

Warszawa, 30.05.2014 r.

AUTOREFERAT**1. IMIĘ I NAZWISKO**

Ryszard Broda
Narodowe Centrum Badań Jądrowych Ośrodek Radioizotopów POLATOM
ul. Andrzeja Sołtana 7
05-400 Otwock

**2. POSIADANE DYPLOMY, STOPNIE NAUKOWE / ARTYSTYCZNE
– Z PODANIEM NAZWY, MIEJSCA I ROKU ICH UZYSKANIA:**

1975 Uniwersytet Warszawski, stopień magistra fizyki
1994 Instytut Energii Atomowej w Świerku, stopień doktora nauk fizycznych
w zakresie fizyki, tyt.: „*Metoda numerycznego wyznaczania aktywności techniką
ciekłych scyntylatorów*”

**3. INFORMACJE O DOTYCHCZASOWYM ZATRUDNIENIU W JEDNOSTKACH
NAUKOWYCH / ARTYSTYCZNYCH:**

1975 - 82 Młodszy asystent, asystent, Laboratorium Metrologii, Ośrodek Produkcji
i Dystrybucji Izotopów (OPiDI), Instytut Badań Jądrowych (IBJ), Świerk
1983 - 94 Starszy asystent, Ośrodek Badawczo – Rozwojowy Izotopów (OBRI),
Instytut Energii Atomowej, Świerk
1994 - Adiunkt, OBRI, Świerk
1996 - 2002 Kierownik Zakładu Metrologii Materiałów Promieniotwórczych, OBRI,
Świerk
2002 - 2004 Zakład Badawczy, OBRI, Świerk
2005 - 2006 Kierownik Laboratorium Wzorców Radioaktywności (LWR), OBRI, Świerk
2006 - LWR, Ośrodek Radioizotopów POLATOM, Instytut Energii Atomowej
(od 2011 r.: Narodowe Centrum Badań Jądrowych Ośrodek Radioizotopów
POLATOM), Świerk

4. WSKAZANIE OSIĄGNIĘCIA WYNIKAJĄCEGO Z ART. 16 UST. 2 USTAWY Z DNIA 14 MARCA 2003 R. O STOPNIACH NAUKOWYCH I TYTULE NAUKOWYM ORAZ O STOPNIACH I TYTULE W ZAKRESIE SZTUKI (DZ. U. NR 65, POZ. 595 ZE ZM.):

a) autor/autorzy (udział % autora autoreferatu), tytuł/ tytuły publikacji, rok wydania, nazwa wydawnictwa,

Jako wskazane w myśl powyższej ustawy osiągnięcie naukowe wybrałem jednotematyczny cykl 8 publikacji na temat zastosowania obliczeń wydajności detekcji liczników scyntylacyjnych z ciekłym scyntylatorem do określania aktywności radionuklidów mierzonych metodą potrójno – podwójnych koincydencji TDCR (Triple-to-Double Coincidence Ratio). Publikacje te podaję poniżej wskazując *Impact factor* czasopisma z roku publikacji, liczbę cytowań wg. bazy Web of Science (WoS) oraz oszacowany przeze mnie mój udział procentowy w opublikowanej pracy:

	Tytuł publikacji	<i>Impact factor</i>	Liczba cytowań WoS	Mój udział w pracy
[1]	Broda R. , Péron M.N., Cassette P., Terlikowska T., Hainos D. Standardization of ¹³⁹ Ce by liquid scintillation counting using the triple to double coincidence ratio method. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 49, (1998) 1035-1040.	0.598	3	50 %
[2]	Broda R. , Cassette P., Małetka K., Pochwalski K. A simple computing program for application of the TDCR method to standardization of pure-beta emitters, <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 52, (2000) 673-678.	0.716	15	60 %
[3]	Cassette P., Broda R. , Hainos D., Terlikowska T. Analysis of detection-efficiency variation techniques for the implementation of the TDCR method in liquid scintillation counting. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 52, (2000) 643-648.	0.716	16	35 %
[4]	Broda R. , Małetka K., Terlikowska T., Cassette P. Study of the influence of the LS-cocktail composition for the standardisation of radionuclides using the TDCR model. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 56, (2002) 285-289.	0.768	9	40 %
[5]	Broda R., Jęczmieniowski A. Statistics of the LS-detector in the case of low counting efficiency. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 60, (2004) 453-458.	1.000	4	85 %
[6]	Broda R. Some remarks on photons statistics in the LS-counter. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 66, (2008) 1062-1066.	1.114	4	100 %
[7]	Broda R. A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> , 58, (2003) 585-594.	0.690	17	100 %
[8]	Broda R. , Cassette P., Kossert K. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. <i>Metrologia</i> , 44, (2007) S36-S52.	1.667	51	30 %

b) omówienie celu naukowego/artystycznego ww. pracy/prac i osiągniętych wyników wraz z omówieniem ich ewentualnego wykorzystania),

Cel naukowy ww. prac zatytułowałem:

**„Wydajność detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem
w pomiarach aktywności radionuklidów”**

Sformułowany cel naukowy jest związany z zastosowaniem obliczeń wydajności detekcji liczników scyntylacyjnych z ciekłym scyntylatorem do określania aktywności radionuklidów, zwłaszcza czystych β -emiterów, metodą potrójno – podwójnych koincydencji TDCR przy zastosowaniu techniki ciekłych scyntylatorów (LSC – Liquid Scintillation Counting). Tematyka ta została zawarta w wymienionych uprzednio moich publikacjach, które zostały zacytowane w *Handbook of radioactivity analysis* [Ed.: M.F. L'Annunziata, Acad. Press, Elsevier Inc. Amsterdam, Boston, Heidelberg, London, New York, Oxford, Paris, San Diego, San Francisco, Sydney, Tokyo. 2012]. Jest to unikalna pozycja literaturowa, stanowiąca odniesienie dla środowiska metrologicznego w zakresie edukacji, badań i pokojowych zastosowań źródeł promieniotwórczych.

Wprowadzenie

Metoda potrójno – podwójnych koincydencji TDCR, opublikowana w raporcie Instytutu Badań Jądrowych [Pochwalski K., Radoszewski T., *Disintegration rate determination by liquid scintillation counting using the triple to double coincidence ratio TDCR method*. Report INR, 1847/OPiDI/E/A, 1979, Warszawa], powstała i została opracowana w OPiDI IBJ w Świerku w 1978 r. przez dr inż. K. Pochwalskiego. Jest to metoda określania aktywności promieniotwórczej radionuklidów, zwłaszcza czystych β -emiterów, takich jak ^3H , ^{14}C czy ^{63}Ni oraz niskoenergetycznych emiterów rozpadających się przez wychwyt elektronu (EC-nuklidy) takich jak ^{55}Fe i ^{54}Mn , trudnych do pomiaru innymi metodami. Rozwój i udoskonalenie metody TDCR pozwoliły zastosować ją również do pomiarów aktywności γ -emiterów o złożonym schemacie rozpadu promieniotwórczego. Istotnym elementem poprawnego stosowania metody TDCR jest obliczanie wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem.

Metoda TDCR jest jedyną bezwzględną metodą pomiaru aktywności czystych β -emiterów techniką LSC. Roztwór mierzonego radionuklidu jest dodawany do tzw. koktajlu scyntylacyjnego, czyli mieszaniny zawierającej scyntylator pierwotny (solute) rozpuszczony w rozpuszczalniku organicznym (solvent), środek powierzchniowo czynny (surfactant) zapewniający mieszalność wodnej próbki radioaktywnej z roztworem organicznym oraz scyntylator wtórny (shifter) dopasowujący widmo emisyjne scyntylatora do widma absorpcyjnego fotokatody fotopowielacza. Energia tracona przez cząstki naładowane emitowane w wyniku rozpadu radionuklidu jest absorbowana w rozpuszczalniku, a następnie przekazywana do scyntylatora. Emitowane fotony scyntylacyjne są rejestrowane przez fotopowielacze detektora. W liczniku scyntylacyjnym umieszczone są trzy fotopowielacze (licznik potrójny), które rejestrują impulsy scyntylacyjne w torach różnych koincydencji. Aktywność radionuklidu jest obliczana przez ekstrapolację punktów pomiarowych do pełnej wydajności detekcji detektora w funkcji charakterystycznego eksperymentalnego parametru metody TDCR, będącego stosunkiem zliczeń impulsów koincydencji potrójnych do zliczeń impulsów sumy logicznej koincydencji podwójnych. K. Pochwalski zaproponował zastosowanie tu zwykłej ekstrapolacji liniowej. Ten stosunkowo prosty, ale przybliżony sposób określania aktywności zastąpiłem teoretycznymi obliczeniami wydajności detekcji licznika potrójnego w oparciu o opis

zachodzących w nich zjawisk fizycznych i użyciem nieliniowej funkcji ekstrapolacyjnej. Wartości funkcji były obliczane numerycznie na podstawie teorii rozpadu promieniotwórczego i pojawiania się promieniowania jonizującego, mechanizmu jego oddziaływania z materią i przekazywania energii na wzbudzenia molekuł rozpuszczalnika z uwzględnieniem zjawiska gaszenia jonizacyjnego. Zjawisko to powoduje, że wskutek dużej gęstości jonizacji wzdłuż toru cząstki naładowanej w scyntylatorze, zmniejsza się wydajność przekazu energii na wytworzenie fotonów scyntylacji. W obliczeniach uwzględniłem następnie zbieranie fotonów scyntylacji przez fotopowielacze, emisję fotoelektronów, asymetrię fotopowielaczy i formowanie różnego rodzaju impulsów na wyjściu detektora. Stale udoskonalany przez mnie kod obliczania wydajności detekcji w znacznym stopniu zmniejszył niepewność pomiaru aktywności radionuklidów metodą TDCR i rozszerzył jej stosowanie na izotopy o bardzo zróżnicowanych schematach rozpadu.

Metoda TDCR została zaadoptowana w 1982 r. w Laboratorium Metrologii Promieniowania Jonizującego (LMRI) w Saclay we Francji z inicjatywy i z udziałem K. Pochwalskiego, a obecnie jest stosowana we wszystkich najważniejszych laboratoriach metrologii radionuklidowej na świecie, w których zostały zbudowane detektory TDCR. Metoda TDCR stała się jednym z podstawowych i efektywnych narzędzi metrologii radionuklidowej do standaryzacji β -emiterów i EC-nuklidów. Została wprowadzona do międzynarodowego systemu referencyjnego pomiarów aktywności β -emiterów (SIR) w Międzynarodowym Biurze Miar i Wag (BIPM) w Sèvres. Metoda TDCR jest nadal rozwijana w Laboratorium Wzorców Radioaktywności Ośrodka Radioizotopów POLATOM w Narodowym Centrum Badań Jądrowych w Świerku. Rutynowe pomiary aktywności radionuklidów metodą TDCR oraz określanie stężenia promieniotwórczego roztworów mają podstawowe znaczenie dla wytwarzania i kontroli radioizotopowych źródeł wzorcowych stosowanych w nauce, przemyśle, medycynie nuklearnej i ochronie środowiska.

Opis problemu

- a) Skonstruowany przez dr inż. K. Pochwalskiego w 1978 r. licznik potrójny z ciekłym scyntylatorem oraz opracowana bezwzględna metoda TDCR wymagały wdrożenia do rutynowych pomiarów aktywności czystych β -emiterów i niskoenergetycznych EC-nuklidów, trudnych do wzorcowania innymi metodami metrologii radionuklidów.
- b) Zbudowany model obliczania wydajności detekcji w oparciu o opis zjawisk fizycznych zachodzących w licznikach z ciekłym scyntylatorem stał się integralną częścią metody TDCR, ale wymagał weryfikacji na podstawie analizy pomiarów aktywności różnych radionuklidów w liczniku potrójnym.
- c) Wyniki obliczeń wydajności detekcji radionuklidów niskoenergetycznych różniły się od wartości eksperymentalnych.
- d) Konieczne było rozszerzenie modelu obliczania wydajności detekcji licznika z ciekłym scyntylatorem na γ -emitery.
- e) Od 20 lat metoda TDCR wraz z modelem obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem jest sukcesywnie wdrażana we wszystkich najważniejszych laboratoriach metrologii radionuklidowej na świecie.

Opracowana metoda TDCR okazała się bardzo dobrym i niezastąpionym narzędziem do pomiarów aktywności czystych β -emiterów, lepszym od wszelkich innych metod stosowanych wcześniej. Mogła się stać jedną z podstawowych metod metrologii radionuklidowej w świecie. Nie wymagała stosowania wzorca przy określaniu aktywności mierzonego radionuklidu, gdyż dzięki zdefiniowaniu charakterystycznego parametru eksperymentalnego metody TDCR, będącego stosunkiem zliczeń dwóch rodzajów impulsów koincydencyjnych, wystarczyło

wykonać ekstrapolację punktów pomiarowych otrzymanych przy różnych wydajnościach detekcji licznika potrójnego z ciekłym scyntylatorem. Okazało się jednak, że zwykła ekstrapolacja liniowa nie dawała wystarczająco dokładnych wyników. Konieczne było zastosowanie ekstrapolacji nieliniowej opartej na modelu obliczania wydajności detekcji licznika, który przedstawiłem w swojej pracy doktorskiej. Niezależność obliczonej aktywności mierzonego radionuklidu od wydajności detekcji licznika była traktowana jako kryterium poprawności obliczeń. Wyniki obliczeń wydajności dla niskoenergetycznych emiterów ^3H i ^{55}Fe różniły się jednak od wartości eksperymentalnych. Przy pomiarach niskoenergetycznych czystych β -emiterów zawsze pojawia się pytanie jaka część całkowitej liczby rozpadów w jednostce czasu nie jest rejestrowana ze względu na ograniczoną wydajność detekcji licznika z określonym poziomem dyskryminacji szumów? Jest to pytanie o różnice między teoretycznym kształtem widma beta a widmem rejestrowanym. Bez dobrego zrozumienia podstaw fizycznych metody TDCR nie można było właściwie oceniać wyników pomiarów i wdrożyć tej metody do rutynowych pomiarów aktywności radionuklidów. Podjąłem się wyjaśnić problemy związane ze stosowaniem modelu obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem w pomiarach metodą TDCR. Uznałem, że wdrożenie tej metody będzie miało istotne znaczenie dla wzorcowania źródeł i roztworów promieniotwórczych czystych β -emiterów stosowanych w wielu dziedzinach. Dostosowałem istniejący model obliczeniowy do obliczeń dla γ -emiterów [1]. Wykazałem równoważność różnych metod gaszenia i niezmienności wartości parametru gaszenia jonizacyjnego [3], [4]. Stosując metodę indukcyjną zmodyfikowałem istniejący model obliczeniowy stawiając hipotezę, że model obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem dla radionuklidów niskoenergetycznych ^3H i ^{55}Fe wymaga stosowania rozkładu Polya do opisu statystyki fotoelektronów czy fotonów zbieranych przez fotopowielacze licznika [5]. Dowiodłem tej hipotezy wykonując pomiary z diodą elektroluminescencyjną symulującą źródło scyntylacyjne oraz obliczając przybliżony kształt rozkładu statystycznego fotonów zbieranych przez fotopowielacze [6]. Wszystkie zmiany modelu obliczania wydajności weryfikowałem pomiarami aktywności źródeł wzorcowych różnych radionuklidów przy stosowaniu zdefiniowanego kryterium poprawności obliczeń.

Zadowalające wyniki pomiarów testowych w liczniku potrójnym [Zimmerman i in., 2004; Broda i in., 2012] oraz pomiarów wykonanych w ramach międzynarodowych porównań [Razdolescu i in., 2006; Zimmerman i in., 2010; Makepeace i in., 1998; Cassette i in., 1998] pokazały, że opracowany model umożliwia określanie wydajności detekcji licznika potrójnego z dobrym przybliżeniem i może być stosowany przy rutynowych pomiarach aktywności radionuklidów metodą TDCR. Wdrażanie metody TDCR w różnych laboratoriach stymulowało prowadzenie dalszych prac badawczych w zakresie techniki LSC [7].

Omówienie celu naukowego pracy

1. **R. Broda**, M. N. Péron, P. Cassette, T. Terlikowska, D. Hainos. Standardization of ^{139}Ce by liquid scintillation counting using the triple to double coincidence ratio method, *Appl. Radiat. Isot.*, 49, (1998) 1035-1040.

Celem powyższej pracy było sprawdzenie czy zastosowanie istniejącego modelu obliczania wydajności pomiaru liczników z ciekłym scyntylatorem dla czystych β -emiterów [Broda i in., 1988] umożliwiało standaryzację metodą TDCR również radionuklidów emitujących promieniowanie γ ? Praca została wykonana w ramach projektu współpracy naukowo – technicznej nr 5212 Zakładu Metrologii Materiałów Promieniotwórczych OBRI w Świerku z Laboratorium Pierwotnym Promieniowania Jonizującego (LPRI, poprzednio: LMRI) w Saclay we Francji. Wybraliśmy do pomiaru ^{139}Ce , stosowany jako składnik wieloizotopowych źródeł

kalibracyjnych, rozpadający się przez wychwyty elektronu w kaskadzie ze skonwertowanym przejściem gamma.

Mój udział we wspólnej pracy polegał na wykonaniu analizy schematu rozpadu ^{139}Ce z uwzględnieniem emisji promieniowania z powłok K, L i M w atomie ^{139}La i opracowaniu nowego programu komputerowego do obliczania wydajności pomiaru. Obliczyłem prawdopodobieństwa wystąpienia każdej z 22 możliwych ścieżek porządkowania tych powłok po wychwyty elektronu i każdej z 24 po konwersji wewnętrznej, a także energie wszystkich pojawiających się elektronów. Określiłem również prawdopodobieństwo oddziaływania emitowanych fotonów γ i X z ciekłym scyntylatorem, prawdopodobieństwo wystąpienia fotoefektu lub oddziaływania komptonowskiego oraz widmo elektronów komptonowskich. Uwzględniając funkcję gaszenia jonizacyjnego obliczyłem całkowite widmo scyntylacyjne ^{139}Ce i wydajność pomiaru ^{139}Ce w funkcji charakterystycznego parametru eksperymentalnego metody TDCR. Początkowe niedokładności obliczeń usunąłem uwzględniając efekty scyntylacyjne wywołane przez fotony po rozpraszaniu komptonowskim. Obliczenia aktywności przez kod obliczeniowy było utrudnione, gdyż w obszarze pomiarowym jednej wartości charakterystycznego parametru eksperymentalnego metody TDCR odpowiadały trzy różne wartości wydajności pomiaru. Zaproponowałem użycie stosunku wydajności rejestracji koincydencji potrójnych do wydajności rejestracji sumy logicznej koincydencji podwójnych w trzeciej potędze jako wygodniejszego do obliczeń ^{139}Ce parametru eksperymentalnego metody TDCR. Wydajność pomiaru ^{139}Ce mogła być przedstawiona jako jednoznaczna funkcja tego parametru w obszarze pomiarowym. Została przygotowana seria źródeł ^{139}Ce w ciekłym scyntylatorze, które zmierzono metodą TDCR. Obliczone przeze mnie wydajności pomiaru ^{139}Ce były bardzo dobrze dopasowane do zbioru punktów pomiarowych. Mając liczbę zarejestrowanych impulsów koincydencji wyznaczyłem stężenie promieniotwórcze roztworu ^{139}Ce z niepewnością standardową $\pm 0.5\%$. Ten sam roztwór ^{139}Ce został zmierzony metodą TDCR również w LPRI. Uzyskaliśmy bardzo dobrą zgodność wyników pomiarów w obu laboratoriach. Wyznaczona wartość stężenia promieniotwórczego roztworu ^{139}Ce została potwierdzona za pomocą innych metod pomiarowych.

Sformułowane wnioski dotyczące sposobu liczenia wydajności pomiaru ^{139}Ce w liczniku potrójnym z ciekłym scyntylatorem miały istotne znaczenie dla dalszego rozwoju metody TDCR.

2. Broda R., Cassette P., Małętka K., Pochwalski K. A simple computing program for application of the TDCR method to standardization of pure-beta emitters, *Appl. Radiat. Isot.*, 52, (2000) 673-678.

Rosnące zainteresowanie metodą TDCR i konstruowanie liczników potrójnych w różnych laboratoriach metrologicznych na świecie wymagało udostępnienia podstawowego programu komputerowego do obliczania wydajności pomiaru czystych β -emiterów w liczniku potrójnym. Przygotowałem do publikacji kod TDCRB-1 wykorzystujący francuski podprogram do liczenia kształtu widm beta, stanowiący wygodne narzędzie dla użytkownika. Kod pracował w trybie interaktywnym i umożliwiał wyznaczenie stężenia promieniotwórczego roztworu wraz z niepewnością pomiaru lub obliczenie wydajności pomiaru danego radionuklidu w wybranym przedziale parametrów wejściowych. Modułowy układ kodu umożliwiał, w razie konieczności, łatwe modyfikacje podprogramów i dopasowanie formatu danych wejściowych do wymagań danego licznika potrójnego. Zgromadziłem w osobnym zbiorze konieczne do obliczeń dane jądrowe i atomowe dla dziesięciu różnych β -emiterów oraz kilku rodzajów ciekłych scyntylatorów. Wprowadziłem graficzną prezentację wyników obliczeń dla umożliwienia ich szybkiej oceny przez użytkownika. Opisałem algorytm kodu TDCRB-1 oraz format danych wejściowych i wyjściowych. Przygotowałem znaczną część opisu modelu obliczeniowego oraz przyjętych założeń dotyczących warunków pracy detektora TDCR. Jedno źródło ^{63}Ni zostało

zmierzone przy różnych wydajnościach detekcji. Obliczono stężenie promieniotwórcze roztworu ^{63}Ni stosując kod TDCRB-1. Przygotowano User Manual, do którego włączono wszystkie zbiory danych wejściowych i wyjściowych wraz z opisem ich formatu.

3. Cassette P., Broda R., Hainos D., Terlikowska T. Analysis of detection-efficiency variation techniques for the implementation of the TDCR method in liquid scintillation counting, *Appl. Radiat. Isot.*, 52, (2000) 643-648.

Zaobserwowano, że głównym źródłem niepewności przy określaniu aktywności metodą TDCR, zwłaszcza w przypadku radionuklidów niskoenergetycznych, jest funkcja Birksa [Broda i in., 1988] z wybranym parametrem gaszenia jonizacyjnego kB stosowana w modelu obliczania wydajności detekcji licznika z ciekłym scyntylatorem. Funkcja ta opisuje emisję światła scyntylacji jako nieliniową funkcję energii elektronu na skutek występowania zjawiska gaszenia jonizacyjnego. W procedurze wykonywania pomiaru istotnym elementem jest zmiana wydajności detekcji licznika potrójnego, pozwalająca na ocenę na ile poprawny jest przyjęty model obliczeniowy oraz wartość parametru kB . Wartości aktywności radionuklidu wyznaczone przy różnych warunkach pomiaru powinny spełniać kryterium poprawności obliczeń. W ramach projektu współpracy naukowo – technicznej POLONIUM nr 98228 z laboratorium LPRI we Francji sprawdzono jak wpływają różne sposoby zmiany wydajności detekcji na wyniki pomiarów w liczniku potrójnym i stosowanie modelu obliczeniowego w metodzie TDCR. Zmianę wydajności detekcji można uzyskać zwiększając gaszenie chemiczne scyntylatora np. dodając nitrometan, stosując cylindryczne filtry optyczne wokół butelki z ciekłym scyntylatorem lub defokalizując fotopowielacze, czyli obniżając ich wydajność przez zmniejszenie potencjału elektrody skupiającej. W dwóch pierwszych przypadkach zredukowana jest liczba rejestrowanych fotonów scyntylacji. W praktyce pomiarowej laboratorium LWR stosowaliśmy defokalizację jako najwygodniejszą metodę zmiany wydajności detekcji licznika potrójnego [Broda i Pochwałski, 1992]. W LPRI wykonano pomiary aktywności źródeł ^3H , ^{14}C i ^{63}Ni metodą TDCR zmieniając wydajność detekcji trzema wskazanymi powyżej sposobami. Obliczenia, które wykonałem programem TDCRB-1 pokazały, że zastosowane metody gaszenia są równoważne, a parametr kB nie zależy od stopnia gaszenia chemicznego w źródle ani od własności optycznych detektora. Model obliczania wydajności pomiaru nie musiał być modyfikowany dla różnych sposobów gaszenia.

Na podstawie wyników obliczeń wykazałem, że model obliczeniowy ma ograniczenie dla niskich wydajności detekcji, gdy liczba emitowanych fotonów scyntylacji jest mała, a obliczenia są poprawne tylko wtedy, gdy oczekiwana średnia liczba fotoelektronów na fotopowielacz jest większa od około 1. Pokazałem również, że obliczana wartość aktywności radionuklidów niskoenergetycznych ^3H i ^{63}Ni silnie zależy od przyjętej wartości parametru kB , natomiast wpływ tego parametru na obliczaną wartość aktywności wysoko energetycznego ^{14}C jest zanedbywalny. Wynikało to z silnej nieliniowości funkcji Birksa dla elektronów o energiach mniejszych od około 20 keV. Dla wszystkich próbek trzech radionuklidów zmierzonych w LPRI znalazłem jednakową wartość parametru gaszenia jonizacyjnego $kB \approx 0.011 \text{ cm MeV}^{-1}$ stosując kryterium poprawności obliczeń i rozkład Poissona do opisu statystyki fotonów zbieranych przez fotopowielacze. Można było przypuszczać, że znaleziona wartość kB była charakterystyczna dla zastosowanego ciekłego scyntylatora Ultima Gold®.

4. Broda R., Maletka K., Terlikowska T., Cassette P. Study of the influence of the LS-cocktail composition for the standardisation of radionuclides using the TDCR model, *Appl. Radiat. Isot.*, 56, (2002) 285-289.

Dotychczasowe prace pokazały, że wyznaczenie poprawnej wartości aktywności radionuklidu mierzonego metodą TDCR jest uwarunkowane przyjęciem w obliczeniach właściwej wartości

parametru gaszenia jonizacyjnego kB . Wartość parametru kB nie była znana *a priori*. Ponieważ do opisu statystyki zbieranych fotonów scyntytacji był stosowany model Poissona, wygodnie było traktować parametr kB jako zmienną dla dopasowania obliczonej wydajności pomiaru do zbioru punktów pomiarowych w przypadku każdego źródła. Taka praktyka obliczania aktywności źródła i ustalania wartości kB nie miała jednak wystarczającego uzasadnienia fizycznego.

Wyniki poprzedniej pracy [3] nie dawały odpowiedzi na pytanie, czy wartość parametru kB jest różna dla różnych ciekłych scyntylatorów i jak zależy od ich składu? Zaplanowałem nowe pomiary aby to sprawdzić. Przygotowano serie źródeł z roztworów wzorcowych ^3H i ^{63}Ni używając czterech różnych scyntylatorów komercyjnych, własnej produkcji scyntylatora toluenowego i siedmiu scyntylatorów ksylenowych o różnych proporcjach rozpuszczalników: ksylenu i 2-etoksyetanolu. Aktywność wszystkich źródeł wyznaczono przez pomiar w spektrometrze scyntylicyjnym Wallac 1411 i odnotowano, że wszystkie powyższe mieszaniny scyntylicyjne miały różny stopień gaszenia chemicznego.

Opracowałem udoskonalony kod TDCRB-02 do obliczania wydajności pomiaru i określania aktywności radionuklidu metodą TDCR w liczniku potrójnym. W kodzie tym zastosowałem metodę wielowymiarowej minimalizacji Downhill Simplex do rozwiązania układu trzech równań z danymi pomiarowymi. Uzasadniłem konieczność uwzględniania w obliczeniach różnych wydajności optycznych fotopowielaczy na przykładzie wyników pomiaru aktywności ^3H . Kod obliczeniowy TDCRB-02 został udostępniony użytkownikom na stronie internetowej Grupy Roboczej Ciekłych Scyntylatorów Międzynarodowego Komitetu Metrologii Radionuklidów (ICRM). Mierząc źródła wzorcowe ^3H i ^{63}Ni metodą TDCR w liczniku potrójnym mogłem w każdym przypadku określić wydajność pomiaru. Uwzględniając skład chemiczny użytych mieszanin scyntylicyjnych wyznaczyłem wartość parametru kB . W przypadku scyntylatorów komercyjnych, których skład był tajemnicą producenta, wykorzystałem informacje literaturowe o udziale wagowym atomów poszczególnych pierwiastków w mieszaninie scyntylicyjnej. Pokazałem, że parametr gaszenia jonizacyjnego kB dla wszystkich mieszanin scyntylicyjnych użytych przy pomiarach roztworów ^3H i ^{63}Ni miał wartość stałą około $0.011 \text{ cm MeV}^{-1}$ i w granicach niepewności pomiaru $\pm 0,001 \text{ cm MeV}^{-1}$ nie zależał od ich składu chemicznego. Potwierdziły to również pomiary wykonane w Laboratorium Państwowym Henri Becquerela (LNHB, poprzednio: LPRI) w Saclay we Francji.

5. Broda R., Jęczyński A. Statistics of the LS-detector in the case of low counting efficiency. *Appl. Radiat. Isot.*, 60, (2004) 453-458.

Wyniki opublikowane przez Cassette'a i in. [3] pokazały, że obliczone wydajności detekcji licznika potrójnego z ciekłym scyntylatorem dla silnie gaszonych źródeł ^3H i ^{63}Ni nie są zgodne z wartościami eksperymentalnymi. Rozkład Poissona niepoprawnie opisywał proces detekcji gdy oczekiwana średnia liczba fotoelektronów na fotopowielacz była mniejsza niż 1. Postanowiłem zbadać statystykę fotoelektronów w przypadku niskoenergetycznych emiterów ^3H i ^{55}Fe stosując metodę pomiarową TDCR. Wykonałem pomiary tych radionuklidów stosując defokalizację fotopowielaczy i filtry optyczne do zmiany wydajności detekcji licznika potrójnego. Przygotowałem programy do obliczania wydajności detekcji z zastosowaniem różnych rozkładów statystycznych dla fotoelektronów. Wyniki obliczeń potwierdziły, że model obliczeniowy nie stosuje się przy małej wydajności detekcji, gdy oczekiwana średnia liczba fotoelektronów na fotopowielacz jest mniejsza niż 1. Pokazałem również, że nawet przy wyższych wydajnościach detekcji obliczone aktywności ^3H i ^{55}Fe nie spełniały kryterium poprawności obliczeń. Obliczone aktywności były różne dla różnych wydajności detekcji licznika, jeżeli w modelu obliczeniowym zastosowany był rozkład Poissona dla fotoelektronów. Obliczone średnie aktywności były za niskie o około 2 % i 5 % w przypadku ^3H i ^{55}Fe odpowiednio. Poprawne wyniki standaryzacji obu radionuklidów uzyskałem stosując rozkład dwumianowy ujemny (rozkład Polya).

Porównałem pomiary ^{55}Fe , prawie monoenergetycznego EC-nuklidu, z wynikami pomiarów diody elektroluminescencyjnej (LED) symulującej monoenergetyczne źródło scyntylacyjne. Dioda była umieszczona w liczniku potrójnym i pobudzana przez generator impulsów synchronizowany impulsami z innego licznika z ciekłym scyntylatorem. W ten sposób uzyskaliśmy generator impulsów przypadkowych. Wykonałem pomiary częstotliwości impulsów diody LED metodą TDCR stosując defokalizację fotopowielaczy i filtry optyczne do zmiany wydajności detekcji lub zmniejszając amplitudę impulsów diody. Przygotowałem program dla obliczeń częstotliwości diody. Wyniki obliczeń średniej częstotliwości diody były poprawne gdy zastosowałem rozkład Poissona dla fotoelektronów. Uzyskałem stałą wartość średniej częstotliwości diody dla różnych wydajności detekcji przy defokalizacji fotopowielaczy, gdy oczekiwana średnia liczba fotoelektronów na fotopowielacz była większa od 1. Oba źródła ^{55}Fe i dioda LED mogły być traktowane jako monoenergetyczne, a jednak różne rozkłady statystyczne dla fotoelektronów należało stosować w obliczeniach. Sformułowałem wniosek, że obecność ciekłego scyntylatora, który nie był używany przy pomiarach z diodą, powodowała błędne wyniki obliczeń aktywności ^{55}Fe gdy był stosowany rozkład Poissona dla fotoelektronów. W obliczeniach aktywności należało stosować rozkład Polya.

6. Broda R. Some remarks on photons statistics in the LS-counter. *Appl. Radiat. Isot.*, 66, (2008) 1062-1066.

Wniosek, że do poprawnej standaryzacji niskoenergetycznych radionuklidów ^3H i ^{55}Fe konieczne jest użycie rozkładu Polya zamiast rozkładu Poissona dla fotonów zbieranych przez fotopowielacze nie miał uzasadnienia fizycznego [5]. Podjąłem próbę wyjaśnienia tego faktu na podstawie analizy procesów prowadzących do fluorescencji i danych dotyczących emisji światła ze szklanych naczyń z ciekłym scyntylatorem (Cassette P., Vatin R. *Experimental evaluation of TDCR models for 3 PM liquid scintillation counter. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 312, (1992) 95-99).

Zgromadziłem dane literaturowe dotyczące wartości prawdopodobieństw kolejnych procesów w ciekłym scyntylatorze prowadzących do fluorescencji i przedstawiłem je na uproszczonym diagramie. Obliczyłem, że w wyniku pojedynczego rozpadu jądra ^3H czy ^{55}Fe średnio emitowanych jest około 20 fotonów scyntylacyjnych. Liczba emitowanych fotonów mogła być opisana rozkładem dwumianowym lub w przybliżeniu rozkładem Poissona. Wyniki pomiarów Cassette'a i Vatin'a (1992) wskazywały jednak, że końcowy rozkład statystyczny fotonów zbieranych przez fotopowielacze ma większą wariancję od któregośkolwiek z tych rozkładów. Autorzy wyjaśnili, że przyczyną jest wewnętrzne odbicie światła scyntylacji na powierzchni między szklaną ścianką naczynia a powietrzem. Policzyli metodą Monte Carlo prawdopodobieństwo wyjścia światła z naczynia szklanego w funkcji położenia miejsca emisji w ciekłym scyntylatorze. Korzystając z tych danych obliczyłem przybliżony kształt końcowego rozkładu statystycznego dla fotonów zbieranych przez fotopowielacze. Obliczyłem rozkłady dwumianowe dla fotonów emitowanych z kilku różnych warstw ciekłego scyntylatora i zsumowałem je uwzględniając objętość każdej z warstw. Pokazałem, że kształt sumarycznego rozkładu końcowego może być dobrze przybliżony rozkładem Polya dla tej samej oczekiwanej liczby fotonów. Na podstawie definicji rozkładu Polya pokazałem również, że jego wariancja jest większa niż rozkładu dwumianowego czy rozkładu Poissona. Powyższe wyniki uzasadniały użycie rozkładu Polya w modelu obliczania wydajności detekcji licznika z ciekłym scyntylatorem dla radionuklidów niskoenergetycznych.

7. Broda R. A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides. *Appl. Radiat. Isot.*, 58, (2003) 585-594.

Po dwudziestu latach rozwoju bezwzględnej metody TDCR dokonałem przeglądu opublikowanych wyników prac dotyczących stosowania tej metody do standaryzacji radionuklidów. Praca miała ukazać aktualny stan rozwoju metody TDCR i zainteresowanie jakie wzbudza w wielu laboratoriach na świecie. Pokazałem, jak doskonalono tę metodę. Wskazałem, że najistotniejsze w tym procesie było zastosowanie licznika potrójnego w wersji zaproponowanej przez K. Pochwalskiego oraz obliczanie wydajności pomiaru z użyciem modelu opartego na statystycznym opisie zjawisk zachodzących w detektorze z ciekłym scyntylatorem. Omówiłem podstawy teoretyczne metody TDCR i zaprezentowałem schemat obliczania prawdopodobieństwa rejestracji impulsów w liczniku scyntylacyjnym. Początkowy rozwój metody TDCR wiązał się głównie z polsko – francuską współpracą naukową i z postępem w konstrukcji koincydencyjnych układów elektronicznych stosowanych w liczniku potrójnym. Pokazałem uproszczone schematy blokowe tych liczników. Zgromadziłem informacje o licznikach potrójnych skonstruowanych w 12 różnych laboratoriach na świecie wskazując ich różnice konstrukcyjne.

Dla wykazania jak różna może być wydajność pomiaru różnych radionuklidów w detektorze potrójnym, wykonałem obliczenia dla kilku β -emiterów i EC-nuklidów. Obliczone wydajności przedstawiłem na wykresach w funkcji charakterystycznego parametru metody TDCR. Wyjaśniłem, że obserwowane wyraźne różnice wydajności pomiaru zależą od różnic kształtu widm scyntylacyjnych różnych radionuklidów. W przypadku EC-nuklidów wykresy stają się tym bardziej skomplikowane, im więcej osobnych grup energii można wyodrębnić w widmie scyntylacyjnym powstającym w wyniku oddziaływania promieniowania X i γ ze scyntylatorem i porządkowania powłok atomowych po wychwycie elektronu. Było to widoczne np. dla ^{139}Ce [1]. Wnioski uzasadniłem obliczeniem wydajności pomiaru dla wirtualnego radionuklidu o uproszczonym schemacie rozpadu promieniotwórczego, którego widmo składało się tylko z dwóch wybranych energii. Przytoczyłem przykłady wyników pomiarów kilku radionuklidów metodą TDCR, wskazując na spełnienie kryterium poprawności obliczeń ich aktywności.

8. **Broda R.,** Cassette P., Kossert K. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia*, 44, (2007) S36-S52.

Aby ukazać znaczenie metody TDCR i modelu obliczania wydajności detekcji w szerszym kontekście metrologii radionuklidów z wykorzystaniem techniki LSC, wziąłem udział w pracy zespołowej nad przygotowaniem rozdziału poświęconego technice LSC w specjalnym wydaniu dwumiesięcznika *Metrologia*. Wydanie to zostało opracowane z inicjatywy Komitetu Konsultacyjnego dla Promieniowania Jonizującego (CCRI) przy BIPM przez grupę najbardziej kompetentnych i doświadczonych metrologów z różnych państw. Opracowanie ukazało stan aktualny i postęp w metrologii promieniowania jonizującego. Zostało pomyślane jako źródło wiedzy dla początkujących metrologów i przewodnik dla użytkowników radioaktywności wyjaśniający sposób uzyskiwania spójności z międzynarodowym systemem miar.

W rozdziale o stosowaniu techniki LSC położono nacisk na praktykę pomiarową. Pokazano jakie procesy odpowiadają za konwersję energii promieniowania jonizującego na światło fluorescencji emitowane przez wzbudzone molekuly scyntylatora oraz jaki powinien być skład mieszaniny scyntylacyjnej z wodnym roztworem promieniotwórczym, aby zapewnić wydajny transfer energii od molekuł rozpuszczalnika do scyntylatora. Omawiając procesy gaszenia w scyntylatorze, redukujące ilość emitowanego światła, pokazano, jak obliczyć wydajność fluorescencji stosując funkcję Birksa. Szczegółowo został pokazany sposób obliczania wydajności detekcji w licznikach z ciekłym scyntylatorem [Broda i in., 1988]. Aby wykonać powyższe obliczenia konieczne jest dokładne określenie widma elektronów pojawiających się scyntylatorze w wyniku rozpadu promieniotwórczego. Pokazano więc jak obliczyć widmo elektronów po rozpadzie beta, po wychwycie elektronu oraz po oddziaływaniu fotonów X i γ ze scyntylatorem,

a także sposób postępowania przy określaniu widm elektronów w przypadku złożonych schematów rozpadu.

Jako praktyczne wykorzystanie techniki LSC do pomiaru aktywności radionuklidów za pomocą licznika podwójnego przedstawiono metodę trasowania trytem (CIEMAT/NIST) i omówiono wpływ wyboru traseru na jej dokładność. Przedstawiono też metodę TDCR i pokazano jak określić aktywność radionuklidu na podstawie obliczeń wydajności pomiaru [Broda i Pochwalski, 1992]. Zostało podkreślone, że bez takich obliczeń liniowa ekstrapolacja punktów pomiarowych może prowadzić do błędnych wyników zwłaszcza w przypadku EC-nuklidów. Zestawiono wnioski dotyczące wartości parametru gaszenia jonizacyjnego kB dla stosowanych scyntylatorów ciekłych. Podano rodzaje radionuklidów, które były standaryzowane za pomocą obu powyższych metod. Omawiając praktyczne aspekty techniki LSC wskazano, jakie cechy powinny mieć naczynia pomiarowe i ciekłe scyntylatory dla efektywnego stosowania obu metod pomiarowych, jakie rodzaje liczników są używane, jak je testować i jak zmieniać wydajność pomiaru w celu oceny poprawności obliczeń. Podkreślono, że zanieczyszczenia radionuklidowe w mierzonych roztworach mogą zniekształcić wyniki obliczeń. Ilość zanieczyszczeń γ -promieniotwórczych w danym roztworze można określić rutynową metodą spektrometrii gamma, natomiast zanieczyszczenia β -promieniotwórcze są często w ogóle trudne do wykrycia.

Mój udział we wspólnej pracy polegał na opisie modelu obliczania wydajności detekcji w licznikach z ciekłym scyntylatorem i pokazaniu w szczególności, jak go stosować w metodzie TDCR. Zaprezentowałem wyprowadzenie formuł określających wydajność pomiaru β -emiterów i EC-nuklidów w licznikach z ciekłym scyntylatorem o różnej liczbie fotopowielaczy. Podałem prawdopodobieństwa rejestracji różnych rodzajów impulsów przy założeniu, że fotopowielacze są identyczne lub nieidentyczne. Pokazałem, że poprawne wyznaczenie aktywności niskoenergetycznych radionuklidów ^3H i ^{55}Fe metodą TDCR wymaga zastosowania rozkładu dwumianowego ujemnego (rozkład Polya) do opisu statystyki fotonów scyntylicyjnych zbieranych przez fotopowielacze. Zastosowanie rozkładu Poissona w obliczeniach dla ^3H i ^{55}Fe daje wartości aktywności niższe o około 2 % i 5 % odpowiednio. Jak się okazało, przyczyną jest zjawisko wewnętrznego odbicia światła w ściankach naczyń szklanych zawierających koktajl scyntylicyjny. Pokazałem, jakie są wydajności detekcji w funkcji charakterystycznego eksperymentalnego parametru metody TDCR dla różnych radionuklidów i jak je obliczać w przypadku nieidentycznych fotopowielaczy w liczniku potrójnym.

Podsumowanie

Zaprezentowałem wyniki badań zawartych w cyklu publikacji pokazujących jak należy stosować model obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem do określania aktywności różnych radionuklidów metodą TDCR. Przedstawiłem wnioski dotyczące zmiany wydajności detekcji licznika wykonywanej podczas pomiaru aktywności radionuklidów. Podałem wartość parametru gaszenia jonizacyjnego i rodzaj rozkładu statystycznego dla fotoelektronów do stosowania w modelu obliczeniowym. Pokazałem też ograniczenia tego modelu w metodzie TDCR.

Zmiany wydajności detekcji licznika za pomocą jednej z trzech metod: gaszenia chemicznego, stosowania filtrów optycznych lub najwygodniejszej - defokalizacji fotopowielaczy, są zwykle stosowane przy pomiarach aktywności dowolnego radionuklidu metodą TDCR. Celem wprowadzania zmian wydajności jest zarejestrowanie punktów pomiarowych pozwalających na ocenę poprawności przyjętego modelu obliczeniowego, w którym jedną ze zmiennych jest parametr gaszenia jonizacyjnego. Wartość tego parametru, która nie jest znana *a priori*, silnie

wpływa na obliczaną aktywność niskoenergetycznych β -emiterów. Pomiar testowy serii źródeł ^3H , ^{14}C i ^{63}Ni wykazały, że wszystkie powyższe metody zmiany wydajności detekcji licznika są równoważne, a parametr gaszenia jonizacyjnego ma wartość stałą rzędu $0.011 \text{ cm MeV}^{-1}$. Okazało się również, że jego wartość jest stała niezależnie od składu chemicznego koktajlu scyntylacyjnego, co potwierdziły też pomiary wykonane we Francji. Obserwacje powyższe miały istotne znaczenie dla praktyki stosowania metody TDCR. Istotne również były wnioski dotyczące stosowania modelu obliczeniowego.

Wykonując pomiary niskoenergetycznych β -emiterów zaobserwowałem, że opracowany model ma ograniczenie. Nie może być stosowany przy bardzo niskich wydajnościach detekcji licznika, gdy oczekiwana liczba emitowanych fotoelektronów na fotopowielacz jest mniejsza niż jeden. Wyniki obliczeń nie są wtedy zgodne z punktami eksperymentalnymi. Model umożliwił mi obliczenie wydajności pomiaru różnych radionuklidów, w tym EC-nuklidów, w funkcji charakterystycznego parametru metody TDCR. Wykazałem, że przebieg tych funkcji zależy od kształtu widm scyntylacyjnych poszczególnych radionuklidów. Wnioski uzasadniłem obliczeniami dla wirtualnego radionuklidu o bardzo uproszczonym widmie scyntylacyjnym.

Pomiary testowe roztworów niskoenergetycznych emiterów ^3H oraz ^{55}Fe pokazały, że przy obliczaniu ich aktywności powinien być stosowany rozkład dwumianowy ujemny (rozkład Polya) zamiast rozkładu Poissona do opisu statystyki fotonów zbieranych przez fotopowielacze licznika. Przyczyną były wewnętrzne odbicia światła w ściankach naczyń szklanych z ciekłym scyntylatorem. W przypadku pomiarów testowych z diodą elektroluminescencyjną imitującą źródło scyntylacyjne, umieszczoną centralnie w naczyniu bez scyntylatora, nie występowały takie odbicia światła i w modelu obliczeniowym stosowany był rozkład Poissona.

Prace prowadzone wspólnie z laboratorium LPRI we Francji pokazały, że model obliczania wydajności detekcji licznika z ciekłym scyntylatorem można zastosować również do pomiarów metodą TDCR aktywności radionuklidów emitujących promieniowanie γ . Przeanalizowałem schemat rozpadu ^{139}Ce , który został wybrany do testowania modelu i określiłem widmo emitowanych elektronów w wyniku porządkowania powłok w atomie ^{139}La z uwzględnieniem efektów scyntylacyjnych wywoływanych przez fotony z rozpraszania komptonowskiego. Uzyskałem wyniki obliczeń wydajności pomiaru ^{139}Ce zgodne z wydajnością eksperymentalną. Wyniki pomiarów stężenia promieniotwórczego roztworu ^{139}Ce w LWR i LPRI były zgodne, a niepewność standardową pomiarów oszacowano na $\pm 0.5 \%$.

Wdrożenie metody TDCR wymagało, oprócz posiadania licznika potrójnego, również kodu obliczeniowego opartego na opracowanym modelu obliczeniowym. Opublikowałem taki kod, TDCRB-1, dla obliczania aktywności czystych β -emiterów, a następnie jego udoskonaloną wersję, TDCRB-02, która została udostępniona na stronie internetowej Grupy Roboczej Ciekłych Scyntylatorów ICRM. Opublikowałem również przegląd wyników prac dotyczących metody TDCR i historii jej doskonalenia, aby dać użytkownikowi obraz jej podstaw i sposobu wdrażania tej metody w kilkunastu laboratoriach. Jako współautor uczestniczyłem też w przygotowaniu obszernego i szczegółowego opracowania przedstawiającego metodę TDCR w kontekście stosowania techniki LSC z akcentem położonym na praktykę pomiarową i stosowanie modelu obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem. Opracowany model obliczeniowy dla metody TDCR i sformułowane wnioski zostały wykorzystane w praktyce pomiarowej laboratorium LWR. Zadowalające wyniki stosowania metody TDCR uzyskano m.in. w międzynarodowych porównaniach pomiarów β -emitera ^{63}Ni [Razdolescu i in., 2006] i obliczeń stężenia promieniotwórczego roztworu ^{99}Tc [Zimmerman i in., 2010] oraz w pomiarach aktywności ^{85}Sr będącego EC-nuklidem z opóźnionym przejściem izomerycznym [Broda i in., 2012]. Opracowanie podstaw fizycznych metody TDCR i stworzenie modelu obliczeniowego, dziesiątki publikacji na jej temat oraz jej zalety jako metody bezwzględnej spowodowały, że

została wprowadzona do międzynarodowego systemu referencyjnego rozszerzonego na pomiary β -emiterów (ESIR) w BIPM we Francji.

5. OMÓWIENIE POZOSTAŁYCH OSIĄGNIĘĆ NAUKOWO - BADAWCZYCH

5.1 Pozostała działalność naukowo – badawcza

Oprócz tematyki dotyczącej wskazanego osiągnięcia naukowego zajmowałem się również innymi zagadnieniami naukowo – badawczymi. Niektóre z nich omawiam poniżej. Moja działalność związana była początkowo z względnymi metodami pomiaru aktywności radionuklidów za pomocą komór jonizacyjnych, stosowanych w kontroli źródeł i roztworów promieniotwórczych wytwarzanych w Ośrodku Radioizotopów w Świerku. Analizowałem parametry komór jonizacyjnych i wyznaczałem wydajność pomiaru aktywności poszczególnych radionuklidów. Opracowałem metodę obliczenia wydajności pomiaru aktywności ^{99m}Tc w komorze jonizacyjnej w oparciu o pomiary aktywności ^{99}Mo w roztworze $^{99}\text{Mo}+^{99m}\text{Tc}$ [Broda, 1980]. Uczestniczyłem w opracowaniu metod pomiarów aktywności zamkniętych źródeł promieniotwórczych w komorach jonizacyjnych z uwzględnieniem efektu samopochłaniania promieniowania w źródle. Wynikiem tych prac było wskazanie właściwej geometrii przy pomiarach źródeł i przy kalibracji komór jonizacyjnych.

Moja działalność była związana też z pomiarami mocy dawki adsorpcyjnej od źródeł zamkniętych za pomocą komory ekstrapolacyjnej. Byłem współautorem normy branżowej „HMD, Zamknięte radioaktywne źródła promieniowania. Metody pomiarów mocy dawki adsorpcyjnej promieniowania beta” (w języku rosyjskim), Moskwa (1980), a także współautorem normy branżowej BN-77, 3421-01 „Zamknięte źródła promieniotwórcze: Oznakowanie i atestacja” (1977). W ramach kontaktów z zakładami medycyny nuklearnej, będących głównymi odbiorcami roztworów promieniotwórczych produkowanych w OR POLATOM, opracowałem i opatentowałem system wygodnych osłon ołowianych na strzykawkę z roztworem promieniotwórczym [R. Broda, A. Grabowski, Patent Użytkowy Nr 55774: „Osłona ołowiana do strzykawek zawierających roztwór radioaktywny”, Urząd Patentowy PRL, Warszawa, 1988].

Kolejnym obszarem mojej działalności były prace w dziedzinie stosowania techniki ciekłych scyntylatorów do określania stężenia promieniotwórczego roztworów różnych radionuklidów. Uczestniczyłem w pracach zespołowych dotyczących badania impulsów wtórnych w liczniku z ciekłym scyntylatorem, które zniekształcały wynik pomiaru aktywności [Broda i Radoszewski, 1979]. Przyczyną tych impulsów były impulsy prawdziwe po rozpadzie promieniotwórczym w źródle. Stwierdziliśmy, że impulsy wtórne są głównie jedno-elektronowe, określiliśmy ich widmo amplitudowe i rozkład czasowy za impulsem prawdziwym. Zastosowanie długiego czasu martwego rzędu 40 μs , a w udoskonalonych licznikach scyntylacyjnych - przedłużalnego czasu martwego, pozwoliło uniknąć rejestracji tych impulsów.

Inne prace dotyczyły zbadania przyczyn zaobserwowanych różnic wyników uzyskanych w międzynarodowych porównaniach pomiarów stężenia promieniotwórczego roztworu ^{55}Fe , ^{63}Ni [Cassette i in., 1998] i ^3H [Makepeace i in., 1998]. Zauważono korelację występującą między uzyskanymi wynikami a stosowanymi koktajlami scyntylacyjnymi oraz zależność od stosowanej metody pomiarowej TDCR lub CIEMAT/NIST. We współpracy z laboratorium LPRI uczestniczyłem w badaniu stabilności źródeł ^{63}Ni przygotowanych w koktajlu scyntylacyjnym Ultima Gold[®] [Terlikowska i in., 1998]. Mój udział w pracy polegał na wykonaniu pomiarów stężenia promieniotwórczego roztworu ^{63}Ni metodą TDCR. Zmieniany był sposób przygotowywania źródeł. Uzyskano różne wyniki dla źródeł przygotowanych z różnych partii scyntylatora Ultima Gold[®]. Zauważono też wyraźne różnice wyników przy stosowaniu scyntylatora Ultima Gold[®].

i Ultima Gold[®] AB. Stwierdzono, że źródła zawierające więcej niż 1.5 % fazy wodnej charakteryzują się lepszą stabilnością.

Jednym z ostatnich zagadnień naukowo-badawczych, którymi się zajmowałem, był problem pomiaru ⁸⁵Sr metodą TDCR i metodą CIEMAT/NIST [Broda i in., 2012]. ⁸⁵Sr rozpada się przez wychwyty elektronu głównie do stanu wzbudzonego ⁸⁵Rb o półokresie rozpadu około 1 μs, z którego następuje przejście izomeryczne do stanu podstawowego. Zaobserwowałem wyraźną rozbieżność wyników pomiarów przy stosowaniu obu powyższych metod. Znalazłem wyjaśnienie tego efektu. Ustaliłem, że przyczyną był brak rejestracji części impulsów scyntylacyjnych, czyli gubienie impulsów, gdyż ustawiony czas martwy licznika był o wiele dłuższy niż czas połowicznego zaniku poziomu wzbudzonego. Po wprowadzeniu odpowiedniej poprawki do modelu obliczeniowego uzyskałem wyniki obu metod zgodne w granicach niepewności pomiaru.

Moja działalność naukowa związana była też z przygotowaniem 16 recenzji artykułów przesyłanych do publikacji w czasopismach naukowych *Applied Radiation and Isotopes* oraz *NUKLEONIKA*.

5.2 Publikacje

A) Lista publikacji indeksowanych

Sumaryczna liczba publikacji indeksowanych: **22**

A1) Lista publikacji indeksowanych przed doktoratem

Liczba publikacji indeksowanych przed doktoratem: **4**

Pochwalski K., Broda R., Radoszewski T. Standardization of pure beta emitters by liquid - scintillation counting. *Appl. Radiat. Isot.*, 39, (1988) 165-172.

Broda R., Pochwalski K., Radoszewski T. Calculation of liquid - scintillation detector efficiency. *Appl. Radiat. Isot.*, 39, (1988) 159-164.

Broda R., Pochwalski K. The enhanced triple to double coincidence ratio (ETDCR) method for standardization of radionuclides by liquid-scintillation counting. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, A312, (1992) 85-89.

Broda R., Pochwalski K. The ETDCR method of standardizing ⁵⁵Fe and ⁵⁴Mn. Liquid-Scintillation Spectrometry 1992. ed.: Noakes J.E., Schönhofer F., Polach H.A., *RADIOCARBON*, USA. (1993) 255-260.

A2) Lista publikacji indeksowanych po doktoracie

Liczba publikacji indeksowanych po doktoracie: **18**

Cassette P., Altitzoglou T., Broda R., Collé R., Dryák P., De Felice P., Günther E., Los Arcos J.M., Ratel G., Simpson B., Verzezen F. Comparison of activity measurement of ⁶³Ni and ⁵⁵Fe in the framework of the EUROMET 297 project. *Appl. Radiat. Isot.*, 49, (1998) 1403-1410.

Makepeace J., Altitzoglou T., Cassette P., Dryák P., Günther E., Verzezen F., Broda R., Simpson B., Unterweger M. International comparison of measurements of the specific activity of tritiated water. *Appl. Radiat. Isot.*, 49, (1998) 1411-1416.

- Terlikowska T., Cassette P., Péron M., Hainos D., Tartes L., Broda R., Kempisty T. Study of stability of ^{63}Ni sources in Ultima Gold liquid scintillation cocktail. *Appl. Radiat. Isot.*, 49, No. (1998) 1041-1047.
- Broda R., Péron M., Cassette P., Terlikowska T., Hainos D. Standardization of ^{139}Ce by liquid scintillation counting using the triple to double coincidence ratio method. *Appl. Radiat. Isot.*, 49, (1998) 1035-1040.
- Cassette P., Broda R., Hainos D., Terlikowska T. Analysis of detection-efficiency variation techniques for the implementation of the TDCR method in liquid scintillation counting. *Appl. Radiat. Isot.*, 52, (2000) 643-648.
- Broda R., Cassette P., Małetka K., Pochwalski K. A simple computing program for application of the TDCR method to standardization of pure-beta emitters. *Appl. Radiat. Isot.*, 52, (2000) 673-678.
- Broda R., Małetka K., Terlikowska T., Cassette P. Study of the influence of the LS-cocktail composition for the standardisation of radionuclides using the TDCR model. *Appl. Radiat. Isot.*, 56, (2002) 285-289.
- Chyliński A., Terlikowska – Drożdźiel T., Radoszewski T., Broda R. Multi-method of standardisation of radionuclides with triangular scheme of disintegration. *Appl. Radiat. Isot.*, 56, (2002) 281-284.
- Chyliński A., Broda R., Radoszewski T. The National Standard Unit of Radionuclide Activity and the related standards in Poland. *NUKLEONIKA*, 48 (1), (2003) 51-55.
- Broda R. A review of the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method for standardizing radionuclides. *Appl. Radiat. Isot.*, 58, (2003) 585-594.
- Broda R., Jęczmieniowski A. Statistics of the LS-detector in the case of low counting efficiency. *Appl. Radiat. Isot.*, 60, (2004) 453-458.
- Razdolescu A.C., Broda R., Cassette P., Simpson B.R.S., Van Wyngaardt W.M. The IFIN-HH triple coincidence liquid scintillator counter. *Appl. Radiat. Isot.*, 64, (2006) 1510-1514.
- Broda R., Cassette P., Kossert K. Radionuclide metrology using liquid scintillation counting. *Metrologia*, 44, (2007) S36-S52.
- Broda R. Some remarks on photons statistics in the LS-counter. *Appl. Radiat. Isot.*, 66, (2008) 1062-1066.
- Zimmerman B.E., Altitzoglou T., Rodrigues D., Broda R., Cassette P., Mo L., Ratel G., Simpson B., Van Wyngaardt W., Wätjen C. Comparison of triple-to-double coincidence ratio (TDCR) efficiency calculations and uncertainty assessments for ^{99}Tc . *Appl. Radiat. Isot.*, 68, (2010) 1278-1281.
- Broda R., Dziel T., Muklanowicz A., Listkowska L., Pieńkowski Ł., Patocka A., Kołakowska E. Comparison of $^{99}\text{Tc}^m$ and ^{131}I in Polish hospitals, 2007. *Appl. Radiat. Isot.*, 68, (2010) 1278-1281.
- Broda R., Dziel T., Muklanowicz A. Standardization of a ^{85}Sr solution by three methods. *Appl. Radiat. Isot.*, 70, (2012) 2222-2226.
- Dziel T., Broda R., Ziemek T., Muklanowicz A., Listkowska A. Standardization of Sm-153 solution by absolute methods. *Appl. Radiat. Isot.*, 87, (2014) 19-23.

B) Lista innych publikacji (raporty, publikacje nieindeksowane, książki abstraktów)

Sumaryczna liczba innych publikacji: 18

B1) Lista innych publikacji przed doktoratem

Liczba innych publikacji przed doktoratem: 9

Broda R., Radoszewski T. Badanie impulsów wtórnych w liczniku z ciekłym scyntylatorem (w języku rosyjskim). Materiały konferencyjne Sympozjum RWPG nt. "Metody wytwarzania i pomiarów wzorcowych źródeł i roztworów", Mariańskie Łaźnie 1979, Czechoslovakian Atomic Energy Commission, Praga, Czechosłowacja (1979).

Broda R. The method of activity determination of ^{99m}Tc in ionization chamber, INR 1870/OPiDI/I/A, Warszawa (1980).

Pochwalski K., Broda R., Radoszewski T., Żelazny P. Standardization of low-level beta-emitter solutions by using the liquid-scintillation triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method. "Methods of Low-Level Counting and Spectrometry", IAEA-SM-252/62, Vienna, Austria, (1981) 487-496.

Broda R., Pochwalski K. Calculation of the liquid-scintillation detector counting efficiencies in comparison with the experimental data. INR 1942/OPiDI/E/A, Warsaw, Poland (1982).

Broda R., Radoszewski T. Scintillation detector with anticoincidence shield for determination of the radioactive concentration of standard solutions. The Second International Conference on Low Activities, High Tatras 1980, *Physics and Applications*, vol. 8, VEDA, Bratislava, Czechoslovakia, (1982) 156-167.

Broda R., Chyliński A., Terlikowska-Drożdżiel T., Kempisty T., Pochwalski K., Radoszewski T. Postęp w zakresie metrologii wzorcowych źródeł radioaktywnych (w języku rosyjskim). Materiały II Sympozjum RWPG nt. "Metody wytwarzania i pomiarów wzorcowych źródeł i roztworów", Copak, Hungarian Atomic Energy Commission, Copak, Węgry, (1984) 189-223.

Broda R. Teoretyczne określenie wydajności pomiaru ^{55}Fe w ciekłym scyntylatorze w porównaniu z danymi eksperymentalnymi (w języku rosyjskim). Materiały II Sympozjum RWPG nt. "Metody wytwarzania i pomiarów wzorcowych źródeł i roztworów", Copak, Hungarian Atomic Energy Commission, Copak, Węgry, (1984) 271-277.

Pochwalski K., Broda R., Radoszewski T. Bezwzględny pomiar aktywności czystych emiterów beta licznikiem scyntylacyjnym z ciekłym scyntylatorem, Raport INT 198/1, Sympozjum – „Rozwój i zastosowanie metod izotopowych w technice”, Instytut Fizyki i Techniki Jądrowej (IFTJ), AGH, Kraków, (1986).

Broda R. WYDA16 and ECFE11 codes for radioactive concentration calculation of solutions measured by the triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method. Report IAE 2081/OPiDI/I/B, Świerk, Poland (1989).

B2) Lista innych publikacji po doktoracie

Liczba innych publikacji po doktoracie: 9

Chyliński A., Broda R., Radoszewski T. Państwowy wzorzec jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów. *Postępy Techniki Jądrowej*, Vol. 44, Z.2, (2001) 24-31.

- Broda R. Państwowy wzorzec jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów. *Pomiary Automatyka Robotyka*, Nr 7-8, (2003) 51-55.
- Ratel G., Michote C., Broda R., Listkowska A. Activity measurements of the radionuclide ^{60}Co for the RC, Poland in the ongoing comparison BIPM.RI(II)-K1.Co-60., Report-Co-60 (3), BIPM, 2003/09/09.
- Zimmerman B.E., Colle R., Cessna J.T., Broda R., Cassette P. Application of the triple-to-double coincidence ratio method at National Institute of Standards and Technology for absolute standardization of radionuclides by liquid scintillation counting. *Radioanalytical Methods In Interdisciplinary Research*. ACS Symposium Series 868, American Chemical Society, Washington, DC, (2004) 76-87.
- Broda R., Małetka K., Muklanowicz A., Listkowska A. Laboratorium metrologiczne w OR POLATOM. Materiały krajowej konferencji nt. „Technika jądrowa w przemyśle, medycynie, rolnictwie i ochronie środowiska”, Akademia Górniczo – Hutnicza (AGH), Kraków, (2005) 549-554.
- Broda R., Chyliński A., Radoszewski T., Małetka K., Terlikowska-Drożdziel T. The national standard of the radionuclides activity unit in Poland. Proc. Internat. Conference “Applications of high precision atomic & nuclear methods”, Ed.: Acad. Romane, Rumunia, (2005) 63-68.
- Dziel T., Broda R. Państwowy wzorzec jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów. *Metrologia*. Biuletyn Informacyjny Głównego Urzędu Miar. 12, (2009).
- Broda R., Pochwalski K. Powstanie i rozwój Laboratorium Metrologii Radionuklidów w Świerku. *Postępy Techniki Jądrowej*, 54, (2011) 14-21.
- Gajda J., Broda R., Jachowicz R., Mroczka J. i in. Stan i perspektywy rozwojowe metrologii jako interdyscypliny naukowej (w skali globalnej). Informator o działalności komitetu Metrologii i Aparatury Naukowej PAN w kadencji 2010 – 2014. Zielona Góra (2014) 41-72

5.3 Cytowanie publikacji

Sumaryczny <i>impact factor</i> publikacji naukowych według listy <i>Journal Citation Reports</i> (JRC), zgodnie z rokiem opublikowania:	17.8
Cytowania według bazy Web of Science:	
Sumaryczna liczba cytowań publikacji:	282
Sumaryczna liczba cytowań publikacji bez autocytowań:	227
Indeks Hirscha według bazy Web of Science:	9

5.4 Udział w konferencjach:

A) Referaty wygłoszone przez R. Brodę na konferencjach międzynarodowych:

- 1979 Sympozjum RWPG nt. "Metody wytwarzania i pomiarów wzorcowych źródeł i roztworów", Mariańskie Łaźnie, Czechosłowacja – Broda R., Radoszewski T. Badanie impulsów wtórnych w liczniku z ciekłym scyntylatorem (w języku rosyjskim). - opublikowany w materiałach konferencyjnych.
- 1980 II Międzynarodowa Konferencja „Low activities”, Strbskie Pleso, Czechosłowacja – Broda R., Radoszewski T. Scintillation detector with anticoincidence shield for

- determination of the radioactive concentration of standard solutions. - opublikowany w materiałach konferencyjnych.
- 1984 II Sympozjum RWPG nt. "Metody wytwarzania i pomiarów wzorcowych źródeł i roztworów", Copak, Węgry – Broda R. Teoretyczne określenie wydajności pomiaru ^{55}Fe w ciekłym scyntylatorze w porównaniu z danymi eksperymentalnymi (w języku rosyjskim). - opublikowany w materiałach konferencyjnych.
- 1985 5^a Konferencja ICRM i spotkanie Grup Roboczych, Grenoble, Francja – Broda R. Some remarks on statistical distribution of photons and photoelectrons in liquid scintillation detectors.
- 1987 6^a Konferencja ICRM, Rzym, Włochy – Broda R., Pochwalski K., Radoszewski T. Standardization of the ^{109}Cd - $^{109\text{m}}\text{Ag}$ solution by a triple-to-double coincidence ratio method.
- 1991 8^a Konferencja ICRM nt. "Radionuclide Metrology and its Application", Madryt, Hiszpania – Broda R., Pochwalski K. The enhanced triple to double coincidence ratio (ETDCR) method for standardization of radionuclides by liquid-scintillation counting. - opublikowany w *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*
- 1992 Międzynarodowa Konferencja nt. "Advances in liquid-scintillation spectrometry", Austriackie Towarzystwo Spektrometrii Ciekło-scyntylicyjnej, Wiedeń, Austria – Broda R., Pochwalski K. The ETDCR method of standardizing ^{55}Fe and ^{54}Mn . - opublikowany w *RADIOCARBON*.
- 1997 11^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide Metrology and its Applications”, Gaithersburg, Md. USA – Broda R., Péron M., Cassette P., Terlikowska T., Hainos D. Standardization of ^{139}Ce by liquid scintillation counting using the triple to double coincidence ratio method. - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*
- 1999 Konferencja Koreańskiego Towarzystwa Fizycznego, Pusan, Rep. Pd. Korei – Broda R. Application of liquid scintillation counting (LSC) for radionuclide activity determination.
- 2001 13^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide Metrology and its Applications”, Braunschweig, Niemcy – Broda R., Małetka K., Terlikowska T., Cassette P. Study of the influence of the LS-cocktail composition for the standardisation of radionuclides using the TDCR model. - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*
- 2002 Międzynarodowa Konferencja Centrum Doskonałości Komisji Europejskiej - Badania Interdyscyplinarne i Zastosowania Fizyki Jądrowej i Atomowej (IDRANAP) nt. "Applications of high precision atomic & nuclear methods", Neptun, Rumunia – Broda R., Chyliński A., Radoszewski T., Małetka K., Terlikowska-Drożdżiel T. The national standard of the radionuclides activity unit in Poland. - opublikowany w materiałach konferencyjnych.
- 2003 14^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide Metrology and its Applications”, ICRM 2003, Dublin, Irlandia – Broda R., Jęczmieniowski A. Statistics of the LS-detector in the case of low counting efficiency. - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*
- 2005 12^e Spotkanie EUROMET QS-Forum, Bukareszt, Rumunia – Broda R. Presentation of the quality system.
- 2005 15^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide Metrology and its Applications”, ICRM 2005, Oxford, Wielka Brytania – Broda R., Dziel T. Technical comparison of ^{63}Ni by using the TDCR method (preliminary analyse).

- 2009 4^e Spotkanie EURAMET TC-Quality, Thessaloniki, Grecja – Broda R. Presentation of the QMS re-evaluation.
- 2011 18^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide Metrology and its Applications”, ICRM 2011, Tsukuba, Japonia – Broda R., Dziel T., Muklanowicz A. Standardization of a ⁸⁵Sm solution by three methods; - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*; - przewodniczący sesji.

B) Referaty wygłoszone przez R. Brodę na konferencjach krajowych:

- 1980 I Krajowa Szkoła Techniki Ciekłych Scyntylatorów, Kołobrzeg.
- 1985 Krajowe Sympozjum IFTJ i AGH nt. "Rozwój i zastosowanie metod izotopowych w technice", Zakopane – Pochwalski K., Broda R., Radoszewski T. Bezwzględny pomiar aktywności czystych emiterów beta licznikiem scyntylicyjnym z ciekłym scyntylatorem. - opublikowany w materiałach konferencyjnych.
- 1994 Seminarium Ośrodka Świerk nt. "Technika Ciekłych Scyntylatorów w zastosowaniu do pomiarów aktywności radionuklidów", Świerk
- 2001 Krajowe Sympozjum nt. "Radiochemia i Chemia Jądrowa", Kazimierz Dolny – Chyliński A., Broda R., Radoszewski T. Państwowy wzorzec jednostki miary aktywności promieniotwórczej radionuklidów i wzorce pochodne.
- 2010 XIII Spotkanie SIOR, Dymaczewo Nowe – Broda R. Akredytacja laboratoriów w zakresie wzorcowania mierników skażeń powierzchniowych.
- 2011 XIV Spotkanie Stowarzyszenia Inspektorów Ochrony Radiologicznej (SIOR), Mikorzyn – Broda R. Wzorzec Państwowy J.M.A.P.R. i system przekazywania jednostki miary.

C) Plakaty na konferencjach międzynarodowych:

- 2007 16^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide metrology and its applications”, ICRM 2007, Cape Town, Afryka Południowa. – Broda R. Some remarks on photons statistics in the LS-counter. - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*
- 2009 17^a Konferencja ICRM nt. „Radionuclide metrology and its applications”, ICRM 2009, Bratysława, Słowacja. – Broda R., Dziel T., Muklanowicz A., Listkowska L., Pieńkowski Ł., Patocka A., Kołakowska E. Comparison of ⁹⁹Tc^m and ¹³¹I in Polish hospitals, 2007. - opublikowany w *Appl. Radiat. Isot.*

D) Plakaty na konferencjach krajowych:

- 2008 XI Sympozjum Polskiego Towarzystwa Medycyny Nuklearnej, Gliwice – Broda R., Dziel T., Muklanowicz A., Listkowska L., Pieńkowski Ł., Patocka A., Kołakowska E. Porównanie pomiarów ⁹⁹Tc^m i ¹³¹I w placówkach medycyny nuklearnej w Polsce, 2007.

E) Inne konferencje międzynarodowe:

- 1981 Międzynarodowe Sympozjum nt. "Methods of low-level counting and spectrometry", Berlin Zachodni, Niemcy –Pochwalski K., Broda R., Radoszewski T., Żelazny P. Standardization of low-level beta-emitter solutions by using the liquid-scintillation triple-to-double coincidence ratio (TDCR) method. - opublikowany w materiałach konferencyjnych.

2005 Międzynarodowa Konferencja nt. „Advances in liquid scintillation spectrometry” (LSC 2005), Katowice – przewodniczący sesji.

F) Uczestnictwo w międzynarodowych spotkaniach specjalistów:

Jako współautor prac dotyczących podstaw metody TDCR oraz modelu obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem [Pochwalski i in., 1988; Broda i in., 1988], zostałem zaproszony w 1993 r. przez dr. T. Quinna, dyrektora BIPM, do uczestnictwa w pracach Komitetu Konsultacyjnego dla Wzorców Pomiarowych Promieniowania Jonizującego (CCEMRI - Comité Consultatif pour les Étalons de Mesure des Rayonnements Ionisants) w Sekcji II (Pomiary Radionuklidów). Uczestniczyłem w 10 spotkaniach CCEMRI(II), a następnie CCRI(II), które były roboczymi dyskusjami specjalistów z kilkudziesięciu państw na temat planu kluczowych porównań pomiarów aktywności radionuklidów, uzyskanych wyników porównań i szacowania ich niepewności, funkcjonowania międzynarodowego systemu referencyjnego (SIR), planów pracy Grup Roboczych i sprawozdań z działalności naukowo – badawczej zrzeszonych laboratoriów. Na każdym posiedzeniu Komitetu Konsultacyjnego przedstawiałem informacje o działalności i publikacjach LWR. Brałem udział w pracach Grupy Roboczej Ciekłych Scyntylatorów w ICRM prezentując m.in. referat dotyczący analizy stosowania metody CIEMAT/NIST do pomiaru aktywności ^{55}Fe przy użyciu ^3H jako traseru. Przygotowane przeze mnie kody obliczeniowe TDCRB-02 (statystyka Poissona) i TDCRB-2p (statystyka Polya) oraz ich szczegółowe opisy zostały umieszczone na stronie internetowej Grupy Roboczej. Brałem też udział w pracach Grupy Roboczej do Rozszerzenia SIR w CCRI(II). Przedstawiłem argumenty w dyskusji o tym, która z metod, TDCR czy CIEMAT/NIST, powinna być wprowadzona do międzynarodowego systemu referencyjnego rozszerzonego na pomiary β -emiterów (ESIR).

1993 12^e Spotkanie Sekcji II CCEMRI, BIPM, Sèvres, Francja

1995 13^e Spotkanie Sekcji II CCEMRI, BIPM, Sèvres, Francja

1997 14^e Spotkanie Sekcji II CCEMRI, BIPM, Sèvres, Francja

2000 EUROMET Contact Person Meeting - RAD, Oseras, Norwegia.

Na spotkaniu przedstawiłem kompetencje pomiarowe i możliwości kalibracyjne laboratorium LWR w Świerku i dyskutowałem zasady tworzenia baz do przechowywania takich danych.

2001 16^e Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja

2002 Warsztaty EUROMET „Metrology in the European Research Area” (MERA), Rotterdam, Holandia

2003 17^e Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja

2004 Warsztaty BIPM nt. „Porównania pomiarów aktywności CCRI(II)”, BIPM, Sèvres, Francja

2005 18^e Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja.

Na spotkaniu przedstawiłem wstępne wyniki międzynarodowego porównania pomiarów aktywności źródeł ^{63}Ni metodą TDCR [Razdolescu i in., 2006]. Byłem inicjatorem tego porównania, w którym wzięło udział laboratorium LNHB z Francji, IFIN-HH z Rumunii, NAC z Rep. Południowej Afryki i LWR. Źródła były przygotowane w scyntylatorze Ultima Gold[®], zmierzone w LNHB, a następnie przesłane do pomiarów porównawczych w innych laboratoriach. Przedyskutowałem wyniki porównania w czasie wizyty w LNHB. Wykonałem zestawienie i analizę rezultatów pomiarów, wykazując istnienie różnic wynikających z różnych założeń przyjętych w modelu obliczania wydajności pomiaru.

- 2007 19^o Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja
- 2008 2^o Warsztaty BIPM nt. „Porównania pomiarów aktywności i ich niepewności CCRI(II)”, BIPM, Sèvres, Francja
- 2009 20^o Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja
- 2011 21^o Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja
- 2012 Spotkanie Grupy Roboczej Ciekłych Scyntylatorów ICRM, Braunschweig, Niemcy.
Wygłosiłem referat nt. sposobu obliczania funkcji gaszenia jonizacyjnego. Wskazałem na niespójność przyjmowanych założeń i postawiłem hipotezę o konieczności wprowadzenia dodatkowej funkcji opisującej stratę energii elektronu w ciekłym scyntylatorze przy energiach mniejszych od 1 keV.
- 2013 22^o Spotkanie Sekcji II CCRI, BIPM, Sèvres, Francja

5.5 Uczestnictwo w projektach badawczych:

- 1991-93 American-Polish Maria Skłodowska-Curie Joint Foundation II Project Nr PAA/NIST-91-54 nt. "Development of Radioactive Standard Reference Materials by Liquid-Scintillation Counting Techniques", (współpraca z National Institute of Standards and Technology, NIST, Gaithersburg, USA) – wykonawca.
Brałem udział w wykonywaniu pomiarów aktywności czystych β -emiterów w liczniku potrójnym. Analizowałem opracowany model obliczania wydajności detekcji licznika potrójnego [Pochwalski i in. 1988; Broda i in., 1988] i porównywałem wyniki obliczeń z punktami eksperymentalnymi. Wykonywałem modyfikację stosowanych kodów obliczeniowych.
- 1994-96 EUROMET Project Nr 297 nt. "Comparison of Activity Measurement Methods in Liquid-Scintillation Counting and Application to the Standardization of ^{63}Ni and ^{55}Fe " – główny wykonawca ze strony polskiej.
Wprowadziłem modyfikacje do modelu obliczania wydajności pomiaru ^{63}Ni i ^{55}Fe i uzgadniałem algorytm kodu obliczeniowego z laboratorium LPRI we Francji. Wykonałem pomiary serii próbek metodą TDCR zmieniając wydajność detekcji różnymi sposobami i porównywałem je z wynikami uzyskanymi metodą CIEMAT/NIST. Wyzaczyłem wartość parametru gaszenia jonizacyjnego dla scyntylatora Ultima Gold[®]. Wyniki realizacji projektu zostały opublikowane [Cassette i in., 1998].
- 1995-97 Francusko-polski projekt współpracy naukowo – technicznej Nr 5212 nt. "Development of radioactive standard sources by use of the liquid scintillation technique" (współpraca z LPRI, Saclay, Francja) – koordynator i główny wykonawca ze strony polskiej.
Wykonałem modyfikację modelu obliczania wydajności pomiaru dla ^{139}Ce wprowadzając efekty wynikające z oddziaływania ze scyntylatorem fotonów rozproszonych komptonowsko. Wykonałem pomiary aktywności serii źródeł ^{139}Ce metodą TDCR i porównywałem z wynikami uzyskanymi w LPRI [4]. Analiza wyników uzyskanych w obu laboratoriach pozwoliła wykryć drobne błędy programistyczne i uzgodnić wersje kodów obliczeniowych. Wykonałem pomiary testujące stabilność źródeł ^{63}Ni i ^{55}Fe , które umożliwiły optymalizację kompozycji koktajlu scyntylacyjnego. Wykonałem pomiary serii źródeł ^3H w ramach porównania międzynarodowego i wyznaczyłem ich aktywności stosując przygotowany kod

obliczeniowy [Broda, 1989]. Analiza pomiarów pozwoliła wyjaśnić rozbieżności wyników uzyskanych LWR i LPRI.

- 1998-2000 Francusko-polski projekt współpracy naukowo - technicznej POLONIUM Nr 98228 nt. „Elaboration of a method of activity measurements of α -radionuclides in presence of β - and EC-emitters in the liquid samples”, (współpraca z LPRI, Saclay, Francja) – koordynator ze strony polskiej i wykonawca.

Stosowałem metodę TDCR do pomiarów stężenia promieniotwórczego roztworów β -emiterów wykorzystanych przy realizacji projektu. Wykonałem analizę modelu obliczania wydajności pomiaru niskoenergetycznych β -emiterów i wykazałem jego ograniczenie dla małych liczb rejestrowanych fotonów scyntytacji. Wykonałem obliczenia aktywności ^3H i ^{63}Ni przy zmianie wydajności detekcji różnymi sposobami. Uczestniczyłem we wspólnej analizie wyników pomiarów i przygotowaniu publikacji [6].

- 2001-2002 Francusko-polski projekt współpracy naukowo - technicznej POLONIUM 2002 nt. „Rozwój metod standaryzacji radionuklidów stosowanych w medycynie nuklearnej za pomocą techniki ciekłych scyntylatorów”, (współpraca z LNHB, Saclay, Francja) – koordynator ze strony polskiej i wykonawca.

We współpracy z laboratorium LNHB wykonałem analizę eksperymentów, w których obliczani stratę energii cząstki jonizującej na jednostkę drogi (stopping power) w toluenie. Wnioski z tych eksperymentów wykorzystałem w modelu obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem i przygotowałem udoskonalony kod obliczeniowy TDCRB-02. Wykonałem pomiary serii źródeł w koktajlach scyntyacyjnych o różnym składzie chemicznym i wyznaczyłem wartość parametru gaszenia jonizacyjnego [Broda i in., 2002].

- 2011- EURAMET Joint Research Project ENV09 MetroRWM “Metrology for radioactive waste management”, (13 JRP partnerów; koordynator: CMI, Republika Czeska) – wykonawca.

Brałem udział w analizie sposobu przygotowania wzorcowych próbek odpadów promieniotwórczych zawierających ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{57}Co , ^{241}Am i ^{90}Sr oraz metod ich pomiaru.

- 2011- EURAMET Joint Research Project IND04 MetroMetal “Ionizing radiation metrology for the metallurgical industry”, (14 JRP partnerów; koordynator: CIEMAT, Hiszpania) – wykonawca.

Brałem udział w analizie sposobu przygotowania stalowych, żuźlowych i pyłowych wzorcowych próbek promieniotwórczych zawierających ^{137}Cs , ^{60}Co i ^{226}Ra oraz metod ich pomiaru.

5.6 Działalność dydaktyczna, popularyzatorska i organizacyjna:

Ośrodek Radioizotopów POLATOM w Świerku jest jednostką badawczą – rozwojową prowadzącą badania nad zastosowaniami izotopów w nauce, medycynie, przemyśle i ochronie środowiska. W Ośrodku produkowane są radiofarmaceutyki oraz różne rodzaje źródeł i roztworów promieniotwórczych. OR POLATOM nie prowadzi działalności dydaktycznej w formie wykładów dla studentów. Moją działalnością dydaktyczną była opieka nad dwoma młodymi fizykami – stażystami w LWR (2005, 2012). Prowadziłem ich szkolenie w zakresie metod pomiarowych stosowanych w laboratorium, detektorów promieniowania jonizującego i techniki ciekłych scyntylatorów. Szkolenie obejmowało również wykonywanie pomiarów

aktywności radionuklidów metodą TDCR, interpretację wyników i szacowanie niepewności pomiaru. Opiekowałem się również dwoma stażystami Międzynarodowej Agencji Energii Atomowej (IAEA) w czasie 1-miesięcznych stażów oraz studentami w czasie praktyk wakacyjnych w LWR. Prezentowałem zagadnienia metrologii radionuklidowej i metody pomiarowe stosowane w LWR grupom studenckim i specjalistom odwiedzającym OR POLATOM. Prowadziłem też działalność dydaktyczną pracując jako nauczyciel fizyki w szkole średniej w Warszawie (1972-75).

Wyniki prac w obszarze metrologii radionuklidowej prezentowałem na corocznych seminariach w OR POLATOM. Na ogólnym seminarium Ośrodka Świerk (1994) wygłosiłem referat „Technika LSC w zastosowaniu do pomiaru aktywności radionuklidów”. W ramach działalności popularyzatorskiej wygłosiłem w Głównym Urzędzie Miar (GUM) referat o historii i rozwoju metrologii radionuklidowej w LWR [Broda i Pochwalski, 2011]. Opublikowałem też 4 artykuły i wygłosiłem 2 referaty na konferencjach krajowych nt. Państwowego Wzorca Jednostki Miary Aktywności Promieniotwórczej Radionuklidów, istniejącego w OR POLATOM oraz jego znaczenia w Systemie Metrologicznym w Polsce.

Moja działalność organizacyjna związana była z kierowaniem Pracownią Pomiarów Aktywności i Czystości Radionuklidowej (1977-95), a następnie Zakładem Metrologii Materiałów Promieniotwórczych (1996-2002) i LWR (2005-6). Zostałem Kierownikiem Laboratorium gdy po restrukturyzacji OR POLATOM zostało utworzone LWR. Opracowałem koncepcję funkcjonowania i zakresu działania laboratorium. Jednym z efektów mojej działalności organizacyjnej było doprowadzenie do ustanowienia Państwowego Wzorca Jednostki Miary Aktywności Promieniotwórczej Radionuklidów w OR POLATOM (1999), wdrożenie Systemu Zapewnienia Jakości i uzyskanie akredytacji przez LWR (2008). Pełnię funkcję opiekuna państwowego wzorca. Zaprojektowałem i uczestniczyłem w uruchamianiu nowego koincydencyjnego licznika scyntylacyjnego (TDKG) z licznikiem TDCR w torze beta i licznikiem scyntylacyjnym z kryształem NaI(Tl) w torze gamma. Licznik TDKG po wykonaniu pomiarów testowych zastąpił niektóre przestarzałe układy pomiarowe państwowego wzorca.

5.7 Współpraca z instytucjami, organizacjami i towarzystwami naukowymi

A) Stypendia i kontrakty naukowe w ośrodkach zagranicznych:

1987-88 Stypendium Międzynarodowej Agencji Energii Atomowej (IAEA), LPRI, Saclay, Francja, (12 miesięcy).

Program badawczy stypendium dotyczył określania aktywności radionuklidów techniką ciekłych scyntylatorów. Wykonywałem pomiary aktywności niskoenergetycznych radionuklidów ^3H i ^{55}Fe w potrójnym liczniku koincydencyjnym metodą TDCR. Uruchomiłem program w języku CASIC sterujący pracą licznika. Wyzaczyłem charakterystyki licznika. Przygotowałem program w języku FORTRAN do obliczania jego wydajności detekcji. Zbadałem zmiany wydajności detektora przy defokalizacji fotopowielaczy stosując diodę elektroluminescencyjną do symulacji źródła promieniotwórczego. Wskazałem na konieczność kontrolowania różnic między fotopowielaczami przy zmianie wydajności detekcji licznika.

1988 Stypendium Komisariatu Energii Atomowej (CEA), LPRI, Saclay, Francja, (3 miesiące).

Kontynuowałem prace wykonywane w czasie wcześniejszego stypendium IAEA.

1999 Kontrakt nt. „Standardization of beta emitting nuclides”, Brain Pool Program, Korea Research Institute of Standards and Science, Taejon, Rep. Pd. Korei (12 miesięcy).

Udoskonalilem konstrukcję mechaniczną licznika TDCR, zaprojektowałem nową komorę optyczną i modyfikację układów elektronicznych oraz wykonałem pomiary testowe aktywności czystych β -emiterów. Przeprowadzałem szkolenia dla pracowników laboratorium dotyczące podstaw i zasad stosowania metody TDCR oraz założeń przyjętych w modelu obliczania wydajności detekcji liczników z ciekłym scyntylatorem. Na konferencji Koreańskiego Towarzystwa Fizycznego wygłosiłem referat na temat stosowania techniki ciekłych scyntylatorów do określania aktywności radionuklidów.

2002 Kontrakt nt. "Assembling and testing a new TDCR system at NIST", NIST, Gaithersburg, Md, USA (6 tygodni).

Uruchomiłem i przetestowałem licznik potrójny skonstruowany w NIST. Wykonałem nową komorę optyczną i zmontowałem elementy licznika. Zmierzyłem charakterystyki napięciowe i ustaliłem warunki jego pracy. Wykonałem pomiary aktywności ^3H , ^{63}Ni i ^{90}Sr metodą TDCR. Dostosowałem kody obliczeniowe do formatu danych pomiarowych i wykonałem obliczenia z zastosowaniem różnych rozkładów statystycznych dla fotonów. Wygłosiłem w NIST seminarium „Pomiary aktywności czystych emiterów beta w skonstruowanym układzie TDCR z głowicą potrójną”. Wyniki pracy zostały opublikowane [Zimmerman i in., 2004].

2003 Kontrakt nt. "Standardising of radionuclides by the TDCR method", European Commission Center of Excellence IDRANAP, IFIN-HH, Bukareszt, (6 tygodni).

Udoskonalilem funkcjonowanie licznika potrójnego skonstruowanego w IFIN-HH. Opracowałem kod obliczeniowy dla metody TDCR i dopasowałem go do formatu danych pomiarowych. Wprowadziłem korekcje w ustawieniu poziomu dyskryminacji układu detekcyjnego. Opracowałem procedurę pomiarową i wykonałem pomiary testowe aktywności czystych β -emiterów ^3H i ^{14}C .

2004 Kontrakt nt. "Improving of the TDCR system", European Commission Center of Excellence „Interdisciplinary Research and Applications Based on Nuclear and Atomic Physics” (IDRANAP), Horia Hulubei National Institute for Physics and Nuclear Engineering (IFIN-HH), Bukareszt, Rumunia (1 tydzień).

Kontynuując prace wykonane w czasie kontraktu w 2003 r. zmierzyłem charakterystyki napięciowe licznika potrójnego i ustaliłem punkt jego pracy. Zmodyfikowałem kod obliczeniowy dla uwzględnienia asymetrii fotopowielaczy i wykonałem testowe pomiary aktywności ^3H i ^{14}C zmieniając wydajności detekcji przez stosowanie filtrów optycznych i defokalizację fotopowielaczy. Uzyskałem wyniki pomiarów zgodne w granicach 1 % z rezultatami w LNHB.

B) Działalność w polskim systemie metrologicznym :

1983-2013 Wzorcowanie aktywności radionuklidów.

W Laboratorium Metrologii, będącym jednostką kontrolującą aktywność promieniotwórczą radionuklidów, od ponad 30 lat zajmuję się wykonywaniem wzorcowań roztworów i źródeł promieniotwórczych wytwarzanych w Laboratorium oraz produkowanych w Ośrodku. Stosowałem względne metody pomiarowe: komory jonizacyjne i liczniki scyntylacyjne z kryształami NaI(Tl), a także metody bezwzględne: $4\pi(\text{LS})\text{-}\gamma$ koincydencji i antykoincydencji, TDCR oraz X- γ koincydencji. Byłem kierownikiem lub wykonawcą ponad 30 tematów badawczo – rozwojowych związanych rozwijaniem tych metod pomiarowych. Wyniki

wszystkich tematów zostały wdrożone w Laboratorium.

1996-2013 Międzynarodowe porównania pomiarów.

Laboratorium Metrologii OBRI w Świerku potwierdzało swój poziom kompetencji metrologicznych uczestnicząc w kilkudziesięciu międzynarodowych porównaniach pomiarów aktywności radionuklidów. W ciągu 30 lat brałem udział jako wykonawca lub główny wykonawca w 15 porównaniach pomiarów ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{54}Mn , ^{55}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{89}Sr , $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, ^{99}Tc , ^{125}I , ^{192}Ir , ^{204}Tl , ^{238}Pu , ^{241}Am stosując metodę $4\pi(\text{LS})-\gamma$ koincydencji i antykoincydencji oraz metodę TDCR.

1996-2011 System Zarządzania Laboratorium.

Byłem odpowiedzialny za wdrożenie i doskonalenie Systemu Zapewnienia Jakości w Zakładzie Metrologii Materiałów Promieniotwórczych w OBRI w Świerku. Utrzymanie tego systemu jest obligatoryjnym obowiązkiem laboratorium od czasu ustanowienia wzorca państwowego (1999) i jego utrzymywania w LWR. Jako Kierownik Zakładu przygotowywałem materiały i dokonywałem przeglądów Systemu Zarządzania przed corocznymi audytami GUM. Byłem współautorem dokumentacji dla uzyskania akredytacji LWR (2008).

1999 Opiekun wzorca państwowego.

Byłem głównym autorem opracowania dokumentacji dla ustanowienia Państwowego Wzorca Jednostki Miary Aktywności Promieniotwórczej Radionuklidów w Polsce zgodnie z wymaganiami Prezesa GUM. Wzorzec został ustanowiony w OBRI w Świerku, w Zakładzie Metrologii Materiałów Promieniotwórczych, którym kierowałem, a ja zostałem opiekunem wzorca. Uzyskanie certyfikatu wzorca umożliwiło laboratorium wykonywanie wzorcowań źródeł i roztworów promieniotwórczych oraz mierników aktywności na potrzeby odbiorców w Polsce.

2005-2013 Audytor techniczny PCA.

Z ramienia Polskiego Centrum Akredytacji (PCA) uczestniczyłem jako audytor techniczny w 40 audytach kilku laboratoriów dozymetrii promieniowania jonizującego w Polsce. Oceniałem kompetencje techniczne laboratorium w zakresie wzorcowań objętych akredytacją, kompetencje pracowników laboratorium i wiarygodność przedstawianych wyników oraz sprawdzałem czy wdrożony system zarządzania laboratorium działa skutecznie i zgodnie z wymaganiami normy PN-EN ISO/IEC 17025:2005.

C) Działalność w krajowych i zagranicznych organizacjach naukowych:

1992 - Polskie Towarzystwo Fizyczne - członek

1995 - Sekcja II CCRI (poprzednio: CCEMRI) - delegat, Grupa Robocza do Rozszerzenia SIR, BIPM, Sèvres, Francja.

Brałem udział w dyskusjach o rozszerzeniu systemu SIR na pomiary czystych β -emiterów i o opracowaniu referencyjnego scyntylatora ciekłego. Wyjaśniałem problemy pomiarowe i obliczeniowe przy stosowaniu metody TDCR.

1995-2005 Rada Naukowa Ośrodka Badawczo – Rozwojowego Izotopów - członek, Świerk.

Brałem udział w pracach Rady Naukowej OBRI, a m.in. w dyskusjach o restrukturyzacji Ośrodka. W ramach Komisji Ekonomicznej brałem udział

w analizowaniu efektów ekonomicznych działalności Ośrodka i przygotowywaniu sprawozdań dla RN OBRI.

1997 - ICRM – członek Komitetu Wykonawczego, Grupa Robocza Techniki Ciekłych Scyntylatorów.

Uczestniczę w omawianiu bieżącej działalności ICRM i ustalaniu harmonogramu jego pracy. Biorę udział w spotkaniach specjalistów Grupy Roboczej. Prezentuję referaty na cyklicznych konferencjach ICRM organizowanych co 2 lata.

2005 - Polskie Centrum Akredytacji – audytor techniczny, Warszawa.

Zostałem wskazany przez Francuskie Stowarzyszenie Normalizacyjne AFNOR do uczestniczenia w audycie akredytacyjnym GUM (2005). Uzyskałem uprawnienia audytora technicznego PCA. Biorę udział w audytach laboratoriów dozymetrii promieniowania jonizującego w Polsce.

2011 - Komitet Metrologii i Aparatury Naukowej PAN - członek, Wrocław.

Ze względu na działalność w dziedzinie metrologii radionuklidowej i sprawowanie opieki nad wzorcem państwowym w Instytucie Desygnowanym (DI), jakim jest OR POLATOM, zostałem zaproszony przez prof. J. Mroczkę, przewodniczącego KMİAN PAN, do pracy w tym Komitecie i nominowany na jego członka. Wziąłem udział w przygotowaniu materiałów do raportu o stanie i perspektywach rozwojowych metrologii jako interdyscypliny naukowej, opublikowanego pod redakcją prof. J. Gajdy w informatorze o działalności KMİAN PAN (2014). Przygotowałem prognozę dotyczącą perspektyw rozwoju pomiarów promieniowania jonizującego do 2020 r.

Ryszard Broda

Warszawa, 30.05.2014