

Dr hab. Zygmunt Szefliński
Uniwersytet Warszawski
Środowiskowe Laboratorium Ciężkich Jonów
ul. Pasteura 5A, 02-093 Warszawa
e-mail: szef@fuw.edu.pl

Warszawa, 15 listopada 2023 r.

Recenzja rozprawy doktorskiej

mgr Eweliny Kucal

pt. „Modeling of neutron radiation damage in ceramic construction materials for the Dual Fluid Reactor using heavy ions”

1. **Wartość naukowa rozprawy**

Oryginalność badań

Rozprawa doktorska mgr Eweliny Kucal pt. „Modeling of neutron radiation damage in ceramic construction materials for the Dual Fluid Reactor using heavy ions” została wykonana w ramach studiów doktoranckich w projekcie PhD4GEN prowadzonych w Narodowym Centrum Badań Jądrowych (NCBJ) pod kierunkiem prof. dr hab. Konrada Czerskiego z Uniwersytetu Szczecińskiego i dr Cypriana Mieszczyńskiego z NCBJ.

Dla rozwiązania problemów energetycznych poza klasycznymi reaktorami lekkowodnymi, takimi jak reaktory wodne ciśnieniowe (PWR) i reaktory wodne wrzące (BWR) generacji III i III+, poszukuje się nowych rozwiązań. Takim krokiem w technologii reaktorowej może być konstrukcja reaktora wysokotemperaturowego IV generacji wykorzystującego prędkie neutrony, który dzięki wysokim temperaturom ma wyższą wydajność, a także może produkować ciepło przemysłowe. Autorka rozprawy rozważa jakie materiały konstrukcyjne można zastosować w reaktorze dwupłynowym (Dual Fluid Reactor - DFR), który jest nową koncepcją reaktora wysokotemperaturowego.

Podjęta przez doktorantkę problematyka badawcza skupia się na zbadaniu możliwości wykorzystania jonów do symulacji uszkodzeń spowodowanych promieniowaniem neutronowym w węglu krzemu, który jest potencjalnym materiałem konstrukcyjnym dla reaktora wysokotemperaturowego wykorzystującego prędkie neutrony (w tym DFR). Materiały konstrukcyjne dla DFR muszą być odporne na bardzo wysokie temperatury, korozję oraz promieniowanie, dlatego poza innymi materiałami ceramicznymi węgiel krzemu jest poważnie brany pod uwagę jako materiał konstrukcyjny dla DFR.

Badania uszkodzeń radiacyjnych wywołanych prędkimi neutronami wymagają długotrwałych i kosztownych badań, ale doktorantka uprościła problem badawczy wykorzystując fakt, że oddziaływanie prędkich neutronów z węglikiem krzemu sprowadza się do wybijania głównie jąder atomów krzemu i węgla, które są hamowane w ośrodku poprzez jądrowe i elektronowe straty energii, a procesy transferu energii do ośrodka można badać pomijając oddziaływanie neutronów. Badając oddziaływanie jonów Si oraz C z węglikiem krzemu redukuje się poważnie czas eksperymentów weryfikujących obliczenia numeryczne. Tak więc autorka niniejszej rozprawy znajduje zastępcze rozwiązanie problemu badawczego rozważając oddziaływanie jonów węgla i krzemu z ośrodkiem, zamiast oddziaływania pierwotnych neutronów prędkich, których

oddziaływanie z ośrodkiem sprowadza się głównie do sprężystego i niesprężystego rozpraszania na jądrach atomów ośrodka (wtedy powstają jony węgla i krzemu) oraz inicjowania reakcji jądrowych w wyniku których powstają lekkie cząstki naładowane. Naturalnym jest, że autorka ogranicza swoje badania do najistotniejszych efektów wywołanych przez pierwotnie wybite jądra C oraz Si z zakresu energii charakterystycznych dla inicjowanych przez prędkie neutrony z DFR.

Autorka niniejszej rozprawy wybrała metodę badawczą polegającą na symulacji procesów zachodzących przy oddziaływaniu cząstek naładowanych (jakie pojawiają się w ośrodku w wyniku oddziaływania neutronów o energiach charakterystycznych dla DFR) z potencjalnym materiałem konstrukcyjnym DFR. Wyniki symulacji zostały zweryfikowane w serii eksperymentów, a to utwierdza nas w przekonaniu, że obliczenia symulacyjne można prowadzić dla kolejnych potencjalnych materiałów konstrukcyjnych reaktorów i niekoniecznie każdy wynik obliczeń należy weryfikować doświadczalnie. Przeprowadzone eksperymenty wskazują, że obliczenia przewidują precyzyjnie powstawanie defektów w napromienianym materiale, które obserwuje się w doświadczeniu. Obliczenia i eksperymenty pokazują jak energie elektronów są przekazywane do otaczających trajektorię jonu atomów i podgrzewania siatki krystalicznej wokół trajektorii, aż do stopienia materiału. Autorka rozprawy zdaje sobie sprawę, że przeprowadzone obliczenia i eksperymenty wskazujące na mechanizmy naprawy uszkodzeń działają przy względnie niskich przekazach energii. Jednakże uzyskane wyniki jednoznacznie wskazują, że SiC może być rozważany jako materiał konstrukcyjny dla DFR. Podejście do badań zaprezentowane w niniejszej rozprawie pozwala obniżyć czas i koszty, co jest niezwykle istotne w procesie projektowania DFR a potem bezpiecznej eksploatacji takich reaktorów.

2. Wartość merytoryczna rozdziałów rozprawy

Treść rozprawy mgr Eweliny Kucal jest zgodna z tytułem pracy – „Modeling of neutron radiation damage in ceramic construction materials for the Dual Fluid Reactor using heavy ions”. Rozprawa liczy siedem rozdziałów przedstawionych na 107 stronach. Jest napisana w języku angielskim i została starannie opracowana i wydana. Zawiera dobrze dobrane rysunki i tabele, które są istotnym elementem pracy, a jakość rysunków i poziom edycji przytoczonych równań nie budzi zastrzeżeń. Rozprawa zawiera też listę 130 pozycji literaturowych bardzo trafnie dobranych, które mogą być przewodnikiem po tematyce zaprezentowanych w rozprawie badań, oraz listę tabel i rysunków.

Autorka uzasadniła potrzebę prowadzenia badań, które są przedmiotem rozprawy i już w pierwszym rozdziale jasno sformułowała cel pracy i hipotezy badawcze oraz przedstawiła metody wiodące do realizacji celu. Pokazała jak można wybrać materiały dla reaktorów DFR i badać uszkodzenia radiacyjne takich materiałów wywołane przez prędkie neutrony o energiach charakterystycznych dla DFR. Istotnym elementem rozprawy jest propozycja zastępczego badania uszkodzeń radiacyjnych wywołanych neutronami przez badanie oddziaływania cząstek naładowanych wybijanych w SiC, a zatem oddziaływania jonów krzemu i węgla z węglikiem krzemu. Jest to ciekawe i użyteczne podejście zastępcze, jako że średnia droga swobodna neutronu i ciężkiego jonu różni się ponad sześć rzędów wielkości.

Oddziaływanie jonów węgla i krzemu w węgliku krzemu autorka bada zarówno od strony obliczeniowej jak i eksperymentalnej. W obliczeniach zastosowała SRIM, powszechnie używany program wykorzystujący symulacje Monte Carlo w obliczeniach hamowania i zasięgów jonów w materii. Poza klasycznymi obliczeniami elektronowej i jądrowej zdolności hamującej oraz zasięgów na uwagę zasługują istotne dla analizy uszkodzeń radiacyjnych przesunięcia atomów ośrodka (**d**isplacement **p**er **a**tom **d**pa). Kolejny ciekawy wynik autorka uzyskuje w obliczeniach tzw. szoku termicznego (thermal spike) przy użyciu wyspecjalizowanego dla takich obliczeń kodu. Uzyskane wyniki pozwalają autorce określić radialny rozkład temperatury elektronowej i atomowej wokół trajektorii jonu w skali czasowej, a uzyskany wynik wskazuje że temperatura elektronowa narasta gwałtownie w pobliżu trajektorii jonu zaś ze znacznym opóźnieniem dzięki sprzężeniu elektron-fonon powstają defekty struktury krystalicznej ośrodka.

Cele badawcze realizowane przy użyciu metod zaproponowanych i opisanych w rozdziale drugim udało się doktorantce w pełni osiągnąć, co znalazło odzwierciedlenie w końcowych rozdziałach pracy. Opracowanie metody obliczeń weryfikowanych eksperymentalnie stanowi istotne osiągnięcie naukowe mgr Eweliny Kucal.

3. Poprawność redakcyjna rozprawy

Recenzowana rozprawa została napisana przez autorkę niesłychanie starannie. Została podzielona na siedem rozdziałów. W pierwszym rozdziale definiuje motywację, cele podjętych badań i metody prowadzące do uzyskania odpowiedzi na postawione zadania badawcze. W rozdziale drugim i trzecim autorka omawia podstawy teoretyczne wyboru materiałów konstrukcyjnych dla reaktorów DFR i teorię uszkodzeń radiacyjnych wywołanych przez neutrony i jony lekkich pierwiastków. Rozdział czwarty prezentuje metody obliczeń zastosowane do badań uszkodzeń radiacyjnych, a także wyniki tych obliczeń. Można w tym rozdziale znaleźć obliczenia programem Monte Carlo SRIM dla takich wielkości jak straty energii, zasięgi jonów i uszkodzenia prowadzące do zmian struktury krystalicznej ośrodka. Obliczenia tzw. szoku termicznego pozwoliły przewidywać zmiany czasowe temperatury w centrum trajektorii i zmiany temperatury poza centrum trajektorii. Obliczenia dynamiki molekularnej umożliwiają poznanie zmian struktury krystalicznej ośrodka wywołanej hamowaniem jonu. Wyniki obliczeń zaprezentowane w rozdziale czwartym stanowią podstawę planowania badań eksperymentalnych, obejmujących eksperymenty z jonami węgla przy energiach 5MeV, 1MeV, i 500 keV i z jonami krzemu o energiach 21MeV, 5MeV, i 500 keV, które zostały przedstawione w rozdziale piątym. Ostatnie dwa rozdziały przedstawiają omówienie wyników teoretycznych i eksperymentalnych oraz wnioski, z których najważniejszy pozwala stwierdzić, że ciężkie jony mogą stanowić namiastkę uszkodzeń radiacyjnych wywołanych przez prędkie neutrony i takie zastępcze badanie można z powodzeniem stosować dla badania innych materiałów konstrukcyjnych dla DFR. Ważnym osiągnięciem badań prezentowanych w niniejszej rozprawie jest obserwacja zmian temperatury wzdłuż toru, które przy wysokich energiach mogą prowadzić lokalnie nawet do stopienia materiału.

Praca zawiera też niesłychanie wyczerpującą bibliografię. Styl pracy jest jasny a redakcja rozprawy bez zarzutu.

4. Uwagi krytyczne

Praca jest poprawnie zredagowana, znalazłem jednakże drobne usterki które dla porządku wymienię

Autorka dążąc do najlepszego odtworzenia defektów produkowanych przez jony węgla i krzemu w ośrodku, zamierza użyć w obliczeniach energii jak najbardziej zbliżonych do energii jonów wybijanych przez neutrony reaktora DFR. Energie maksymalne jonów wybijanych przez prędkie neutrony wynoszą ok. 5 MeV dla C i ok. 2 MeV dla jonów Si (można to znaleźć na rys. 3.4, str. 36), zaś najwyższe intensywności jonów wybitych przez prędkie neutrony obserwuje się dla energii jonów C i Si równych ok. 30 keV. Zarówno obliczenia, jak i napromienianie próbek autorka wykonuje dla jonów Si o energiach 21MeV, 5MeV, i 500 keV oraz jonów C o energiach 5MeV, 1MeV, i 500 keV. Energie maksymalne jonów wybijanych przez neutrony znajdują się w zakresie objętym badaniami, ale energie jonów najczęściej wybijanych w pierwotnym oddziaływaniu neutronów prędkich z SiC są istotnie niższe (tylko ok.30 keV) niż najniższe energie użyte w obliczeniach i eksperymentach (500 keV).

Chciałbym prosić o wyjaśnienie dlaczego symulacje dynamiki molekularnej autorka wykonuje dla jonów Ar, choć cała praca z wyjątkiem rozdziałów 4.3.1 - 4.3.8 poświęcona jest jonom C i Si. Oczywiście jest, że ładunek jonów argonu ($Z=18$ wobec $Z=14$ dla Si i $Z=6$ dla C) przy niskiej energii wywołuje silniejsze uszkodzenia niż jony Si i C przy wyższej energii i stąd ewolucja temperatury jest prostsza w obserwacji.

Na str. 17 autorka przytacza roczną produkcję energii elektrycznej jako 370 GWh, otóż tylko w Polsce roczna produkcja energii elektrycznej wynosi ponad 150 TWh a światowa produkcja to 27000 TWh. Produkcja światowa energii elektrycznej ze źródeł jądrowych to 2500 TWh.. Podejrzewam, że autorka przytoczyła moc dyspozycyjną elektrowni jądrowych na świecie, która wynosi ok. 370 GW jako roczną produkcję energii.

Na str. 31 autorka definiuje straggling jako rozrzut zasięgów. Straggling to rozrzut energii spowodowany losowymi oddziaływaniami cząstek naładowanych przy przejściu przez warstwę materii, ten dodatkowy rozrzut energii powiększający się wraz z grubością pokonywanej warstwy materii skutkuje rozrzutem zasięgu (range straggling).

Na str. 34 w rozdziale 3 znajdujemy odwołanie do wzorów 4.2 i 4.3 z rozdziału 4, choć tuż poniżej odwołania znajdujemy wzory 3.9 i 3.10 tożsame z wzorami 4.2 i 4.3 z rozdziału 4.

Na str. 38 tuż przed rozdz. 4.1.3. i w drugim zdaniu rozdz. 5.2.3 na str. 77 autorka pisze, że jony Si jako większe mają mniejszy zasięg niż jony węgla. Straty energii cząstek naładowanych zależą od ładunku cząstki ($\sim Z^2$) i energii ($\sim E^{-1}$) natomiast rozmiar jonu nie wpływa na straty energii, a straty energii wpływają na zasięg.

Uwagi redakcyjne:

Na rysunku 4.10 można znaleźć profile temperatur generowanych przez jony krzemu o energii 21 MeV. Legendy przypisujące kolory temperaturom elektronowym i atomowym mogłyby być jednakowe – zwiększyłoby to czytelność rysunków.

Rozkład Gaussa (równanie 4.25 na str. 69 jest błędny. W wykładniku funkcji exp powinien być tylko jeden znak - , dwa znaki w liczniku i mianowniku dają +. A dla unormowanego rozkładu pod pierwiastkiem w mianowniku równania powinna być wartość π .

Na rys. 5.9 (d) w legendzie powinno być odpowiednio 5 MeV C, 1 MeV C i 0.5 MeV C.

Autorka posługuje się w pracy licznymi skrótami i symbolami, byłoby łatwiej czytać rozprawę, gdyby w pracy znalazło się objaśnienie użytych w pracy skrótów i symboli.

Wymienione tutaj usterki redakcyjne, a nie merytoryczne nie zmieniają mojej wysokiej oceny pracy.

5. Ocena końcowa

Opracowanie metod wykorzystania jonów do symulacji uszkodzeń spowodowanych promieniowaniem neutronowym w węglu krzemu, który jest potencjalnym materiałem konstrukcyjnym dla reaktora wysokotemperaturowego wykorzystującego prędkie neutrony wraz z weryfikacją eksperymentalną to oryginalne rozwiązanie problemu naukowego. Zastosowanie opracowanych metod do oceny uszkodzeń radiacyjnych w węglu krzemu stanowi istotne osiągnięcie naukowe doktorantki co jest istotnym wymogiem stawianym rozprawom doktorskim określonym w art. 187 ustawy z 20 lipca 2018 r. Prawo o Szkolnictwie Wyższym i Nauce. Zaprezentowane w rozprawie rezultaty badań doktorantki wskazują na umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej przez doktorantkę i umiejętność prowadzenia pracy zespołowej. Umiejętność samodzielnego prowadzenia pracy naukowej to drugi warunek stawiany rozprawom doktorskim. Doktorantka jest pierwszą autorką pracy opublikowanej w recenzowanym czasopiśmie o zasięgu międzynarodowym (Acta Phys. Pol. w roku 2022, choć tej pracy nie można znaleźć w przytoczonej bibliografii) co spełnia kolejny warunek wymieniony w Ustawy z dnia 20 lipca 2018 r.

Wartość merytoryczna rozprawy wskazuje na dogłębne opanowanie przez doktorantkę fizyki oddziaływania promieniowania z materią, metod detekcji promieniowania pojawiającego się w materiale konstrukcyjnym reaktora i badania oddziaływania cząstek naładowanych z materią.

Wymienione w recenzji osiągnięcia mgr Eweliny Kucal zawierają ogromny ładunek nowych interesujących rezultatów, które przyczyniają się do postępu technicznego w metodach badań fizyki reaktorowej. Należy podkreślić, że postęp w procedurach badań uszkodzeń radiacyjnych materiałów konstrukcyjnych reaktorów jest bardzo ważnym krokiem poprawiającym jakość badań w tej dziedzinie.

Ja, niżej podpisany stwierdzam, że recenzowana rozprawa doktorska mgr Eweliny Kucal spełnia wymagania określone w Ustawie z 20 lipca 2018 o stopniach naukowych i tytule naukowym oraz o stopniach i tytule w zakresie sztuki i wnioskuję o dopuszczenie mgr Eweliny Kucal do dalszych etapów przewodu doktorskiego i publicznej obrony.

Zygmunt Szefliński