Streszczenie

Materiały konstrukcyjne przeznaczone do budowy reaktorów jądrowych IV generacji muszą sprostać wymagającym warunkom pracy takim jak: wysoka temperatura, złożone pole naprężeń czy intensywny strumień neutronów. Jedną z głównych konsekwencji oddziaływania cząstek o wysokiej energii z materiałami jest powstawanie tzw. **defektów radiacyjnych**. Tworzą się one w wyniku transferu energii przez bombardujące cząstki do struktury materiału. Defekty te mogą przybierać różne formy: atom może zostać wybity ze swojej pozycji sieciowej, pozostawiając po sobie puste miejsce (wakans) lub tworząc tzw. atom międzywęzłowy. Ponadto, pojedyncze defekty punktowe mogą aglomerować i tworzyć skupiska defektów: pętle i linie dyslokacyjne lub tzw. błędy ułożenia (ang. Stacking Fault Tetrahedra, SFT). W celu zrozumienia procesu tworzenia się defektów w materiale wykorzystuje się **defektowanie strumieniem jonów**. Technika ta pozwala na wytworzenie defektów radiacyjnych podobnych z generowanymi przez promieniowanie neutronowe, nie powodując aktywacji próbki. Metoda ta jest znacznie tańsza od klasycznego napromieniowywania w reaktorze i oferuje szybki proces tworzenia się defektów radiacyjnych.

W związku z degradacją struktury materiałów w wyniku promieniowania, środowisko pracy reaktorów jądrowych wymaga **zastosowania materiałów o zwiększonej odporności na promieniowanie, charakteryzujących się dobrymi własnościami mechanicznymi w wysokich temperaturach i stabilnością strukturalną.** Tradycyjne materiały konstrukcyjne nie są w stanie sprostać ekstremalnym warunkom panującym w reaktorze, grożąc awarią jego elementów konstrukcyjnych. Z tego powodu konieczne jest opracowywanie i charakteryzacja nowych materiałów oraz fundamentalne zrozumienie mechanizmów tworzenia się defektów radiacyjnych, które odpowiadają za powstałe zmiany właściwości funkcjonalnych. Dobrym przykładem są materiały monokrystaliczne, które ze względu na uporządkowanie atomów w całej objętości sieci krystalicznej mogą posłużyć, jako wzorzec do modelowania odporności radiacyjnej. **Monokryształy pozwalają na fundamentalne zrozumienie własności materiałów na poziomie interakcji elektronów i atomów oraz oferują możliwość dostrajania właściwości stopów.** Poprzez manipulację składem chemicznym w monokryształach, można bezpośrednio wpłynąć na zwiększenie odporności radiacyjnej badanego materiału.

Mając na uwadze wymienione aspekty, celem prowadzanych w niniejszej pracy badań jest przeprowadzenie holistycznej analizy wpływu promieniowania oraz dodatku Fe w zakresie od 0 do 62% at. na ewolucję defektów, mikrostruktury i właściwości mechanicznych wykorzystując monokrystaliczne stopy fcc Ni_xFe_{1-x}. Do oceny odporności radiacyjnej proponowanych materiałów zostały wykorzystane techniki eksperymentalne, takie jak defektowanie strumieniem jonów, spektrometria z rozpraszaniem wstecznym Rutherforda w trybie kanałowania (RBS/C). Następnie widma RBS/c zostały dopasowane za pomocą symulacji Monte Carlo (MC) wykorzystując kod McChasy rozwijany w Narodowym Centrum Badań Jądrowych (NCBJ). Kinetyka, powstawania defektów radiacyjnych, została zbadana na podstawie modelu MSDA. Poziom zniszczeń radiacyjnych (ang. displacement per atom) został obliczony przy użyciu programu Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM). Dodatkowo przeprowadzono badania z wykorzystaniem skaningowego mikroskopu elektronowego wyposażonego w system zogniskowanej wiązki jonów

(SEM/FIB) oraz transmisyjnej mikroskopii elektronowej (TEM) w celu weryfikacji typów defektów radiacyjnych i ich koncentracji/gęstości w funkcji fluencji jonów oraz dodatku żelaza. Pozwoliło to zrozumieć mechanizm migracji defektów, ich akumulacji oraz rozróżnić poszczególne typy defektów radiacyjnych. Ponadto wykonano szereg symulacji z wykorzystaniem dynamiki molekularnej (MD-LAMMPS) w celu zrozumienia mechanizmów tworzenia się konkretnych typów defektów w różnych składach chemicznych na poziomie atomowym. Wykonano również szereg testów nanomechanicznych. W tym celu wykorzystano technikę nanoindentacji, która pozwoliła określić zmiany twardości w funkcji fluencji jonów, a także w funkcji dodatku żelaza w stanie wyjściowym oraz po implantacji jonowej. W celu weryfikacji wpływu podwyższonej temperatury na badane materiały wykorzystano wysokotemperaturowe defektowanie strumieniem jonów w temperaturze ~526°C na przykładzie monokryształu Ni, w celu określenia liczby defektów, profili głębokości, własności mechanicznych oraz strukturalnych.

Przedstawione w niniejszej pracy wyniki eksperymentalne i numeryczne **uzupełniają braki literaturowe** związane z analizą powstawania defektów **przy konkretnych poziomach zniszczeń radiacyjnych oraz w danych składach chemicznych**. Ponadto wiedza na temat dostrajania składu chemicznego w monokryształach poszerza zrozumienie istotnych właściwości, specyficznych dla danego pierwiastka, które skutecznie łagodzą uszkodzenia radiacyjne i kontrolują reakcję materiału w ekstremalnych środowiskach. Rezultaty niniejszej pracy pozwalają również ustalić podstawowe metody, techniki i sposób interpretacji wyników badań monokryształów Ni_xFe_{1-x} napromieniowanych jonami. Przedstawione rezultaty są, zatem kluczowe w uzupełnieniu badań nowych materiałów konstrukcyjnych, rozważanych do użycia w zaawansowanych koncepcjach Reaktorów Jądrowych IV Generacji, jak również w innych, powiązanych zastosowaniach.

Słowa kluczowe: Monokryształy fcc Ni_xFe_{1-x}, Kanałowanie jonów (RBS/C), Transmisyjny Mikroskop Elektronowy (TEM), Defekty radiacyjne, Reaktory Jądrowe IV Generacji, Nanoindentacja, Symulacje Monte Carlo.

Edyta Wyszkowska

Abstract

The core of a nuclear reactor experiences an extreme environment of high temperature, high stress, chemical reactivity, and intense radiation flux. In particular, the structural materials for Generation IV concept fission reactors will be subjected to exceptional fluxes of high-energy neutrons and extreme operating temperatures. One of the main consequences of the interaction of high-energy particles with materials is **the formation of lattice defects** resulting from the energy transfer to the atoms. The defects can take many forms: an atom can be kicked out from its initial lattice site, leaving an empty site (a vacancy) behind and creating an atom at an interstitial site in front, there may be defect clusters (aggregation of small defects), dislocation loops or three-dimensional defects. Importantly, **energetic ions** can be used to understand the effects of neutron irradiation in reactor components, avoiding high residual radioactivity and the decline of neutron sources for materials irradiation. As opposed to extremely costly, lengthy, and complicated neutron irradiation, ion irradiation has been widely adopted due to its low costs, short irradiation times, and controllable irradiation conditions.

Due to the structural degradation of the materials under the influence of radiation, the operating environment of a nuclear reactor requires **the use of materials with increased resistance to radiation, characterized by good mechanical and structural properties, especially at high temperatures.** Traditional construction materials are not able to withstand the extreme conditions inside the reactor, which can result in failure of their structural components. For this reason, **it is necessary to develop and characterize new materials and fundamentally understand the mechanisms of radiation defect formation.** In this context, the single-crystalline materials serve as good references, as they can be used as templates for modeling radiation resistance thanks to the uniform arrangement of atoms in the entire volume of their crystal lattice. **Single crystals allow for a fundamental understanding of the properties of materials at the electronic and atomic level and offer the possibility of tuning the properties of alloys.** By manipulating the chemical composition in single crystals, it is possible to directly influence the increased radiation resistance of the tested material.

Therefore, the aim of the presented study is to conduct a holistic analysis of the effect of radiation and Fe addition in the range from 0 to 62 at.% on the evolution of defects, microstructure, and mechanical properties using a model material such as single-crystal fcc Ni_xFe_{1-x} alloy. State-of-the-art experimental techniques, such as ion implantation and Rutherford backscatter spectrometry in channeling mode (RBS/C), were utilized to assess the radiation resistance of the proposed materials. Then, the RBS/c spectra were fitted by Monte Carlo (MC) simulations using the McChasy code developed at the National Center for Nuclear Research (NCBJ), which allowed to determine the number of defects, their distribution, and migration within the single crystals. The RBS/C technique helped to identify the level of radiation damage for the considered compositions at a specific ion fluence. Moreover, the kinetics of defect formation was calculated based on the Multi-Step Damage Accumulation Model (MSDA). The level of radiation damage (displacement per atom) was calculated using the Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM) program. Subsequently, studies were carried

out using a scanning electron microscope equipped with a focused ion beam system (SEM/FIB) and transmission electron microscopy (TEM) to verify the types of radiation defects and their concentration/density as a function of ion fluence and iron addition. This made it possible to understand the mechanism of defect migration, their accumulation, and to distinguish between individual types of radiation defects. Additionally, a number of molecular dynamics simulations with the Large-Scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (MD-LAMMPS) were performed to understand the formation mechanisms of specific types of defects in various chemical compositions. The nanoindentation technique was used to determine the mechanical changes as a function of ion fluence, and as a function of iron addition in the initial state and after ion implantation. To verify the effect of elevated temperature, a Ni single crystal was irradiated at a temperature of ~526°C to determine the number of defects, depth profiles, mechanical and structural properties.

The experimental and numerical results obtained in this work **fill the gaps in the literature related to the analysis of defect formation at specific radiation damage levels and in specific chemical compositions**. Additionally, the knowledge about tuning the chemical composition in single crystals revealed by the conducted study expands the understanding of important element-specific properties that effectively mitigate radiation damage and control the material's response in extreme environments. The study also establishes basic methods, techniques, and interpretation of results obtained from the investigation of ion-irradiated Ni_xFe_{1-x} single crystals. Therefore, the study outcomes are crucial for complementing the research on new structural materials considered for the construction of advanced Generation IV Nuclear Reactors or related applications.

Keywords: fcc Ni_xFe_{1-x} single crystals, Ion channeling (RBS/c), Transmission Electron Microscopy (TEM), Radiation defects, Generation IV Nuclear Reactors, Nanoindentation, Monte Carlo Simulations

Edyta Wyszkowska