

Dr hab. Jan Swakoń, prof. IFJ PAN
Instytut Fizyki Jądrowej PAN
Ul. Radzikowskiego 152
31-342 Kraków

Recenzja rozprawy doktorskiej mgr. Tobiasza Karola Zawistowskiego
pt. „Eksperymentalne stanowisko do produkcji ^{99}Mo wiązką elektronów z akceleratora liniowego”

Rozprawa doktorska Pana mgr. Tomasza Zawistowskiego pt. „Eksperymentalne stanowisko do produkcji ^{99}Mo wiązką elektronów z akceleratora liniowego” została wykonana w Narodowym Instytucie Badań Jądrowych w Zakładzie Fizyki i Techniki Akceleracji Cząstek pod kierunkiem prof. dra hab. Sławomira Wronki, promotorem pomocniczym była Pani dr Izabela Cieszykowska z Ośrodka Radioizotopów POLATOM, NCBJ.

Ocena istotności tematyki rozprawy doktorskiej

Praca dotyczy ważnego zagadnienia produkcji molibdenu ^{99}Tc stanowiącego prekursor izotopu technetu $^{99\text{m}}\text{Tc}$, który jest powszechnie stosowany w diagnostyce medycznej, a zapotrzebowanie na niego ciągle wzrasta. Obecnie ^{99}Mo na skalę przemysłową jest produkowany głównie w reaktorach jądrowych metodą rozszczepieniową z izotopu ^{235}U . Metoda reaktorowa wymaga złożonych procedur wydzielania molibdenu spośród innych produktów rozszczepienia.

Historia pokazuje, że w ciągu ostatnich trzydziestu lat pojawiały się liczne problemy z produkcją molibdenu metodą reaktorową, związane np. z przerwami w pracy reaktorów produkujących ten izotop, awariami lub ograniczeniami związanymi z sytuacją geopolityczną. Należy pamiętać, że jednym z największych światowych producentów molibdenu tą metodą jest NCBJ dostarczając około 10% światowej produkcji tego izotopu, a w okresach niedoboru tego izotopu produkcja w NCBJ stanowiła aż 20% światowej produkcji ^{99}Mo .

Ze względu na możliwość ponownego wystąpienia niedoboru ^{99}Mo w skali światowej, poszukiwane są inne metody produkcji tego izotopu dla potrzeb medycyny.

Poza metodą reaktorową, znane są również inne metody produkcji izotopu. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ można produkować bezpośrednio, poprzez napromienianie tarcz wykonanych z izotopu ^{100}Mo wiązkami wysokoenergetycznych protonów lub deuterionów przyspieszanych w cyklotronach. Metody te pozwalają na produkcję znacznie czystszej izotopu, gdyż napromieniane tarcze nie zawierają lub zawierają znacznie mniejszą ilość innych izotopów promieniotwórczych powstających w wyniku napromieniania takimi wiązkami. Ze względu na to, że czas połowicznego rozpadu izotopu $^{99\text{m}}\text{Tc}$ wynosi około 6h, metoda taka wydaje się być uzasadniona jedynie przy produkcji technetu na potrzeby lokalne.

Poszukiwane są inne, prostsze i tańsze metody produkcji ^{99}Mo , które mogłyby uzupełnić niedobory tego izotopu w przypadku wystąpienia problemów z produkcją metodą reaktorową.

Jedną z obiecujących metod produkcji ^{99}Mo jest napromienianie wysokoenergetycznym promieniowaniem gamma generowanym na tarczach konwersji, przez wiązki elektronowe

o bardzo wysokiej intensywności, tarcz z molibdenu naturalnego, zawierających ^{100}Mo lub tarcz wzbogaconych w ten izotop. Wiązki elektronów potrzebne do produkcji tą metodą wytwarzane są w akceleratorach kołowych lub liniowych. Dostępne są już pierwsze komercyjnie dostępne instalacje tego typu, ale w dalszym ciągu poszukuje się nowych rozwiązań technicznych.

W zagadnienie to wpisuje się tematyka pracy doktorskiej Pana mgr. Tobiasza Zawistowskiego, której autor postanowił zbadać możliwości produkcji ^{99}Mo w reakcji gamma - neutron, przy pomocy wiązek promieniowania gamma produkowanych na tarczy konwersji. Promieniowanie gamma generowane jest przy pomocy wiązki elektronowej produkowanej przez akcelerator liniowy na tarczy konwersji wykonanej z takich materiałów jak wolfram lub tantal. Izotop ^{99}Mo produkowany jest tu w reakcji gamma neutron z izotopu ^{100}Mo . Badania te mają znaczenie w kontekście opracowania metody produkcji ^{99}Mo , która pozwoliłaby na uzupełnienie produkcji ^{99}Mo i pozwoliła na rozproszenie produkcji tego izotopu, zwiększając tym samym bezpieczeństwo w zakresie dostępności ^{99}Mo , a w efekcie dostępność $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Cel rozprawy doktorskiej

Celem pracy doktorskiej było zweryfikowanie możliwości produkcji izotopu molibdenu ^{99}Mo wiązką elektronów z akceleratora liniowego, a także test eksperymentalnego stanowiska, które w przyszłości mogłoby zostać wykorzystane do produkcji ^{99}Mo do zastosowań medycznych. Przedmiotem badań było pokazanie możliwości wytworzenia ^{99}Mo z tarczy zawierającej molibden naturalny, w którym zawartość izotopu ^{100}Mo wynosi około 9,7%, przy pomocy wiązki elektronów, a właściwie wiązki promieniowania gamma produkowanej przez wiązkę elektronów na tarczy konwersji.

W pracy przebadano również możliwość produkcji izotopu ^{99}Mo poprzez napromienienie tarczy z molibdenu naturalnego, bezpośrednio wiązką elektronów. W eksperymencie tym tarcza molibdenowa służyłaby do produkcji ^{99}Mo w reakcji $^{100}\text{Mo}(e^-, e'^-n)^{99}\text{Mo}$ i choć jest to ciekawe zagadnienie fizyczne, przebadanie eksperymentalnie przez autora produkcji ^{99}Mo po raz pierwszy na świecie, to ze względu na niskie przekroje czynne takich reakcji nie będzie mogło ono mieć praktycznego znaczenia dla produkcji ^{99}Mo .

Zaproponowana w pracy metoda produkcji ^{99}Mo przy pomocy akceleratorów liniowych mogłaby stanowić w przyszłości uzupełnienie dla obecnie stosowanych metod produkcji molibdenu lub do pewnego stopnia je zastąpić. Wymagałoby to jednak dostępności do akceleratorów o większych energiach, produkujących wiązkę elektronową o znacznie wyższych prądach niż te, które były dostępne.

Omówienie treści rozprawy doktorskiej

Treść rozprawy została zawarta na 90 stronach w 7 rozdziałach. Praca zawiera również bibliografię, w której znajduje się 127 pozycji, spis rysunków oraz spis zamieszczonych w pracy tabel. Ponadto praca zawiera dwa załączniki. W pracy zamieszczono 75 rysunków oraz 14 tabel.

Niestandardowym rozwiązaniem, które zastosował autor, jest umieszczenie celu pracy na osobnej stronie poprzedzającej spis treści. Moim zdaniem, takie rozwiązanie jest

dopuszczalne, ale nie powinien to być opis zawartości pracy, a ewentualne poszerzone sformułowanie celów pracy.

W rozdziale pierwszym autor zamieszcza krótki wstęp do pracy, a raczej wprowadzenie dotyczące wymagań dla izotopów stosowanych w diagnostyce obrazowej.

Rozdziały 2, 3 i 4 stanowią część teoretyczną pracy, powstałą w wyniku prac autora nad dostępną literaturą.

W rozdziale drugim zatytułowanym „Akceleratory – opis wybranych typów urządzeń” autor w bardzo skrótowy sposób opisuje zasadę działania cyklotronu oraz nieco szerzej zasadę działania akceleratorów liniowych, opisując zasadę działania akceleratorów liniowych z falą stojącą oraz z falą bieżącą. Wymienia także podstawowe zastosowania akceleratorów liniowych.

Rozdział trzeci zawiera informacje dotyczące sposobów „pozyskiwania” ^{99m}Tc , a raczej produkcji izotopu ^{99m}Tc technikami reaktorowymi oraz akceleratorowymi. W rozdziale tym autor opisuje metodę produkcji ^{99}Mo w reaktorze MARIA oraz wymienia problemy związane z ograniczeniami produkcji ^{99m}Tc jakie występowały w ciągu ostatnich 30 lat przy produkcji tego izotopu metodą reaktorową. Autor omawia krótko metody produkcji ^{99m}Tc przy pomocy wiązki prędkich protonów oraz deuteronów z wykorzystaniem tarczy opartej o ^{100}Mo oraz o metodę rozszczepieniową, w której napromienia się wiązką protonów tarczą z ^{238}U . Podane są też ścieżki reakcji prowadzące do produkcji ^{99m}Tc poprzez napromienianie tarcz zawierających różne izotopy rutenu wiązką prędkich neutronów.

W rozdziale tym najszerzej opisano metodę produkcji molibdenu ^{99}Mo w wyniku reakcji fotojądrowych na jądрах ^{100}Mo z wykorzystaniem akceleratora linowego produkującego wiązkę wysokoenergetycznych fotonów. Autor podaje i opisuje przykłady eksperymentów, w których wykorzystano tego typu metodę do produkcji ^{99}Mo i stwierdza, że metoda ta jest jedną z najbardziej obiecujących metod produkcji ^{99}Mo , mogących być źródłem tego izotopu w przypadku występowania problemów z produkcją metodą reaktorową. Szersze opisanie tej metody ma związek z tematyką pracy i jest związane z opisywanymi w pracy eksperymentami z wykorzystaniem elektronowego akceleratora liniowego.

Rozdział 4 pracy poświęcony został zastosowaniom ^{99m}Tc w medycynie. Autor pokrótce wyjaśnia zalety stosowania technetu w diagnostyce medycznej. W rozdziale szczegółowo omówiona jest budowa i działanie generatora molibdenowo technetowego. Opisuje metodę pozyskiwania technetu z generatora oraz podaje uproszczony schemat elucji nadtechnecjanu sodu z generatora $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$. W dalszej części rozdziału autor opisuje metodę pozyskiwania ^{99m}Tc z ^{99}Mo o niskiej aktywności właściwej. Jest to metoda, która znajduje zastosowanie w przypadku produkcji ^{99}Mo metodą fotojądrową z wykorzystaniem akceleratora liniowego. W ostatnim podrozdziale rozdziału czwartego autor pokrótce omawia wybrane kompleksy technetu.

Rozdział 5 zatytułowany „Metodyka pracy” zawiera dwa podrozdziały, z których pierwszy dotyczy symulacji *Monte Carlo* (MC) i zawiera informacje jakie programy zostały wykorzystane w obliczeniach wykonanych w ramach realizowanych prac. Drugi podrozdział dotyczy detektorów germanowych.

Rozdział 6 pracy autor zatytułował „Część eksperymentalna – pomiary”. W rozdziale autor przedstawia informacje o części eksperymentalnej pracy, opisuje aparaturę, projekt uchwytu na tarczę molibdenową, który zaproponował. W rozdziale znajdują się zarówno wyniki pomiarów jak i wyniki symulacji wykonanych na potrzeby pracy. W tej części pracy autor przedstawia informacje dotyczące napromieniowań wykonanych fotonami generowanymi na tarczach konwersji oraz napromieniowań wykonanych bezpośrednio wiązką elektronów. W rozdziale umieszczona została również analiza uzyskanych wyników i porównanie aktywności ^{99}Mo uzyskanych zastosowanymi metodami z aktywnościami uzyskiwanymi w reaktorze MARIA.

Ostatni, siódmy rozdział pracy „Dyskusja i wnioski końcowe” stanowi podsumowanie prac wykonanych przez autora oraz przedstawia zagadnienie omawiane w rozprawie.

Pracę uzupełniają dwa załączniki. W pierwszym załączniku zawarte są informacje o podstawowych własnościach molibdenu i technetu. Drugi załącznik dotyczy eksperymentu przeprowadzonego w Saskatoon, w którym autor pracy uczestniczył.

Uwagi o charakterze krytycznym i polemicznym.

Czytając pracę, nie można odmówić autorowi dużego wkładu pracy, którą włożył w rozwiązanie postawionego problemu, jednak przedstawiona rozprawa pozostawia wiele do życzenia.

Streszczenie pracy w niestandardowy sposób zostało uzupełnione o listę publikacji autora, informację o uczestnictwie w konferencjach oraz o zgłoszeniu patentowym, a także o informację o odbytym stażu. Taka forma jest bardziej odpowiednia dla autoreferatu, który nie jest przewidywany jako część rozprawy doktorskiej i nie ma powodu, aby umieszczać takie informacje w streszczeniu pracy.

Według mnie, tytuł pierwszego rozdziału: „Wstęp pracy” powinien brzmieć „Wstęp”.

W rozdziale drugim autor umieścił trzy rysunki (Rys. 1, Rys. 2, Rys. 3) przedstawiające odpowiednio schematy cyklotronu oraz struktur przyspieszających w akceleratorach liniowych. We wszystkich przypadkach rysunki zostały skopiowane z cytowanej literatury. Szkoda, że autor nie włożył nieco pracy i nie wprowadził na rysunkach polskiego nazewnictwa. Ponadto podpisy do zamieszczonych rysunków są bardzo skąpe, powinny one zawierać przynajmniej uproszczony opis rysunku.

Powyższa uwaga dotycząca rysunków oraz ich opisów jest bardziej generalna. Znacząca część zamieszczonych w pracy rysunków stanowi kopie rysunków z innych prac. Zostały one „wklejone” do pracy bez modyfikacji, opatrzone jedynie odnośnikiem do źródła pochodzenia, a ich opisy w tekście i w podpisach rysunków są skąpe. Pomimo, że praca została napisana w języku polskim, napisy na rysunkach autor pozostawia w języku angielskim. Dla odmiany, w przypadku wykresów, których opisy autor przedstawił w języku angielskim, stosuje przecinek, czyli polski separator pozycji dziesiętnych.

W rozdziale 3 dotyczącym pozyskiwania ^{99m}Tc autor omawia wybrane metody produkcji tego izotopu. Na rysunku 4 przedstawia wybrane „potencjalne ścieżki/metody” wytwarzania izotopów ^{99}Mo i ^{99m}Tc , a w dalszej części ogranicza się do kilku wybranych ścieżek, tych zapewniających najwyższe wydajności produkcji, ale nie komentuje pozostałych ścieżek produkcji izotopu, co warto byłoby zrobić.

Najistotniejszą z punktu widzenia pracy częścią rozdziału 3 jest podrozdział 3.3 pt. „Zastosowanie akceleratora liniowego – fotojądrowa metoda produkcji ^{99}Mo ”. Autor przedstawia informacje o wybranych eksperymentach wykorzystujących metodę fotojądrową do produkcji molibdenu zbierając w jednym miejscu wiele informacji. Niestety styl pisania pracy przez autora, w którym nie używa lub niewłaściwie używa podziału na akapity powoduje, że tekst ten trudno się czyta. Umykają też czasem autorowi informacje, które są istotne w trakcie oceny wydajności produkcji molibdenu w niektórych omawianych eksperymentach. Np. brakuje podania czasu napromieniania przy danych z eksperymentu opisanego w pracy [35] na stronie 23.

Na stronie 23 autor pisze: „Ze względu na skład tarczy $^{\text{nat}}\text{Mo}$ (patrz Tabela 1), oprócz pożądanego izotopu mogą powstawać też inne izotopy”. Tekst sugeruje, że w Tabeli 1 autor wymienia izotopy wchodzące w skład molibdenu naturalnego. W tabeli znajdują się jednak również izotopy, które są pochodzenia syntetycznego.

Rozdział 5 byłby ważnym rozdziałem pracy, gdyby zawierał informacje o metodyce wykonanej pracy. W podrozdziale 5.1 dotyczącym symulacji MC autor wymienia kody MC, których używał. Co prawda autor pisze, że „interesującymi aspektami były symulacje zasadniczych procesów fizycznych, w szczególności związane z promieniowaniem hamowania, reakcjami fotojądrowymi oraz elektrodysintegracją”, ale skoro jest to rozdział dotyczący metodyki należałoby tą część opisu rozwinąć.

Na stronie 33 autor podaje linki do strony fluka.org oraz strony GANT4 w CERN, niestety, na koniec podrozdziału umieszcza rysunek 16, który jest obrazem strony www.fluka.org. Rysunek ten jest kompletnie nieczytelny i nie wnosi żadnych informacji, niepotrzebnie zajmując miejsce.

W podrozdziale 5.2 autor zamieszcza podstawowe informacje o detektorach germanowych. Zamieszcza zaczerpnięty z książki G. Knolla [75] rysunek 17 przedstawiający detektor germanowy zamontowany na dewarze, podpisując rysunek „Przykładowa konfiguracja detektora HPGe w orientacji poziomej”, co niewiele wnosi do wiedzy o metodyce pracy. W podrozdziale tym autor zamieszcza dwa wykresy przedstawiające przykładowe wydajności energetycznej detektora. Na rysunku 18 zamieszcza wykres wydajności energetycznej detektora HPGe. W pracy [76] nie ma takiego rysunku. Być może autor zmienił nieco rysunek, ale wtedy należy napisać, że rysunek został wykonany na podstawie pracy [76]. Podsumowując podrozdział nie zawiera żadnych informacji dotyczących metodyki pracy, nie zawiera nawet pełnego odniesienia do aparatury wykorzystywanej w pracy.

W rozdziale 5 powinny się moim zdaniem znaleźć informacje dotyczące przygotowania stanowiska, a także informacje związane z preparatyką tarcz (np. opisujące metodę przygotowania tarcz czy metodykę ich rozpuszczania).

Rozdział 6 pracy zatytułowany jest „Część eksperymentalna – pomiary”. Niestety, zawartość rozdziału nie pokrywa się z tytułem.

W części 6.1 rozdziału autor pisze, że: „Przy zbieraniu wyników pomiarów autor pracy używał wielokanałowego analizatora o nazwie Tukan8k [78]” i cytuje stronę www, która zawiera informacje o urządzeniu. Nie wiem jaki cel miało zamieszczenie rysunku (Rys. 20) zawierającego „zrzut ekranu” tej strony. Zamiast rysunku warto byłoby podać parametry wielokanałowego analizatora Tukan8k. Warto byłoby podać, jak wyglądały pełne konfiguracje

użytych w pracy spektrometrów promieniowania gamma. W tym miejscu pracy znajdują się jedynie odwołania do podrozdziałów 6.4 i 6.5 gdzie wymienione są pozostałe elementy toru spektrometrycznego.

Następnie autor przechodzi do opisu kalibracji energetycznej i wydajnościowej użytych w pracy spektrometrów promieniowania gamma. Kalibracje te zostały wykonane przy pomocy oprogramowania analizatora Tukan8k, bazując na 5 liniach energetycznych wybranych z następujących źródeł kalibracyjnych: ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{137}Cs , ^{152}Eu . Dla pełnego obrazu należałoby również podać wykorzystane linie energetyczne promieniowania gamma. Być może takie informacje częściowo znajdują się na rysunku 21. Niestety rysunek ten jest nieczytelny. Ponadto podpis mówi, że jest to „Zrzut ekranu programu Tukan8k Analizer wraz z przykładową kalibracją”, czyli nie tą, która została wykonana w ramach pracy.

Na Rys. 22 autor przedstawia kalibrację wydajności detektora, a raczej spektrometru. Rysunek opatrzony jest podpisem: „Wydajność w danej geometrii dla jednego z detektorów używanego w trakcie pomiarów”. Niestety brak jest informacji o który konkretnie detektor i układ pomiarowy chodzi oraz jak wyglądała geometria pomiarowa. Na wykresie zamieszczono prostą regresji dopasowaną do punktów pomiarowych, brakuje jednak informacji o jakości dopasowania, np. w postaci podania wartości R^2 .

Na str. 38, Rys. 23 w tekście opisany jest jako „...przykład źródła manganu ^{54}Mn ”, podczas gdy na rysunku znajduje się pojemnik na źródło. Rysunek podpisany jest :” Rys. 23 - Pojemnik na źródło kalibracyjne ^{54}Mn .

Na rysunku 24 zamieszczonym na str. 39, który przedstawia widmo tła promieniowania gamma zmierzone w laboratorium pomiarowym, jedyną opisaną na rysunku osią, jest oś energii.

W podrozdziale 6.2 autor opisuje materiały tarczowe, które zostały użyte w prowadzonych przez autora eksperymentach, a następnie przechodzi do rozdziału 6.3, który dotyczy symulacji w programie FLUKA.

Nie mogę zgodzić się z tym, że podrozdział 6.3 jest częścią eksperymentalną pracy. Powinien on stanowić osobny rozdział pracy, który poprzedza część eksperymentalną. W takim rozdziale należałoby omówić nie tylko symulacje wykonane przy pomocy programu FLUKA, ale i przy pomocy GEANT4.

Układ podrozdziału 6.3 pozostawia wiele do życzenia. Widoczny jest brak konsekwencji w opisie obliczeń. Założenia i konfiguracje obliczeń przeplatają się z wynikami obliczeń.

Na początku podrozdziału 6.3 autor pisze, że obliczenia wykonał dla 30 MeV wiązki elektronów. Nie podaje jednak informacji o geometrii (być może konfiguracja geometrii symulacji przedstawiona została w dalszej części tj. na Rys. 27, ale jest to mój domysł, a nie informacja zawarta w pracy) oraz o źródle promieniowania.

Na Rys. 25 autor przedstawia widma energetyczne fotonów konwersji wyliczone dla wybranych grubości tarcz wolframowych. Na zamieszczonym na rysunku wykresie, podobnie jak na większości rysunków w pracy, opisy osi autor przedstawił w języku angielskim. A wartości liczbowe na osi odciętych w konwencji polskiej. Wątpliwości wzbudzają też przyjęte opisy osi i skala. Skala na osi X jest podana w GeV. Jest to domyślna jednostka

stosowana w programie FLUKA, nie odpowiada jednak zakresom energii, w których porusza się autor. W prezentacji wyników energię należało przedstawić w MeV.

Nie jest jasny opis osi Y - „Photons per primary electron/cm³” na Rys. 25, w szczególności normalizacja do cm³. Ponadto, wątpliwości wzbudza przebiegu wyliczonego widma energetycznego fotonów generowanego na tarczy wolframowej o grubości 1 mm, którego przebieg jest inny niż dla widm otrzymanych dla innych grubości tarczy.

Na Rys. 27 zatytułowanym „Proponowany układ tarczy konwersji i molibdenowej realizowany w symulacji” autor przedstawia konfigurację „wykorzystaną na potrzeby przeprowadzenia symulacji w programie FLUKA”. Jest to „zrzut ekranu” z programu Flair przedstawiający jedynie geometrię, w której wykonywano symulacje. Jakość rysunku nie pozwala na odczytanie szczegółów. Ponieważ obliczenia są istotnym elementem pracy, należało zamieścić możliwie pełne informacje o konfiguracji prowadzonych symulacji.

W dalszej części podrozdziału 6.3 autor przedstawia wyliczenia aktywności ⁹⁹Mo produkowanych przy pomocy wiązek o różnej energii przeliczone na czas napromieniania próbki. Skąd w tabelach 2 i 3 pojawiają się wyniki dla energii w zakresie do 45 MeV skoro autor używał w obliczeniach wiązki elektronowej o energii 30 MeV? Widoczna jest tu pewna niespójność. Nie jest jasne, czy obliczenia były prowadzone dla wiązki o energii do 45 MeV, czy też wystąpił jakiś błąd w konfiguracji i zamiast energii została z programu FLUKA wyliczona jakaś inna wielkość o wymiarze energii?

Kolejne wyniki przedstawiają wyliczone na podstawie wyników z symulacji programem FLUKA, przeliczone z uwzględnieniem prądu wiązki z akceleratora rozkłady depozycji ciepła na sekundę w napromienianej tarczy molibdenowej. W części odnoszącej się do wyliczenia deponowanej w tarczy energii cieplnej nie ma pełnej informacji o konfiguracji obliczeń, np. brak jest informacji o energii elektronów. Pojawia się za to informacja o rozmyciu przestrzennym wiązki, której nie podano dla wcześniejszych symulacji.

Wyliczone rozkłady przestrzenne depozycji energii w tarczy molibdenowej zamieszczono na rysunkach 29 i 30. Skale barwne przedstawiające rozkłady depozycji energii mają inne zakresy, co znacznie utrudnia analizę tych wyników. Podpisy pod rysunkami 29 i 30 są najprawdopodobniej zamienione miejscami.

W podrozdziale 6.4 autor przedstawia informacje dotyczące przygotowania uchwytu tarczy molibdenowej. Na rysunkach zamieszcza wizualizację projektu uchwytu, zdjęcia wykonanego uchwytu oraz rysunek przedstawiający schemat uchwytu z zaznaczeniem poszczególnych elementów. Brak jest jednak ważnych informacji jak wymiary uchwytu.

Jednym z wyników prac nad przygotowaniem uchwytu jest zamieszczona na Rys. 32 symulacja dystrybucji ciepła uchwytu tarczy molibdenowej. Autor nie podaje informacji na podstawie jakich symulacji został stworzony zamieszczony na rysunku rozkład temperatur. Rysunek przedstawia rozkład temperatur, jak rozumiem w stanie równowagowym, a nie rozkład dystrybucji ciepła. Na rysunku nie podano wymiarów geometrycznych uchwytu. Położenia tarczy molibdenowej można się oczywiście domyślić, ale taka informacja powinna znajdować się wprost na rysunku.

Kolejny podrozdział pracy dotyczy napromieniania spiekanej tarczy z molibdenu naturalnego o średnicy 2 cm i grubości ok. 1,13 mm. Ponieważ docelowy akcelerator o energii

wiązki 30 MeV nie był dostępny, napromieniania wykonane zostały na stanowisku wyposażonym w akcelerator o energii 13 MeV. W tej części opisu autor zamieszcza zdjęcie układu do napromieniania (Rys. 35) oraz dwa zdjęcia stanowiska z napromienianą tarczą (Rys. 36 i 38). Niestety na zdjęciach nie zaznaczono poszczególnych istotnych elementów układu akceleratora i próbki. Równie pobieżnie opisany jest użyty w pomiarach spektrometr promieniowania gamma. Autor co prawda wymienia poszczególne elementy toru spektrometrycznego, zapomina jednak o analizatorze wielokanałowym Tukan8k. Rys. 39, będący ilustracją do „stanowiska pomiaru napromienionych tarcz” pozbawiony jest opisów, które elementy spektrometru widoczne są na rysunku, przez co niewiele wnosi do pracy.

Przedstawiając wyniki aktywności napromienionych tarcz, autor podaje jedynie wyniki końcowe, pomijając całą procedurę analizy. Otrzymane wyniki porównuje z wynikami symulacji zamieszczonymi w podrozdziale 6.2. Nie jest jednak jasno napisane, o które symulacje chodzi.

Aktywność wyprodukowanego w ten sposób ^{99}Mo autor porównuje z aktywnością otrzymaną metodą reaktorową. Różnice w ilości wyprodukowanego izotopu sięgają rzędów wielkości. Autor wyjaśnia przyczynę różnic i proponuje warunki napromieniania dla akceleratora elektronowego, które byłyby bardziej optymalne do produkcji ^{99}Mo . Analizowane dane są podawane dla różnych wielkości i mas próbek, różnych energii i prądów wiązek elektronowych oraz różnych czasów napromieniania wiązkami elektronowymi i napromieniania w reaktorze. W tego typu analizie wyniki powinny zostać odpowiednio przeliczone na łatwo porównywalne wielkości i umieszczone np. w odpowiedniej tabeli lub tabelach.

W podrozdziale 6.6 autor opisuje zaplecze techniczne stanowiska. W ramach tego „zaplecza” autor wymienia licznik FH-40G firmy Thermo Scientific i zamieszcza ściągnięte ze strony producenta zdjęcie miernika, co uważam za spore nieporozumienie. Mam nadzieję, że nie było to jedyne urządzenie kontrolujące poziom promieniowania przy pracy z materiałem promieniotwórczym.

W dalszej części podrozdziału 6.6 autor powraca do opisu akceleratora, a raczej do opisu nie wymienionych wcześniej elementów oprzyrządowania samego układu akceleracji. Zamieszcza przykładowy schemat akceleratora wraz z osprzętem (Rys. 41). W tym miejscu powinien znaleźć się nie przykładowy schemat akceleratora, ale schemat akceleratora użytego w napromienianiach, szczególnie, że autor następnie wymienia elementy użyte do przygotowania stanowiska napromieniania. Na kolejnych rysunkach 42, 43, 44 i 45 autor zamieścił zdjęcia wybranego osprzętu akceleratora nazywając je kluczowymi. Niestety i w przypadku tych rysunków nie zaznaczono, gdzie znajdują się elementy wymienione w podpisach rysunków.

Podrozdział 6.6, w części dotyczącej opisu akceleratora, powinien według mnie stanowić część opisu stanowiska napromieniania, wraz z innymi fragmentami opisu tego stanowiska umieszczonymi w innych częściach pracy. Informacje takie powinny się znaleźć w rozdziale poprzedzającym rozdział prezentujący wyniki pomiarów.

Kolejny podrozdział 6.7 dotyczy napromieniania tarcz molibdenowych bezpośrednio wiązką elektronów, bez tarczy konwersji. Właściwie tarczę konwersji stanowi tu

napromieniania próbka molibdenowa. Autor wykonał napromieniania tarcz dla dwóch precyzyjnie dobranych energii wiązki elektronowej.

Czytając tą część pracy nasuwa się pytanie, czy w tych napromienieniach został użyty ten sam akcelerator, który był wykorzystany w napromienieniach z użyciem tarczy konwersji. Nie jest to jasno określone, a niektóre informacje, np. brak wbudowanej na stałe tarczy konwersji oraz wymienione elementy składowe wskazują, że było to inne urządzenie. Taka informacja powinna być jasno podana.

Informacje dotyczące optymalizacji parametrów pracy akceleratora ilustrowane są trzema rysunkami. Na Rys. 46 autor przedstawia zdjęcie stanowiska do pomiaru energii wiązki elektronowej. Opis spektrometru magnetycznego sprowadza się do jednego zdania w tekście pracy, a sam rysunek (zdjęcie spektrometru) opatrzone jest jedynie podpisem. Przydałby się szerszy opis układu, a na rysunku powinny się znaleźć podpisy do widocznych elementów.

Te same zarzuty dotyczą informacji o zasilaczach służących do cewek ogniskujących. Na Rys. 47 zamieszczone zostało zdjęcie sterowni i umieszczone w niej zasilacze do cewek ogniskujących. Nie podano, czy cewki te są widoczne na rysunku 46. Nie podano typu i parametrów użytych zasilaczy. Nie wymieniono ani nie opisano pozostałej aparatury widocznej na zdjęciu.

W tekście pracy (na str. 54), autor wymienia parametry akceleratora, które były zmieniane przy doborze energii akceleratora. Służył do tego opracowany w TJ1 NCBJ program do sterowania akceleratorem. Nie bardzo widzę sens zamieszczania kolejnego zdjęcia (Rys. 48), zawierającego obraz ekranu programu, tym razem sterującego akceleratorem, zwłaszcza, że jakość zdjęcia jest zbyt słaba, aby można było odczytać zawartość ekranu.

Autor pisze, że informacją zbieraną w spektrometrze „... był prąd w zależności od energii”. Nie znalazłem w pracy przedstawienia takiej zależności. Za to w Tabeli 4 zamieszczone zostało zestawienie kluczowych parametrów akceleratora, czyli jak autor napisał w podpisie do Tabeli 4 : „Możliwe konfiguracje napięcia na klistronie wraz z napięciem na siatce i prądem z działa elektronowego”. Autor powinien wyjaśnić jakie znaczenie mają te parametry w działaniu akceleratora i na co mają wpływ (np. prąd wiązki, energia przyspieszanych elektronów, itp.).

Wyjaśnienia w tekście lub w podpisie tabeli wymagają dwa wiersze zaznaczone w Tabeli 4. kolorem zielonym. Nie znalazłem w pracy wyjaśnienia, dlaczego wiersze zostały wyróżnione. Można jedynie przypuszczać, że są to parametry pracy akceleratora zoptymalizowane dla energii wybranych do przeprowadzenia eksperymentu. Podkreślam, można jedynie tak przypuszczać.

Na rysunku 49 autor przedstawia pomiarowe widma energii wiązek elektronów. I w tym przypadku opisy osi są w języku angielskim. Na rysunku brak jest legendy.

W dalszej części autor opisuje warunki przeprowadzania eksperymentu produkcji ^{99}Mo bezpośrednio wiązką elektronową. Autor zdaje sobie sprawę z tego, że nie będzie to miało żadnego praktycznego zastosowania, przekroje czynne na tego typu reakcje są ponad trzy rzędy wielkości niższe nawet od przekrojów czynnych na produkcję tego izotopu wiązką promieniowania gamma produkowanego na tarczy konwersji. Uzasadnieniem eksperymentu jest pierwsza próba produkcji ^{99}Mo bezpośrednio wiązką elektronów.

W ramach pracy autor wykonał symulacje produkcji ^{99}Mo przy pomocy programu GEANT4. W pracy nie zamieszczono żadnych bliższych informacji o przeprowadzonych symulacjach, takich jak informacje o wiązce, tarczach, geometrii napromieniania, czy stosowanych metodach zliczania. Zamieszczone są jedynie końcowe wyniki obliczeń. Pojawia się konkluzja, że wyniki symulacji są zgodne z wynikami przedstawionymi w publikacji [86]. Należałoby takie podać wprost. Szerzej opisane symulacje wykonane w programie GEANT4 mogłyby być interesującą częścią rozdziału grupującego wszystkie wykonane symulacje.

W pracy pojawia się opis eksperymentu, w którym napromieniana tarcza umieszczona jest w „ołowianym domku”. Wewnątrz „ołowianego domku”, poza uchwytem z napromienianą tarczą umieszczone zostały trzy układy pomiaru prądu wiązki. Brak jest jakichkolwiek wyników dotyczących pomiaru prądu z poszczególnych detektorów, z układów pomiaru prądu wiązki w trakcie napromieniania. Autor podaje tylko, że: „średnie rzeczywiste prądy wiązki wahały się od $1,9\ \mu\text{A}$ do $23,6\ \mu\text{A}$ ”. Na jakiej podstawie zostało sformułowane takie stwierdzenie?

W tabelach 5 i 6, obydwu zatytułowanych: „Wyniki symulacji GEANT4 analizy reakcji (e^- , e^-n) i (γ , n) dla elektronów o energii $12,6\ \text{MeV}$ ” autor zamieszcza wyniki symulacji przeprowadzonych przy pomocy programu GEANT4. Czy dane w tabeli 6 nie odnoszą się do symulacji dla wiązki o energii $15,6\ \text{MeV}$?

Na rysunkach 53 i 54 autor zamieszcza zdjęcia domku osłonnego osłaniającego napromienianą tarczę. Całkowicie wystarczyłby jeden rysunek i odpowiedni do niego opis. Znacznie bardziej użyteczne byłoby zamieszczenie w pracy schematu układu napromieniania, wraz z dokładnym opisem.

Po napromienieniu i osiągnięciu bezpiecznego poziomu promieniowania (autor nie podaje jaki poziom był uznany za bezpieczny) próbka przenoszona była do laboratorium pomiarowego.

Pomiary aktywności próbki wykonywane były przy pomocy spektrometru promieniowania gamma wyposażonego w detektor ORTEC model GMX-25190-P. I w tym przypadku autor nie podaje pełnej konfiguracji toru spektrometrycznego.

W tabelach 8 i 9 autor podaje wyniki aktywności poszczególnych tarcz po napromienieniu wiązką elektronów. Domyślam się, że w kolumnie „Szacowane” w obu tabelach autor podaje aktywności, które otrzymał w wyniku symulacji. Nie jest jasne jak należy rozumieć dane $\langle f \rangle$ umieszczone w kolumnie 3 oraz w jaki sposób została wyliczona „Produkcja ^{99}Mo przy częstotliwości 100Hz ”.

Dane zamieszczone w tabelach 8 i 9 przedstawiano również na rysunkach, odpowiednio 58 oraz 59, uzupełniając dane z symulacji aktywności o wartości wyznaczone dla dolnego i górnego zakresu niepewności pomiaru energii wiązki elektronów. Wykresy te nie zostały dostatecznie skomentowane w pracy.

Na rysunku 58 pojawiają się oznaczenia nie wymienione w legendzie (zielony rąb, niebieski X), nie jest jasne, czy coś oznaczają, czy też jest to błąd edytorski.

W celu dodatkowej weryfikacji stosowanej procedury eksperymentalnej, na podstawie wykonanych pomiarów autor wyznaczył czas połowicznego rozpadu ^{99}Mo . Nie jest do końca

jasne, na czym miałyby polegać taka weryfikacja. Należałoby ten fragment pracy uzupełnić o odpowiednie wyjaśnienia.

Podrozdział 6.7 autor konkluduje stwierdzeniem, że „Naświetlanie tarczy molibdenowej czystą wiązką elektronową nie ma szans na zastosowania w realnej produkcji ^{99}Mo , jednak jest pierwszą w świecie eksperymentalną obserwacją tego procesu [92].” Nie można nie zgodzić się z pierwszą częścią stwierdzenia autora. Wątpliwości wzbudza cytowana praca [92], która chyba jeszcze się nie ukazała.

W podrozdziale 6.8 zatytułowanym „Próbne rozpuszczanie tarczy” autor opisuje próbę rozpuszczania tarcz molibdenowych. Jednak zamiast przedstawić szczegółowo procedurę, co było wartościowym wkładem w pracę, zamieszcza ogólne. Np. wymienia listę przygotowanego sprzętu laboratoryjnego, a „proces” rozpuszczania tarcz z molibdenu ilustruje rysunkami 61 i 62, w tekście pisząc, że są na nich elementy stanowiska. Niestety, autor nie zamieszcza informacji, co znajduje się na poszczególnych zdjęciach, przez co rysunki nic nie wnoszą do wyjaśnienia przeprowadzonej procedury.

Procedurze rozpuszczania poddane zostały cztery próbki molibdenu naturalnego. Autor podaje czasy potrzebne do rozpuszczania poszczególnych tarcz i otrzymuje dość oczywisty wynik (podany w Tabeli 11) czyli, że im większa masa próbki tym dłuższy jest czas potrzebny na jej rozpuszczanie. Dopiero pod koniec podrozdziału autor umieszcza informację, z której wynika, że próba rozpuszczania przeprowadzona została na tarczach prasowanych.

Rozdział 7 - ostatni rozdział pracy, to dyskusja i wnioski końcowe. Jest to raczej podsumowanie pracy, a nie dyskusja. Podsumowanie jest napisane zwięźle i jasno, w odróżnieniu od zasadniczych rozdziałów pracy. W rozdziale tym brakuje jednak finalnej dyskusji wyników.

Uwagi edytorskie, językowe, redakcyjne i inne.

Wątpliwości moje wzbudzają w pracy niektóre sformułowania językowe. Uważam, że zamiast słowa „naświetlanie”, które jest nagminnie używane w języku polskim, zarówno w mowie jak i w piśmie należy używać słowa „napromienianie”.

W pracy można znaleźć drobne błędy edycyjne, nie są one jednak istotne:

str. 19: brak zamknięcia cudzysłowu w zdaniu:

str. 23: brak spacji po kropce kończącej zdanie: „...uzyskano 54 Ci ^{99}Mo . Innymi”

Braki edycyjne widoczne są również w Bibliografii. Sprowadzają się do niewłaściwego formatowania poszczególnych wymienionych pozycji.

str. 86: $^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc} + \gamma$

str. 88: „... i podłączenia do aparatury (Rys. 73 oraz Rys. 73) w celu przeprowadzenia procesu sublimacji.”

Podsumowując

Autor zbudował stanowisko eksperymentalne do produkcji ^{99}Mo przy pomocy wiązki z medycznego elektronowego akceleratora liniowego. Przeprowadził wiele symulacji

metodami MC, zarówno na etapie projektowania elementów stanowiska, jak i stanowiły one odniesienie dla niektórych z wykonanych pomiarów. Przeprowadził napromieniania tarcz molibdenowych w dwóch konfiguracjach, wyznaczył wyprodukowane aktywności ^{99}Mo .

Poważny problem stanowi jednak sama rozprawa, w szczególności sposób opisu stanowisk, udokumentowania przeprowadzonych prac eksperymentalnych oraz wykonanych symulacji. Pomimo, że struktura pracy na poziomie spisu treści jest poprawna, autor nie potrafił przygotować systematycznego opisu przeprowadzonych prac. Zawarte w rozprawie informacje o zastosowanej aparaturze są niekompletne a wielu ważnych elementów trzeba się domyślać. W pracy brak jest poprawnego opisu stosownej metodyki, umożliwiającego weryfikację wyników. W części zawierającej opisy prac eksperymentalnych pojawiają się fragmenty, które powinny zostać wydzielone do innych rozdziałów. Brak jest dostatecznego udokumentowania zebranych wyników pomiarowych i ich systematycznego przedstawienia.

Liczne niedociągnięcia i niejasności, które stwierdziłem w recenzowanej pracy doktorskiej nie pozwalają mi na przedstawienie pozytywnej opinii o pracy Pana mgr. Tobiasza Zawistowskiego. Stwierdzam, że przedstawiona rozprawa nie spełnia warunków określonych w art. 187.1 Ustawy z dnia 20 lipca 2018 r. Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce (Dz. U. z 2018 r. poz. 1668 z późn. zm.). **Wnioskuje zatem do Rady Naukowej NCBJ o odrzucenie przedmiotowej rozprawy oraz o niedopuszczanie Pana mgr. Tobiasza Karola Zawistowskiego do dalszych etapów przewodu doktorskiego.**

Kraków 28.11.2023

