykładzie typowych widm otrzymanych w akceleratorach CERN z użyciem specjalnych kodów obliczeniowych. Podaje i przedyskutowała również ogólną formułę aktywacji.

Rozdział drugi poświęcony jest zagadnieniu postępowania z odpadami promieniotwórczymi. Pani Patrycja Dyrz wskazała miejsca ich powstawania w laboratoriach CERN, obowiązującą tam klasyfikację, parametry decydujące o podejściu do charakteryzowania. Koncepcja postępowania z odpadami oparta jest na trójstronnym porozumieniu pomiędzy CERN, Francją i Szwajcarią, wg, którego ścieżkę postępowania wyznaczają przepisy kraju odbierającego odpady do finalnego składowania. Doktorantka zwróciła uwagę na problemy związane z odpadami dziedzicznymi, które wymagają specjalnego podejścia. Na tych odpadach, pochodzących z demontażu instalacji prowadzonym 10-30 lat temu, skupiła się w swojej pracy.

Aby dokonać radiologicznej charakteryzacji nisko i średnio aktywnych odpadów radioaktywnych (LILRW), przechowywanych w CERN, Doktorantka podjęła się trudnego zadania wstępnej oceny inwentarza radionuklidów prognozowanych do unieszkodliwienia. Prognozy dla odpadów stalowych stanowiących największą część starych odpadów przechowywanych w CERN przeprowadziła za pomocą analitycznego kodu obliczeniowego ActiWiz. Następnie walidowała zaproponowaną metodę i uzyskane wyniki obliczeń eksperymentalnie, prowadząc pomiary za pomocą spektrometrii gamma dla odpadów pochodzących z dwóch projektów realizowanych w CERN: SHERP i MAST. Eksperymenty potwierdziły dokładność wyników uzyskanych na drodze symulacji scenariuszy aktywacyjnych metodą analityczną. Ważnym elementem oceny inwentarza radionuklidów w odpadach było oznaczenie składu trzech grup radionuklidów: łatwych do pomiaru (ETM), trudnych (DTM) i niemożliwych do zmierzenia (ITM). Stężenia ETM szacowała na podstawie pomiarów

spektrometrycznych, podczas gdy nuklidy DTM i ITM wymagały zaangażowania techniki współczynników skalowania i wyboru kluczowego radionuklidu: w przypadku DTM opartej na eksperymentach, zaś dla ITM na zastosowaniu współczynników skalowania wyznaczonych analitycznie. Wyzwaniem dla pomiarów spektrometrycznych metalowych odpadów pochodzących z centrum akceleratorowego CERN były duże rozmiary stalowych bloków, często nietypowy kształt obiektów, oraz ich niehomogeniczność. Odpady te wymagały zwykle pomiarów wielokrotnych, w różnych pozycjach, a poziomy dawek kontaktowych (większe od 100 $\mu\text{S/h}$) powodowały ograniczenia ochrony radiologicznej. Aby prawidłowo przeprowadzić pomiary spektrometryczne Doktorantka musiała rozwiązać problemy związane z efektem wysokiej szybkości zliczeń i odpowiadającym jej czasem martwym. Wiązało się to ze znalezieniem optymalnej geometrii pomiaru, minimalizującej czas martwy.

Radionuklidy trudne do zmierzenia, DTM, których nie daje się oznaczyć za pomocą metod analizy nieniszczącej (NDA), były analizowane również za pomocą metod radiochemicznych (DA). Zastosowanie tych dwóch metod analizy pozwoliło na oszacowanie współczynników skalowania.

Nowym podejściem do trudności związanych z wyznaczeniem dawek od odpadów o niejednorodnym rozkładzie aktywności i uzyskaniem dokładnych pomiarów in-toto spektrometrii gamma, było zastosowanie nieniszczącej metody oznaczenia radioaktywności, NDA, wraz z oszacowaniem niepewności, których źródłem było m.in. założenie o jednorodnym rozkładzie aktywności w odpadach. Zaproponowana technika wykorzystywała opracowane w CERN narzędzie do redukcji niepewności geometrii (GURU) umożliwiające opis rzeczywistej geometrii odpadu poprzez wykorzystanie wyników pochodzących z pomiarów spektrometrii gamma i identyfikację optymalnego modelu geometrii.

Na podstawie oszacowanego inwentarza radionuklidów i odpowiednich współczynników skalowania, a także pomiarów spektrometrycznych stosowanych rutynowo w CERN, Doktorantka oszacowała aktywność właściwą odpadów LL/IL w pojemnikach przeznaczonych do przetopienia w ramach projektu MAST. Zastosowanie opracowanej metodologii zostało zademonstrowane na przykładzie 2,7m³ kontenera wypełnionego 18 pompami jonowymi stanowiącymi materiał aktywowany. Kontener został obmierzony za pomocą spektrometrii gamma z sześciu stron. Mgr Patrycja Dyrz zanalizowała przypadek dla równomiernego rozkładu aktywności, jak również zoptymalizowała model geometryczny i wyznaczyła niepewności zmierzonych aktywności. Zaproponowała również nową metodologię przewidywania całkowitej aktywności właściwej beta-gamma na podstawie średnich pomiarów mocy dawki od LL/IL z CERN, do celów przygotowania opakowań odpadów do dalszego unieszkodliwienia. Metoda została zwalidowana za pomocą pomiarów przy użyciu spektrometrii gamma i metodą optymalizacji modelu geometrii. Wg Doktorantki jej stosowanie może

być szersze i nie ograniczać się tylko do opakowań obecnie scharakteryzowanych; metodyka wymaga jednak jeszcze dodatkowych badań i obliczeń analitycznych. Ten przypadek, scharakteryzowania odpadów oryginalnych, przeznaczonych do unieszkodliwienia, można potraktować, jako wdrożenie opracowanej metody w obszarze charakteryzowania rzeczywistych odpadów, które może poprzedzać szersze jej stosowanie w codziennej praktyce CERN. Zwiastunem urzeczywistnienia takiego założenia, jest zatwierdzenie opracowanej metodologii do użytku przez Francuską Narodową Agencję Gospodarowania Odpadami Promieniotwórczymi, ANDRA.

Uwagi ogólne do pracy

W swojej pracy doktorskiej Mgr Patrycja Dyrz podjęła się trudnego zadania opracowania metodologii charakteryzowania odpadów metalicznych za pomocą spektrometrii gamma, metod analitycznych i symulacyjnych. Z uwagi na stosunkowo niewielką ilość wytwarzanych obecnie w Polsce odpadów promieniotwórczych i ograniczony inwentarz radionuklidów, jest to obszar stosunkowo słabo rozpoznany na podwórku krajowym, choć mamy odpady pochodzące z demontażu reaktora badawczego EWA, wśród których znajdują się aktywowane odpady metaliczne, czekające na wygaśnięcie i finalne unieszkodliwienie. Doktorantka doskonale wywiązała się z postawionego w pracy zadania, pokazała dużą znajomość stosowanych metod i wskazała na możliwość ich uzupełnienia, które będzie konieczne w przyszłości. Stąd brakuje mi w pracy odniesień do programów krajowych. Chciałabym, aby Mgr Patrycja Dyrz przedstawiła możliwości wykorzystania opracowanej metodologii na podwórku rodzimym, obecnie i w przyszłości, zakładając dostępność użytego w badaniach oprzyrządowania i narzędzi obliczeniowych również w Polsce. Istnienie klastra komputerowego w Narodowym Centrum Badań Jądrowych, a także doświadczenie zespołu Zakładu Fizyki Detektorów i Diagnostyki Plazmy w Świerku stwarza możliwości prowadzenia prac badawczych na wysokim poziomie w tej dziedzinie również w Polsce. Czy jesteśmy do tego gotowi, czy musimy doposażyć swoje laboratoria, aby wykorzystać je do badań, takich jak opisane w pracy doktorskiej?

W pracy doktorskiej można było również spodziewać się szerszego opisu postępowania z odpadami metalicznymi, innego niż składowanie w składowisku zarządzanym przez francuską agencję ANDRA. Wiadomo przecież, że pierwszym podejściem powinien być recykling metali w ramach przemysłu jądrowego, zwaśzcza, że materiał jest surowcem o wysokiej jakości. Czy takie praktyki są stosowane również w CERN?

Moje zastrzeżenie budzi także gramatyczna forma „my” używana w pracy. Zdaję sobie sprawę, że przeprowadzenie wielu eksperymentów w CERN wiązało się z zaangażowaniem dużego zespołu specjalistów. Jednak mój sprzeciw spowodowany jest nagminnym używaniem w pracy doktorskiej

liczby mnogiej przy opisie czynności: wykonaliśmy, obliczyliśmy, zmierzaliśmy, w ostateczności formy bezosobowej: wykonano, zrobiono, zmierzono. Nie znalazłam fragmentu pracy, w którym Doktorantka sformułowałaby swój opis mniej skromnie i wskazała również na swój osobisty udział.

Uwagi szczegółowe

- Rozprawa doktorska mgr Patrycji Dyrzcz została napisana poprawnym językiem, starannie i czytelnie pod względem edytorskim. Zamieszczone w niej tablice i rysunki dokładnie ilustrują tok myślenia Doktorantki i przebieg zaprogramowanych badań. Usterki redakcyjne, błędy językowe i literowe są nieliczne i łatwo można je poprawić przy ewentualnym przygotowaniu fragmentów pracy do publikacji, co z pewnością nastąpi.
- W Abstrakcie/Streszczeniu, a także w innych miejscach (np. str. 25) podano moc dawki od odpadów $100\mu\text{S/h}$ nie precyzując odległości.
- Lista symboli zawiera tylko 2 pozycje, choć w pracy jest ich wiele.
- Cytowana bibliografia występuje w rozprawie w dziwnym porządku, zaczyna się od pozycji [87]. Jest to osobliwe, zwłaszcza, że literatura nie podana została w porządku alfabetycznym.

Powyższe uwagi nie umniejszają jednak wartości pracy i nie wpływają na moją wysoką jej ocenę.

Posumowanie końcowe

Praca doktorska mgr Patrycji Dyrzcz prezentuje podejście pionierskie do charakteryzowania odpadów promieniotwórczych nie tylko do wykorzystania w CERN, ale przede wszystkim w Polsce planującej rozwijanie energetyki jądrowej i budowę składowiska przypowierzchniowego nisko i średnio aktywnych odpadów radioaktywnych, a w dalszej przyszłości składowiska głębokiego dla odpadów wysokoaktywnych. Myśląc o budowie energetyki jądrowej i rozwoju badań w dziedzinie atomistyki należy pomyśleć o czekającym w przyszłości Polskę demontażu urządzeń jądrowych, takich jak reaktor badawczy, czy przyszłe reaktory energetyczne. Likwidacja obiektów jądrowych, bieżąca konserwacja i naprawy, generują odpady metaliczne, które należy unieszkodliwić. Będą one musiały być szczegółowo scharakteryzowane i przygotowane do składowania, tak, aby spełniły kryteria akceptacji, które muszą być opracowane przed oddaniem nowego składowiska do eksploatacji.

Przygotowanie pracy doktorskiej wymagało od Doktorantki dobrej orientacji w potrzebach gospodarki odpadami promieniotwórczymi, zwłaszcza w powiązaniu z systemem i strategią postępowania w CERN. Pani Patrycja Dyrzcz wykazała dobrą znajomość programów obliczeniowych stosowanych w tym ośrodku badawczym, właściwie je wykorzystwała do modelowania procesów

aktywacji, przewidywania inwentarza radionuklidów, optymalizacji i działań symulacyjnych. Połączenie metod analitycznych i eksperymentalnych z obliczeniami komputerowymi i modelowaniem pozwoliło uzyskać wyniki obarczone mniejszą niepewnością oznaczeń niż metody stosowane pojedynczo.

Wiedza na temat odpadów promieniotwórczych i ich charakteryzowania będzie potrzebna przy realizacji przyszłych, ambitnych programów naukowo-badawczych, a doświadczenie zdobyte w wiodących ośrodkach zagranicą jest nie do przecenienia. Stąd moja wysoka ocena podjętej tematyki i badań przeprowadzonych w pracy doktorskiej przez Panią mgr Patrycję Dyrz. Wyniki przez nią zebrane mają duże znaczenie praktyczne.

Reasumując poszczególne punkty mojej recenzji, mogę ocenić, że wszystkie wymagania ustawowe, co do pracy doktorskiej zostały spełnione.

W konkluzji, stwierdzam, że przedstawiona do recenzji rozprawa doktorska pt. „Radiological characterization of low- and intermediate level (LL/IL) radioactive waste” spełnia wszystkie wymagania ustawowe (Ustawa Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce, test jednolity Dz. U. z 11 marca 2022 r., poz. 574). Wnoszę, zatem o przyjęcie pracy przez Radę Naukową NCBJ oraz o dopuszczenie do dalszych czynności przewodu doktorskiego Pani mgr Patrycji Dyrz w dyscyplinie Nauki Fizyczne, w Dziedzinie Nauk – Nauki Ścisłe i Przyrodnicze.

Grzegorz Delenda-Kotłowski

06.06.2022