

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-381

Juni 2003

ISSN 1437-322X

Andy-Ex



*Jürgen Böhmert, Alexander Gokhman, Mirco Große und
Andreas Ulbricht*

**Nachweis, Interpretation und Bewertung
bestrahlungsbedingter Gefügeänderungen in
WWER-Reaktor-Druckbehälterstählen**

Herausgeber:
Forschungszentrum Rossendorf e.V.
Postfach 51 01 19
D-01314 Dresden
Telefon +49 351 26 00
Telefax +49 351 2 69 04 61
<http://www.fz-rossendorf.de/>

Als Manuskript gedruckt
Alle Rechte beim Herausgeber

*Jürgen Böhmert, Alexander Gokhman, Mirco Große und
Andreas Ulbricht*

**Nachweis, Interpretation und Bewertung
bestrahlungsbedingter Gefügeänderungen in
WWER-Reaktor-Druckbehälterstählen**

Hinweis:

Diesem Bericht liegen Ergebnisse eines mit Mitteln des Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie unter dem Förderkennzeichen GRS/1501012 geförderten Vorhaben zugrunde. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Kurzfassung

Im kernnahen Bereich verändert der Reaktordruckbehälter unter dem Einfluss der Neutronenbestrahlung seine Eigenschaften. Das Phänomen ist als Neutronenversprödung bekannt und insbesondere für die Reaktoren vom Typ WWER von hoher sicherheitstechnischer Relevanz. Zur Vertiefung des Verständnisses und zur quantitativen Beschreibung der Zusammenhänge zwischen Gefüge, mechanischen Eigenschaften und der Strahlenbelastung wurden an WWER-Reaktordruckbehälterwerkstoffen Mikrostrukturuntersuchungen durchgeführt. Dazu wurden Proben aus 22 verschiedenen Chargen der WWER-Grund- und Schweißwerkstoffe verwendet, die in einem weiten, aber nicht systematisch variierten Parameterfeld der Bestrahlungsbedingungen im Rahmen des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg oder der Versprödungsüberwachungsprogramme laufender WWER-Reaktoren bestrahlt worden sind. Zusätzlich wurden 2 ASTM-Druckbehälterstähle und 8 Fe-Basis-Legierungen untersucht. Zum Nachweis der Gefügeänderungen wurden verschiedene Methoden herangezogen. Als besonders geeignet erwies sich die Neutronenkleinwinkelstreuung. Es wurde ein Routineverfahren ausgearbeitet, mit dem die Größenverteilung, die mittlere Größe, die Anzahldichte und der Volumenanteil der durch Bestrahlung erzeugten Strukturerscheinungen aus den Neutronenkleinwinkelstreuexperimenten zuverlässig und reproduzierbar bestimmt werden können. Damit wurden die Strukturparameter der strahlenbedingten Gefügeerscheinungen bestimmt und in Abhängigkeit von Zusammensetzung, Fluenz und Ausheiltemperatur erfasst. Aus dem sog. A-Verhältnis (Verhältnis zwischen totalem und nuklearem Streuquerschnitt) kann auf die Zusammensetzung bzw. den Typ der Defekte geschlossen werden.

Die Strahlendefekte sind nanodisperse Inhomogenitäten mit Radien bis ca. 3 nm mit einem ausgeprägten Maximum bei 1 nm. Lage des Maximums und Form der Größenverteilung sind kaum von der Fluenz oder vom Typ des Stahles abhängig. Der Volumenanteil erhöht sich mit zunehmender Neutronenfluenz. Die Fluenzabhängigkeit ändert sich deutlich mit dem Stahltyp, insbesondere aber mit dem Kupfergehalt. Ein zunehmender Kupfergehalt erhöht den Volumenanteil der Strahlendefekte sowie das A-Verhältnis und führt zu einer rascheren Bildung der Defekte. Ni muss als potentiell gefährlich eingeschätzt werden, während durch Phosphor keine verstärkte Defektbildung verursacht wird. Ausheilen führt zum Verschwinden der Strahlenschäden. Die Ergebnisse lassen sich mit dem Modell eines bimodalen Mechanismus infolge einer strahlenbeschleunigten und einer strahleninduzierten Defektbildung interpretieren. In Anbetracht des weiten Variationsbereiches des Probenbestandes lassen sich akzeptable Korrelationen zwischen Fluenz, Cu-Gehalt, Festigkeitsänderung, Übergangstemperaturverschiebung und Volumengehalt an Strahlendefekten ableiten. Insgesamt ist eine aus den Strukturuntersuchungen abgeleitete empirische Gleichung nicht in der Lage, die experimentellen Ergebnisse befriedigend zu beschreiben. Zur Verbesserung des Modells sollten verstärkt Strukturuntersuchungen mit der Kleinwinkelstreuungsmethode an den Proben der Versprödungsüberwachungsprogramme der WWER-Reaktoren durchgeführt werden.

Die Ni-armen, für den WWER-440 eingesetzten Druckbehälterstähle erweisen sich selbst bei mittleren Cu-Gehalten als sehr strahlenresistent. Ein hoher Gehalt an karbidbildenden Legierungselementen scheint die Strahlenresistenz zu fördern.

Abstract

Neutron embrittlement is a special issue for the VVER-type reactors. One of the fundamentals for a reliable assessment of the current material state is knowledge of the causes and mechanisms of neutron embrittlement. The aim of the project is to understand and to quantify the microstructural appearances due to neutron radiation in VVER-type reactor pressure vessel steels. The material base is a broad variation of irradiation probes taken from the irradiation programme Rheinsberg, surveillance programmes of Russian, Ukrainian or Hungarian NPPs or irradiation experiments with mockup-alloys. The microstructure was investigated by different methods. The small angle neutron scattering (SANS) proved to be the most suitable method. A procedure was developed to determine mean diameter, size distribution and volume fraction of irradiation-induced microstructure from SANS experiments in a reliable and comparable manner. With this method microstructural parameters were systematically determined and the main factors of influence were identified. Apart from the neutron fluence the volume fraction of radiation defects mainly changes with the copper or nickel content whereas phosphorus is hardly relevant. Annealing remedies the radiation-induced microstructural appearances. The ratio between nuclear and magnetic neutron scattering provides information on the type of radiation defects. This leads to the conclusion that the material composition changes the radiation defects. The change occurs gradually rather than abruptly. The radiation defects detected by SANS correlate with the radiation hardening and embrittlement. Generally, the results suggest a bimodal mechanism due to radiation-enhanced and radiation-induced defect evolution.

A kinetic model on base of the rate theory approach was established.

Inhaltsverzeichnis

Seite

1.	Zielstellung	6
2.	Neutronenversprödung	8
2.1	Sicherheitstechnische Bewertung	8
2.2	Mechanismus der Neutronenversprödung	10
2.3	Ergebnisse zur Neutronenversprödung von WWER-RDB-Stählen	14
2.4	Eliminierung der Neutronenversprödung durch Wärmebehandlung (Ausheilen)	19
3.	Plan und Methoden der Untersuchung	20
3.1	Versuchsstrategie und Arbeitsprogramm	20
3.2	Untersuchte Werkstoffe	21
3.3	Bestrahlungsbedingungen	24
3.4	Ausheiluntersuchungen	26
3.5	Untersuchungsmethoden zur Ermittlung von Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften	27
3.5.1	Härteprüfung	27
3.5.2	Zugversuche	27
3.5.3	Kerbschlagbiegeversuche	27
3.5.4	Bruchmechanische Versuche	28
3.6	Untersuchungsmethoden zur Gefügecharakterisierung	28
3.6.1	Metallographie	28
3.6.2	Durchstrahlungselektronenmikroskopie	29
3.6.3	Kleinwinkelstreuung	30
3.6.3.1	Allgemeines	30
3.6.3.2	Neutronenkleinwinkelstreuung (SANS)	32
3.6.3.3	Anomale Röntgenkleinwinkelstreuung (ASAXS)	40
3.6.4	Sonstige Untersuchungsmethoden	42
4.	Ergebnisse	43
4.1	Einfluss der Bestrahlung auf Festigkeit und Zähigkeit	43
4.2	Bestrahlungsbedingte Gefügeänderungen	46
4.2.1	Metallografische und transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen	46
4.2.2	Ergebnisse der SANS-Experimente	49
4.2.3	Ergebnisse der ASAXS-Experimente	51
4.3	Ausheilverhalten	52
5.	Modellhafte Beschreibung des Mechanismus der Neutronenversprödung	54
5.1	Kinetik der Clusterbildung	55
5.2	Kinetik der Bildung Cu-reicher Ausscheidungen	57
5.3	Multi-Komponentencluster	59
5.4	Modellierung der Strahlenhärtung	60
6.	Bewertung der Ergebnisse	62
6.1	Beziehungen zwischen den Gefüge- und Eigenschaftsänderungen	62
6.2	Einflussfaktoren	63
6.2.1	Neutronenfluenz und -flussdichte	63
6.2.2	Legierungszusammensetzung	64
6.2.3	Einfluss der Bestrahlungstemperatur	65
6.2.4	Einfluss des Werkstofftyps	66
6.2.5	Ausheilverhalten	66
6.3	Vergleich der Trendgleichungen	67
7.	Schlussfolgerungen	67
	Literaturverzeichnis	73
	Verzeichnis der Abkürzungen	91
	Verzeichnis der Abbildungen	92

1. Zielstellung

Die im kernnahen Bereich eingesetzten Konstruktionswerkstoffe verändern unter dem Einfluss der Neutronenstrahlung ihre Eigenschaften. Bekannt ist die als Neutronenversprödung bezeichnete Degradation der mechanischen Eigenschaften der ferritischen Druckbehälterstähle. Das Phänomen macht sich vor allem in einem Anstieg der Übergangstemperatur zwischen sprödem und duktilem Bruchverhalten bemerkbar und hat prinzipiell hohe Sicherheitsrelevanz. Es ist deshalb üblich, die Erscheinung durch besondere Versprödungsüberwachungsprogramme in den Kernkraftwerken zu kontrollieren und durch konservative Bewertungsregeln während der Laufzeit eines Reaktors einen sicheren, das katastrophale Versagen ausschließenden Betrieb des Reaktordruckbehälters (RDB) zu gewährleisten. Aus den Überwachungsprogrammen ist ebenso wie aus umfangreichen Bestrahlungsexperimenten eine Fülle experimenteller Daten zum phänomenologischen Befund der Neutronenversprödung angefallen.

Weniger oder nur sehr wenig aussagefähige Untersuchungen gab es jedoch lange Zeit zu dem dem Phänomen zugrunde liegenden mikrostrukturellen Prozessen, da die herkömmlichen Verfahren der Strukturanalyse in diesem Fall versagten. Infolgedessen blieben viele Fragen zum Mechanismus der Neutronenversprödung offen und das Phänomen wird nach wie vor nicht vollständig verstanden.

Mit den 90-er Jahren haben sich ausgehend von speziellen Techniken der Strukturanalyse, wie der Analytische Transmissionselektronenmikroskopie (ATEM), der Atomsonden-Feldionen-Mikroskopie (atom probe field ion microscopy – APFIM) und nicht zuletzt der Neutronenkleinwinkelstreuung (small angle neutron scattering – SANS) die Forschungen verstärkt dieser Frage zugewandt und wichtige Erkenntnisfortschritte erbracht. Das gilt vor allem für Untersuchungen an den RDB-Stählen, die in den Kernreaktoren westlicher Bautypen eingesetzt werden. Weitestgehend noch ausstehend sind hingegen vergleichbare Untersuchungen an den Stahltypen der russischen WWER-Baulinie. Diese Stähle weisen durchaus signifikante Unterschiede zu den westlichen Stählen auf.

Ein gut fundiertes physikalisches Verständnis der Neutronenversprödung bis hin zu einer quantitativen Beschreibung mit Modellen, die die Wirkung der wesentlichen Einflussparameter vorausschauend beschreiben können, ist aus mehreren Gründen für die RDB-Sicherheitsbewertung von Bedeutung. Zum einen gibt das Versprödungsüberwachungsprogramm nur punktuell und nur angenähert die durch Neutronenstrahlung verursachten Änderungen des mechanischen Verhaltens des RDB wieder. Zur Bewertung des RDB-Verhaltens im Verlauf seiner Betriebszeit sind folglich Extrapolationen notwendig, die desto sicherer sein können, je genauer man die verschiedenen Einflussfaktoren kennt und in ihrer Wirkung beschreiben kann. Zum Zweiten sind präzisere Schätzungen der Restlebensdauer oder die Bestimmung von Sicherheitsmargen auf der Basis der vorhandenen empirischen, nur sehr wenige Einflussgrößen berücksichtigenden Bewertungsregeln kaum möglich. Schließlich sind wesentliche Änderungen der Betriebsbedingungen ohne ein fundamentales Verständnis überhaupt nicht zu prognostizieren und so sicherheitstechnisch abzusichern. Als eine wesentliche Änderung der Betriebsbedingungen ist beispielsweise das Ausheilglühen eines RDB und dessen anschließender Weiterbetrieb aufzufassen. Diese Situation ist inzwischen bei den Reaktoren der WWER-440/230-Baulinie sicherheitstechnisch relevant geworden.

Für die WWER-Reaktoren im Allgemeinen und für die Baulinie WWER-440/230 im Besonderen sind eine Reihe versprödungsfördernde Randbedingungen vorhanden. Die enge Bauweise erzeugt hohe Neutronenflussdichten in der RDB-Wand und die niedrigere Betriebstemperatur führt zu stärkeren Eigenschaftsänderungen. Hinzu kommen fehlende (WWER-

440/230) oder schlecht konzipierte (WWER-1000) Überwachungsprogramme ebenso wie technologische Mängel in der Fertigung der früheren Reaktoren. Das führt zu erheblichen sicherheitstechnischen Bedenken beim Betrieb dieser Reaktoren; ein Weiterbetrieb der Reaktoren der 1. Generation wurde sogar erst nach speziellen Ausheilglühungen im Bereich der kritischen kernnahen Schweißnaht möglich. Für diese Reaktoren ist die Sicherheitsbewertung im Weiterbetrieb eine noch nicht befriedigend gelöste, hochaktuelle Aufgabe.

Bei den WWER-Reaktoren steht dem hohen Gefährdungspotential der bereits genannte Mangel an Untersuchungen zur Aufklärung des Mechanismus der Neutronenversprödung gegenüber. Infolgedessen fehlt es derzeit auch noch an physikalisch fundierten Versprödungsmodellen.

Die Arbeit gibt wesentliche Ergebnisse eines BMWi-geförderten Forschungsprojektes wieder, dass sich der Untersuchung der Gefügeänderungen, die durch Neutronenbestrahlung in RDB-Stählen des im WWER-440 eingesetzten Types hervorgerufen werden, und der modellhaften Erfassung der wichtigsten Einflussfaktoren auf die Neutronenversprödung dieser Stähle widmete.

Dazu waren im Einzelnen

- die Strukturdefekte in bestrahlten und ausgeheilten WWER-RDB-Stählen durch Nutzung moderner Verfahren der Strukturanalyse nachzuweisen,
- der Einfluss der Bestrahlungsbedingungen, der Stahlzusammensetzung und -vorbehandlung sowie der Ausheilglühbehandlung zu erfassen.
- die Grundmechanismen der Strahlenhärtung und -versprödung physikalisch zu verstehen,
- Korrelationen zwischen der bestrahlungsinduzierten Struktur- und Eigenschaftsänderungen zu bestimmen,
- ein kinetisches Modell der Strahlenschädigung zu entwickeln und
- die sicherheitstechnische Relevanz der Ergebnisse zu bewerten.

Die materialtechnische Basis der Untersuchung sind WWER-RDB-Stahlproben, die in einem weiten Parameterbereich der metallurgischen Variablen und der Bestrahlungsbedingungen in einem mehrjährigen Bestrahlungsprogramm im WWER-2-Prototypreaktor Rheinsberg bestrahlt worden sind. Das Bestrahlungsprogramm war nicht mit der Zielstellung konzipiert worden, ein physikalisches Verständnis der Neutronenversprödung zu gewinnen, sondern diente einzig der Schaffung einer breiten Datenbasis als Grundlage von betriebsbegleitenden Genehmigungsverfahren. Eine systematische Variation wesentlicher Einflussparameter war deshalb im Programm nicht vorgesehen und kann auch nachträglich nicht daraus extrahiert werden. Ergänzend werden deshalb neben den Proben aus dem Bestrahlungsprogramm Rheinsberg Proben aus den Versprödungsüberwachungsprogrammen von WWER-Reaktoren oder aus anderen Bestrahlungsprogrammen in die Untersuchungen einbezogen.

Für die Mehrzahl der Proben sind die Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften im Rahmen von anderen Vorhaben bestimmt worden. Die strukturanalytischen Untersuchungen nutzen moderne, hochauflösende Verfahren. Der Schwerpunkt liegt auf der Anwendung des Kleinwinkelstreuverfahrens.

Die Einbeziehung von Proben aus RDB-Stählen des im WWER-1000 eingesetzten Types und von RDB-Stählen nach ASTM-Standard dient der Verallgemeinerung der gewonnenen Erkenntnisse und dem Vergleich mit dem internationalen Stand von Wissenschaft und Technik.

2. Neutronenversprödung

2.1 Sicherheitstechnische Bewertung

Es ist allgemein üblich, im Rahmen des RDB-Integritätsnachweises die Sicherheit gegen Sprödbruch nachzuweisen. Die Belastungsgrenzen werden dabei durch Grenzkurven festgelegt, die als untere Einhüllende von Messwerten ermittelt wurden. Vorzugsweise wird dazu eine allgemeine (d. h. werkstoffunabhängige) Bruchzähigkeits(K_{Ic})-Kurve benutzt, die mit Hilfe der für die jeweiligen Werkstoffcharge ermittelten Referenztemperatur auf der Temperaturachse justiert wird. Die Bezugskurve beruht auf der ASME-Kurve oder lehnt sich mehr oder weniger direkt an diese an [GER 95]. Zur Justierung wird eine nicht bruchmechanisch definierte Temperatur im Übergang vom spröden zum duktilen Bruchverhalten benutzt. Dazu wird die im Fallgewichtsversuch bestimmte Pellini-Temperatur T_{NDT} oder eine aus Kerbschlagbiegeprüfungen ermittelte Referenztemperatur T_K/T_{KV} verwendet.

Der versprödende Einfluss der Bestrahlung ist dann durch die bestrahlungsbedingte Verschiebung der Charpy-Übergangstemperatur ΔTT in der Justierung der Referenzkurve zu berücksichtigen und in einem betriebsbegleitenden Versprödungsüberwachungsprogramm nachzuweisen.

Zur Vorausberechnung des Versprödungszustandes und zur Interpolation der betriebsspezifischen Überwachungsergebnisse werden im sicherheitstechnischen Bewertungsverfahren Vorhersagegleichungen bzw. Trendkurven verwendet. Sie beschreiben die Verschiebung der Charpy-Übergangstemperatur in Abhängigkeit von der Fluenz unter Berücksichtigung eines sog. chemischen Faktors, der den Gehalt an versprödungsfördernden Legierungs- bzw. Verunreinigungselementen berücksichtigt und Materialtyp-spezifisch ist [PET 96]. Vorzugsweise wird der Cu-Gehalt, teilweise auch der Gehalt an Ni oder P berücksichtigt.

Die Vorhersageformeln haben häufig die Form

$$\Delta TT = A (\phi)^n \quad (2.1)$$

mit A als chemischen Faktor, ϕ als Neutronenfluenz für Neutronen mit einer Energie > 1 MeV oder $> 0,5$ MeV und n als (teils ebenfalls ϕ -abhängige) Konstante. Beispiele von Vorhersageformeln aus einigen nationalen Regelwerken sind in Tab. 2.1 aufgeführt.

Tabelle 2.1: Vorhersageformeln für die Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT durch Neutronenbestrahlung nach [PET 96]

A	n	Energieschwellwert	Bemerkung	Land
$F_{n \text{ base}}, F_{n \text{ weld}}$	$(0,28 - 0,1 \lg \phi)$	> 1 MeV	F_n -tabellierter Wert	USA
$17,3 + 1537(P - 0,008) + 238(Cu - 0,8) + 191 Ni^2Cu$	0,35	> 1 MeV	Mittelwertskurve	Frankreich
$800 (P + 0,07 Cu)$	0,33	$> 0,5$ MeV	für Schweißmetall, WWER 440	Russland
$26 - 24 Si - 61 Ni + 301 \sqrt{Ni \cdot Cu}$	$0,25 - 0,1 \lg \phi$	> 1 MeV	für Schweißmetall	Japan

Cu-, Ni-, Si-, P-Gehalt in Masse-%

Die Vorhersageformeln beruhen auf den Ergebnissen aus den anlagenbezogenen Versprödungsüberwachungsprogrammen, aber auch aus Bestrahlungsexperimenten in Materialtestreaktoren. Die russischen Formeln sind ursprünglich nur aus solchen Bestrahlungsexperimenten abgeleitet worden [AMA 93]. Die Formeln berücksichtigen nur die Haupteinflussparameter und versuchen den Einfluss weiterer Parameter durch ausgeprägte Konservativität aufzufangen. Dessen ungeachtet zeigen einzelne Betriebsergebnisse, dass sie nicht in jedem Fall die Strahlenversprödung konservativ vorherbestimmen. Derartige Befunde werden vor allem für russische WWER-Anlagen festgestellt [AMA 99b], [KRY 94], [POK 02].

Die F/E-Arbeiten zur Neutronenversprödung zielen vor allem auf die Vervollkommnung dieser Vorhersageformeln. 3 Hauptlinien sind dabei zu erkennen:

- Ausdehnung der Datenbasis unter Verbesserung der Datenqualität und der Datencharakterisierung,
- Anwendung fortgeschrittener statistischer Schätzverfahren unter Einbeziehung von weiteren Systemvariablen,
- Entwicklung des physikalischen Verständnisses als Voraussetzung eines physikalischen Modells des Strahlenversprödungsmechanismus.

Entwicklungen im Sinne der beiden zuerst genannten Hauptlinien führen zu Vorhersageformeln, die im allgemeinen mit den experimentellen Ergebnissen besser korrelieren und die die Anzahl der berücksichtigten Einflussparameter vergrößern. Beispiele dieser Art sind in [ELR 87], [AMA 93] und [WAN 99] zu finden.

Als eine hohe Herausforderung ist die Ableitung von Vorhersageformeln auf der Grundlage eines physikalischen Modells der Neutronenversprödung zu betrachten. Ein solches Modell muss 4 Teilaspekte umfassen:

- Bildung primärer Strahlenschäden als Folge der Neutronen-Struktur-Wechselwirkung im Ultrakurzzeitbereich ($t < 1$ s) (Nanosimulation)
- Kinetik der Gefügeentwicklung jenseits des thermodynamischen Gleichgewichtes ($t > 1$ s) (Mikrosimulation)
- Wechselwirkung zwischen Versetzungen und strahlenbedingter Strukturschädigung (Mikrosimulation)
- Beschreibung des Zähigkeitsverhaltens mit Hilfe von Strukturschädigungsparametern (Makrosimulation).

Einen umfassenden Überblick zu dem auf diesem Gebiet bisher erreichten Stand geben Odette und Mitarbeiter ([ODE 98a,b], [ODE 01]). Vorzugsweise beruhen die Modelle auf der Bildung von Cu- oder Cu-reichen Ausscheidungen und von Leerstellen-Cluster (voids). Modelle, die alle 4 Teilaspekte mit konsequent physikalischen Ansätzen behandeln würden, existieren noch nicht. Es gibt aber qualifizierte Simulationen verschiedener Teilaspekte. Andere Aspekte werden dann wieder nur über empirische Korrelationen zum Gesamtmodell eingefügt.

Es zeigt sich, dass mit zunehmender Komplexität und Tiefgründigkeit auch die Anzahl der Parameter steigt, während ihre experimentelle Zugänglichkeit sinkt. So scheinen diese Ansätze zwar hilfreich zur Entwicklung des physikalischen Grundverständnisses des Phänomens und für die tendenzielle Interpretation bestimmter Einflussgrößen zu sein, aber nur in stark vereinfachter Form wirklich zur Strahlenversprödungsprognose genutzt werden zu können.

Als Beispiel solcher Modelle sei auf Arbeiten von Lucas u.a. [LUC 85] und Stoller [STO 96], auf das für die Magnox-Reaktoren entwickelte Fisher-Buswell-Modell ([FIS 87], [DRU 90]).

und auf das unter französischer Federführung stehende Simulationsprogramm VTR (Virtual Test Reactor) [JUM 01] verwiesen.

Eine rein empirische Vorhersageformel ist im EPRI Materials Reliability Program (MRP) unter Einbeziehung neuester Datenquellen und unter Berücksichtigung qualifizierter statistischer Methoden aus einer physikalisch begründeten Sicht der Zusammenhänge entwickelt worden [SER 01]. Sie hat die Form

$$\Delta T T = A \cdot \exp \left[\frac{20730}{1,8 \cdot T_{\text{irr}} + 492} \right] \phi^{0,5076} + B (1 + 2,106 [\text{Ni}]^{1,179}) F([\text{Cu}] G(\phi)) + C_1 \quad (2.2)$$

A und B sind Konstanten, die abhängig vom Materialtyp sind. T_{irr} ist die Bestrahlungstemperatur, [Ni], [Cu] sind die Cu-Gehalte in Masse-%, ϕ die Fluenz in cm^{-2} [$E > 1 \text{ MeV}$] und $F([\text{Cu}]) = 0$ für $\text{Cu} \leq 0,072 \%$ und $F([\text{Cu}]) = ([\text{Cu}] - 0,072)^{0,572}$ für $0,072 \% \leq [\text{Cu}] < 0,305 \%$, $G(\phi t)$ ist eine fluenzabhängige Hilfsfunktion.

$$G(\phi t) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh \left[\frac{\lg(\phi t) - 18,24}{1,052} \right] \quad (2.3)$$

t ist die effektive Bestrahlungszeit. C_1 ist ein zeitabhängiger Zusatzterm, der erst ab mehr als 12 Reaktorzyklen ungleich Null ist.

Ein besonderes Herangehen verfolgt die Arbeitsgruppe am SCK/CEN [FAB 93]. Durch eine mikro-mechanisch entwickelte Definition der Übergangstemperatur lassen sich schärfere Korrelationen und so genauere Vorhersageformeln entwickeln. Die Modellnäherung benutzt insbesondere die zusätzlichen Informationen, die sich aus der Analyse der Kraft-Auslenkungskurven im instrumentierten Charpy-Versuch gewinnen lassen. Ein beispielhafter Anwendungsfall des Vorgehens ist in [FAB 96] detailliert erläutert.

Schließlich sei auf ein neues Konzept zur sicherheitstechnischen Integritätsbewertung verwiesen. Grundlage ist eine statistisch definierte Bruchzähigkeitskurve auf der Basis des J-Integrals bei instabiler Rissinitiation (Master curve), die mit einer Referenztemperatur T_0 justiert wird ([WAL 99], [SER 00]). Allerdings fehlen hierfür noch die Bezüge zu Vorhersageformeln.

2.2 Mechanismen der Neutronenversprödung

Der Terminus „Neutronenversprödung“⁽¹⁾ wird dem mechanischen Verhalten eines bestrahlten RDB-Stahles nur bedingt gerecht. Ein totaler Duktilitätsverlust tritt in der Regel nicht auf. Vielmehr ist bei geeigneten Belastungsbedingungen (einaxiale Spannung, quasistatische Belastung) kaum eine Abnahme charakteristischer Zähigkeitsparameter nachzuweisen. Stattdessen macht sich die Neutronenversprödung vor allem in einer Zunahme der Spröbruchübergangstemperatur und, schon weniger ausgeprägt und nicht in jedem Falle zu beobachten, in

¹⁾ Nach dem Begriff Neutronenversprödung werden die Begriffe Strahlen- oder Bestrahlungsversprödung (engl.: radiation embrittlement, irradiation embrittlement) gebraucht. Unter technisch relevanten Bedingungen tritt eine Überlagerung von Neutronen- und γ -Strahlung auf. Für die in dieser Arbeit zu betrachtenden Bedingungen ist die Materialschädigung durch Gammastrahlen um Größenordnungen kleiner als die durch Neutronen [BOH 02]. Aus diesem Grund und da ferner die Schädigung durch Neutronen auf einem rein korpuskularen Modell beruht, wird in dieser Arbeit dem schärfer definierten Terminus „Neutronenversprödung“ der Vorzug gegeben. Dementsprechend werden als Belastungsparameter auch die Fluenz schneller Neutronen ($E > 1 \text{ MeV}$, $> 0,5 \text{ MeV}$) bzw. die dadurch erzeugten dpa-Werte (displacements per atom) benutzt.

einer Abnahme der Kerbschlagarbeit in der Zähigkeitshochlage und einer Verbreiterung des Übergangsbereiches bemerkbar. Die Grundprozesse, die zu diesen Erscheinungen führen, können inzwischen mit gesicherten Modellvorstellungen erklärt werden. Der gegenwärtige Erkenntnisstand dazu wird von Odette und Mitarbeitern ([ODE 98a,b], [ODE 01]) zusammenfassend dargestellt.

Neutronen, nach neueren Untersuchungen zumindest zu einem Anteil auch die sie begleitenden Gammastrahlen [BOH 02], erzeugen im RDB-Stahl eine wesentliche Veränderung des Ausgangsgefüges und damit auch des daraus resultierenden mechanischen Verhaltens.

Diese strahlenbedingte Gefügemodifikation entwickelt sich in einem sehr komplexen, mehrstufigen Prozess. Ein stark vereinfachtes Schema ist in Abb. 2.1 dargestellt. In der ballistischen Phase [BAC 96] überträgt das einfallende Neutron seine Energie vollständig oder teilweise durch elastische Stöße an primär angeregte Atome (primary knock-on atoms – PKA), die ihrerseits durch elastische Stöße mit Matrixatomen weitere Atome aus ihren Gitterplätzen stoßen und so Schädigungskaskaden erzeugen. Der ballistische Prozess ist in Zehntel von Pikosekunden beendet und hinterlässt einen stark gestörten Gitterbereich mit hoher Fehlstellenkonzentration und hoher Energieanregung. Als charakteristischer, das Ausmaß der Schädigung beschreibender Parameter wird der dpa-Wert (displacement per atom) verwendet. Er gibt die auf die Gesamtatomzahl bezogene Zahl der verlagerten Atome an, ist äquivalent der absorbierten kinetischen Energie und so ein physikalisch besser fundierter Belastungsparameter als die üblicherweise verwendeten Fluenzwerte für Neutronen mit Energien > 1 MeV oder $> 0,5$ MeV [STO 00a].

Die eingebrachte hohe thermische Energie dissipiert rasch (wenige 10 ps), wobei in der Kaskade spontane Umordnungsprozesse ablaufen, die durch Rekombination zum Abbau der Gitterfeldstellen oder auch zur Bildung kleiner Fehlstellencluster führen können. Die verbleibende Strukturschädigung der hier als spontane Relaxationsphase bezeichneten Prozessstufe liefert die wesentlichen Ausgangsbedingungen für die Kinetik der weiteren Gefügeentwicklung. Entscheidende Parameter sind die Anzahl der überlebenden Leerstellen und Zwischengitteratome sowie der Anteil der davon in Clustern koagulierten Fehlstellen.

Experimentell sind ballistische und Relaxationsphase nicht zugänglich. Sie sind Gegenstand von molekulardynamischen Simulationsrechnungen. An Eisen als Bezugsgitter für RDB-Stähle haben Stoller (z. B. [STO 00a, b]) und Bacon u. a. [z.B. [BAC 95]] umfangreiche Rechnungen durchgeführt. Nach Stoller liegen die für typische LWR-Neutronenspektren gemittelten Überlebensraten bei ca. 0,3. Clusterbildung erfolgt vorzugsweise durch Zwischengitteratome (etwa 50...60 % der überlebenden Zwischengitteratome), während nur ca. 10 % der überlebenden Leerstellen in nächste Nachbarschaftspositionen geclustert sind. Die Bestrahlungstemperatur ist für den Prozess kaum von Einfluss. Mit wachsender Neutronenenergie steigt die Anzahl der überlebenden Defekte, jedoch verringert sich ihr Anteil bezogen auf die Gesamtproduktionsrate. Für Neutronen $> 0,5$ MeV bleibt der Anteil etwa konstant.

In der 3. Phase, der Alterungsphase, befindet sich das System im thermischen Gleichgewicht. Die Konzentration an Gitterfeldstellen übertrifft jedoch um Größenordnungen die der Bestrahlungstemperatur entsprechenden Gleichgewichtskonzentration. Das führt zur Beschleunigung der Diffusionsvorgänge (strahlenbeschleunigte Diffusion) und zum Ablauf von Prozessen, die ohne Bestrahlung nicht oder nicht in dieser Art, ablaufen könnten. Vorzugsweise ist das die Ausscheidung von thermodynamisch stabilen Phasen, deren Bildung sonst aus kinetischen Gründen blockiert ist. Es können sich aber auch Phasen, Komplexe oder Segregationen an Grenzflächen bilden, die unter normalen thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen und bei den nominellen Fremdatomkonzentrationen, die innerhalb der Löslichkeitsgrenze liegen, nicht zu erwarten wären. Das diskutierte Spektrum dieser strahlenunterstützten oder -induzierten Arten von Ausscheidungen oder - vorsichtiger formuliert - von

Gefügedefekten ist sehr vielfältig und reicht von durchaus RDB-Stahl-typischen Phasen, wie Cu-Ausscheidungen, Karbiden, Phosphiden, über diffus strukturierte Fremdatomanreicherungen, wie Cu-reiche oder Mn-Ni-reiche Komplexe bis hin zu größeren Leerstellenclustern (Nanovoids). Den in den Kaskaden gebildeten Defektclustern kommen dabei eine besondere Rolle zu, da sie als Keime (heterogene Keimbildung) derartiger Gefügeerscheinungen wirken können.

Der Ablauf der Gefügeentwicklung in der Alterungsphase muss als sehr komplex und durchaus sensibel abhängig von den äußeren Parametern, wie die Neutronenflussdichte, die Bestrahlungstemperatur, die Art und Konzentration der im Werkstoff enthaltenen Legierungs- und Verunreinigungselemente oder die Gefügeargangsstruktur betrachtet werden. Typische Einzelprozesse sind die Rekombination der Gitterfehlstellen, ihre Annihilation an Senken, ihre Agglomeration zu Clustern und ihr Einfang an anderen Defektarten, aber auch die Annihilation, das Wachstum und die Bewegung der in den Kaskaden spontan entstandenen Defektcluster.

Die entscheidenden Parameter für die Bewertung der Gefügemodifikation durch Bestrahlung sind Typ, Größe und Anzahl der sich in dieser Entwicklungsphase bildenden Gefügebestandteile. Die typischen bestrahlungsbedingten Gefügedefekte liegen im Größenbereich von 1...2 nm (und kleiner) und haben fluenzabhängige Anzahldichten von 10^{17} ... $10^{18}/\text{cm}^3$. Weniger klar sind die Vorstellungen hinsichtlich des Typs der Gefügedefekte. Mit Sicherheit muss das Auftreten von reinen Cu-Ausscheidungen in bestrahlten RDB-Stählen, deren Cu-Gehalt den Wert von 0,4 % üblicherweise nicht überschreitet, verneint werden. Es lassen sich aber Cu-reiche, ausscheidungsähnliche Defekte und eine bestrahlungsbedingte Verringerung des Cu-Gehaltes in der Fe-Matrix zweifelsfrei nachweisen (e. g. [CAR 01], [WIR 99], [BUS 93], [MIL 97]). Diese Defekte enthalten darüber hinaus auch Mn, Ni, Si und Fe [PAR 96], [WAL 93]. Mit sinkendem Gehalt an gelöstem Cu im Ausgangszustand wächst der Anteil an Mn, Ni und vor allem Fe [MIL 00], so dass dann besser von Mn-Ni-reichen Ausscheidungen oder Komplexen zu sprechen ist. Cu wird in diesem Fall nur noch eine Funktion bei der Keimbildung zugeordnet.

Die Bildung solcher Phasen ist überraschend, da sie aus den Gleichgewichtssystemen nicht bekannt sind und die gegebenen Legierungskonzentrationen weit innerhalb der Grenzen der Löslichkeit der betreffenden Legierungselemente liegen. Odette [ODE 95] entwickelt ein thermodynamisches Modell, das die Phasengleichgewichte im quaternären System Fe-Cu-Ni-Mn behandelt und auch Einflüsse der Teilchengrößen und -zusammensetzung auf die Grenzflächenenergie berücksichtigt. Auf dieser Grundlage lässt sich das Auftreten einer Mn-Ni-reichen, Cu-armen oder -freien Phase für RDB-Stähle mit niedrigem Cu-Gehalt verstehen. Die Mn-Ni-reiche Phase wird mit abnehmender Bestrahlungstemperatur, steigendem Mn- oder Ni-Gehalt und zunehmendem Teilchenwachstum dominant.

Neben diesen als Ausscheidungen apostrophierten Gefügedefekttypen werden, vor allem in Cu-armen RDB-Stählen, instabile und stabile Matrixdefekte als eine 2. Hauptform der strahlentypischen Strukturerscheinungen klassifiziert. Über die Natur dieser Matrixdefekte liegen kaum gesicherte Erkenntnisse vor. Sie werden als Versetzungsringe, leerstellenreiche Komplexe, Nanovoids oder Fremdatom-Punktdefekt-Cluster interpretiert [PHY 93]. Die Einteilung in instabil und stabil erscheint dabei willkürlich und bezieht sich auf ihr Ausheilverhalten. Instabile Matrixdefekte heilen bei Bestrahlungstemperatur aus. In ihrer Struktur mögen sie sich nicht grundsätzlich, sondern nur in der Größe oder in ihrem Anteil an stabilisierenden Fremdatomen von den stabilen Matrixdefekten unterscheiden. Stoller [STO 93] fasst unter dem Begriff der Matrixdefekte Punktdefekt-Cluster des Zwischengitteratom- oder Leerstellentyps in 2- oder 3-dimensionaler Morphologie zusammen. Odette und Lucas [ODE 98a] bezeichnen pragmatisch alle Erscheinungen, die zu einer Härtung in sehr Cu-armen RDB-

Stählen nach Langzeitglühung bei Bestrahlungstemperatur beitragen, als stabile Matrixdefekte und schließen als Kandidaten auch kleine Phosphid- oder Karbonitrid-Ausscheidungen, Cottrell-Wolken und große Leerstellen-cluster (nanovoids) ein. In jedem Fall gelten die Matrixdefekte als nicht oder kaum mit Kleinwinkelstreumethoden oder mit der hochauflösenden erweiterten Elektronenmikroskopie nachweisbar [CAR 01], [DUY 92].

Man erkennt, dass die Übergänge zu den verschiedenen Typen der strahlenbedingten Gefügemodifikation sehr fließend sind. Einige gemeinsame Charakteristika lassen sich herauskristallisieren:

- Nanodisperse Größe
- Matrixähnliche (oder matrixgleiche) Gitterstruktur
- kein Spannungscontrast
- keine klar strukturierte Grenzfläche
- große Variabilität der Zusammensetzung und Atomdichte.

Als Grenzfälle der auftretenden Strukturen sind die Cu-reichen Ausscheidungen in den stärker Cu-haltigen RDB-Stählen auf der einen Seite und Leerstellencluster (Nanovoids) in sehr reinen Fe-Basislegierungen auf der anderen Seite zu betrachten.

Abweichend von diesen Erscheinungen tritt eine weitere strahlenbedingte Gefügemodifizierung ein – die Segregation von Fremdatomen an Korngrenzen oder Phasengrenzflächen. Obwohl schon seit längerer Zeit beobachtet [MIL 84], ist die strahlenbedingte Segregation auf Korn- und Grenzflächen gegenwärtig in den Mittelpunkt der Aufmerksamkeit gerückt [REV 00]. Insbesondere Phosphor wird als zur Segregation neigendes Element betrachtet und als Anreicherung auch nachgewiesen [MIL 95]. Die Segregationsneigung von P an Korngrenzen im Temperaturbereich zwischen 400 – 500 °C ist ein gut bekanntes metallurgisches Phänomen. Die niedrigen P-Gehalte moderner RPV-Stähle und die typischen Wärmebehandlungstechnologien vermeiden im Allgemeinen diesen Effekt. Bestrahlung kann durch bestrahlungsbeschleunigte Diffusion bei Stählen mit höherem P-Gehalt Segregation in stärkerem Ausmaß hervorrufen. Wirkt die Korngrenze als Senke für den Gitterdefekt (Leerstelle oder Zwischengitteratom), so kann im Falle einer starken Bindungsenergie zwischen Fremdatomen (in diesem Fall Phosphor) und Gitterdefekt sich das betreffende Element an der Korngrenze selbst aus stark ungesättigter Lösung bis über die Löslichkeitsgrenze anreichern, wodurch Ausscheidungen auftreten können [WOL 96]. Eine ausführliche Übersicht zur P-Segregation in bestrahltem RDB-Stahl gibt English et al. [ENG 01]. Nach seiner Recherche ist der Effekt eher marginal. Eine hohe Relevanz wird hingegen von Gurvich und Mitarb. [GUR 99a] postuliert. Seine Beobachtungen beziehen sich auf russische RDB-Stähle.

Die Wirkung der strahlenbedingten Gefügeänderung kann grundsätzlich auf der Grundlage eines einfachen, bereits von Ludwik, Davidenkov und Cottrell zur Erklärung des spröden Übergangsverhaltens von krz-Metallen benutzten Modells ([DAH 81], [FAB 96a,b]) verstanden werden. Dies ist schematisch im unteren Teilbild von Abb. 2.2 veranschaulicht. In diesem stark vereinfachten Modell wird der Bruchmodus im Überwachungsbereich auf ein Spannungskriterium zurückgeführt. Ist eine kritische Spaltbruchspannung σ_F größer als eine zur Fließspannung σ_Y proportionale Spannungsgröße ($C \cdot \sigma_Y$), dann erfolgt ein duktiler Versagen, andernfalls tritt ein spröder Bruch ein. Da σ_F nicht oder kaum temperaturabhängig ist, während σ_Y im tieferen Temperaturgebiet eine starke Temperaturabhängigkeit zeigt, ist ein sprunghafter Übergang vom spröden zum duktilen Versagen zu erwarten, dessen Temperaturlage von der Relation zwischen σ_F und σ_Y bestimmt wird. Die Bildung neuer, homogen verteilter Phasen oder Strukturinhomogenitäten durch Bestrahlung erzeugt zusätzliche Hindernisse für die Versetzungsbewegung (Abb. 2.2, mittleres Teilbild), die sich in ihrer Wirkung mit

den bereits im unbestrahlten Zustand vorhandenen Bewegungshindernissen (Abb. 2.2, oberes Teilbild) überlagern und so einen zusätzlichen Anstieg der Fließspannung ($\Delta\sigma_{irr}$) bewirken. Dieser als Strahlenthärtung bezeichnete Effekt führt zur Erhöhung der Übergangstemperatur. Unter diesen Umständen ist das als Neutronenversprödung bezeichnete Phänomen nur eine indirekte Folge der Strahlenthärtung und kann in erster Näherung proportional zu dieser angenommen werden.

Durch Segregation an Korn- und Phasengrenzflächen (Abb. 2.2, mittleres Teilbild), kann es aber auch zur Verringerung der Spaltbruchspannung σ_{F0} kommen, was ebenfalls eine Verschiebung der Übergangstemperatur zu höheren Temperaturen hervorruft und dann als echter Versprödungseffekt zu interpretieren ist. Ein solches Phänomen wird vor allem an der Änderung des Bruchtyps vom Quasi- oder echtem Spaltbruch zum interkristallinen Sprödbbruch erkannt. Wie bereits erwähnt, ist dieses Phänomen für WWER-RDB-Stähle häufig, für RDB-Stähle westlicher Provenienz nur gelegentlich beobachtet worden.

Dieses simple Modell erlaubt zwar ein grundsätzliches Verständnis, ist aber nicht in der Lage, alle Beobachtungen zu erklären oder gar quantitativ zu modellieren. Besonders problematisch scheint dabei die Überlagerung von Matrixfestigkeit und Strahlenthärtung zu sein. Auch der integrale Effekt unterschiedlicher Formen der Gefügemodifizierung, die bei Bestrahlung simultan entstehen, ist nicht aufgeklärt. Möglicherweise ergeben sich daraus die deutlichen Unterschiede, die in der Neutronenversprödungssuszeptibilität zwischen Grund- und Schweißmetall oder zwischen den RDB-Stählen verschiedener Stahlhersteller auftreten [SER 01].

2.3 Ergebnisse zur Neutronenversprödung von WWER-RDB-Stählen

Die Zusammensetzung und metallurgische Verarbeitung des RDB-Stahles, die verarbeiteten Blockgrößen und die charakteristischen Abmessungen der RDB-WWER-Reaktoren unterscheiden sich deutlich von denen der westlichen Reaktoren [DAV 97], [BRU 93a]. Somit ist zu erwarten, da diese Faktoren bekanntlich von Einfluss auf die Neutronenversprödung des RDB sind und selbst bei gleichem RDB-Material eine Herstellersignifikanz nachweisbar ist [SER 01], dass Phänomene und Mechanismen der Neutronenversprödung von WWER-RDB-Stählen eine eigene Charakteristik aufweisen.

Allerdings sind selbst innerhalb der WWER-RDB-Stähle große Unterschiede zu beachten. Der RDB-Stahl für WWER-440-Reaktoren des Types 15Kh2MFA (A) ist ein niedrig legierter nickelarmer Stahl mit hohem Cr- sowie Mo- und V-Gehalt. Die aus dem Russischen transkribierte Bezeichnung entspricht etwa einer deutschen Stahlmarke 15CrMoV2. Der Kennbuchstabe A kennzeichnet die Reinheit und weist auf hohe Reinheit hin, AA steht für besonders hohe Reinheitsgewährleistung. Stähle dieser Qualität wurden vor allem für Reaktoren der 2. (WWER 440/213) und 3. (WWER-1000) Generation im kernnahen RDB-Bereich eingesetzt. Für die Reaktoren vom Typ WWER-1000 mit ihrer größeren Wandstärke wurde aus technologischen Gründen die Nickel-legierte Stahlmarke 15Kh2NMFA(A) (gemäß deutscher Bezeichnung etwa 15CrNiMo2) eingesetzt [VIS 93]. Sie hat einen Nickelgehalt $\geq 1\%$ bei reduziertem Cr- und stark verringertem V-Gehalt. Beide Stahlmarken unterscheiden sich signifikant in ihrer Zusammensetzung von dem typischen deutschen oder amerikanischen RDB-Stahl vom Typ 20MnMoNi5-5, 22NiMoCr3-7, A 533 B Cl. 1 oder A 508 Cl. 3.

Tabelle 2.2 gibt die Zusammensetzung einiger Stahltypen an. Für die WWER-Stähle ist der hohe Legierungsgehalt an Karbidbildnern charakteristisch. Die Stahlzusammensetzung des RDB-Stahles für den WWER-1000 nähert sich der Zusammensetzung der westlichen RDB-Stahlmarken, ein hoher Cr- und Ni-Gehalt des WWER-1000-RDB-Stahles bleibt augenfällig. Die Stähle bzw. die RDB wurden von ISHORA in der Sowjetunion oder von Skoda Pilsen in der Tschechoslowakei gefertigt.

Im Hinblick auf die Neutronenversprödung ist neben dem RDB-Grundmaterial das verwendete Schweißmaterial vielfach wichtiger. Hier ist die Spezifikation für die WWER-Reaktoren uneinheitlich. Vorwiegend verwendet wurde die Stahlmarke Sv-10KhMFT für Reaktoren des Types WWER-440 und Sv-10KhGNMAA für WWER-1000. Für erstere waren z. T. hohe P-Gehalte, für letztere z. T. sehr hohe Ni-Gehalte typisch. Wie allgemein üblich weisen die Schweißmaterialien einen niedrigeren C-Gehalt auf.

Tabelle 2.2: Chemische Zusammensetzung von RDB-Stählen

Stahlmarke	Chemische Zusammensetzung, in Masse-%														
	C	Si	Mn	Cr	Mo	V	Ni	Cu	Co	As	S	P	Sb	Sn	P+Sb+Sn
Spezifikation 15Kh2MFA (WWER-440 a)	0.13 0.18	0.17 0.37	0.30 0.60	2.50 3.00	0.60 0.80	0.25 0.35	0.40 Max.	0.30 Max.	0.025 Max.	0.040 Max.	0.020 Max.	0.020 Max.	-	-	-
Spezifikation 15Kh2MFA-A (WWER-440) a)	0.13 0.18	0.17 0.37	0.30 0.60	2.50 3.00	0.60 0.80	0.25 0.35	0.40 Max.	0.10 Max.	0.025 Max.	0.010 Max.	0.015 Max.	0.012 Max.	0.05 Max.	0.05 Max.	0.015 Max.
Spezifikation 15Kh2NMFA-A (WWER-1000) a)	0.13 0.18	0.17 0.37	0.30 0.60	1.80 2.30	0.50 0.70	0.10 0.12	1.0 1.5	0.10 Max.	0.03 Max.	0.010 Max.	0.012 Max.	0.010 Max.	0.005 Max.	0.005 Max.	0.015 Max.
ASTM A508, Cl.3 a)	0.25 Max.	0.15 0.40	1.20 1.50	0.25 Max.	0.45 Max.	0.05 Max.	0.40 1.00	0.10 Max.	-	-	0.018 Max.	0.015 Max.	-	-	-
SV-10KhMFT Schweißmaterial WWER-440 b)	0.05 0.07	0.15 0.35	0.97 1.03	1.37 1.58	0.43 0.50	0.19 0.23	0.09 0.29	0.15 0.21	-	-	0.012 0.013	0.018 0.039	-	-	-
SV-10KhGNMAA Schweißmaterial WWER-1000 b)	0.05 0.12	0.14 0.41	0.72 0.94	1.70 1.88	0.55 0.70	0.01 0.03	1.17 1.88	0.05 0.08	-	-	0.006 0.012	0.010 0.011	-	-	-
20MnMoNi55 c)	0.15 0.25	0.10 0.35	1.15 1.55	0.20 Max.	0.40 0.55	0.020 Max.	0.45 0.85	0.10 Max.	-	0.025 Max.	0.012 Max.	0.012 Max.	-	0.011 Max.	-

a: Angaben in [HAW 00]

b: Angaben in [KUL 02]

c: nach KTA 3201, 1, Anhang A1

Die typische Wärmebehandlungstechnologie für beide RDB-Typen ist in Tab. 2.3 aufgeführt.

Tabelle 2.3: Wärmebehandlung für WWER-RDB-Schmiedestücke

Typ	Austenitisieren	Abkühlen	Anlassen
15Kh2MFA ^{a)}	(1000 ± 10) °C / 7...8 h	Wasser	680-720 °C / 13...14 h → Luft → (670 ± 10) °C / 31 h → Ofenabkühlung
15Kh2NMFA ^{b)}	920 °C	Wasser	650 °C/Luft → 620 °C / 25 h → 650 °C / 20 h → Ofenabkühlung

a) nach [HAW 00]

b) nach [BRU 87]

Die dadurch erzeugten Gefüge lassen sich wie folgt charakterisieren ([TÖR 79], [DAV 97], [GOR 96], [KOU 94], [PAV 93], [KOC 92], [KOC 02], [MIL 94], [MIL 00]):

Das Grundmetallgefüge ist überwiegend hochangelassener Bainit als Mischung aus massivem körnigen und nadligem Ferrit. Die Nadeln sind 0,2 ... 0,5 µm breit und in 10 ... 50 µm breite Pakete gebündelt. Vereinzelt tritt voreutektoider Ferrit auf. Die vormalige Austenitkorngröße ist beim WWER-440-Stahl hoch (ca. 40...120 µm), beim WWER-1000-Stahl deutlich kleiner (25...80 µm). Es treten rel. große (Ø = 0,2 µm), vorzugsweise an den Korngrenzen gebildete, blockige Mischkarbide vom Typ M₇C₃ oder M₂₃C₆ auf, deren Hauptbestandteil Cr ist. Daneben werden plattenförmige, feine Karbide an den Grenzen der Bainitlatten oder innerhalb der Ferritkörner vom Typ VC oder V₄C₃ beobachtet. Die feinen Karbide haben Abmes-

sungen von $\leq 10 \text{ nm} \times 40 \text{ nm}$. Es werden aber auch deutlich niedrigere Werte angegeben (2...4 nm dick, 20 nm lang). Die Versetzungsdichte ist gering und wird mit $2...4 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ angegeben.

Von der Austenitkorngröße abgesehen unterscheiden sich die Gefüge der WWER-440- und WWER-1000-RDB-Stähle nicht grundsätzlich. Der Bainit ist beim WWER-1000 häufig feinnadliger und voreutektoider Ferrit wird kaum noch beobachtet. Wie die Zusammensetzung erwarten lässt, werden V-haltige Karbide kaum nachgewiesen. Hier sind die feinen Karbide vorzugsweise Mo-haltig.

Das Schweißgefüge besteht aus einer Mischung von stängligen, gerichtet erstarrten und von gleichachsigen Körnern. Es ist überwiegend Ferrit. Im Bereich der gleich-achsigen Körner sind bainitische Bereiche vorhanden, die von einem Netzwerk aus voreutektoidem Ferrit, der sich entlang der vormaligen Austenitkorn Grenzen gebildet hat, umgeben sind. Die größeren Mischkarbide sind vorzugsweise entlang der Korngrenzen, die feinen VC- (oder MoC-) Karbide im Korninneren angeordnet. Die Anzahl dichte der Karbide ist entsprechend dem geringeren C-Gehalt im Schweißgefüge wesentlich geringer. Die Versetzungsdichte ist um etwa die Hälfte niedriger als für ein typisches Grundmetallgefüge. An den Korngrenzen werden P-Seigerungen nachgewiesen.

Neben den hier aufgeführten Gefügen werden z. T. auch Mischungen aus Martensit, selbstangelasenem Martensit und Bainit beschrieben. Da nach den üblichen hohen Anlasstemperaturen eine Trennung zwischen den verschiedenen Gefügestrukturen schwierig ist, werden möglicherweise mit der unterschiedlichen Benennung die gleichen Gefügeformen charakterisiert. Allerdings müssen in Anbetracht der starken Temperaturgradienten beim Abkühlen und der Gradienten in der Zusammensetzung des dickwandigen RDB durchaus auch starke Unterschiede in der Gefügeausbildung über die Wanddicke angenommen werden. Entsprechende Nachweise liegen vor [BOE 95]. Zusätzlich erzeugen Mikroseigerungen auch deutliche Gefügeunterschiede im μm -Größenbereich [BOE 99b].

Zum Einfluss der Neutronenbestrahlung auf WWER-RDB-Stähle liegen zahlreiche Untersuchungen vor. Sie wurden vor allem aus Bestrahlungsexperimenten in Materialtestreaktoren gewonnen. Eine zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse dieser frühen Untersuchungen ist in [ALE 81] zu finden. Jüngeren Datums sind die Ergebnisse aus den Surveillance-Programmen. Hier wurden sowohl Resultate, die an russischen bzw. an den von russischer Seite betreuten WWER-Reaktoren gewonnen wurden ([AMA 93], [KRY 94], [AMA 96], [LEV 99], [NIK 00a]), als auch Ergebnisse aus den Surveillance-Programmen der finnischen ([VAL 93], [AHL 92]), tschechoslowakischen ([BRU 93b], [FAL 93], [KUP 93a,b], [PAV 93], [FAL 95], [KOC 00]) und ungarischen ([GIL 89], [OSZ 93]) Reaktoren publiziert.

Als direkter Rückfluss aus dem Betriebsverhalten der RDB sind die Untersuchungen an Treppans der Reaktoren KKW Novovoronesh, Block 1 ([GOR 96], [KRA 97], [VAL 00]) und 2 ([SHT 95], [SHT 96], [NIK 96]) oder an Schiffchen-Proben aus Reaktoren der Baulinie WWER 440/230 (KKW Kozlodui-1 [CVI 99] und -2 [KRY 93], [KRY 96a], KKW Novovoronesh-3, -4 [KRY 96b], [KOR 98], [KOR 00], KKW Greifswald-2 [VAL 95]) zu werten. Außerdem sind vorzugsweise im Rahmen von TACIS-Programmen (s. EU, DG1A, TACIS Contract Information) zusätzliche Bestrahlungen auf Surveillance-Positionen vorgenommen worden ([AMA 99a], [NIK 02]). Von Interesse sind ferner die Erweiterungen der Surveillance-Programme, die auf die zusätzliche Gewinnung von bruchmechanischen Materialdaten abzielten ([OSZ 99], [OSZ 95], [GIL 93], [BRU 97], [KUP 02], [BRU 02], [BRU 00]).

Die Bewertung der Ergebnisse aus den WWER-1000-Surveillance-Programmen ist nicht zuverlässig möglich, da diese wesentliche Auslegungsmängel aufwiesen [KAM 99], [KRY 97], [KRY 98], [KRY 00], [BRU 95]. Zusätzliche Bestrahlungen auf günstigere Bestrahlungsposi-

tionen haben inzwischen neue Befunde geliefert [AMA 99b], [NIK 02], [KRY 98]. Schließlich sei auf die vergleichenden Untersuchungen zum Bestrahlungsverhalten russischer und amerikanischer RDB-Stähle verwiesen, die im Rahmen einer amerikanisch-russischen Kooperation durchgeführt wurden [HAW 00, SOK 00].

Einige ausgewählte Beispiele aus den Ergebnissen der Versprödungsüberwachungsprogramme sind in den Abbn. 2.3 bis 2.6 wiedergegeben. Die Abbildungen verdeutlichen beispielhaft, dass die verschiedenen Chargen von Grund- und Schweißmaterial unterschiedliche Versprödungsempfindlichkeit besitzen, die nicht immer auf den Einfluss von Cu und P zurückzuführen ist. Die schädliche Wirkung von P wird wiederholt belegt ([NIK 00b], [AMA 93]) und aus der Änderung der Bruchcharakteristik im Kerbschlagbiegeversuch abgeleitet ([GUR 00], [PLA 99]). Die Bruchflächen enthalten oftmals einen beträchtlichen Teil an interkristallinen Sprödbruch im Tieflagen- und unteren Übergangsbereich, vereinzelt wird von duktilen Korngrenzenbrüchen in der Zähigkeitshochlage berichtet.

In der Tendenz ist festzustellen, dass der für russische Stähle angegebene chemische Faktor die Versprödungsempfindlichkeit konservativ beschreibt. Es gibt aber auch zahlreiche, z.T. beträchtliche Abweichungen. Nach Amayev u.a. [AMA 93], die eine detaillierte statistische Analyse der Ergebnisse der Surveillance-Programme der sowjetischen WWER-440-Reaktoren vornehmen, ist der rein Cu-bedingte Versprödungseffekt klein. Stattdessen gibt es einen synergistischen Cu-P-Effekt. Die höhere Empfindlichkeit des Schweißgefüges, die allgemein postuliert wird, ist nicht in jedem Fall durch den experimentellen Fund belegt. Die erwähnte statistische Analyse in [AMA 93] findet eine für Grund- und Schweißmetall vergleichbare Strahlenempfindlichkeit, wenn die Cu-P-Zusammensetzung in geeigneter Wichtung berücksichtigt wird.

Die Fluenzabhängigkeit wird häufig mit einer Potenz $n = 1/3$ gut angenähert ([AMA 93], [VIS 93], [SHT 99], [NIK 00a]). Kruykov u. a. [KRY 98] geben stattdessen an, dass in dem durch die Surveillance-Programme erfassten Fluenzbereich, allerdings für Ni-haltige RDB-Stähle, eine lineare Abhängigkeit die Ergebnisse besser beschreibt. Brumovsky und Pav [BRU 93b] finden in Auswertung der Surveillance-Ergebnisse von 6 tschechoslowakischen WWER-440-Einheiten eine Potenz von 0.5.

In vielen Fällen korrelieren die bestrahlungsbedingte Verschiebung der Übergangstemperatur nicht mit der Erhöhung der Streckgrenze, wie auch aus den in den Abbn. 2.3 - 2.6 dargestellten Beispielen erkennbar ist. Nach [LEV 99] wird im Fluenzbereich zwischen $(1 - 5) \cdot 10^{19}$ n/cm², $E > 0,5$ MeV keine weitere Strahlenhärtung beobachtet, während die Übergangstemperatur sich stetig erhöht. Allerdings sind auch durchaus gegenteilige Trends festzustellen [AMA 93]. Kritisch muss bewertet werden, dass die Zuverlässigkeit der Bestimmungen der Parameter aus dem Zugversuch nicht befriedigen kann. Oftmals beruhen sie auf Messungen an nur 3 nicht-standard-gerechten Kleinzugproben, deren Repräsentativität in Anbetracht der starken Materialinhomogenitäten fraglich ist. Im Vergleich dazu werden die Übergangstemperaturen mit wesentlich höherem Aufwand ermittelt.

Grundsätzlich kann die Strahlenempfindlichkeit, insbesondere der Cr-Mo-V-legierten RDB-Stähle als niedrig eingeschätzt ([HAW 00], [SOK 00]) werden. Das gilt vorzugsweise für die Stähle sehr hoher Reinheit vom Typ AA.

Die Reduzierung der Strahlenempfindlichkeit auf den Gehalt an P und Cu versagt bei den teilweise hoch-nickelhaltigen RDB-Stählen und Schweißen für den WWER-1000. Dem Einfluss des Ni sind deshalb eine Reihe von Untersuchungen gewidmet ([AMA 99b]). Nach Kamenova und Vodenicharov [KAM 99] sind selbst bei vergleichbaren Cu-, P- und Ni-Gehalt Unterschiede der aus den Surveillance-Programmen bestimmten Koeffizienten der Versprö-

dungsempfindlichkeit im Bereich von 5 – 35 festzustellen. Ergebnisse russischer Untersuchungen zeigen bei Ni-Gehalten > 1,5 % und Fluenzwerten > $5 \cdot 10^{19}$ n/cm², E > 0,5 MeV eine starke Versprödung mit Übergangstemperaturverschiebungen > 100 °C ([KRY 97], [NIK 00b]). Nickel hat darüber hinaus einen deutlichen Einfluss auf das Ausheilverhalten, Ni verzögert die Ausheilung und führt zu unvollständiger Ausheilung in der erprobten Technologie von 475 °C / 150 h ([NIK 00c], [KRY 98]). Schließlich wird an stark Ni-haltigen Schweißen auch eine bestrahlungsbedingte Verringerung der Streckgrenze bei Fluenzen um $3 \cdot 10^{19}$ n/cm², E > 0,5 MeV festgestellt ([NIK 97b], [KRY 98]).

Ergebnisse über Gefügeuntersuchungen im bestrahlten Zustand liegen aus dem UJV Rez [KOC 92], [KOC 00], [KOC 02], dem Kurchatov-Institut Moskau [GUR 99a], [GUR 99b], [PLA 99], [GUR 00], [KUL 02], dem Prometey St. Petersburg [GOR 96] und der Siemens AG, KWU [MAU 99] vor. Sie wurden mit herkömmlicher Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) gewonnen. Neben TEM haben Miller u.a. [MIL 95], [MIL 00] auch Atomsonden-Feldionemikroskopie (APFIM) eingesetzt. Einige Arbeiten sind dem Nachweis von Segregationen auf Korn- bzw. Bruchflächen gewidmet ([GUR 00], [MIL 94], [PLA 99], [VOD 99]). Schließlich werden auch Positronenannihilationsspektroskopie (PAS) ([BEC 91], [BRA 91], [KOC 02], [SLU 98], [SLU 99]) und Mößbauer-Spektroskopie [ILO 02], [SLU 98], [SLU 99] zum Nachweis von bestrahlungsbedingten Strukturänderungen genutzt.

Die grundsätzliche Gefügeausbildung wird durch die Bestrahlung nicht verändert. Auch Art, Form, Größe und Verteilung der größeren Karbide bleiben ebenso erhalten wie die Versetzungsstruktur. Nach kleinen Fluenzen sind mit herkömmlicher TEM keine oder nahezu keine Bestrahlungseffekte detektierbar. Hochbestrahlte Surveillance-Proben oder Proben aus den RDB nach längerer Betriebszeit zeigen indessen charakteristische Strukturerscheinungen.

Gurovich und Mitarbeiter [GUR 99a,b], [GUR 00] unterscheiden die folgenden Strukturerscheinungen:

- Versetzungsschleifen und/oder „black dots“
- Scheibenförmige Ausscheidungen
- Runde Ausscheidungen.

Die black-dots werden als Matrixdefekte mit schwachem Kontrast bezeichnet, die bei besserer Sichtbarkeit als Versetzungsschleifen zu identifizieren sind. Ihr Durchmesser beträgt ca. 5 nm und ist nicht fluenzabhängig. Die Anzahldichte steigt mit der Fluenz von ca. $(2-3) \cdot 10^{15}/\text{cm}^3$ bei einer Fluenz von ca. $1 \cdot 10^{19}$ n/cm² auf 7...8 bei einer Fluenz von $6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm². Sie verschwinden nach Ausheilen bei 475 °C / 150 h.

Die scheibenförmigen Ausscheidungen existieren mit niedriger Anzahldichte bereits im unbestrahlten Zustand. Bestrahlung erhöht ihre Anzahldichte von ursprünglich um $0,5 \cdot 10^{15}/\text{cm}^3$ bis auf ca. $50 \cdot 10^{15}/\text{cm}^3$ nach einer Fluenz von $6,5 \cdot 10^{19}$ n/cm². Mit der Fluenz steigt ihre Anzahldichte, während die Größe im Untersuchungsbereich konstant bleibt, aber deutlich kleiner als im unbestrahlten Zustand ist. Ausheilen führt auch hier wiederum zum Rückgang der Anzahldichte, gleichzeitig zu einer Zunahme der Größe, allerdings werden die Ausgangswerte erst nach einer 2-stündigen Glühung bei 560 °C erreicht. Typische Abmessungen sind Dicken von 1...2 nm und Durchmesser von 10 nm im bestrahlten bzw. 20 nm im unbestrahlten oder im ausgeheilten Zustand. Die runden Ausscheidungen sind homogen verteilt und erreichen Anzahldichten bis $10^{18}/\text{cm}^3$ bei Durchmessern von 2 nm. Sie werden ebenfalls durch Ausheilglühungen in ihrer Anzahl um deutlich mehr als eine Größenordnung reduziert, wobei ein Teilchenwachstum auf 3...4 nm zu beobachten ist. Sie werden als Cu-reiche Ausscheidungen interpretiert. Die Ergebnisse von GOR u.a. [GOR 96] an Schweißmaterial aus den Reaktoren Novovoronesh 1 und 4 bestätigen diesen Befund hinsichtlich der Versetzungsschleifen, für die vergleichbare Anzahldichten angegeben werden.

Als Versetzungsschleifen interpretierbare „black dots“ werden auch von Maussner u.a. [MAU 99] nachgewiesen, deren Größe 1...5 nm beträgt und deren Anzahldichte mit der Fluenz auf $(6-8) \cdot 10^{15}/\text{cm}^3$ anwächst. Sie beobachten gelegentlich zusätzliche Arten von Karbiden im bestrahlten Zustand, was aber auch auf Materialinhomogenitäten zurückgeführt werden kann.

„Black dots“ wurden an WWER-RDB-Stählen erstmals von Kocik und Mitarbeitern [KOC 92] beschrieben. Sie erscheinen erst nach einer Fluenz von $\sim 1 \cdot 10^{19}/\text{cm}^2$. Mit wachsender Fluenz vergrößert sich ihr Durchmesser und steigt ihre Anzahldichte. Ihre Verteilung ist heterogen und bevorzugt mit Versetzungen verknüpft. In ihren Untersuchungen an Surveillance-Proben der Reaktoren in Dukovany und Bohunice [KOC 02] mit RDB-Stahl von Skoda Pilsen unterscheiden sie black dots, Versetzungsschleifen und Ausscheidungen. Ihre Größen und Anzahldichten hängen von der Flusssdichte und der Fluenz ab. Die Ausscheidungen sind entlang von Versetzungen konzentriert. Angaben zur Natur der Black dots können nicht gemacht werden. Größe und Anzahldichte erreichen eine Sättigung bei einem Durchmesser von 11 nm und einer Dichte von $1,4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ für das Schweißmaterial und 10 nm bzw. $19 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ für das Grundmetall. Die Ausscheidungen werden als V-Karbide bezeichnet, wobei bei Bestrahlung der Anteil feinerer Karbide wächst ($d \approx 2 \text{ nm}$), während der Anteil mit Teilchendurchmesser $\leq 8 \text{ nm}$ abnimmt. Die statistische Relevanz der Beobachtung ist nicht ausgewiesen.

Müller u.a. [MIL 00], [MIL 01] analysieren mit APFIM hochbestrahlte Surveillance-Proben tschechischer Provenienz. In dem Cu-armen Grund- und Schweißmetall werden runde bzw. zylindrische Komplexe mit Durchmessern von 3...4 nm analysiert, die Mn-, Si-, P-, C- und Cu-Anreicherungen aufweisen. Sie sind weniger als Ausscheidung, sondern vielmehr als Cottrell-Atmosphäre im Spannungsfeld einer Versetzung aufzufassen. Trotz hoher Anreicherungsfaktoren in den Komplexen (2...115) ist damit keine signifikante Änderung der Matrixkonzentration verbunden. Das steht im Einklang mit der experimentellen Beobachtung, dass die Elementkonzentrationen der Matrix sich kaum durch Bestrahlung ändern.

In einer weiteren Studie weist Müller u.a. [MIL 95] eine hohe P-Segregation an den Grenzen der Bainitnadeln nach. Zusätzlich werden im bestrahlten Zustand auch kleine Cu- und P-angereicherte Ausscheidungen detektiert.

2.4 Eliminierung der Neutronenversprödung durch Wärmebehandlung (Ausheilen)

Nahezu gleichermaßen so lange bekannt wie das Phänomen der Strahlenversprödung selbst, ist auch die Tatsache, dass eine der Bestrahlung nachfolgende Anlassbehandlung bei Temperaturen oberhalb der Bestrahlungstemperatur die Versprödung teilweise oder vollständig beseitigen kann [STE 75]. Dieses Ausheilglühen wurde jedoch erst in den 80er Jahren ingenieurtechnisch relevant als erkannt wurde, dass die WWER-440-Reaktoren der ersten Generation ohne eine solche Wärmebehandlung die avisierte Betriebszeit von 25 – 30 Jahren keinesfalls erreichen werden, ohne die vorgegebenen Grenzwerte der zulässigen Übergangstemperaturverschiebung zu überschreiten. Deshalb wurden auch vorzugsweise von russischer Seite und für die RDB-Stähle vom Typ 15Kh2MFA Untersuchungen zum Ausheilverhalten durchgeführt. Parallel dazu wurde eine großtechnische Technologie und Ausrüstung entwickelt, um RDB vom Typ WWER-440, die ihre Auslegungsgrenze erreicht haben, auszuheilen. Da kritische Versprödungszustände lediglich im Bereich der Schweißnaht 4 des WWER-440-RDB auftreten, erwies es sich als ausreichend, den RDB nur in einer ringförmigen Zone der Breite von ca. $\pm 700 \text{ mm}$ um diese Schweißnaht zu erwärmen. Als geeignete Wärmebehandlung wurde ein 100- bis 170-stündiges Glühen bei $475 \text{ }^\circ\text{C}$ festgelegt. Inzwischen wurden mehr als 15 WWER-440-RDB ausgeheilt, einer davon bereits zum zweiten Male. Eine Übersicht zur Technologie und zu den mit der thermischen Behandlung verbundenen Eigenschaftsänderungen ist in [PLA 94] und [PEL 95] enthalten.

Amayev u. a. fassen die russischen Ergebnisse zum Ausheilverhalten des WWER-440-RDB-Stahles 15Kh2MFA [AMA 93] und des WWER-1000-RDB-Stahles 15Kh2NMFA [AMA

99a] zusammen. Das Ausheilen folgt einem sigmoidalen Temperaturverlauf. Nahezu vollständige Ausheilung ist nach Langzeitglühen (≥ 100 h) bei Temperaturen > 420 °C zu erwarten. Die Reduktion der Kerbschlagenergie in der Hochlage erholt sich dabei schneller als die Übergangstemperatur. Die Erholung der Strahlenhärtung bleibt in der Regel unvollständig. Das Erholungsverhalten hängt nicht von der Fluenz der vorangegangenen Bestrahlung ab. Auch der Cu-Gehalt ist nicht von Einfluss. Hingegen verschlechtert Phosphor bei einem Gehalt $> 0,02$ % deutlich die Ausheilung. Für Ni-haltige Stähle sind leicht höhere Ausheiltemperaturen (490 °C) vorteilhaft.

Um die Lebenszeit älterer Reaktoranlagen verlängern zu können, ist in den letzten Jahren das Verfahren des thermischen Ausheilens zunehmend auch von US-amerikanischer Seite untersucht worden [SHA 93], [NAN 99]. Während die auf eine „nasse“ Ausheiltechnologie ausgerichteten Untersuchungen bei Ausheiltemperaturen von 350 °C nur geringe Ausheileffekte aufzeigen, konnte bei höheren Ausheiltemperaturen (450 °C) ein vollständiger oder nahezu vollständiger Rückgang der Strahlenhärtung und -versprödung nachgewiesen werden [ROS 99].

Aus sicherheitstechnischer Sicht ist die Bewertung des Ausheilens im Rahmen des Sprödbruchsicherheitsnachweises unbefriedigend. Der Effekt des Ausheilens kann nur für die unplatzierten RDB der ältesten WWER-440/230-Reaktoren direkt nachgewiesen werden, aber auch in diesen Fällen nur an nichtstandardgerechten Kleinproben, die aus einer schmalen Oberflächenschicht entnommen werden. Demzufolge sind den dem Sicherheitsnachweis zugrundezulegenden Kennwerten große Streubänder zuzuordnen, die letztlich nur eine geringe effektive Erhöhung der Übergangstemperatur bewirken und so nur kurze Lebensdauererlängerungen ermöglichen. Ein vertieftes Verständnis der beim Ausheilen ablaufenden Vorgänge ist deshalb eine wesentliche Voraussetzung für eine optimale Nutzung einer solchen Technologie zur Lebenszeitverlängerung laufender Anlagen.

3. Plan und Methoden der Untersuchungen

3.1 Versuchsstrategie und Arbeitsprogramm

Das zentrale Anliegen der Untersuchung war die Erfassung der Strukturschädigung bzw. der Gefügeänderungen in WWER-RDB-Stählen als Folge von Neutronenstrahlung. Damit sollte beigetragen werden, die für diese Stahlmarken vorhandene Kenntnislücke zu schließen. Um daraus aber physikalisch begründete sicherheitsrelevante Schlüsse zum RDB-Integrationsverhalten zu ziehen und Modellansätze zur Beschreibung der Strahlenversprödung abzuleiten, waren diese Arbeiten durch eine möglichst vielfältige Charakterisierung der mechanischen Eigenschaften zu ergänzen. Zur Lösung dieser Aufgabe stand jedoch kein entsprechend dediziertes Bestrahlungsprogramm zur Verfügung.

Das Arbeitsprogramm orientierte sich deshalb

- auf die Nutzung eines möglichst breiten Materialfundus,
- auf die Verwendung von Material, das hinsichtlich seiner mechanischen Eigenschaften im Rahmen anderer Arbeitsprogramme bereits gut charakterisiert war,
- auf die Untersuchung von Proben aus einem breiten Spektrum der Belastungsbedingungen und
- auf die Variation von weniger Haupteinflussparameter, wie Stahltyp, Fluenz und Bestrahlungstemperatur.

Angestrebt wurde eine möglichst komplexe Gefügecharakterisierung mit unterschiedlichen Verfahren der Strukturanalyse. Im Einzelfall war dabei die spezielle Verfahrensentwicklung ebenso Bestandteil des Arbeitsprogrammes wie der Nachweis der Verfahrenseignung. Es

stellte sich im Laufe der Bearbeitung jedoch heraus, dass eine große Anzahl der Methoden keine für die vorliegende Aufgabe relevante Information lieferte. Andere waren zu aufwendig oder nicht mit vertretbarem Aufwand verfügbar. So fokussierte sich das Arbeitsprogramm zunehmend auf die Strukturanalyse mit Hilfe der Neutronenkleinwinkelstreuung.

Im einzelnen umfasste das Arbeitsprogramm die folgenden Arbeitsschritte:

- Auswahl und Gewinnung von geeigneten Proben aus dem Surveillance-Programm von WWER-Reaktoren, aus Bestrahlungen an Testlegierungen und aus dem Bestrahlungsprogramm Rheinsberg
- Erfassung der mechanischen Eigenschaften
 - . Bestandsaufnahme (Analyse bisheriger Untersuchungen)
 - . Ergänzung durch eigene Werkstoffprüfungen (Härtemessung, Charpy-Versuch, Zugversuch, bruchmechanischer 3-Punkt-Biegeversuch)
- Strukturuntersuchung
 - . Charakterisierung des Ausgangszustandes (Metallographie, TEM, REM)
 - . Hochauflösende Analytische Elektronenmikroskopie (HTEM)
 - . Neutronenkleinwinkelstreuung
 - . Röntgenkleinwinkelstreuung
 - . ergänzende Verfahren
 - . Definition und Bestimmung von Strukturparametern zur Charakterisierung der Strahlendefekte
- Ermittlung von Korrelationen zwischen Gefügeparametern, Belastungsbedingungen und mechanischen Eigenschaften
- Einfluss einer Ausheilglühung
- Modellmäßige Bewertung der Korrelationen
 - . Strahlenhärtung
 - . Strahlenversprödung
 - . Vergleich mit deutschen und ASTM-RDB-Stählen
 - . Vergleich mit Trendkurven und Vorhersagegleichungen
 - . Sicherheitsanalytische Bewertung

3.2 Untersuchte Werkstoffe

In das Versuchsprogramm wurden

- WWER-440-RDB-Grund- und Schweißwerkstoffe
- WWER-1000-RDB-Grund- und Schweißwerkstoffe
- RDB-Stähle vom Typ ASTM A 533 B cl. 1 und A 508 cl 3 und
- Eisenbasis-Modelllegierungen

einbezogen.

Eine Übersicht der verwendeten Werkstoffe enthält Tab. 3.1. Die chemische Zusammensetzung ist in Tab. 3.2 aufgeführt.

Tabelle 3.1: Übersicht der untersuchten Werkstoffe

Typ	Stahlsorte	Charge/ Code	Hersteller/ Lieferant	Bemerkung
1.1 Bestrahlungsprogramm Rheinsberg I				
WWER-440 GW	15Kh2MFA	R1 R2 R3 D25	Prometey RRC-KI	aus russischer RDB-Fertigungslinie
WWER-1000 GW	15Kh2NMFAA	R16 R17	VNIIAES	KKW Koslodui, Block 5 KKW Südukraine, Block 1
WWER-1000 S	10KhGMFAA	R19	VNIIAES	KKW Südukraine, Block 1
1.2 Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II				
WWER-440 GW	15Kh2MFA	KAB-B	KKW	Prototyp-Werkstoff für
WWER-440 S	Sv10KhMFT(u)	KAB-W	Greifswald	WWER-440/230
WWER-440 GW	15Kh2MFA	ESW-A ESW-B ESW-C ESW-D	ESW	Versuchsschmelze
ASTM-Stahl GW	A533B cl. 1 A508 cl. 3	JRQ JFL	Japan	IAEA-Referenzmaterial IAEA-CRP-Programm
2. Surveillance-Proben				
WWER-440 GW	15Kh2MFAA	PA1-B	Skoda	KKW Paks, Block 1
S	Sv10KhMFT	PA1-W		KKW Paks, Block 1
GW	15Kh2MFA	RO-B KO-B	RRC KI	KKW Rovno, Block 1 KKW Kola, Block 3
WWER-440 S	Sv10KhMFT	RO-W AR-W	RRC KI	KKW Rovno, Block 1 KKW Armenia, Block 2
3. Modelllegierungen				
Eisenbasis-Mehrstofflegierung (FeMnSi)		ML-A ML-B ML-C ML-D ML-F ML-G ML-H	RRC-KI	Variation von P, Cu und Ni
4. Sonderbestrahlung				
WWER-1000 S	10KhGMFAA	TA-1 TA-2	RRC-KI	KKW Novovoronesh, Block 5, Surveillance Position

GW – Grundwerkstoff; S – Schweiße

Die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I entstammen der laufenden Produktion der russischen RDB-Produktionslinie der Jahre um 1980. Sie entsprechen in ihrer Zusammensetzung der in jenen Jahren aktuellen Spezifikation für WWER-RDB im kernnahen Bereich. Einige Probensätze sind Teil des Probenvorrates für das Surveillance-Programm

ausgeführter WWER-Blöcke. Ihre Gefüge sind bainitisch, zum Teil ist ein geringer Anteil von voreutektoidem Ferrit vorhanden. Es wurden jeweils bereits gefertigte Proben geliefert, die im Rahmen des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I bestrahlt wurden, soweit sie nicht zur Charakterisierung des Ausgangszustandes benutzt werden sollten. Ausführliche Informationen zu dieser Werkstoffgruppe sind in [VIE 00] enthalten.

Tabelle 3.2: Chemische Zusammensetzung der untersuchten Werkstoffe in Masse-% (Fe Rest)

Type	Code	C	Mn	Si	Cr	Ni	Mo	V	S	P	Cu	Al	Co
15Kh2MFA	R1	0,14	0,45	0,24	2,13	0,27	0,61	0,25	0,011	0,011	0,10		
	R2	0,14	0,44	0,25	2,82	0,12	0,68	0,29		0,014	0,12		
	R3	0,17	0,45	0,26	2,60	0,12	0,67	0,30		0,024	0,12		
	D 25	0,16	0,49	0,22	2,74	0,10	0,68	0,32		0,017	0,11		
15Kh2NMFAA	R16	0,14	0,48	0,31	2,21	1,11	0,57	0,10		0,012	0,07		
	R17	0,15	0,47	0,27	2,08	1,30	0,57	0,10		0,013	0,13		
10KhGNMAA	R19	0,09	1,14	0,38	1,66	1,71	0,63	0,01	0,010	0,012	0,04		
15Kh2MFA	KAB-B	0,14	0,55	0,24	2,60	0,24	0,62	0,27	0,013	0,011	0,22	0,010	0,020
Sv10KHMFT(u)	KAB-W	0,047	1,32	0,39	1,29	0,19	0,24	0,17	0,014	0,050	0,19	0,015	0,017
15Kh2MFA	ESW-A	0,145	0,28	0,12	2,35	0,07	0,70	0,23	0,028	0,018	0,14	0,025	0,011
	ESW-B	0,176	0,29	0,14	2,61	0,07	0,68	0,35	0,030	0,046	0,14	0,009	0,011
	ESW-C	0,145	0,36	0,18	2,60	0,07	0,67	0,30	0,030	0,018	0,34	0,007	0,010
	ESW-D	0,147	0,42	0,25	2,65	0,07	0,68	0,29	0,030	0,042	0,32	0,009	0,010
	PA1-B	0,16	0,54	0,29	2,70	0,07	0,68	0,28	0,018	0,014	0,09		0,010
	PA1-W	0,04	1,25	0,64	1,34	0,06	0,50	0,21	0,013	0,014	0,08		0,008
15Kh2MFA	RO-B	0,170	0,49	0,28	2,72	0,13	0,63	0,33	0,010	0,010	0,14		
	KO-B	0,160	0,41	0,23	2,63	0,15	0,66	0,28	0,010	0,011	0,09		
Sv10KhMFT	RO-W	0,050	1,24	0,40	1,30	0,12	0,43	0,19	0,014	0,028	0,18		
	AR-W												
A533BCL 1	JRQ	0,204	1,42	0,23	0,13	0,80	0,52	0,0084	0,0049	0,0203	0,152		0,0097
A508CL 3	JFL	0,17	1,42	0,25	0,16	0,75	0,52	0,004	0,002	0,004	0,01	0,014	
FeMnSi	ML-A	0,01	0,39	0,15		0,01			0,004	0,002	0,015		
FeMnSiCu	ML-B	0,01	0,49	0,24		0,01			0,005	0,012	0,42		
FeNi2MnSi	ML-C	0,01	0,35	0,09		1,98			0,004	0,010	0,12		
FeNi1MnSi	ML-D	0,01	0,41	0,12		1,10			0,004	0,012	0,12		
FeMnSiNi(P)	ML-E	0,01	0,46	0,20		1,13			0,004	0,039	0,12		
FeMnSiNiCu	ML-F	0,01	0,47	0,21		1,19			0,004	0,012	0,42		
FeMnSi(Cu,P)	ML-G	0,01	0,48	0,37		0,012			0,004	0,013	0,11		
FeMnSi(P)	ML-H	0,01	0,49	0,24		0,010			0,004	0,039	0,11		
10KhGMFAA	TA-1	0,08	0,74	0,42	1,86	1,59	0,61	0,01	0,0075	0,010	0,058		
	TA-2	0,07	1,05	0,29	1,64	1,11	0,59	0,01	0,0084	0,017	0,106		

Die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg II standen dem FZR (bzw. der Vorläuferinstitution ZfK) als Halbzeuge zur Verfügung. Die Stähle mit Code KAB als WWER-440-Grund- und KAB-W als Schweißwerkstoff sind dem KKW Greifswald als plattiertes, 149 mm dickes Plattensegment mit Schweißnaht vom russischen Hersteller zur Verfügung gestellt worden und gelten als Prototyp der WWER-440/230-Generation, die in den 70-er Jahren auf der russischen Produktionslinie (Izhora) gefertigt wurde. Chargen mit Code ESW-A ...-D sind als 50-kg-Blöcke in einer industriellen Kleinproduktion im Edelstahlwerk Freital hergestellt worden, wobei bei den einzelnen Chargen die Gehalte an Cu und P gezielt variiert worden sind. Die Stähle lagen am Ende als Blechstreifen in zwei verschiedenen Dicken vor und wurden nach WWER-440-typischer Wärmebehandlungstechnologie vergütet und angelassen. Nähere Angaben sind [POP 89] zu entnehmen. Es zeigte sich, dass die Eigenschaften der verschiedenen Blechstreifen signifikante Unterschiede aufwiesen. Für die einzelnen Bestrahlungsexperimente wurden stets Proben des gleichen Halbzeugteiles verwendet.

Aus den vorhandenen Halbzeugen wurden Charpy-V-Kerb-Standard- oder für bruchmechanische Prüfungen modifizierte (seitgekerbte, angerissene) Charpy-Proben und Kleinzugproben hergestellt [POP 89].

Eine weitere Gruppe umfasst Proben aus den Versprödungsüberwachungsprogrammen (Surveillance-Proben) von WWER-440-Reaktoren. Die Surveillance-Proben aus dem Block 1 des

KKW Paks charakterisieren das RDB-Material der Skoda-Produktionslinie der WWER-440/213-Baureihe. Die Werkstoffe RO-B, KO-B, RO-W und AR-W stammen aus russischer Produktion. AR-W ist ein Schweißwerkstoff aus dem armenischen WWER-440/230-KKW Medsanor-2. Es ist etwa zeitgleich mit dem WWER-440/213-Block-1 des ukrainischen KKW Rovno gefertigt worden. Es wurden Grund-(RO-B) und Schweiß-(RO-W)-Werkstoff untersucht. KO-B ist Grundwerkstoff aus dem WWER-440/213-Block 3 des russischen KKW Kola.

Die Gefüge der Grundwerkstoffe sind bainitisch. Im Schweißwerkstoff sind Bereiche vorhanden, an denen sich an den vormaligen Austenitkorn Grenzen ein Ferritnetz gebildet hat. Die mechanische Prüfung der Werkstoffe erfolgte im Rahmen des Überwachungsprogrammes im KKW Paks bzw. im RRC-KI. Für die Untersuchungen dieses Vorhabens standen jeweils halbe, bereits geprüfte Charpy-Kerbschlagbiegeproben zur Verfügung.

Die Modelllegierungen wurden vom RRC-KI zur Verfügung gestellt. Es sind jeweils Versuchsschmelzen aus mehrkomponentigen Fe-Basislegierungen mit Variation des Ni-, Cu- und P-Gehaltes. Die letzte Wärmebehandlung erfolgte in Analogie zur vorgeschriebenen Wärmebehandlung der russischen RDB-Stähle. Aus den Schmelzen wurden Charpy-V-Kerb-Standard- und Kleinzugproben hergestellt. Die mechanischen Prüfungen erfolgten im RRC-KI. Für die Untersuchungen dieses Vorhabens standen jeweils halbe, bereits geprüfte Charpy-Kerbschlagbiegeproben zur Verfügung.

Das Gefüge der Modelllegierungen ist rein oder überwiegend ferritisch. Nähere Angaben sind in [BOE-99] enthalten.

Schließlich waren Proben aus 2 Chargen eines WWER-1000-Schweißwerkstoffes mit unterschiedlichem Ni-Gehalt verfügbar (Werkstoffe TA-1, TA-2).

3.3 Bestrahlungsbedingungen

Bestrahlungsexperiment Rheinsberg I und II

Die Bestrahlung erfolgte im WWER-2 des KKW Rheinsberg über 1 - 3 Reaktorzyklen im Zeitraum von 1983 bis 1990.

Der WWER-2 ist ein Prototyp-Reaktor mit einer Leistung von 70 MW. Neutronenflussdichte und -spektrum sind vergleichbar mit WWER-440-Reaktoren. Das Temperaturniveau des Reaktorkühlwassers liegt niedriger (Eintrittstemperatur: 245,5 °C, Austrittstemperatur: 262 °C).

Der inzwischen stillgelegte WWER-2 besaß günstige Voraussetzungen für Bestrahlungsexperimente. Er hatte 2 Arten von Bestrahlungskanälen:

- 24 vertikale Surveillance-Kanäle zwischen thermischem Schild und Schacht mit kleinem Kanaldurchmesser (33 mm) und niedriger Neutronenflussdichte ($1...2 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$, $E > 0,5 \text{ MeV}$)
- 6 Hochfluss-(Target)-Kanäle mit großem Querschnitt (103 mm) und hoher Neutronenflussdichte ($10...40 \cdot 10^{11}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$), die in 60°-Symmetrie an der Core-Peripherie innerhalb des Kernkorbes angeordnet sind.

Beide Arten wurden vom Reaktorkühlwasser durchflossen. Abb. 3.1 zeigt einen Querschnitt des Reaktors mit den Bestrahlungspositionen. Ein vergrößertes Detail des Querschnitts gibt Abb. 3.2 wieder.

Eine Aufstellung der durchgeführten Bestrahlungen ist in Tab. 3.3 gegeben. Im Bestrahlungsexperiment Rheinsberg I wurden die Proben direkt dem einströmenden Reaktordruckwasser ausgesetzt. Hermetisch geschlossene Bestrahlungskapseln sind im Bestrahlungsexperiment Rheinsberg II verwendet worden. Die Kapseln hatten in den ersten Telexperimenten eine

starre Wandung, später wurden Kapseln mit flexiblen Wandungen benutzt, die durch den Kühlwasserdruck kollabierten und so einen guten Wärmeaustausch gewährleisteten. Die Kapseln wurden zusätzlich mit Sätzen von Aktivierungsdetektoren zur Neutronendosimetrie und mit Diamantpulver als Temperaturmonitor bestückt.

Mehrere Kapseln wurden jeweils zu einer Girlande zusammengestellt. Die detaillierte Darstellung zum Bestrahlungsprogramm ist in [POP 89], [BAR 95] und [VIE 97] zu finden.

Tabelle 3.3: Bestrahlungsexperimente im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg

Bestrahlungsexperiment	Bestrahlungskanal	Stahlsorte, Charge (Code)	Bestrahlungszeit (effekt. Tage)	Flussdichte [E > 0,5 MeV] in $10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	Fluenz [E > 0,5 MeV] in 10^{18} cm^{-2}	dpa
RH I/1	SK	ESW-A, B, C, D	206	0,2 – 0,35	3,5	0,004
RH I/2	TK 6	ESW-A, B, C, D KAB-B, KAB-W	269	2,8 – 5,4	70 ... 92	0,071...0,096
RH I/3	SK 10, 11, 12	KAB-B	269	0,2 – 0,35	5,2	0,007
RH I/4	SK 10, 11, 12	KAB-B	190	0,2 – 0,35	2,6 – 3,9	0,004
RH I/5	SK 10, 11, 12	KAB-B	792	0,2 – 0,35	10,6 – 13,4	0,010 – 0,0013
RH I/6	SK 10, 11, 12	JFL, JRQ	792	0,2 – 0,35	12,2 – 14,1	0,012 – 0,014
RH I/7	SK 5 – 8 TK 6	KAB-B, JRQ, JFL	297	2,8 – 5,4	72 - 140	0,073 – 0,144
RH II	TK 1, 5	R1-R3	269	2,8 – 5,4	44 – 81	0,045 – 0,090
	1-3	R16-1R17, R19	190	2,8 – 5,4	46 – 65	0,046 – 0,070
	1-4	D25	297	2,8 – 5,4	128	0,128

SK – Surveillance Kanal, TK - Targetkanal

Die gammaspektrometrische Messung der Neutronenmonitore ist in [STE 02] zusammenfassend ausgewertet. Die Ergebnisse der Temperaturmessung sind in [STE 03] enthalten. Es wird eine mittlere Bestrahlungstemperatur von $255 \text{ °C} \pm 5 \text{ °C}$ abgeschätzt. Zusätzlich wurden im Rahmen eines BMFT-geförderten Vorhabens („Ermittlung der Neutronendosis von bestrahlten WWER-Reaktordruckbehältermaterialien“, Reaktorsicherheitsforschung, Vorh.-Nr. 1500917) detaillierte 3d-Monte-Carlo-Neutronentransportrechnungen durchgeführt, um die Neutronenflussdichte und -fluenz für jede Bestrahlungs- und Probenposition zu bestimmen. Dessen Ergebnisse sind in [BAR 95] beschrieben. In den Targetkanälen trat, wie die Rechnungen auswiesen, ein geringer axialer, aber ein starker radialer Flussgradient auf. Abb. 3.3 zeigt ein Beispiel der berechneten Fluenzverteilung aus dem Telexperiment RH8. Die Proben wurden zur Prüfung in solchen Gruppen zusammengestellt, dass der Einfluss des radialen Gradienten minimiert wurde. Eine Korrekturprozedur adjustiert darüber hinaus jeweils die Ergebnisse eines Prüfsatzes auf eine konstante mittlere Fluenz [VIE 97, VIE 00].

Surveillance-Bestrahlung

Die Bestrahlung der Surveillance-Proben erfolgte an den projektmäßig vorgesehenen Bestrahlungspositionen. Angaben zur Neutronenbelastung wurden vom jeweiligen Kernkraftwerk bzw. vom RRC KI gegeben. Die Bestrahlungskapseln wurden vom eintretenden Reaktorkühlwasser umströmt. Eine Temperaturmessung erfolgte im allgemeinen nicht oder nicht mit befriedigenden Verfahren. Es ist üblich, den im WWER-440 bestrahlten Surveillance-Proben eine Bestrahlungstemperatur von 270 °C zuzuordnen.

Flussdichte und Spektrumshärte hängen vom Beladeregime ab. Die Reaktoren Paks-1, Kola-3 und Armenia-2 wurden zur Zeit der Bestrahlung der verwendeten Surveillance-Proben mit einem Standardkern gefahren, Rovno-1 war bereits auf einem reduzierten Kern mit Leerkassetten in der Randzone umgestellt. Die charakteristischen Daten der Bestrahlungsgeschichte sind in Tab. 3.4 aufgeführt.

3.4 Ausheiluntersuchungen

Die durch Bestrahlung verursachten Eigenschafts- und Strukturänderungen können durch thermische Behandlungen bei Temperaturen oberhalb der Bestrahlungstemperatur abgebaut werden. Diese als Ausheilen bezeichnete Wärmebehandlung ist für die Zielstellung des Vorhabens aus zwei Gründen interessant:

- Das Ausheilverhalten liefert Informationen über die Stabilität und somit über die Art der Bestrahlungsdefekte.
- Für die sicherheitstechnische Bewertung einer Ausheilbehandlung und des nachfolgenden Versprödungsverhaltens des RDB sind nicht nur die beim Ausheilen erreichten Eigenschaftsänderungen, sondern auch der dadurch erreichte Gefügestand maßgebend.

Als Standardausheilbehandlung wurden 150 h bei 475 °C in Anlehnung an die bevorzugte großtechnische Glühtechnologie für die WWER-440/230-Anlagen [PEL 94] gewählt. Da nach

Tabelle 3.4: Bestrahlungsbedingungen der Surveillance-Proben und der Modelllegierungen

Werkstoff Code	Bestrahlungsort	Anzahl der Bestrahlungszyklen	Flussdichte in $10^{11} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ [E>0,5 MeV]	Fluenz in 10^{18}cm^{-2} [E>0,5 MeV]	dpa
PA 1-B	Paks-1	2	30	262	0.234
PA 1-W				150	0.134
RO - B	Rovno-1	5	3.6	62	0.053
RO - W			3.6	62	0.053
KO - B	Kola-3	5	28	480	0.415
AR - W	Medsamor-2	5	32	630	0.545
ML-A	Kola-3	1	30	80	0.069
-B					
-G					
-H					
ML-A	Rovno-1	1	4	$10^{+1.6}_{-1.2}$	0.086
-B					
-C					
-D					
-E					

Glühzeiten von ≥ 100 h kaum noch Eigenschaftsänderungen zu beobachten sind, wurde vielfach auch die Glühzeit auf 100 h reduziert. In einzelnen Fällen sind isochrone und isotherme Glühungen im Temperaturbereich von 300 – 650 °C durchgeführt wurden. Die Glühungen erfolgten im Rohofen im strömenden Argon, abgekühlt wurde im Ofen.

Die Surveillance-Proben aus den Kernkraftwerken wurden im ausgeheilten Zustand angeliefert. Sie wurden 152 h bei 475 °C in Luft geglüht. Die Modelllegierungen wurden 100 h bei 475 °C im RRC Kurchatov-Institut ausgeheilt.

3.5 Untersuchungsmethoden zur Ermittlung von Festigkeits- und Zähigkeits-eigenschaften

3.5.1 Härteprüfung

Die Härte hat sich als versuchstechnisch leicht zugänglicher Indikator der Bestrahlungshärtung bewährt. Für diese Arbeit wurde parallel zu allen Strukturuntersuchungen auch die Härte gemessen. Die Härtemessung wurde als Vickershärte HV 10 mit einer Prüfkraft von 98.1 N gemäß DIN EN ISO 6507-1 an einem Kleinlasthärteprüfer (HSV-20, Shimadzu) bestimmt. Es wurden in der Regel 10 Eindrücke pro Messwert ausgewertet. Die Härtemessung erfolgte an halben Kerbschlagbiegeproben oder an ca. 1 mm dicken Scheiben, die mit einer Trennschneideinrichtung von halben Kerbschlagbiegeproben in ausreichender Entfernung (≥ 8 mm) von der Bruchfläche abgetrennt worden waren. Die Scheiben für die Härtemessung waren teils identisch mit, teils unmittelbar benachbart den Scheiben für die SANS-Strukturanalyse.

3.5.2 Zugversuche

Um das zur Verfügung stehende Bestrahlungsvolumen effektiv zu nutzen, wurden zur Bestimmung von Festigkeits- und Dehnungskennwerte unter einachsiger quasi-statischer Belastung, wie vielfach üblich, Kleinzugproben verwendet. Probenform und -abmessungen sind in Abb. 3.4 gezeigt. Es ist keine genormte Probenform, so dass die damit ermittelten Größen auch nicht als Kennwerte nach DIN EN 10002-1 zu bezeichnen sind.

Die Zugversuche wurden auf einem Servohydraulischen 50-kN-Prüfsystem MTS-810 mit einer konstanten Belastungsgeschwindigkeit von 0,25 mm/min ($= 2,8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ Anfangsdehnungsgeschwindigkeit) bei Raumtemperatur durchgeführt. Die Dehnung wurde über den mit einem induktiven Wegmesser gemessenen Fahrweg der unteren Traverse bestimmt. Es wurden bei jedem Versuch die Streck- oder 0,2-%-Dehngrenze (R_{eL} , $R_{p0.2}$), die Zugfestigkeit (R_m), Bruchdehnung (A_c) und Brucheinschnürung (Z) ermittelt. Die Probenanfangs- und -endmaße wurden mit einem Videomesssystem gemessen. Die im Folgenden gegebenen Daten sind Mittelwerte aus mindestens 3 Zugversuchen.

3.5.3 Kerbschlagbiegeversuche

Die aus den Kerbschlagbiegeversuchen abgeleiteten Übergangstemperaturen sind trotz ihrer unzureichenden physikalischen Fundierung nach wie vor wichtige Kenngrößen zur Charakterisierung des Versprödungszustandes. Infolgedessen wurde auch der Prüfung mit Kerbschlagbiegeversuchen besondere Aufmerksamkeit gewidmet und Kerbschlagarbeit-Temperatur-Kurven an allen untersuchten Werkstoffen ermittelt.

Die Kerbschlagbiegeversuche wurden mit einem Pendelschlagwerk PSD 300 (Fa. WPM Leipzig) in Übereinstimmung mit DIN EN 10045 (T1) durchgeführt. Das Pendelschlagwerk war mit einem U-förmigen instrumentierten Pendelhammer ausgerüstet. Die Temperierung der Proben erfolgte in einer Einrichtung, die eine Probenkühlung durch Zufuhr von flüssigem Stickstoff oder eine Probenerwärmung durch elektrische Beheizung ermöglichte. Die gesam-

te, in einer heißen Zelle installierte Anlage ermöglichte eine normgerechte Temperierung und Prüfung.

Es wurde unter folgenden Bedingungen geprüft:

Ausgangsschlagenergie:	304 J
Maximaler Fallwinkel:	160°
Hammermasse:	20,2 kg
Schlaggeschwindigkeit:	5,5 m/s
Temperaturbereich:	-150 °C ... +300 °C

Geometrie, laterale Ausbreitung und Spaltbruchanteil wurden mit einem Video-Messsystem gemessen.

Die Kerbschlagarbeit-Temperatur-Werte einer Prüfserie von mindestens 12 Proben wurde mit einer Tangens-Hyperbolicus-Funktion gefittet. Aus der Fitkurve wurden die charakteristischen Übergangstemperaturen für eine Kerbschlagarbeit von 41 J, 48 J oder 68 J bestimmt. Nähere Details zur Prüftechnik und zur Versuchsauswertung sind in [VIE 00] dargestellt.

3.5.4 Bruchmechanische Versuche

Am Versuchsmaterial sind auch Werkstoffprüfverfahren zur Bestimmung bruchmechanischer Parameter im spröd-duktilen Übergangsbereich und im Bereich der Zähigkeitshochlage durchgeführt worden. Für diese Arbeit werden nur Ergebnisse zur Bestimmung der Referenztemperatur T_0 nach dem Master-Curve-Konzept [WAL 99] gemäß ASTM E 1921-97 verwendet. Die Versuche zur T_0 -Bestimmung erfolgten an ermüdungs-angerissenen, seitgekerbten ISO-V-Proben im quasi-statischen 3-Punkt-Biegeversuch bei monotoner Belastung auf einem Servohydraulischen Prüfsystem MTS-810. Es wurde sowohl mit der Ein- als auch mit der Mehrtemperaturtechnik gearbeitet. Zur T_0 -Bestimmung standen in jedem Fall mindestens 6 gültige Versuche zur Verfügung. Für nähere Details zur Versuchsdurchführung wird auf [VIE 01] und [VIE 02] verwiesen.

3.6 Untersuchungsmethoden zur Gefügecharakterisierung

3.6.1 Metallographie

RDB-Stähle besitzen einen komplexen, stark hierarchisch gegliederten Gefügebautbau. Im Bereich der durch die klassische Metallographie zugänglichen Gefügestrukturen werden durch die typischen RDB-Bestrahlungsparameter keine sichtbaren Veränderungen erzeugt. Nichtsdestotrotz scheint die Charakteristik dieses Gefüges von nicht zu unterschätzendem Einfluss auf die Bestrahlungsempfindlichkeit eines RDB-Stahles zu sein [BOE 02]. Deshalb wurden alle Materialien einer detaillierten metallographischen Untersuchung unterzogen. Neben der qualitativen Charakterisierung von Gehalt, Größe und Form der nichtmetallischen Einschlüsse, dem Auftreten von Seigerungen und der Bestimmung der Korngröße (Ferrit, vormaliger Austenit) wurden Gefügestrukturtyp und der Gehalt und die Art der karbidischen Ausscheidungen im Licht-, Rasterelektronen- und Durchstrahlungselektronenmikroskop ermittelt. Dazu wurden mit metallographischen Standardprozeduren Schriffe hergestellt und im ungeätzten oder im mit 3%-iger alkoholischer Salpetersäure geätztem Zustand bewertet. Für spezielle Untersuchungen wurden auch abweichende Präparationstechniken verwendet. Soweit Ergebnisse dieser Untersuchungen im Folgenden dargestellt werden, wird darauf an der entsprechenden Stelle verwiesen.

Die metallographischen Untersuchungen dienten hauptsächlich dem dokumentarischen Nachweis des Ausgangszustandes.

3.6.2 Durchstrahlungselektronenmikroskopie

Die Durchstrahlungselektronenmikroskopie (TEM) diente der Charakterisierung des Ausgangsgefüges hinsichtlich der Anordnung, Verteilung, Form und Größe der feineren Karbide. Diese Untersuchungen wurden hauptsächlich vom „Labor für Elektronenmikroskopie in Naturwissenschaft und Medizin“ in Halle sowie von der „Composite and Analytical GmbH“ in Ehrenfriedersdorf bei Chemnitz durchgeführt. Bestrahltes Material wurde am UJV Nuclear Research Institute Rez, Division of Integrity and Materials untersucht.

Die Vorpräparation der Untersuchungsobjekte erfolgte am FZR. Aus halben, bereits geprüften Kerbschlagbiegeproben wurden 1 mm dicke Probenstücke abgetrennt und beidseitig mit einem Probenhalter vom Typ AKUSTOP (Fa. Struers) durch sukzessives Abschleifen mit immer feinerem Schleifpapier bis auf eine Restdicke von 100 µm abgedünnt. Als Endbearbeitung erfolgte jeweils eine mechanische Politur mit Diamantpaste der Körnung 6 µm bzw. 3 µm. Aus diesen etwa 10 mm x 10 mm großen Probenstücken wurden TEM-Rohproben mit einem Durchmesser von 3 mm ausgestanzt. Die weitere Bearbeitung bis zur durchstrahlungsfähigen TEM-Probe erfolgte beim Auftragnehmer.

Die Strahlendefekte, die für die Strahlenversprödung von RDB-Stählen typisch sind, können mit konventioneller TEM nicht nachgewiesen werden. Bewährt haben sich die analytische Feldionenmikroskopie (Atom probe field-ion microscopy/APFIM) [MIL 89, MIL 92, PHY 93] und Rasterdurchstrahlungselektronenmikroskopie mit Feldemissionskathode (Field emission gun scanning transmission electron microscopy/FEG-STEM) [PHY 93, BUS 90, KEN 94].

APFIM ist eine hochempfindliche Analysetechnik, die bei atomarer Ortsauflösung die atomare Zusammensetzung kleinster Probenvolumina zu bestimmen ermöglicht. Eine spezielle Auswertungsmethode führt zur 3d-Rekonstruktion der Mikrostruktur auf atomarer Skala (optical positron-sensitive atom probe – OPO-SAP [CAR 01]). Die untersuchten Probenvolumen bleiben allerdings sehr begrenzt ($5 \times 10^{-6} \mu\text{m}^3$). Die Technik setzt eine diffizile Probenpräparation voraus. Weltweit beherrschen nur zwei Laboratorien die Anwendung der Methode auf bestrahlte Reaktordruckbehälterstähle (Microscopy and Microanalytical Group, Oak Ridge National Laboratory/USA; Laboratoire de Microscopie Ionique, Université de Rouen, Frankreich).

Mit FEG-STEM können Elementzusammensetzungen mit hohem lateralen Auflösungsvermögen bestimmt werden. Im 'spot mode' können bei Fokussierung des Elektronenstrahles auf 1,5 – 2 nm Durchmesser aus Strukturbereichen dieser Größe Elementgehalte von deutlich weniger als 1 % durch energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) bestimmt werden. Untersuchungen mit dieser Technik wurden vom Institut für Werkstoffwissenschaft des Max-Planck-Institutes für Metallforschung in Stuttgart am dortigen Rastertransmissionselektronenmikroskop (Typ VG HB 501 UX) durchgeführt. Für die Analyse stand ein EDX-Spektrometer (Gresham, 135 eV Energieauflösung, Moxtec-Fenster) zur Verfügung. Es wurde in 'spot mode' mit 0,5 nm Strahldurchmesser gearbeitet. Zusätzlich wurde konventionelle TEM an einem 200 keV Durchstrahlungsmikroskop (Typ JEOL 2000 FX) eingesetzt. Das Mikroskop erreicht ein Auflösungsvermögen zwischen 0,2 und 0,3 nm. Es wurde sowohl mit Hellfeld- als auch Dunkelfeldabbildung gearbeitet. Von den wie oben beschrieben vorbereiteten Scheiben wurden mit unterschiedlichen Techniken durchstrahlbare Proben angefertigt. Neben der Dünnung mit einem Konkavschleifgerät (Dimpler) und anschließender Ionendünnung wurden die Proben hauptsächlich elektrolytisch in Essigsäure abgedünnt.

Der Ferromagnetismus der Proben führte im Bereich der hohen Vergrößerungen zu beträchtlichen Schwierigkeiten bei Probenpositionierung (Kippung) oder Strahlfokussierung. In der EDX-Analyse macht sich die Radioaktivität der Proben störend bemerkbar.

3.6.3 Kleinwinkelstreuung

3.6.3.1 Allgemeines

Kleinwinkelstreuung ist diffuse elastische Streuung bei kleinen Streuwinkeln ($\Theta \leq 5^\circ$) an nichtperiodischen Strukturen, deren Größenskala im Bereich von 0,5 nm bis 100 nm liegt [KOS 79]. Die Messung der Kleinwinkelstreuung erweist sich somit als geeignete Methode, um zum einen hierarchische Gefügestrukturen, wie sie in RDB-Stählen vorliegen, mit einem einzigen Verfahren zu charakterisieren und zum anderen die nano-skaligen, feindispersen, durch Neutronen verursachten Strukturdefekte zu erfassen. Zudem wird damit integrativ über ein – verglichen mit TEM-Untersuchungen – sehr großes Probenvolumen gemittelt, so dass statistisch gesicherte Strukturparameter gewonnen werden können. Schließlich erweist sich der geringe Aufwand zur Probenpräparation nicht zuletzt für ein radioaktives Probenarsenal als vorteilhaft. Je nach verwendeter Strahlenart können Neutronen- oder Röntgen-Kleinwinkelstreuung (SANS, SAXS) benutzt werden. Zur Strukturcharakterisierung durch Kleinwinkelstreuung wurde bisher fast ausschließlich auf die SANS-Methode, erstmalig von Frisius u.a. [FRI 83], zurückgegriffen.

Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass eine Strukturinhomogenität (Teilchen, Cluster, Pore usw.) der Größe R mit dem Volumen V ein einfallendes Strahlenbündel streut, wird durch den differentiellen mikroskopischen Streuwirkungsquerschnitt $d\sigma$ pro Raumwinkelelement $d\Omega$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{Q}, R) = V^2(R)\Delta\eta^2(R)F^2(\vec{Q}, R) + \frac{d\sigma}{d\Omega_{\text{INC}}} \quad (3.1)$$

beschrieben. Dabei ist \vec{Q} der Streuvektor gemäß

$$\vec{Q} = \vec{k}_s - \vec{k}_0 \quad (3.2)$$

$$\text{mit } |\vec{k}_s| = |\vec{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda} \quad \text{und} \quad (3.3)$$

$$|\vec{Q}| = Q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\Theta}{2} \quad (3.4)$$

In den Gleichungen (3.2) – (3.4) stehen \vec{k}_0 und \vec{k}_s für die Wellenzahlvektoren des einfallenden und des gestreuten Strahles der Wellenlänge λ , die gemeinsam den Streuwinkel Θ einschließen.

$F^2(\vec{Q}, R)$ ist die Einteilchenstreuungsfunktion, auch Formfaktor genannt, $\Delta\eta^2(R)$ bedeutet den Streukontrast zwischen Matrix und Strukturinhomogenität.

Der erste Summand in Gl. (3.1) stellt den kohärenten und damit eigentlichen Kleinwinkelstreubetrag dar. Er ist die Fouriertransformierte des Faltungsquadrates der Streudichteverteilung elementarer Streuer. Damit wird der wesentliche Nachteil der Kleinwinkelstreuungsmethode evident: Als nicht direkt abbildendes Verfahren liefert sie nur die Fouriertransformierte der zugrunde liegenden Struktur und ist nie eindeutig und nur mit Hilfe einer Reihe von Vereinfachungen strukturanalytisch interpretierbar. Die im Vorhaben beschrittenen Wege für diese Interpretation sind im Folgenden näher beschrieben.

Der 2. Summand in Gl. (3.1) repräsentiert den winkelunabhängigen inkohärenten Streubetrag.

Für den Formfaktor gilt

$$F^2(\vec{Q}, R) = \left| \frac{1}{V} \int_V e^{-i\vec{Q}\vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (3.5)$$

Er kann für eine Vielzahl von Teilchenformen berechnet werden [POR 82]. Für die Kugel-
form, die im weiteren für den Strahlendefekt angenommen wird, ist er richtungsunabhängig
und beträgt

$$F^2(Q, R) = \left(\frac{3 (\sin QR - QR \cos QR)}{Q^3 R^3} \right)^2 \quad (3.6)$$

Setzt man für die Teilchen eine Größenverteilung

$$h(R) = \frac{N_R(R)}{N} \quad (3.7)$$

$$N = \int N_R(R) dR \quad (3.8)$$

von insgesamt N Teilchen mit einem Volumengehalt

$$c = \frac{N\bar{V}}{V_p} \quad (3.9)$$

und dem mittleren Volumen

$$\bar{V} = \int h(R)V(R) dR \quad (3.10)$$

im Probenvolumen V_p voraus, so erhält man aus (3.1) den im Experiment bestimmten diffe-
rentiellen makroskopischen Streuquerschnitt zu

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(\vec{Q}) = \frac{N}{V_p} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\vec{Q}) = c \frac{\int h(R)V^2(R)\Delta\eta^2(R)F^2(\vec{Q}, R) dR}{\int h(R)V(R) dR} + \frac{d\Sigma}{d\Omega_{INC}} \quad (3.11)$$

Gl. (3.11) gilt nur für verdünnte Systeme, d.h. $c \approx c(1 - c)$, bei denen Interferenzen zwischen
den gestreuten Wellen zu vernachlässigen sind. Die Bestrahlungsstrukturen der RDB-Stähle
entsprechen dieser Voraussetzung.

Neben der Größenverteilungsfunktion der Teilchenanzahldichte $N_R(R)$ ist es zweckmäßig,
auch die volumenbezogene Größenverteilungsfunktion (Volumenverteilungsfunktion)

$$c_R(R) = \frac{dc(R)}{dR} = \frac{N_R V(R)}{V_p} = \frac{h(R) V(R) c}{\bar{V}} \quad (3.12)$$

$$\text{mit } c(R) = \int_0^R c_R(R) dR \quad (3.13)$$

zu betrachten. Die Größe $c_R(R)$ steht für den Volumengehalt der Größenklasse i von Teilchen mit $R_i \leq R \leq (R_i + \Delta R)$ und $c(R)$ für den Volumengehalt aller Teilchen in der Probe mit einem Radius $\leq R$.

Eine Strukturinhomogenität kann sich in der Atomanzahldichte (topologische Inhomogenität) und/oder in der Zusammensetzung (chemische Inhomogenität) von der Matrix unterscheiden. Das führt zum Streukontrast, der ausreichend groß sein muss, damit die Strukturinhomogenität im Kleinwinkelstreuexperiment detektiert werden kann.

In der Einteilchennäherung (Teilchen einer Art in homogener Matrix) beträgt der Streukontrast

$$\Delta \eta^2(R) = (\eta_T(R) - \eta_M)^2 \quad (3.14)$$

η_T und η_M sind die Streulängendichten für das Teilchen bzw. die Matrix. Sie ergeben sich aus

$$\eta = \sum_i n_i b_i = n \bar{b} \quad (3.15)$$

b_i und n_i sind die Streulänge und Anzahldichte der Atomsorte i . \bar{b} ist die mittlere Streulänge und n die Gesamtanzahldichte im Teilchen bzw. der Matrix.

Die Streulänge b , bei Röntgenkleinwinkelstreuung gewöhnlich als Atomformfaktor f bezeichnet, ist ein quantitatives Maß für die Stärke der Wechselwirkung zwischen Strahlung und Elementarstreuer. Da hierfür im Falle der Röntgenstrahlung die Elektronen der Atomhülle, jedoch der Atomkern im Falle der Neutronenstrahlung entscheidend sind, ist der Streukontrast und damit die Nachweisempfindlichkeit für einen bestimmten Strukturdefekt von der verwendeten Strahlenart abhängig. Für den Nachweis an sich unbekannter Struktureffekte ist es deshalb durchaus sinnvoll, sowohl SANS- als auch SAXS-Untersuchungen durchzuführen, um so zwei komplementäre Verfahren zur Strukturanalyse zur Verfügung zu haben.

3.6.3.2 Neutronenkleinwinkelstreuung (SANS)

Im Rahmen des Vorhabens wurde zum Nachweis und zur Analyse der bestrahlungsbedingten Gefügeänderung hauptsächlich die SANS-Methode benutzt.

Neutronen werden an den Atomkernen (nukleare Streuung) und an den magnetischen Momenten der Elektronenhülle (magnetische Streuung) gestreut. Dadurch überlagern sich nukleare und eine magnetische Streuung, wobei letztere vom Winkel zwischen dem atomaren magnetischen Moment und dem einfallenden Neutronenstrahl abhängt.

Die nukleare Streulänge b_{nuc} zeigt keinen regelmäßigen Gang mit der Ordnungszahl, ist von Isotop zu Isotop unterschiedlich und kann auch negative Werte annehmen. Sie wird experimentell bestimmt und ist tabelliert [KOE 91].

In Abhängigkeit von Neutronen- und Kernspinorientierung tritt auch eine inkohärente Streuung auf, die zu dem 2. Term in Gl. (3.1) führt. Im Falle von SANS ist der nukleare inkohärente Streuanteil im Wesentlichen ein Isotopeneffekt. Er kann aus der Element- bzw. Isotopenzusammensetzung des untersuchten Materials berechnet werden. Für reines Eisen ist der inkohärente Streuwirkungsquerschnitt $d\Sigma/d\Sigma_{inc} = 0,0027 \text{ cm}^{-1}$. Typische Werte für RDB-Stähle unter Berücksichtigung der Gehalte an Legierungselementen und Verunreinigungen liegen zwischen $0,003$ und $0,005 \text{ cm}^{-1}$. Der inkohärente Anteil ist vor der weiteren Analyse des Streuquerschnittes zu separieren. Dies erfolgt, indem man das asymptotische Verhalten von $d\Sigma/d\Omega$ mit Q^{-4} für große Q -Werte nutzt. Man erzeugt einen sog. Porod-Plot: $Q^4 \cdot d\Sigma/d\Omega = d\Sigma/d\Omega_{inc} \cdot Q^4 + P$. Der Anstieg der Gerade liefert den zu separierenden inkohärenten Streuanteil, P ist die Porodkonstante.

Die magnetische Streulänge b_{mag} kann in der Größenordnung der nuklearen Streulänge liegen. Magnetische Streuung ist besonders für ferromagnetische (und antiferromagnetische) Strukturen zu beachten, für die sich ein konstruktiver Beitrag ergibt. Durch ein äußeres Sättigungsmagnetfeld können die atomaren magnetischen Momente ausgerichtet werden. Die Abhängigkeit des Streuquerschnittes vom Winkel zwischen Magnetfeld und einfallendem Neutronenstrahl α ermöglicht die Separation der beiden Streuteile

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(\alpha) = \left(\frac{d\Sigma}{d\Omega}\right)_{\text{nuc}} + \left(\frac{d\Sigma}{d\Omega}\right)_{\text{mag}} \cdot \sin^2 \alpha \quad (3.16)$$

mit $\left(\frac{d\Sigma}{d\Omega}\right)_{\text{nuc}} = \frac{d\Sigma}{d\Omega}(\alpha = 0)$ und

$$\left(\frac{d\Sigma}{d\Omega}\right)_{\text{mag}} = d\Sigma/d\Omega(\alpha = \frac{\pi}{2}) - d\Sigma/d\Omega(\alpha = 0)$$

Ein wichtiger Strukturparameter ist die Größe der Strukturinhomogenitäten. In der Einteilchen-Näherung mit Teilchen gleicher Größe und Gestalt reduziert sich Gl. (3.11) nach Eliminierung des inkohärenten Anteils auf

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \Delta\eta^2 \cdot c \cdot V \cdot S(Q) \quad (3.17)$$

$S(Q)$ ist ein spezifischer Q -abhängiger Strukturfaktor. Für den Fall kugelförmiger Teilchen ist er in Abb. 3.5 dargestellt. Im Guinier-Bereich ist daraus mit

$$S(Q) = \exp(-Q^2 \cdot R_G^2/3)$$

der Gyrationradius R_G bestimmbar, der bei bekannter Teilchenform in eine charakteristische Teilchengröße R umgerechnet werden kann [HAU 92].

Für polydisperse Systeme sind aufwendigere Näherungen notwendig. Ein inzwischen bewährtes Verfahren entwickelte Glatter mit der Methode der indirekten Fourier-Transformation [GLA 80]. Auch diese Methode beruht auf der Annahme von Teilchen gleicher (bekannter) Form. Außerdem wird vorausgesetzt, dass die Größenverteilungsfunktion $h(R)$ nur im Bereich einer Teilchengröße von $R_{\text{min}} \leq R \leq R_{\text{max}}$ ungleich Null ist.

In der Regel wird R_{min} gleich Null gesetzt. R_{max} ergibt sich aus den „Sampling-Theorem“ der Fouriertransformation zu π/Q_{min} .

Die indirekte Transformationsmethode teilt die Größenverteilungsfunktion $h(R)$ in eine Kombination von j -Teilabschnitten (kubische Splines) auf

$$h(R) = \sum_{\nu=1}^j c_{\nu} \cdot \phi_{\nu}(R) \quad (3.18)$$

$\phi_{\nu}(R)$ ist die sogenannte Basisfunktion und berücksichtigt die Randbedingungen $\phi_{\nu}(R) \neq 0$ für $R_{\text{min}} \leq R_{\text{max}}$. Die Fouriertransformierte von $\phi_{\nu}(R)$ ist

$$\Psi_v(Q) = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} \phi_v(R) \Delta \eta^2(R) S(Q, R) dR \quad (3.19)$$

Der gemessene, auf den kohärenten Anteil bereinigte Streuquerschnitt stellt eine Linearkombination aus j Intensitätsbeiträgen Ψ_v der einzelnen Größengruppen dar

$$\frac{d\sigma(Q)}{d\Omega} = \sum_{v=1}^j \lambda_i \cdot \Psi_v(Q) \quad (3.20)$$

Dabei bleibt λ_v nach den Gesetzen der Fouriertransformation erhalten und wird mit der Methode der kleinsten Fehlerquadrate gefittet.

Das Verfahren kann sowohl mit der auf die Teilchenzahl als auch auf das Teilchenvolumen bezogenen Größenverteilung praktiziert werden.

Da im allgemeinen der Streukontrast der Teilchen nicht bekannt ist, erhält man auf diese Weise eine mit dem Streukontrast $\Delta \eta^2$ gewichtete Verteilungsfunktion.

Für diese Arbeit wurde vorzugsweise das Glatter-Verfahren benutzt. Die Basis dafür ist ein verfügbares, von Glatter entwickeltes Rechenprogramm JTP-92. Das Programm enthält zur Anpassung der Größenverteilungsfunktion einen Dämpfungsparameter, mit dem das Auftreten von physikalisch unsinnigen negativen Größenverteilungsanteilen oder starker Oszillationen vermieden werden kann. Dieser Dämpfungsparameter beeinflusst aber auch die Lage des Maximums und die Form der Verteilungsfunktion, wie eine Sensibilitätsstudie zeigte [GOK 00]. Bei der Anwendung des Verfahrens wurde deshalb der Dämpfungsparameter iterativ so lange optimiert, bis eine gute Anpassung der aus der Verteilung rückgerechneten Streukurve an die experimentelle Kurve bei einem physikalisch plausiblen Verlauf der Verteilungsfunktion erreicht wurde.

Ein weiteres häufig benutztes Verfahren ist die a priori-Annahme einer Größenverteilungsfunktion, deren Parameter dann so lange variiert werden bis eine befriedigende Übereinstimmung der experimentell bestimmten Streukurven mit der auf der Basis der erhaltenen Größenverteilung berechneten Streukurve erhalten wird. Bei Verwendung mehrparametrischer oder bimodaler Stammfunktionen lassen sich in aller Regel gute Anpassungen erreichen. Das Verfahren sollte immer dann die Methode der Wahl sein, wenn es physikalisch gut begründete Hypothesen über den Typ der Verteilungsfunktion gibt. Eine solche Situation ist für die Analyse der bestrahlungsbedingten Strukturänderungen eher nicht gegeben.

Für Untersuchungen an bestrahlten RDB-Stählen benutzten beispielsweise eine Arbeitsgruppe des GKSS Forschungszentrums Geesthacht ([SOL 90], [SOL 92], [BRA 93] und der University of California, Santa Barbara ([WIR 99], [SOK 99] eine ein- oder bimodale 2- bzw. 3-parametrische logarithmische Normalverteilung. In [SOK 99] wird dazu auch die Gamma-Verteilung verwendet. Mathon u.a. [MAT 97] vergleichen die Eignung der 2-parametrischen Gauß- und Log-Normalverteilung mit einer einparametrischen Lifeshitz-Slyzov-Wagner-Verteilung zur Anpassung an die Streukurven elektronenbestrahlter binärer Fe-Cu-Legierungen. Sie erhalten für eine Gaußverteilung als Fitfunktion die besten Resultate.

Im Rahmen der Arbeit wurde zusätzlich zur Glatter-Auswertung eine Fitprozedur auf der Grundlage einer bimodalen, jeweils zweiparametrischen log-Normalverteilung ausgearbeitet.

Die Parameter werden bestimmt aus der Bedingung:

$$\Delta = \frac{[\sum_{i=1}^N [(\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q_i)^{\text{exp}} - (\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q_i)^{\text{calc}})/\text{Er}(Q_i)]^2]^{1/2}}{N} \rightarrow 0 \quad (3.21)$$

unter Berücksichtigung der Q-Abhängigkeit des relativen experimentellen Fehlers $Er(Q)$. N ist die Anzahl der experimentellen Punkte. Die Methode konvergiert nur dann vernünftig, wenn der experimentelle Fehler nicht zu hoch ist ($\leq 8\%$). Deshalb wurde das Verfahren nur zur Bestimmung der Größenverteilung aus dem Gesamt- bzw. nuklearem Streuquerschnitt verwendet. Für den magnetischen Streuquerschnitt ergeben sich für $Q \geq 1 \text{ nm}^{-1}$ zu hohe $Er(Q_i)$ -Werte. Außerdem muss der Fitbereich für große Q-Werte abgeschnitten werden. Mit dieser Einschränkung sind die erzielbaren Anpassungen vielfach besser oder zumindest gleich denen, die mit der Glatter-Methode erreicht werden. Die Prozedur ist im Rechenprogramm FPM-95 in FORTRAN für JBM-PCI programmiert. Einzelheiten zum Verfahren sind in [GOK 00] dargestellt. Grundsätzlich war damit ein 2. Auswerteverfahren verfügbar, das in Zweifelsfällen zusätzlich zur Analyse herangezogen wurde.

Neben der Anpassung von empirischen oder kinetischen Verteilungsfunktionen ist mit der „maximum entropy method“ nach Potton u.a. [POT 88] ein weiteres Verfahren zur Gewinnung von Verteilungsfunktionen vorhanden. Es wird von der englischen Schule angewandt ([BUS 95, BUS 99]).

Bei allen Näherungsverfahren muss eine Teilchenform vorgegeben und als konstant angenommen werden. Die publizierten Analysen gehen stets von einer Kugelform aus. Diese Annahme ist nicht zwingend, da Strahlendefekte auch als Versetzungsringe denkbar sind oder nanodisperse Strukturdefekte in Form von flächigen, mono-atomaren Fremdatomanreicherungen (z.B. AlCu-Legierungen nach Kaltaushärtung) bekannt sind. Gokhman u.a. [GOK 00] berechnete die Größenverteilungsfunktion für einige im Vorhaben untersuchte Materialien, die sich aus den gemessenen Streuintensitätsverteilungen unter Annahme unterschiedlicher Teilchenform ergeben. Es werden dabei nicht nur andere Größenverteilungsverläufe, sondern auch deutlich andere Volumengehalte an Strahlendefekten bestimmt. Da Ergebnisse anderer Untersuchungsmethoden keine eindeutigen Hinweise auf eine nicht-sphärische Teilchenform liefern, wurde aber den weiteren Auswertungen ebenfalls die Kugelform zugrunde gelegt.

Q-Messbereich und Auswertungsmodus sind der Charakteristik der zu analysierenden Struktur anzupassen. Zur Veranschaulichung sei die folgende vereinfachende Modellbetrachtung präsentiert:

Die Struktur wird bimodal zusammengesetzt aus zwei logarithmischen Normalverteilungen I und II der Form

$$N_R = \frac{1}{R \sqrt{2\pi} \cdot \sigma} e^{-\frac{\ln R - R_0}{2\sigma^2}} \quad (3.22)$$

mit den Parametern $R_0^I = 0.75 \text{ nm}$, $\sigma^I = 0,25$ und $R^{II} = e = 2,71 \text{ nm}$, $\sigma^{II} = 1,0$ angenommen. Abb. 3.6 zeigt die entsprechenden Verteilungsfunktionen a) der Teilchenanzahldichte und b) der Volumenanteile. Beide Verteilungen entsprechen dem gleichen Volumenanteil $c = 0,3\%$. Die aus den Modellverteilungen resultierenden magnetischen Streuquerschnitte sind in Abb. 3.7 dargestellt. Man erkennt, dass die Streukurve für $Q < 0,6 \text{ nm}^{-1}$ nur durch die Streuung an den Teilchen der Verteilung II und für $Q > 1,5 \text{ nm}^{-1}$ nur durch Streuung an den Teilchen der Verteilung I verursacht wird. Lediglich in einem Übergangsbereich um $Q = 1 \text{ nm}^{-1}$ beeinflusst die bimodale Charakteristik des Modellsystems die Streukurve. Das zeigt, dass nur bei ausreichender Größe des erfassten Streuvektorbereiches realistische Aussagen über die Größe der streuenden Strukturinhomogenitäten zu erhalten sind. Infolgedessen sind Doppelmessungen mit mindestens zwei unterschiedlichen Probe-Detektor-Abständen auszuführen. In Abb. 3.7 sind zum Vergleich auch die gemessenen Streukurven für einen RDB-Stahl im un- und be-

strahlten Zustand (gestrichelte Kurven) wiedergegeben, die die Realitätsnähe des angenommenen Modellsystems nachweisen.

Führt man die Rücktransformation der Streukurve durch und berechnet die auf die Anzahl-dichte bezogene Größenverteilung N_R , so erhält man die in Abb. 3.8a wiedergegebene Verteilung. Die bimodale Charakteristik der Verteilung ist hier nicht mehr erkennbar, der daraus berechnete Volumenanteil an Teilchen wäre infolgedessen deutlich zu klein. Erst die Analyse zur Bestimmung der Volumenverteilung c_R reproduziert die zugrunde liegende Modellverteilung. Um Fehlinterpretationen des Bestrahlungseffektes zu vermeiden, wurde deshalb stets sowohl die Anzahl-dichte- als auch die Volumenanteil-Größenverteilung direkt aus der Streukurve ermittelt.

Wie die Ergebnisse zeigen, sind typische Bestrahlungsdefekte im Größenbereich von $R \approx 1$ nm. Bei diesen Teilchengrößen erreicht aber auch die SANS-Methode die Grenze ihres Nachweisvermögens, wie in Abb. 3.9 demonstriert wird. Für monodisperse Kugeln mit gleichem Volumengehalt ist jeweils der magnetische Streuquerschnitt (Annahme: nichtferromagnetische Teilchen in ferromagnetischer Matrix) berechnet worden. Nur im abfallenden Ast der Streukurve können rücktransformierbare Informationen zur Teilchengröße erzielt werden. Da an den SANS-Experimentieranlagen bei $Q \approx 3 \text{ nm}^{-1}$ eine obere Grenze des Messbereiches erreicht ist, sind Teilchengrößen von $R = 0.5 \text{ nm}$ eine obere Schätzung der Nachweisgrenze. Die ansteigenden Äste der Verteilungsfunktionen im Bereich $R \leq 0.5 \text{ nm}$ sind demzufolge in ihrem Verlauf rein formal begründet. Unter diesen Umständen ist auch die mittlere Teilchengröße, die aus der Verteilungsfunktion berechnet wird, weniger ein Messwert als ein hypothetischer Rechenwert. Immerhin dürfte er für Vergleichsbetrachtungen instruktiv sein.

Zusätzliche Informationen zur Struktur der streuenden Teilchen lassen sich aus der Verwendung polarisierter Neutronen gewinnen.

Die Untersuchungen mussten an unterschiedlichen SANS-Anlagen durchgeführt werden. Der Aufbau, die Messbedingungen, die Kalibrierungsprozeduren und die Auswertesoftware unterscheiden sich an den einzelnen Anlagen, zudem führten interne Weiterentwicklungen bei Messungen an gleichen Anlagen zu neuen Randbedingungen. Die Messmethode musste daher stets der konkreten Situation angepasst werden. Die Konsistenz der Ergebnisse, die an unterschiedlichen Anlagen an vergleichbaren oder sogar an identischen Proben gemessen wurden, kann als Nachweis der Zuverlässigkeit der entwickelten Methodik bewertet werden.

Die genutzten Anlagen sind mit ihren wichtigsten zur Messung verwendeten Parametern in Tab. 3.5 zusammengestellt.

Für die Untersuchungen wurden Proben des Querschnittes $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ verwendet. Die Dicke betrug anfangs 3 mm und wurde später auf 1 mm , schließlich auf $0,8 \text{ mm}$ reduziert. Eine dickere Probe liefert zwar größere Streueffekte und ein über ein größeres Probenvolumina gemittelt Resultat, erhöht jedoch den Fehler bei der Transmissionsmessung und die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von Mehrfachstreuung. Eine Probendicke von $0,8 \text{ mm}$ ist als eine nicht zuletzt auch unter dem Aspekt der Reduktion der zu handhabenden Radioaktivität optimierte Größe zu betrachten.

Die Scheiben wurden aus halben, bereits geprüften Kerbschlagbiegeproben herausgeschnitten. Dabei wurde darauf geachtet, dass Proben verwendet wurden, die vollständig oder überwiegend spröde gebrochen waren und dass die Probenahme im ausreichenden Abstand von der Bruchfläche erfolgte.

Aus Gründen des Strahlenschutzes wurden die Proben in eine 3-teilige Kapsel aus Reinaluminium eingesetzt und mit Al-Folie abgedeckt.

Tabelle 3.5: Genutzte SANS-Anlagen und Messparameter

Anlage	SANS-V4	PAXE	D11	KWS-II	Yellow Submarine
Standort	HMI Berlin (BER II)	LLB Saclay (Orphee RR)	ILL Grenoble (HFR)	FZ Jülich (DIDO)	KFKI Budapest
Strahldurchmesser in mm	7.5	7.5	7.5	8.0	8.0
Wellenlänge in nm	0.5 / 0.6	0.5 / 0.6	0.5	0.715	0.47
Probe-Detektor-Abstand in m	1.086; 4.0	1.5; 5.0	1.1; 4.0; 16.5	1.5; 4.1	5.5
Q-Bereich in nm ⁻¹	0.2 – 3.2	0.2 – 2.6	0.2 – 4.0	0.12 – 1.25	0.2 – 0.8
Detektortyp	2d ortsempfindlicher He-Detektor, 64 cm x 64 cm				
Magnetfeld in T	1.3	1.4	1.5	1.5	< 1.0
Standard	Wasser	-	Wasser	Polyäthylen	-
Bemerkungen	sehr gute Infrastruktur		hohe Flüsse, kurze Messzeit	Erprobungsbetrieb	zu niedriger N-Fluss

Für die Experimente wurde die Wellenlänge so gewählt, dass eine maximale Streuintensität erreicht, aber das Auftreten von Mehrfachstreuung ausgeschlossen ist. Eine Verringerung der Wellenlänge vergrößert zwar den Streuvektor-Messbereich, bringt aber keine so wesentliche Verbesserung, als dass der damit verbundene Nachteil in Kauf zu nehmen wäre. Der benutzte minimale Proben-Detektor-Abstand war in der Regel anlagenbedingt. Damit ergab sich eine obere Grenze für den Q-Bereich von 3,0 ... 3.2 nm⁻¹ und folglich die bereits genannte Grenze des Auflösungsvermögens für kleine Teilchen von ca. 0,5 nm.

Wie bereits erläutert ist die Größenverteilung der Strukturinhomogenitäten desto „richtiger“ zu bestimmen, je größer der erfasste Q-Bereich ist. Während die Anlage die obere Grenze eindeutig vorgibt, ist die untere Grenze durch Vergrößerung des Probe-Detektor-Abstandes vergleichsweise elastisch definiert. Der Zwang, die knapp zugewiesenen Messzeiten effektiv zu nutzen, setzt aber auch hier Grenzen.

Eine einzige Messung mit konstantem Messabstand erfasst einen zu kleinen Q-Bereich, um die Mikrostruktur in bestrahlten RDB-Stählen ausreichend genau analysieren zu können. Deswegen wurden für jede Probe stets 2 Messungen mit unterschiedlichen Abständen durchgeführt. Der zweite, größere Probe-Detektor-Abstand wurde dann so gewählt, dass ein ausreichender Überlappungsbereich erfasst wird, um die Konsistenz der Messung nachzuweisen. Messzeit bestimmend ist in jedem Fall die Messung mit kürzerem Abstand, da die in diesem Bereich deutlich geringere Streuintensität erst nach längerer Messzeit mit einer befriedigenden Zählstatistik gemessen werden kann. Der hohe Neutronenfluss am HFR des ILL Grenoble erlaubte in einem Fall auch eine weitere Messung bei besonders großem Abstand.

Die Proben wurden stets in dem an der Anlage maximal möglichen Magnetfeld gemessen. Es lag zwischen 1.3 ... 1.4 T und ist ausreichend zur magnetischen Sättigung der RDB-Stähle, wie experimentell nachgewiesen wurde.

Die vom Detektor gemessene Intensität ist dem differentiellen Streuquerschnitt direkt proportional

$$I(Q) = I_0 \cdot A_p \cdot D_p \cdot T_p \cdot S_D \cdot \frac{d\sigma(Q)}{d\Omega} + I_u(Q) \quad (3.23)$$

I_0 ist die Primärstrahlintensität, A_p die Strahlquerschnittsfläche auf der Probe, D_p die Proben-
dicke, T_p die Transmission der Probe, S_D die Detektorempfindlichkeit, $d\Omega$ der vom Detektor
erfasste Raumwinkel und $I_u(Q)$ die instrumentell bedingte Untergrundintensität.

I_0 und S_D wurden in jeder Messserie durch Kalibrierung bestimmt. Dies erfolgte entweder mit
einem Eichstandard oder standardfrei. Als Eichstandard wurde eine Substanz mit bekanntem
 $(d\sigma(Q)/d\Omega)_s$ verwendet. Bei einem isotropen Streuer $(d\sigma(Q)/d\Omega)_s = (d\sigma/d\Omega)_s$ erhält man dann
den Streuquerschnitt der untersuchten Proben aus

$$\left(\frac{d\sigma(Q)}{d\Omega}\right)_p = \frac{K_s}{A_p D_p T_p} I_p(Q) \quad (3.24)$$

$$\text{mit } K_s = \frac{A_s \cdot D_s \cdot T_s \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_s}{I_s} \quad (3.25)$$

Die Indizes p und s weisen auf die entsprechenden Parameter für Probe bzw. Standard hin. An
den Anlagen SANS-V4 und D11 werden Wasser-Standards (inkohärente Streuung des Was-
serstoffs) und an der KWS-II eine zuvor am ILL Grenoble mit Vanadium-Standard kalibrierte
Polyethylenprobe verwendet. Eine eichfreie Kalibrierung wird an der PAXE-Anlage genutzt.
Der Term $I_0 \cdot A_p \cdot S_D$ aus Gl. 3.23 wird gemessen, indem die Intensität des einfallenden Strahles
mit dem Detektor direkt und unter den gleichen Bedingungen (Detektoreinstellung, Strahl-
querschnitt) wie die gestreute Intensität bestimmt wird

$$I_{\text{ref}} = T_A \cdot I_0 \cdot A_D \cdot S_D \quad (3.26)$$

T_A ist dabei die Transmission einer Schwächungsvorrichtung, die in den probefreien Strah-
lengang eingebracht werden muss, um den Detektor vor einer zu hohen Strahlintensität zu
schützen. An der PAXE-Anlage werden ca. 5 mm dicke Scheiben aus Polymethylmetacrylat
verwendet. Deren Transmission wird vorher in einer Zusatzmessung bestimmt. Der Streu-
querschnitt der Probe ist dann

$$\frac{d\sigma(Q)}{d\Omega} = \frac{T_A \cdot I(Q)}{I_{\text{ref}} \cdot D_p \cdot T_p \cdot A_D / s^2} \quad (3.27)$$

A_D ist die Fläche eines Detektorelementes und s der Abstand zwischen Probe und Detektor.
Die Untergrundintensität $I_u(Q)$ liefert eine Messung ohne Probe (empty beam). Da die Quelle
dieser Untergrundintensität in der Regel vor der Probe liegen muss, multipliziert man die mit
dem Leerstrahl gemessene Intensität mit der Transmission der Probe und erhält so die Korrektur-
größe $I_u(Q)$.

Die Transmission der Probe muss am nichtgestreuten Primärstrahl gemessen werden. Je nach
Anlage konnte das auf zwei unterschiedlichen Wegen ausgeführt werden. An der KWS-2-
Anlage ist im Beam-Stop ein Monitorzähler geringer Empfindlichkeit eingebracht, der die
Intensität des durchgehenden Strahles misst. An den anderen Anlagen wird der Beam-Stop
zur Transmissionsmessung aus dem Strahlengang verfahren und nach Schwächung der Strah-
lenintensität mit vorgeschalteten Platten bekannter Transmission die durchgehende Intensität
direkt mit dem Standarddetektor gemessen. Sind im Probenmaterial, wie im Falle der RDB-
Stähle, auch Streuer mit Dimension $>$ ca. 100 nm vorhanden, die in sehr kleine Raumwinkel
streuen, so tritt ein systematischer Messfehler bei der Transmissionsmessung auf. Messung

bei großen Detektorabständen, mit kleiner Detektorfenstergröße und an Proben geringer Dicke (0,8 mm) reduzieren die dadurch bedingten Messfehler.

Zusammenfassend ist die Struktur der Mess- und Auswertungsprozedur in Abb. 3.10 dargestellt. Die Abbn. 3.11 – 3.14 zeigen an einem Beispiel wie aus den gemessenen Intensitätsverläufen durch schrittweise Korrekturen der differentielle makroskopische Streuquerschnitt in seinem Gesamtbetrag sowie in seinem nuklearen und magnetischen Anteil ausgewiesen wird. Am Ende stehen die daraus bestimmten Größenverteilungsfunktionen. Da die Struktur der streuenden Inhomogenitäten a priori nicht bekannt ist, können diese Funktionen nur in zufällige Einheiten und gewichtet mit dem unbekanntem Streukontrast dargestellt werden. Lediglich aus dem magnetischen Streuquerschnitt kann die Größenverteilung in absoluten Einheiten ermittelt werden, wenn man voraussetzt, dass die Struktur nichtferromagnetische Teilchen in einer ferromagnetischen Matrix enthält.

Da diese Annahme für den vorliegenden Fall durchaus plausibel ist, wurden alle Auswertungen in dieser Weise ausgeführt. Der magnetische Streukontrast der Matrix wurde dabei gleich dem Quadrat der Teilchenstreuendichte des Eisens ($n_{b\text{mag}}=2,57 \cdot 10^{-7} \text{ nm}^{-4}$) gesetzt.

Als integrale Strukturparameter wurden

- die Teilchengröße R_{max} am Verteilungsmaximum,
- das Integral der Volumenverteilungsfunktion c_v zwischen einer vorgegebenen Teilchengröße $R_{\text{min}} \leq R \leq R_{\text{max}}$ und
- das A-Verhältnis

verwendet.

Das A-Verhältnis wurde von Frisius u.a. [BEA 86] eingeführt und ist als das Verhältnis zwischen Gesamt - und nuklearem Streuquerschnitt definiert.

$$A = \frac{\left(\frac{d\Sigma(Q)}{d\Omega}\right)_{\text{nuc}} + \left(\frac{d\Sigma(Q)}{d\Omega}\right)_{\text{mag}}}{\left(\frac{d\Sigma(Q)}{d\Omega}\right)_{\text{nuc}}} = \frac{\left(\frac{d\Sigma(Q)}{d\Omega}\right)_{\alpha=\pi/2}}{\left(\frac{d\Sigma(Q)}{d\Omega}\right)_{\alpha=0}} \quad (3.28)$$

Im Falle des Modells 'homogene Teilchen in Matrix' ergibt sich daraus

$$A = \frac{\Delta\eta_{\text{mag}}^2 + \Delta\eta_{\text{nuc}}^2}{\Delta\eta_{\text{nuc}}^2} \quad (3.29)$$

Aus diesem Verhältnis kann zwar nicht die Struktur der Teilchen abgeleitet werden, jedoch können die Verträglichkeit hypothetischer Strukturmodelle überprüft und strukturelle Unterschiede zwischen verschiedenen Materialien vergleichend bewertet werden. Im zugrunde liegenden Modell ist $A(Q) = \text{const}$ und somit keine Funktion des Streuvektors. In den SANS-Experimenten wird jedoch häufig eine ausgeprägte Abhängigkeit vom Streuvektor beobachtet, die darauf hindeutet, dass entweder die innere Struktur der Teilchen von ihrer Größe abhängig ist oder Teilchen unterschiedlicher Art und Größe im System vorhanden sind. In diesem Falle lassen sich Struktur der Streuer und A-Verhältnis nicht mehr in überschaubarer Weise zuordnen. In der Literatur werden in diesen häufig anzutreffenden Fällen mittlere Werte oder auf einen bestimmten Q-Wert extrapolierte Werte angegeben, deren Sinnfälligkeit selbst bei rein vergleichenden Betrachtungen anzuzweifeln ist. Wie sich zeigen lässt, liefert unter diesen Umständen die Bestimmung des A-Verhältnisses aus den mit Hilfe der indirekten Transformationsmethode berechneten relativen Größenverteilungsfunktionen $(H_v(R))_{\text{mag}}$ und $H_v(R)_{\text{nuc+mag}}$ besser definierte Werte [GRO 00]. Für den Fall eines bimodalen Systems mit

zwei Teilchenarten, die sich im Typ und mittlerer Größe deutlich unterscheiden, kann so der den jeweiligen Teilchentyp zuzuordnende A-Wert bestimmt werden. Die Ermittlung des A-Wertes in dieser Weise hat sich für die bestrahlten RDB-Stähle als sehr hilfreich erwiesen; damit konnten A-Werte definiert werden, die repräsentativ für die Bestrahlungsdefekte sind. Für die detaillierte Ableitung der Methode sei auf [GRO 00] verwiesen.

3.6.3.3 Anomale Röntgenkleinwinkelstreuung (ASAXS)

Die SAXS-Methode wurde bisher kaum zum Nachweis von Strahlendefekten in RDB-Stählen verwendet. Wahrscheinlich wurden erstmals derartige Untersuchungen von Grosse u. a. [GRO 96] durchgeführt.

SAXS bietet vor allem den Vorteil, resonante (anomale) Streueffekte zur Kontrastvariation zu nutzen. Das gestattet nicht nur reine Dichteinhomogenitäten von chemischen Inhomogenitäten zu trennen, sondern auch zusätzliche Informationen über deren chemische Zusammensetzung zu gewinnen.

Das Vielfache f der Comptonstreulänge (Atomformfaktor) des Elektrons ist energieabhängig. In der Nähe der Absorptionskante eines Elements streuen die Elektronen der entsprechenden Kante resonant

$$f^2(Z, E) = |f_0(Z, Q) + f'(Z, E) + f_i''(Z, E)|^2 \quad (3.30)$$

Z ist die Ordnungszahl, E die Energie der einfallenden Strahlung. $f_0(Z, Q)$ ist der Atomformfaktor für Energien weit oberhalb der K -Kante mit $f_0(Q \rightarrow 0) = Z$. $f'(Z, E)$ und $f_i''(Z, E)$ sind die anomalen Streubeiträge und können aus der Energieabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten $\mu(E)$ berechnet werden [HAU 92].

Die durch die anomale Streuung erzeugte Kontrastvariation ist dadurch elementsensitiv. Eine Änderung der SAXS-Intensität bei Energien nahe der Absorptionskante eines Elementes, die nicht der Energieabhängigkeit des Quadrates der Streulängendichte der Matrix folgt, beweist das Vorhandensein dieses Elementes in den Teilchen. Tritt keine Intensitätsänderung ein, so ist das Element innerhalb der Nachweisgrenze nicht in den Teilchen enthalten.

Die genaue Position der Absorptionskante hängt von der chemischen Valenz des betreffenden Elementes ab. So erhöht sich beispielsweise die Energie der Vanadium- K_α -Absorptionskante um etwa 2,5 eV bei einer Valenzerhöhung um 1.

Beispielhaft sind in Abb. 3.15 die Verläufe des Realteiles $f'(Z, E)$ des Formfaktors $f(Z, E)$ im Energiebereich von 5,3 keV – 7,3 keV für die Elemente Fe und Cu und die Verbindung VC dargestellt. Messungen in diesem Energiebereich könnten die Existenz von Vanadium-Karbid anzeigen, wenn eine Kontrastverstärkung in der Nähe der K_α -Kante von Vanadium zu beobachten ist.

Die ASAXS-Untersuchungen wurden mit der ASAXS-Kleinwinkelstreuemesanlage JUSIFA an der Synchrotronstrahlungsquelle DORIS des Hamburger Synchrotronlaboratoriums HASYLAB durchgeführt. Die Anlage gestattet Messungen im Röntgenenergiebereich von 4,5 keV – 35 keV. Für die Messungen wurde ein Energiebereich von 5,25 keV bis 7,112 keV bei einer Energieauflösung von ca. 1 eV genutzt. Höhere Energien führen zu starker Fe-Fluoreszenzstrahlung, die die Kleinwinkelstreuereffekte um Größenordnungen überdeckt. Infolgedessen sind auch keine Messungen an der besonders interessierenden Cu- K_α -Kante möglich. Ein Einfluss der Fluoreszenzstrahlung ist bereits oberhalb der V-Kante und zunehmend oberhalb der Cr- und Mn-Kante festzustellen. Allerdings können diese Intensitätsbeträge als nicht winkelabhängige Untergrundeffekte separiert werden.

Es wurde mit einem festen Proben-Detektor-Abstand von 0,935 m gearbeitet, wodurch ein Streuvektorbereich von $0,2 \text{ nm}^{-1} \dots 4 \text{ nm}^{-1}$ bzw. $0,25 \text{ nm}^{-1} \dots 5,5 \text{ nm}^{-1}$ in Abhängigkeit von der Röntgenstrahlenergie erfasst wird. Der Strahlquerschnitt betrug $1,0 \text{ mm} \times 1,0 \text{ mm}$. Als Detektor wurde ein positionsempfindlicher 2d-Multidraht-Ar/CO₂-Gasdetektor verwendet. Da besonders im Bereich der Absorptionskanten die Energieabstände zwischen den einzelnen Messungen klein gehalten werden müssen, sind für ein ASAXS-Experiment mehr als 20 Messungen notwendig. Das führt zu großen Datenmengen und zu erheblichem Zeitaufwand für Messung und Auswertung.

Die Messungen wurden an $0,010 \text{ mm} \dots 0,015 \text{ mm}$ dicken Proben durchgeführt. Die Proben wurden in ähnlicher Weise wie die Proben für die TEM-Untersuchungen (s. 3.6.2) durch beidseitiges, vorsichtiges Abschleifen und Abpolieren mit dem ACUSTOP bearbeitet. Die geringe Dicke verlangt allerdings hier ein sehr vorsichtiges, präzises Vorgehen.

In ähnlicher Weise wie für die SANS-Experimente werden die Streukurven von den instrumentell bedingten Einflüssen, dem Anteil der Röntgenfluoreszenzstrahlung und der Laue-Streuung bereinigt. Da gelegentlich auch anisotrope Streueffekte beobachtet werden, wurden dazu azimutal gemittelte, den Anisotropieeffekt nicht berücksichtigende Streuintensitäten zu Grunde gelegt. Für diese Prozeduren wurden die JUSIFA-internen Auswertungsroutinen benutzt.

Die weitere Auswertung erfolgte nach unterschiedlichen Vorgehensweisen:

- a) Zunächst wurde zur Separierung des Bestrahlungseffektes die Streukurve des unbestrahlten Referenzstrahles von der Streukurve des bestrahlten Zustandes abgezogen. Die Differenzintensität wurde im Guinier-Plot im Q-Bereich zwischen $0,7 - 1,5 \text{ nm}^{-1}$ für alle Energien auf $Q = 0$ extrapoliert. Für $Q = 0$ hängt die Streuintensität nicht von der Größe der Teilchen oder deren gegenseitiger Anordnung, sondern nur vom Volumengehalt und dem Streukontrast zur Matrix ab. Die Energieabhängigkeit von $I(Q = 0)$ liefert dann die gesuchte Information über die Zusammensetzung der Teilchen.
- b) Das Verfahren versagt, wenn im bestrahlten Zustand, wie bei den Experimenten mehrfach beobachtet, keine größeren Streuintensitäten als im unbestrahlten Zustand auftreten. Außerdem wird zur Definition des Bewertungsparameters nach a) gerade der Q-Bereich der Streukurve benutzt, der nicht dominant durch die charakteristischen, sehr feindispersen Strahlungsdefekte geprägt ist. Deshalb wurde die Streuintensität in einem anderen Auswertungsmodus im Bereich von $0,5 \text{ nm}^{-1} \leq Q \leq 1 \text{ nm}^{-1}$ integriert und deren Energieabhängigkeit als Indikator für die chemische Zusammensetzung der feindispersen Inhomogenitäten gewertet.
- c) Als ein dritter Weg der Auswertung wurde auch die Differenzkurve der SAXS-Intensität für zwei benachbarte Röntgenenergien, die oberhalb und unterhalb der Absorptionskante liegen, gebildet und deren Q-Verlauf im Hinblick auf die darin enthaltene Information zur Teilchengröße interpretiert.
- d) Schließlich wurde versucht, den hohen Messzeitaufwand, der eine systematische Messung einer größeren Zahl von Proben verhindert, dadurch zu reduzieren, dass quasisimultan Transmission und integrale Streuintensität für jeweils eine bestimmte Energie gemessen werden. Es zeigt sich, dass der so erreichte Zugewinn an gemessenen Proben durch den Verlust an interpretierbarer Information, die im Experiment erhalten wird, letztlich zu teuer erkauft wird. Dieser Weg wurde deshalb nicht weiter verfolgt.

3.6.4 Sonstige Untersuchungsmethoden

Positronenannihilationsspektroskopie:

Seit Mitte der 80er Jahre wird mehrfach die Positronenannihilationsspektroskopie (PAS) zur Untersuchung der Strahlenschädigung in RDB-Stählen eingesetzt ([GHA 87], [BRA 87], [LOP 89]).

Der Positronenannihilationsprozess wird durch Wechselwirkung der Positronen mit Kristallbaufehlern in definierter Weise verändert. Mit Positronenlebenszeitmessung oder durch Messung der Dopplerverschiebung der Energie der Annihilationsstrahlung können Informationen über Typ, Konzentration und Größe der Defekte erhalten werden. Die Methode weist hohe Empfindlichkeit für spezifische Defektarten auf, detektiert Defekte bis hinunter zu atomarer Ausdehnung (z.B. Einzelleerstelle), arbeitet integrierend und stellt geringe Anforderungen an die Probenpräparation. In komplexen Werkstoffsystemen wie RDB-Stähle mit unterschiedlichen Strukturdefekten ist jedoch eine strukturanalytische Interpretation der Messergebnisse außerordentlich schwierig [BRA 95a] und hat eine weite Anwendung der Technik für die Untersuchung der Strahlendefekte in RDB-Stählen weitestgehend verhindert. In jüngster Zeit, nicht zuletzt angeregt durch ein von der US-NRC gefördertes Programm, das die Nutzung dieser Technik als zerstörungsfreies Untersuchungsverfahren zur Monitorierung des Versprödungszustandes von gealterten RDB fördert [CAT 00], wird der Technik wieder breiteren Raum gewidmet.

Für diese Arbeit wurden punktuell PAS-Untersuchungen an Modelllegierungen am Department of Mechanical and Nuclear Engineering of the Pennsylvania State University und an ASTM-RDB-Vergleichsstählen von einer Arbeitsgruppe am Institut für Ionenstrahlphysik und Materialforschung des FZR durchgeführt. Zur Messung wurden Scheiben der Abmessung 10 mm x 10 mm x 1 mm verwendet. Es wurden die Positron-Lebenszeit-Verteilung und die γ -Linienformparameter S und W bestimmt. Ergebnisse der PAS-Messungen sind in [CUM 01] und [HEM 00] dargestellt.

Mössbauerspektroskopie

Mit der Mössbauerspektroskopie können Veränderungen der Bindungszustände und Nachbarschaftsbeziehungen der resonanten Atome (^{57}Fe) mit hoher Sensibilität nachgewiesen werden. Die Methode wurde mehrfach auch zum Nachweis der Bestrahlungseffekte in RDB-Stählen eingesetzt (z.B. in [BRA 90], [SLU 98]), erwies sich jedoch in dieser Anwendung als kaum interpretierbar. Nach Slugen [SLU 99] ist mit der Methode ein Nachweis der bestrahlungsbedingten Gefügeänderungen nicht möglich. Die Anwendung der Mössbauerspektroskopie wurde deshalb hier nicht weiter verfolgt.

Röntgenabsorptionsspektroskopie

Aus der Feinstruktur der Absorptionskanten eines Elementes können Rückschlüsse auf die Nachbarschaftsbeziehungen gezogen werden. Die als EXAFS (extended X-ray absorption fine structure) bezeichnete Methode könnte folglich Beiträge zur Analyse der Struktur der Bestrahlungsdefekte liefern. So konnten Pizzini u.a. ([PIZ 90], [PHY 92]) an thermisch gealterten, unbestrahlten Fe-Cu und Fe-Cu-Ni-Legierungen zeigen, dass im Verlaufe der thermischen Alterung ein Strukturwechsel der Kupferausscheidungen auftritt. Ergebnisse an bestrahlten RDB-Stählen wurden nicht publiziert.

Zur Anwendung dieser Methode wurden Eignungstests in Zusammenarbeit mit der Universität Leipzig an den Werkstoffen ESW-A und -C durchgeführt. Dabei konnten an den $\text{Cu}_{K\alpha}$ - und $\text{Fe}_{K\alpha}$ -Absorptionskanten im bestrahlten Zustand keine charakteristischen Effekte festgestellt werden. Abschätzungen über die auf Grund der chemischen Zusammensetzung der Stähle maximal möglichen Änderungen im Intensitätsverlauf der Absorptionsspektren lassen erwarten, dass mögliche Effekte nur im Bereich der verfahrensbedingten Streuung liegen. Aus diesem Grund sind weitere Untersuchungen nicht durchgeführt worden.

4. Ergebnisse

4.1 Einfluss der Bestrahlung auf Festigkeit und Zähigkeit

Bestrahlung führt in jedem Fall zu einer Erhöhung der Festigkeit und Härte und zu einer Verschiebung der Übergangstemperatur zu höheren Werten sowie nahezu in jedem Fall zu einer Verringerung der Kerbschlag-Hochlagenenergie.

Tabelle 4.1: Ergebnisse des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I, Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften

Werkstoff	Code/ Zustand	$\phi_{\text{mean}}/10^{18} \text{ cm}^{-2}$		$R_{P0.2}/\text{MPa}$	R_m/MPa	HV10 ¹⁾	TT ₄₈₃ /°C	T ₀ /°C
		>0,5 MeV	<1,0 MeV					
15Kh2MFA	R1 U I IA	43,6	31,1	613	703	236±4	18	
				632 ²⁾	750 ²⁾	250±5	31	
				597 ²⁾	735 ²⁾	225±3	11	
	R2 U I IA	80,7	57,6	487	602	198±3	-55	-147
				609 ²⁾	714 ²⁾	269±4	-23	-109
				479 ²⁾	661 ²⁾	210±3	-57	
	R3 U I IA	45,7	32,6	619	718	232±4	7	-82
				639 ²⁾	720 ²⁾	281±4	54	11
				605 ²⁾	699 ²⁾	246±3	14	
	D25 U I IA	127,6	91,1	521	634	205±4	-70	-130
				500 ²⁾	551 ²⁾	258±4	6	
				482 ²⁾	555 ²⁾	240±3	-44	
15Kh2NMFAA	R16 U I IA	46,0	32,9	562	666	220±6	-81	-150
				458 ²⁾	578 ²⁾	305±2	-16	-93
				437 ²⁾	578 ²⁾	240±4	-39	
	R17 U I IA	72,7	51,9	613	710	227±5	-48	-107
				690 ²⁾	755 ²⁾	292±4	76	+2
				594 ²⁾	713 ²⁾	260±4	-46	
10KhGMFAA	R19 U I IA	65,1	46,5	595	685	206±7	-16	-108
				697 ²⁾	774 ²⁾	309±3	175	+62
				496 ²⁾	577 ²⁾	239±4	-1	

1) Mittelwert und Standardabweichung aus 10 Einzelmessungen

2) berechnet aus dynamischen Festigkeitswerten: $R_{P0.2 \text{ stat}} = 0,84 R_{P0.2 \text{ dyn}}$; $R_{m \text{ stat}} = 0,77 R_{m \text{ dyn}}$

Tabelle 4.2: Ergebnisse des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg II, Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften

Werkstoff	Code/ Zustand	$\phi_{\text{mean}}^{1)}$	$R_{P0,2}/\text{MPa}$	R_m/MPa	HV10	$TT_{487}/^\circ\text{C}$	$TT_{687}/^\circ\text{C}$	
15Kh2MFA	KAB-0	U		529	640	216	-61 ³⁾	-51
		I ₁	5,1	608 ²⁾		249	-4	+4
		I ₂	71,0	736 ²⁾		282	+59	+66
		I ₂ A		545 ²⁾			-51	-44
	KAB-3/7,8	U		505	612	210	-43 ³⁾	-34
		I ₁	5,2	556 ²⁾		242	+7	+12
		I ₂	70,0	695 ²⁾		276	+65	+77
		I ₃	139,8	739	793	287		
		I ₁ A		541 ²⁾		211	-28	-22
		I ₂ A		497 ²⁾		221	-35	-26
	KAB-2	U		505	618	213		
		I	3,0	623	727	242		
		IA		559	677			
	KAB-10	U		465	604			
		I	13,6	639	738			
IA			506	639				
Sv10KhMFT(u)	KAB-W	U		475	580	195	+24 ³⁾	+43
		I	92,2			266	+305	+369
		IA				200		
15Kh2MFA, Versuchsschmelze	ESW-A	U				210	-81	-77
		I	3,0			232	-72	-56
		IA				224		
	ESW-B	U				241	-86	-73
		I	3,2			256	-40	-26,2
		IA				251		
	ESW-C	U				219	-140	-129
		I	2,8			256	-66,4	-50,0
		IA				233		
	ESW-D	U				211	-116	-110
		I	3,1			255	-45	-37
		IA				242		
A 533 B cl. 1	JRQ	U	-	488	618	204	-9	-3
		I ₁	10,32	689	798	262	+116	+129
		I ₂	76,9	770	847	287	+169	+174
		I ₃	139,4	843	904	307	+212	+220
A 508 cl. 3	JFL	U		467	610	211	-39	-32
		I ₁	9,9	534	666	216	-20,5	-16
		I ₂	71,8	587	705	230	+12	+18
		I ₃	121,5	640	746	267	+40	+49

1) ϕ_{mean} – mittlere Neutronenfluss in $10^{18}/\text{cm}^2$, $E > 0,5 \text{ MeV}$

2) berechnet aus dynamischer Festigkeit: $R_{P0,2 \text{ stat}} = 0,84 R_{P0,2 \text{ dyn}}$; $R_{m \text{ stat}} = 0,77 R_{m \text{ dyn}}$

3) alle Werte bezogen auf 41 J

Typische Kerbschlagarbeit-Temperatur-Kurven sind in Abb. 4.1 am Beispiel der Charge KAB des WWER-440-RDB-Stahles 15Xh2MFA für den unbestrahlten Ausgangszustand, für zwei bis zu unterschiedlichen Neutronenfluenzen bestrahlte Zustände und für den ausgeheilten Zustand dargestellt. Die wichtigsten Parameter zur Charakterisierung des Festigkeits- und Zähigkeitsverhaltens sind in den Tabellen 4.1 - 4.4 zusammengefasst und in den Abbn. 4.2 -

4.10 veranschaulicht. Man erkennt den großen Parameterbereich, der sowohl hinsichtlich der Zähigkeits-Festigkeits-Charakteristik im Ausgangszustand als auch hinsichtlich des Bestrahlungseffektes mit dem Untersuchungsprogramm abgedeckt wird.

Im Ausgangszustand zeigen die untersuchten Werkstoffe eine gute Zähigkeit bei hohen Festigkeiten. Die Schweißwerkstoffe haben schlechtere Zähigkeitseigenschaften, liegen aber abgesehen von der Charge KAB-W innerhalb der Spezifikationsgrenzen.

Das Ausmaß des Bestrahlungseffektes ist sehr unterschiedlich. Die Übergangstemperaturverschiebung ΔTT_{48J} bedeckt den Bereich von ca. 10 °C bis zu einem Spitzenwert von ca. 300 °C. Die Streckgrenzenerhöhung $\Delta R_{P0.2}$ liegt zwischen < 100 MPa bis nahezu 400 MPa. Die Zuordnung der Eigenschaftsänderung zur Neutronenfluenz zeigen die Abbn. 4.11 – 4.14. Für einige Chargen, die bis zu unterschiedlichen Fluenzen bestrahlt worden sind, wurden die Messpunkte in den Abbildungen miteinander verbunden. Der Werkstoff PA1-B zeigt eine geringe Anfälligkeit gegen Strahlenversprödung und -härtung. Der Effekt ist deutlich höher für den Werkstoff KAB des gleichen Stahltyps 15Kh2MF(A,AA). Eine hohe Anfälligkeit ist für den Werkstoff JRQ vom Typ A 553 B cl. 1 charakteristisch. Eine hohe Strahlensensibilität weisen in der Regel auch die Schweißwerkstoffe und einige der Modelllegierungen auf. Bei der Wertung ist zu beachten, dass sich die Ergebnisse teilweise auf unterschiedliche Bestrahlungstemperaturen (255 °C, 270 °C, 290 °C) beziehen.

Tabelle 4.3: Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften der Surveillance-Proben

Werkstoff	Code/ Zustand		$\phi_{\text{mean}}/10^{18} \text{ cm}^{-2}$		$R_{P0.2}$ $\Delta R_{P0.2}$		R_m ΔR_m		HV10	TT_{48J} ΔTT_{48J}	
			> 0.5 MeV	> 1.0 MeV	[MPa]	[MPa]	[MPa]	[MPa]		[°C]	
15Kh2MFAA	PA1-B	U	-	-	-	-	-	-	202	-50	-
		I ₁	67	36	81	-	-	-	227	+9	+59
		I ₂	146	78	160	-	-	-	235	+38	+88
		I ₃	228	122	175	-	-	-	246	+53	+103
		I _{2A}	146	-	-	-	-	-	212	-	-
	RO-B	U	-	-	530	-	650	-	214	-46	-
		I	62	-	696	166	797	147	245	+7	+53
		IA	-	-	-	-	-	-	218	-40	+6
	KO-B	U	-	-	530	-	650	-	216	-45	-
		I	480	-	925	395	935	285	341	151	+196
		IA	-	-	-	-	-	-	231	-30	+15
	Sv10KhMFT	PA1-W	U	-	-	-	-	-	-	196	-3
I ₁			80	43	94	-	-	-	218	+64	+67
I ₂			170	91	141	-	-	-	223	+78	+81
I ₃			270	144	175	-	-	-	231	+97	+100
I _{2A}			-	-	-	-	-	-	200	-	-
RO-W		U	-	-	460	-	590	-	208	+12	-
		I	62	-	721	261	803	213	258	+132	+120
		IA	-	-	-	-	-	-	208	+25	+13
AR-W		U	-	-	460	-	590	-	208	+12	-
		I	630	-	780	320	850	260	316	+292	+280
		IA	-	-	-	-	-	-	218	+30	-
10KhGMFAA		TA-1	U	-	-	546	-	656	-	211	-59
	I		42	-	620	74	696	40	225	-22	+37
	TA-2	U	-	-	612	-	691	-	228	-38	-
		I	34	-	728	116	788	97	238	+7	+45

In den Abbn. 4.15 – 4.17 werden Festigkeits- und Zähigkeitsparameter verglichen, die Abbn. 4.18 – 4.19 stellen den Zusammenhang zwischen Strahlenversprödung, bezogen auf die Übergangstemperaturverschiebung ΔTT_{48J} , und Strahlenhärtung dar. Zwischen den Festigkeitsparametern $R_{P0.2}$ oder der Härte HV10 und dem Zähigkeitsmaß Charpy-Übergangs-

temperatur TT_{48J} gibt es keine allgemein gültige, Stahltyp unspezifische Korrelation. Die Härte- und die Streckgrenzenwerte korrelieren hingegen in einem relativ engen Toleranzband. Korrelationen sind auch zwischen der strahlenbedingten Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J} und der Härte- (ΔHV_{10}) bzw. Streckgrenzen ($\Delta R_{P0.2}$)-Änderung erkennbar, wenngleich eine Reihe von Messpunkten bzw. Werkstoffen deutlich aus dem Trendverlauf herausfallen.

Tabelle 4.4: Festigkeits- und Zähigkeitseigenschaften der Eisen-Basis-Mehrstoff-Legierungen

Code	Zustand	$\phi_{\text{mean}}/10^{18} \text{ cm}^2$ > 0.5 MeV	$R_{P0.2}$	$\Delta R_{P0.2}$	R_m	ΔR_m	HV10	TT_{41J}	ΔTT_{41J}
			[MPa]	[MPa]	[Mpa]			[°C]	
ML-A	U	-	257		361		110	48	
	I ₁	10	453	196	533	172	204	149	101
	I ₂	80	513	256	538	177	233	174	126
	I ₁ A	10	222	-36	346	-15	107	26	-22
ML-B	U	-	293		384		136	-72	
	I ₁	10	505	212	584	200	202	49	121
	I ₂	80	482	189	535	151	215	49	121
	I ₁ A	10	348	55	436	52	158	-42	30
ML-C	U	-	338		428		138	-66	
	I	10	514	176	579	151	-	96	162
	IA	10	318	-20	421	-7	141	-68	2
ML-D	U	-	317		423		150	-47	
	I	10	519	202	589	166	227	117	164
	IA	10	306	-11	421	-2	126	-52	-5
ML-E	U	-	351		447		142	-51	
	I	10	546	195	638	191	232	166	217
	IA		327	-24	440	-7	145	-29	22
ML-F	U	-	388		475		139	-58	
	I	10	489	101	581	106	184	176	234
	IA	10	431	43	526	51	169	-14	44
ML-G	U	-	234		352		111	-60	
	I	80	300	66	396	44	179	-23	37
	IA ¹⁾	80					126		
ML-H	U	-	260		363		120	-22	
	I	80	455	195	546	183	215	137	159
	IA ¹⁾	80					169		

¹⁾ 450 °C/24 h

4.2 Bestrahlungsbedingte Gefügeänderungen

4.2.1 Metallographische und transmissionselektronenmikroskopische Untersuchungen

Alle untersuchten WWER-RDB-Stahlchargen weisen ein typisches bainitisches Anlassgefüge aus einer Mischung von angelassenem körnigen und Lattenbainit auf. Der körnige Bainit ist dominant. Zusätzlich treten Anteile von voreutektoidem Ferrit auf, deren Höhe sich bei den verschiedenen Chargen deutlich unterscheidet. Klare Unterschiede treten auch in der Austenitkorngröße auf. Für die Schweißwerkstoffe ist zusätzlich ein hoher Ferritanteil entlang der vormaligen Austenitkörner und eine stänglige Kornstruktur charakteristisch. Typische lichtmikroskopische Gefügeaufnahmen sind in Abb. 4.20 für einen Grundwerkstoff und in Abb. 4.21 für ein Schweißmetall wiedergegeben. Es gibt eine starke Ort-zu-Ort-Variation der Bainitmorphologie. Vormalige Austenitkorn Grenzen und die Grenzen in der Bainitsubstruktur sind dekoriert mit größeren Karbidausscheidungen ($d \approx 0.2 \mu\text{m}$), die vorwiegend als Cr-reiche Mischkarbide vom Typ $M_{23}C_6$ identifiziert werden können. Außerdem tritt eine starke Population von feinen, plättchenartig geformten Ausscheidungen ($d \approx 10 \text{ nm}$) innerhalb der Körner bzw. Bainitlatten auf, die häufig entlang der Versetzungen liegen. Sie sind überwiegend vom

Typ VC (oder V_4C_3). Charakteristische Erscheinungsformen sind aus den Abbn. 4.22 und 4.23 erkennbar. Die Größenverteilung der größeren Mischkarbide ist in Abb. 4.24 dargestellt. Das Versetzungsgefüge besteht teils aus dichten Versetzungsknäueln, teils aus Versetzungsnetzwerken, eine Tendenz zur Zellbildung ist erkennbar (Abb. 4.25). Die mittleren Versetzungsdichten betragen ca. $(1...3) \cdot 10^{10}/\text{cm}^2$. Bestrahlung verändert weder die Charakteristik des bainitisch-ferritischen Grundgefüges noch die Karbidverteilung. Im Versetzungsgefüge ist eine leichte Verringerung der Versetzungsdichte anzunehmen.

Der Nachweis spezieller bestrahlungsbedingter Gefügeerscheinungen erweist sich als außerordentlich schwierig. Dies aus folgenden Gründen:

- a) **Große Komplexität und Heterogenität des bainitischen Gefüges**
Es ist nahezu unmöglich, den 2-Strahl-Fall und die exakte Einhaltung der für die Diffraktionsanalyse mit Kikuchi-Linien erforderlichen Beugungsbedingungen in der feinzelligen Bainitstruktur mit ihrem hochdichten Versetzungsnetzwerk einzustellen.
- b) **Kleine Defektgröße und niedriger Defektkontrast**
Die typischen Strahlendefekte sind sehr klein und im Bereich der Auflösungsgrenze der TEM. Der Kontrast ist schwach. Typisch sind dunkle Flecken (black-dots) oder Kaffeebohnenartige Erscheinungen. Letztere können von Versetzungsschleifen, kohärenten Teilchen oder von besonders orientierten Versetzungen herrühren.
- c) **Ferromagnetismus**
Der Ferromagnetismus der untersuchten Proben verschlechtert das Auflösungsvermögen und erschwert die Fokussierung bei allen Manipulationen der Probe.
- d) **Messung der Foliendichte**
Infolge des Fehlens von geeigneten Strukturphänomenen, die zur Foliendickenbestimmung geeignet sind, können keine quantitativen Angaben zur Defektdichte gewonnen werden.

Die besten Nachweisbedingungen für die Strahlendefekte sind im Ferrit gegeben, der aber nicht den dominanten Gefügeanteil ausmacht. Insofern sind die Schlussfolgerungen, die aus den Beobachtungen in den ferritischen Bereichen abgeleitet werden, nur unter Vorbehalt als für das Gesamtgefüge charakteristisch zu werten.

Ein Beispiel typischer Strukturen mit Strahlendefekten im Ferrit ist in Abb. 4.26 gezeigt. Es tritt eine gemischte Population von feinen fleckartigen Beugungserscheinungen auf, die teils von den bereits im unbestrahlten Zustand vorhandenen feinen VC-Karbiden herrühren (stark schwarz getönte Bereiche), teils als Bestrahlungsdefekte zu identifizieren sind (schwach dunkel getönte Bereiche). Die Verteilung der Defekte ist stark heterogen. Während im oberen Bild (Abb. 4.26, oben) eine sehr hohe Dichte beobachtet wird, ist ein anderes Ferritkorn der gleichen TEM-Folie nahezu defektfrei (Abb. 4.26, unten).

Eingehend untersucht wurden die Surveillance-Proben. Es ist auch hier festzustellen, dass der Nachweis von Strahlendefekten nur an einzelnen Stellen einer TEM-Probe möglich war. Im grundsätzlichen Erscheinungsbild gleichen sich in allen Surveillance-Proben die Strukturphänomene. Im unbestrahlten Zustand werden klare, relativ wenig strukturierte Abbildungen erhalten, die einzelne starke Kontraste enthalten, die je nach Größe den verschiedenen Karbidarten zuzuordnen sind. Im bestrahlten Zustand weisen die Abbildungen immer eine starke „Untergrundrauigkeit“ auf und enthalten neben den starken Kontrasten schwache Kontraste mit Ausdehnungen von wenigen Nanometern. Diese sind immer heterogen verteilt und häufig an Versetzungen konzentriert; entlang der Korngrenzen sind ausscheidungsfreie

an Versetzungen konzentriert; entlang der Korngrenzen sind ausscheidungsfreie Säume vorhanden. Die Anzahl der schwach kontrastierten Strahlendefekten unterscheidet sich für die verschiedenen Surveillance-Proben, sie ist besonders hoch in den Proben KO-B und AR-W, am niedrigsten für PA-B und PA-W. Nach Ausheilung verschwinden diese Erscheinungen weitestgehend, die „Untergrundraugigkeit“ nimmt ab (die Abbildung erreicht noch nicht die „Klarheit“ der Abbildungen von unbestrahlten Proben). Teilweise werden Teilchen mit „Kaffeebohnen“-Kontrast nachgewiesen. Typische Gefügaufnahmen für die verschiedenen Surveillance-Proben enthalten die Abb. 4.27 – 4.33.

Im FEG-STEM wurde die chemische Zusammensetzung der bestrahlungsinduzierten Strukturdefekten sowohl mit Röntgenspektroskopie (EDX) als auch Elektronenenergie-Verlustspektroskopie bestimmt. Da die Foliendicke wesentlich dicker ist als die Tiefenausdehnung der Strahlendefekte, werden selbst bei einem hochfokussierten Elektronenstrahl (Strahldurchmesser = 1 nm) große Teile der Matrix mitangeregt. Somit erhält man ein über die Matrix und den Defekt gemittelte Zusammensetzung. Es ist auf diese Weise lediglich möglich, Elemente oder Elementanteile zu identifizieren, die charakteristisch für den Defekt sind, indem man vergleichend die Analyse in defektfreien Bereichen und bei Fokussierung auf den Defekt bewertet. In Abb. 4.34 ist eine TEM-Gefügaufnahme mit 3 an unterschiedlichen Positionen gewonnenen EDX-Spektren dargestellt. Das untere und obere Spektrum bezieht sich auf eine Position mit Defekt, das mittlere ist repräsentativ für die reine Matrix. Während für die Matrix Fe, Si, Cr und Mn charakteristisch sind, treten in den Spektren aus den Strahlendefekten zusätzlich die Elemente Mo, V und im oberen Spektrum auch Cu auf.

Derartige Analysen wurden in großer Zahl durchgeführt. Für größere, kontrastreiche Teilchen, wie sie auch im unbestrahlten Zustand gefunden werden, ist hoher V-Gehalt, u.U. auch Mo-Gehalt typisch. Sie sind wahrscheinlich als V-Karbide zu klassifizieren. Die kleinen, schwach konturierten Strahlendefekte variieren in ihrer Zusammensetzung beträchtlich. Zum Teil sind innerhalb der Streuung keine Unterschiede zur Matrixzusammensetzung nachweisbar, häufig werden, wie im gezeigten Beispiel (Abb. 4.34), höhere Cu-, V- und/oder Mo-Gehalte ausgewiesen. Hohe Cu-Gehalte sind vor allem für die Charge KAB-B charakteristisch. In Tab. 4.5 sind einige Ergebnisse der Matrixzusammensetzung zusammengestellt, die sowohl die signifikanten Streuungen zwischen verschiedenen Messpositionen innerhalb einer Probe als auch systematische Fehlereinflüsse erkennen lassen. So sind die Werte nur als Vergleichsbasis verwendbar. Die Tabellen 4.6 und 4.7 vermitteln einen Eindruck über die Streubreite der Zusammensetzung der als Strahlendefekte definierten Strukturinhomogenitäten, die in den zusammengestellten Fällen durchweg Größen kleiner 5 nm entsprachen. Während für das Schweißmetall AR-W eine überwiegend Matrix ähnliche Zusammensetzung der Strahlendefekte gefunden wird, werden beim Werkstoff KAB-B davon deutlich abweichende Werte ausgewiesen.

Tabelle 4.5: Chemische Zusammensetzung der Matrix nach EDX-Spektroskopie (Strahldurchmesser: 1 nm)

Werkstoff/ Zustand	Gehalt in Masse-%						
	Fe	Cr	Mn	Si	V	Mo	Cu
AR-W, I	93,93	1,59	2,09	0,82	0,16	1,42	-
	95,91	1,47	1,62	0,58	-	-	0,42
AR-W, IA	95,45	1,54	1,31	0,55	0,20	0,29	0,66
	94,91	1,75	1,16	0,34	0,46	0,79	0,59
RO-W, I	93,9	1,72	1,71	1,59	-	0,83	0,25
KO-B, IA	95,75	2,92	-	-	0,04	1,00	0,29

Tabelle 4.6: Chemische Zusammensetzung der Strahlendefekte nach EDX-Spektroskopie (Strahlendurchmesser: 1 nm) für den Werkstoff AR-W im bestrahlten Zustand (in Masse-%, Fe Rest)

Cr	Mn	Si	V	Mo	Cu
1,34	1,73	0,46	0,63	0,71	0,32
1,77	1,60	1,41	1,01	-	0,28
1,54	1,56	0,50	0,25	-	0,26
1,61	1,49	0,47	0,32	0,80	0,36
1,57	1,68	0,50	0,15	-	0,47
1,67	1,36	0,50	-	-	0,27
1,47	1,59	0,46	-	-	0,28
1,51	1,52	0,53	-	-	0,31
1,47	1,84	0,60	-	-	-
1,79	2,07	0,88	-	-	-
1,51	1,47	0,58	-	-	0,43
1,67	1,56	0,30	-	-	0,34
1,52	1,61	0,30	-	-	0,48
1,62	1,50	0,23	0,10	-	0,38
1,84	1,25	-	0,07	0,39	0,56
1,45	1,34	-	0,07	0,69	0,58
1,30	1,70	-	0,86	0,93	2,60

Tabelle 4.7: Chemische Zusammensetzung der Strahlendefekte nach EDX-Spektroskopie (Strahldurchmesser: 1 nm) für den Werkstoff KAB-B im bestrahlten Zustand (in Masse-%, Fe Rest)

Cr	Mn	Si	V	Mo	Cu
2,31	-	0,14	-	-	3,7
2,37	-	0,23	1,33	1,47	5,25
2,12	-	0,21	0,13	-	3,91
3,18	-	0,06	3,47	3,56	2,57
2,45	-	0,03	1,32	1,46	5,16

4.2.2 Ergebnisse der SANS-Untersuchungen

Die Streuvektorabhängigkeit der kohärenten makroskopischen SANS-Querschnitte, die daraus bestimmten Größenverteilungskurven und der Verlauf des A-Verhältnisses über dem Streuvektor sind in den Abbn. 4.35 - 4.52 für eine charakteristische Auswahl der untersuchten Werkstoffe dargestellt. Der Verlauf der Streukurve ist für alle untersuchten Stahltypen grundsätzlich ähnlich. Der Streuquerschnitt erhöht sich durch Bestrahlung. Sind für den Werkstoff Proben mit unterschiedlicher Neutronenfluenz untersucht worden, so ist der Effekt desto ausgeprägter, je höher die Fluenz ist. Eine Ausheilglühung verringert die Erhöhung oder beseitigt sie vollständig. Die Änderung tritt vor allem im Streuvektorbereich $> 0,5 \text{ nm}^{-1}$ auf. Im Bereich kleiner Streuwinkel gibt es keine oder nur geringe Unterschiede zwischen den verschiedenen Zuständen.

Die Größenverteilung zeigt eine bimodale Charakteristik. Vor allem im bestrahlten Zustand tritt eine feindisperse Verteilungspopulation im Größenbereich $0 < R \leq 3 \text{ nm}$ auf. Durch Ausheilen wird dieses Maximum abgebaut, ohne dass in der Regel eine Verlagerung der Ver-

Tabelle 4.8 Ergebnisse der Gefügeanalyse mit SANS-Experimente

Werkstoff	Fluenz in $10^{18}/\text{cm}^2$		$\Delta c_v/\%$	R_{max}/nm	A-Verhältnis
	[> 1 MeV]	[> 0,5 MeV]			
R1	31,8	44	0,008	1,05	2,2
R2	57,6	81	0,078	1,0	2,1
R3	32,6	46	0,015	1,05	2,4
D25	91,1	128	0,121	1,0	1,7
R16	32,9	46	0,063	1,0	1,8
R17	51,9	73	0,117	1,0	2,8
R19	46,5	65	0,253	1,0	2,8
KAB-B-0	3,6	5,1	0,17		2,8
-3, 7, 8	51,0	71,0	0,32		2,9
	3,7	5,2	0,097	1,0	4,2
	50,0	70,0	0,261	1,0	3,1
	99,8	139,0	0,268	1,0	2,9
-2	2,2	3,0	0,062	1,0	3,8
KAB-W	66,0	92,0	0,31		1,9
ESW-A	2,5	3,0	-		-
B	2,3	3,2	0,02		2,5
C	2,0	2,8	0,25		3,4
D	2,2	3,1	0,19		4,7
PA1-B	32	67	0,043		1,8
	80	146	0,067		1,9
	140	228	0,099		1,9
RO-B		62	0,071		3,7
KO-B		480	0,439	1,5	4,1
PA1-W	32	67	0,045		3,3
	80	146	0,067		2,3
	140	228	0,11		1,6
RO-W	44,1	62	0,209	1,6	1,5
AR-W	480	630	0,448	1,7	1,9
TA-1		45	0,05	1,0	2,6
TA-2		40	0,085	1,0	2,6
ML-A		10	0,026	1,0	1,7
		80	0,101	1,0	1,7
-B		10	0,310	1,2	5,5
		80	0,320	1,2	5,0
-C		10	-	-	-
-D		10	0,010	1,2	2,0
-E		10	0,003	1,2	2,6
-F		10	0,026	1,2	5,0
-G		80	0,043	1,0	2,6
-H		80	0,033	1,0	1,7
JRQ		10	0,206	1,0	2,1
		77	0,343	1,0	2,4
		139	0,502	1,0	2,6
JFL		10	0,003	1,0	1,2
		72	0,020	1,0	1,4
		122	0,086	1,0	1,8

teilungskurve zu größeren Teilchen festzustellen wäre. Im unbestrahlten Zustand tritt die feindisperse Population gar nicht oder nur mit einem sehr geringen Anteil auf. Eine zweite Population ist durch ein breites, flach verlaufendes Maximum um 10 nm charakterisiert, das sich allerdings aus den Messungen nicht hinreichend genau definieren lässt. Auf diese Population hat Bestrahlung keinen erkennbaren Effekt.

Die A-Werte sind im allgemeinen Q-abhängig und folglich nicht interpretierbar. Wie im Abschnitt 3.6.3 erwähnt, sind die im folgenden angegebenen A-Werte aus den Verteilungskurven berechnet und beziehen sich immer auf die durch Bestrahlung erzeugte feindisperse Population.

Die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen zeigen, wie aus der Abb. 4.53 ersichtlich, ein vergleichbares Verhalten.

Abweichungen werden bei den russischen Surveillance-Proben festgestellt, die eine breitere und zu etwas größeren Werten verschobene Verteilung im feindispersen Bereich zeigen. Beim Ausheilen wird das Verteilungsmaximum in seiner Höhe nicht nur reduziert, sondern verschiebt sich auch zu größeren Radien. Des weiteren treten vor allem beim Schweißmetall stärkere Unterschiede im Bereich der größeren Teilchendurchmesser zwischen den unterschiedlichen Zuständen auf. Das deutet auf eine Heterogenität der Ausgangszustände des Surveillance-Materials hin. Die Abbn. 4.54 und 4.55 demonstrieren diese Erscheinungen.

Die Strukturparameter, die mit Hilfe der SANS-Analysen bestimmt worden sind, sind in Tab. 4.8 zusammengestellt. $\Delta C_v = C_i - C_u$ charakterisiert den Volumenanteil der bestrahlungsversuchten Streudefekte und wird als Differenz zwischen dem Integral der Größenverteilungskurve im Bereich der feindispersen Population im unbestrahlten und bestrahlten Zustand berechnet. R_{\max} entspricht dem Dichtemittel oder Modalwert am feindispersen Verteilungsgipfel.

4.2.3 Ergebnisse der ASAXS-Experimente

Erste Voruntersuchungen an einem im Forschungsreaktor des tschechischen Kernforschungsinstitutes UJV Rez bei 306 °C bis auf eine Fluenz von $21 \cdot 10^{18}/\text{cm}^2$ [$E > 0,5$ MeV] bestrahlten RDB-Stahl vom Typ 15Xh2MFAA aus der Skoda-Produktionslinie ergaben einen deutlichen SAXS-Effekt infolge Bestrahlung. Abb. 4.56 zeigt den Verlauf der Streukurve, gemessen bei einer Röntgenenergie von $E = 5,471$ keV. Im Gegensatz zu den SANS-Streukurven ist die Streuintensität für beide Zustände im gesamten Streuvektorbereich unterschiedlich. Die Energieabhängigkeit des Effektes ist in Abb. 4.57 dargestellt. Es gibt einen deutlichen Intensitätspeak in der $V_{K\alpha}$ -Absorptionskante. An der $C_{\Gamma K\alpha}$ - oder $Mn_{K\alpha}$ -Absorptionskante treten keine anormalen Streueffekte auf. Der Abfall zur $Fe_{K\alpha}$ -Kante resultiert aus der Veränderung des mittleren Atomformfaktors der Stahlmatrix und lässt schlussfolgern, dass die Streudichte der Defekte geringer als die der Matrix sein muss. Die genaue Position des Peaks im Verlauf der Energieabhängigkeitskurven an der $V_{K\alpha}$ -Kante, die auf den Valenzzustand und somit auf die Art der für die Unstetigkeit verantwortlichen Streuinhomogenitäten schließen lässt, ist aus den Messungen nicht festzulegen. Immerhin deutet Abb. 4.58 eine bessere Übereinstimmung der Messwerte mit dem Verlauf für eine V-Wertigkeit von 0 (reine V-Ausscheidung) als von +3 (V_4C_3 -Karbidgebung) an.

Dieser Effekt konnte in den ASAXS-Experimenten an den Materialien dieses Vorhabens nicht bestätigt werden. Vielmehr wurde durch Bestrahlung keine Erhöhung, sondern in der Regel eine deutliche Abnahme der SAXS-Intensität festgestellt. Die Abbn. 4.59 – 4.62 veranschaulichen das am Beispiel der Werkstoffe ESW-C, KAB-3, KO-B und AR-W. In diesen

Abbildungen wird die SAXS-Intensität repräsentiert durch die im Streuvektorbereich $0.5 \text{ nm}^{-1} \leq Q \leq 1,0 \text{ nm}^{-1}$ integrierte Intensität. Im Falle der Surveillance-Proben sind im unbestrahlten Zustand die Streubilder stark anisotrop mit „Streak“-Bildung. Im bestrahlten und im ausgeheilten Zustand sind die Anisotropie-Effekte weitestgehend verschwunden (Abb. 4.63).

Der Peak an der $V_{K\alpha}$ -Kante ist sowohl im un- als auch im bestrahlten Zustand vorhanden. An den Surveillance-Proben werden im bestrahlten Zustand ein geringer Anstieg der Integralintensität in der Nähe der Mn-Kante beobachtet (Abbn. 4.61, 4.62). Die Ausheilglühung bei $475 \text{ }^\circ\text{C}$ führt zu einem leichten Rückgang der SAXS-Intensität, verändert aber nicht den Verlauf der Energieabhängigkeit.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass mit SAXS in dem an den existierenden Anlagen möglichen Röntgenenergiebereich Strahlendefekte an den RDB-Stählen in der Regel nicht detektiert werden können.

4.3 Ausheilverhalten

Das Ausheilverhalten wird mit dem Ausheilkoeffizienten

$$R^x = \frac{X_{\text{irr}} - X_{\text{ann}}}{X_{\text{irr}} - X_o} \quad (4.1)$$

beschrieben. X bedeutet einen Eigenschaftswert, auf den das Ausheilverhalten bezogen wird und die Indizes 'irr', 'ann' und 'o' stehen für die entsprechenden Werte nach Bestrahlung, nach dem Ausheilglühen und im unbestrahlten Ausgangszustand. Als Bezugseigenschaft werden die Übergangstemperatur (R^{TT}), die Zugfestigkeit (R^{R}), die Vickershärte HV10 (R^{HV}) und der Volumenanteil an nanodispersen Strukturdefekten, der aus den SANS-Untersuchungen bestimmt worden ist (R^{MS}), benutzt. Die erhaltenen Werte der Ausheilkoeffizienten sind in den Tabellen 4.9 – 4.12 zusammengefasst und in den Abbn. 4.64 – 4.67 veranschaulicht. Die Werte beziehen sich, wenn nicht anders vermerkt, auf eine 100- oder 150-stündige Glühung bei $475 \text{ }^\circ\text{C}$. Ein Ausheilkoeffizient von 1,0 bedeutet vollständige Wiederherstellung der Ausgangseigenschaften. Gelegentlich werden Ausheilkoeffizienten > 1 ermittelt, was in jedem Fall auf eine irreversible Zustandsänderungen hindeutet. Bei kleinen Eigenschaftsänderungen infolge der vorangegangenen Bestrahlung sind R^x -Werte > 1 unter Umständen auch nur durch die hohen Eigenschaftsstreuungen des Materials bedingt.

Für den auf die Mikrostruktur bezogenen R^{MS} -Wert wird vereinzelt $R^{\text{MS}} = 0$ ermittelt. In diesen Fällen wird der feindisperse Verteilungspeak, der im bestrahlten Zustand gefunden wird, verbreitert und zu höheren Radien verschoben. $R^{\text{MS}} = 0$ bedeutet dann nicht, dass der bestrahlte Zustand völlig erhalten bleibt und keine Strukturänderung durch die Ausheilglühung stattfinden würde, sondern ist hier eher eine formale Folge der R^x -Definition nach Gl. (4.1), die in diesen Fällen versagt.

Im Allgemeinen führt die Ausheilbehandlung zu einem beträchtlichen Abbau des Bestrahlungseffektes. Das Ausmaß der Erholung ist unterschiedlich für die verschiedenen Bezugsgrößen und Stähle bzw. Chargen. Knapp 50 % der bestimmten R^x -Werte liegen bei $\geq 0,9$ und weisen somit auf eine mindestens nahezu völlige Erholung hin. Ein Ausheilkoeffizient $< 0,5$ wird nur in 12 % der ermittelten Werte ausgewiesen, im Falle der Erholung der Übergangstemperaturverschiebung nur in einem einzigen Fall.

Tabelle 4.9: Ausheilkoefizient R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für Werkstoffe aus dem Bestrahlungsprogramm Rheinsberg I

Werkstoff	Code	Fluenz in 10^{18} cm^{-2} [E>0,5 MeV]	R^{TT}	R^R	R^{HV}	R^{MS}
15Kh2MFA	R1	43,6	0,65		1,79	
	R2	80,7	1,07		0,83	
	R3	45,7	0,85		0,71	> 1
	D25	127,6	0,66		0,34	0,88
15Kh2NMFAA	R16	46,0	0,35		0,76	
	R17	72,7	0,98		0,49	0,72
10KhGMFAA	R19	65,1	0,92		0,68	0,92

Tabelle 4.10: Ausheilkoefizient R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für Werkstoffe aus dem Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II

Werkstoff	Code	Fluenz in 10^{18} cm^{-2} [E>0,5 MeV]	R^{TT}	R^R	R^{HV}	R^{MS}
15Kh2MFA	KAB-0 -3,7,8	71	0,92	0,87	0,87	0,53 0,87
		52	0,70		0,97	
		70,0	0,93	-	0,83	
	-2 -10	139		0,8		
		3,0	0,89	0,46		
	13,6	0,59	0,74			
Sv10KhMFT	KAB-W	92,2			0,93	0,88
15Kh2MFA Versuchsschmelze	ESW-A -B -C -D	3,0			0,36	
		3,2			0,33	
		2,8			0,62	
		3,1			0,30	
A553 B cl. 1	JRQ	10,3		0,98		
76,9			0,97			
139,4			0,99			
A508 cl. 3	JFL	9,9		0,80		
		71,8		0,88		
		121,5		0,92		0,98

Tabelle 4.11: Ausheilkoefizient R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für Surveillance-Proben

Werkstoff	Code	Fluenz in 10^{18} cm^{-2} [E>0,5 MeV]	R^{TT}	R^R	R^{HV}	R^{MS}
15Kh2MFA	PA1-B	146	0,68	0,63	0,70	0,35
	RO-B	62	0,89		0,87	0,72
	KO-B	480	0,92		0,88	1,00
Sv10KhMFT	PA1-W	170			0,85	0,57
	RO-W	62	0,89		1,00	0,97
	AR-W	630	0,94		0,91	1,00

Tabelle 4.12: Ausheiloeffizient R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für Eisenbasis-Mehrstofflegierungen

Code	Fluenz in 10^{18} cm^{-2} [$E > 0,5 \text{ MeV}$]	R^{TT}	R^R	R^{HV}	R^{MS}
ML-A	10	1,22	1,09	1,03	1,00
	80 ¹⁾	-	-	-	0,96
ML-B	10	0,75	0,74	0,70	0
	80 ¹⁾	-	-	-	0,34
ML-C	10	1,00	1,05	0,96	1,00
ML-D	10	1,03	1,01	1,31	-
ML-E	10	0,90	1,04	0,97	-
ML-F	10	0,81	0,52	0,33	0
ML-G	80 ¹⁾	-	-	0,78	-
ML-H	80 ¹⁾	-	-	0,48	1,00

1) Ausheilen bei 450 °C/10 h

In der Regel gilt:

- Je größer die vorangegangene Fluenz und je stärker der Bestrahlungseffekt, desto vollständiger die Ausheilung.
- Die Strahlenversprödung wird stärker abgebaut als die Strahlenhärtung.

Die mikrostrukturbezogene Ausheilung ist, abgesehen von zwei Werkstoffen aus dem Probensatz der Fe-Basis-Mehrstofflegierungen, hoch und ist konsistent mit dem Erholungsverhalten der mechanischen Parameter.

Ein Zusammenhang des Ausheilverhaltens mit dem Cu- oder P-Gehalt ist aus den Ergebnissen nicht zu erkennen.

5. Modellhafte Beschreibung des Mechanismus der Neutronenversprödung

Das folgende Kapitel enthält einige Modellierungsentwürfe zur Kinetik der Defektbildung, leitet thermodynamische Argumente für die Bildung von Mehrkomponentenclustern ab und untersucht den Einfluss der Strahlendefektbildung auf die Festigkeitseigenschaften. Dazu werden vorzugsweise Modellierungsansätze aus den Arbeiten von Odette und Stoller [ODE 98a,b; 01], [STO 93, 96] verwendet. Sie werden auf typische WWER-Bedingungen übertragen, aber auch vom Ansatz her erweitert, da es sich herausstellte, dass mit unmodifizierten Ansätzen die experimentellen Befunde an den WWER-RDB-Stählen nicht hinreichend konsistent mit den Modellaussagen sind. Die Modelluntersuchungen zur Kinetik der Strahlendefektentwicklung setzen das Modell einer bimodalen Strahlenschädigung infolge der Bildung von Leerstellenclustern und Cu-reichen Ausscheidungen voraus und beruhen auf der sog. Multi-state-Kinetiktheorie, die die Entwicklung des thermodynamischen Systems in den Teilprozessen Keimbildung, Wachstum und Vergrößerung beschreibt. Für das Keimbildungsstadium wird auf die Ergebnisse der molekular-dynamischen Simulation des Kaskadenzustandes zurückgegriffen. Im Sinne der in Abb. 2.1 schematisch gezeigten Entwicklungsphasen bezieht sich die Modellierung somit im Wesentlichen auf die Alterungsphase der strahlenbedingten Gefügeentwicklung. Im Folgenden wird zu diesen Arbeiten nur ein knapper Überblick gegeben. Für ausführlichere Darstellungen wird auf [GOK 02a,b,c] verwiesen.

5.1 Kinetik der Clusterbildung

- Keimbildungsphase

Computersimulationen zeigen die Bildung von Leerstellen- und Zwischengitteratom-clustern [STO 00b], [GAL 93]. Mit zunehmender Bestrahlungstemperatur verändert sich die Überlebensrate von Leerstellen und Zwischengitteratomen, die Cluster bilden.

- Wachstumsphase

Das Clusterwachstum dR/dt wird deterministisch als Nettostrom der Leerstellen im Gleichgewicht zwischen Punktdefektgeneration, -rekombination und -trapping beschrieben. Aus der Grundgleichung der clusterdynamischen Näherung

$$dR/dt = (1/R) (D_v \cdot C_v - D_i C_i - D_v C_R) \quad (5.1)$$

wird durch zusätzliche Berücksichtigung einer elastischen Wechselwirkung ϕ^e zwischen Fe-Matrix und dem Cluster sowie eines vom Clusterwachstum abhängigen Grenzflächenenergieterms σ eine modifizierte Wachstumsgleichung abgeleitet:

$$dR/dt = \frac{1}{RC_\alpha} (D_v \cdot C_v - D_i \cdot C_i - D_v \cdot C_R) - \frac{1}{RC_\alpha^2 k_B \cdot T} (D_v \cdot C_v - D_i \cdot C_i) \left(\frac{2\sigma}{R} + \frac{1}{4\pi R^2} \frac{\delta\phi^e}{\delta R} \right) \quad (5.2)$$

D_v und D_i sind die Diffusionskoeffizienten der Leerstellen und Zwischengitteratome und C_v und C_i deren Atomkonzentration. C_R charakterisiert die Konzentration der aus der Grenzfläche in die Matrix zurückdiffundierenden Leerstellen und wird mit Hilfe der Thomson-Freundlich-Gleichung

$$C_R = C_{ve} \exp\left(\frac{\alpha}{R}\right)$$

aus der thermischen Gleichgewichts-Leerstellenkonzentration C_{ve} und der spezifischen Grenzflächenenergie σ_{Fe-v} der Cluster-Matrix-Grenzfläche

$$\left(\alpha = \frac{2\sigma_{Fe-v} \cdot \Omega_{Fe}}{k_B \cdot T} \right)$$

abgeschätzt. R ist der Radius des Clusters, k_B die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur, t die Zeit, Ω_{Fe} das Atomvolumen von Fe und C_α die Leerstellenkonzentration im Cluster.

Der zeitliche Verlauf der Zwischengitter- bzw. Leerstellenkonzentration folgt aus:

$$C_i(t) = \frac{G_i}{D_i S_i^T} (1 - \exp(-D_i S_i^T \cdot t)) \quad (5.3)$$

$$C_v(t) = \left(\frac{G_v}{\frac{G_i \cdot r}{S_i^T} + D_v \cdot S_v^T} \right) \left\{ 1 - \exp \left[\left(-\frac{G_i r}{S_i^T} + D_v S_v^T \right) t \right] \right\} \quad (5.4)$$

G_i und G_v sind die strahlenbedingte Produktionsrate der Zwischengitteratome und Leerstellen, S_v^T und S_i^T die Stärke der Senken für Punktdefekte und r der Rekombinationskoeffizient.

Zur numerischen Lösung der Gleichungssysteme des Modells ist das Computerprogramm CLUDYN I in VISUAL FORTRAN ausgearbeitet worden.

Die Berechnung des zeitlichen Verlaufes mit den Gleichungen (5.3) und (5.4) ergeben, dass unter typischen WWER-Bestrahlungsbedingungen der stationäre Zustand für die Zwischengitteratome bereits nach < 1 ms und für die Leerstellen innerhalb weniger Minuten erreicht ist. Die Sättigungskonzentration an Zwischengitteratomen ist um das 10^8 -fache kleiner als die der Leerstellen. Beide Werte steigen mit abnehmender Bestrahlungstemperatur und zunehmendem Neutronenfluss. Der typische Verlauf ist in Abb. 5.1 dargestellt. Eine Neutronenflussdichte von $1,0 \cdot 10^8$ dpa s^{-1} entspricht den Bedingungen im Targetkanal des WWER-2 Rheinsberg, $0,3 \cdot 10^8$ dpa s^{-1} ist typisch für Surveillance-Positionen in einem WWER-440-Reaktor mit Vollkern.

Gleichung (5.2) liefert die zeitliche Entwicklung der Clustergröße, die in dem modifizierten Modell einen Sättigungswert erreicht. Seine Größe wächst mit der Bestrahlungstemperatur und sinkt mit der dpa-Rate, wie Tab. 5.1 erkennen lässt. Die Werte sind deutlich kleiner, aber im Größenbereich der experimentellen Ergebnisse.

Tabelle 5.1 Sättigungsradius $R_{sätt}$ in nm für unterschiedliche Bestrahlungstemperaturen T_{irr} und dpa-Raten G_{dpa}

$T_{irr}/^{\circ}C$	$G_{dpa} / 10^9$ dpa/s					
	10	4	2	0,4	0,1	0,05
255	0,55	0,58	0,61			
270			0,69	0,73	0,79	
290					0,95	0,96

- Vergrößerungsphase (Ostwald-Reifung)

Die Wachstumsphase geht in eine Phase des konkurrierenden Wachstums über, deren thermodynamische Triebkraft die Reduktion der Grenzflächenenergie beim Teilchenwachstum ist. Aus den Abschätzungen für die vorausgehenden Phasen folgt, dass die in den Nachbestrahlungsuntersuchungen gemessenen Effekte vor allem durch die Kinetik dieser als Ostwald-Reifung bezeichneten Phase bestimmt werden, während die anderen Phasen lediglich die Ausgangsbedingungen definieren.

Die Zeitentwicklung der Größenverteilungsfunktion $F(R,t)$ wird aus der Kontinuitätsgleichung

$$\frac{\delta F(R,t)}{\delta t} + \frac{\delta \left(\frac{F(R,t)dR}{dt} \right)}{dR} = 0 \quad (5.5)$$

bestimmt. Zur Lösung von (5.5) wird die Lifshitz-Slezov-Näherung [LIF 61] in einer wiederum unter Berücksichtigung der elastischen Wechselwirkung zwischen Cluster und Matrix modifizierten Form verwendet. Daraus werden die folgenden Gleichungen abgeleitet, die numerisch mit einem selbst entwickelten Visual-Fortran-Programm (CLUDYN II) gelöst werden.

$$x^2 \frac{dx}{dt} = \left(\frac{4}{27}\right) \left(1 - \frac{9x^2\phi}{4R_{c0}}\right) \left(\frac{1,5\phi'u}{\phi} + 1\right) \quad (5.6)$$

$$F(R, t) = \frac{\phi(u, \tau)}{R_c(t)} \quad (5.7)$$

$$F(u) = \frac{\delta F}{\delta u} = 0 \quad (5.8)$$

$$x = \frac{R_c}{R_{c0}}, u = \frac{R}{R_c},$$

$$\phi(R, R_{c0}) = \left(\frac{DC_e}{R}\right) \left[\exp\left(\frac{\alpha}{R}\right) + \frac{2\mu \left(\left(\frac{R}{R_0}\right)^3 - 1 \right) C \cdot \theta}{C_\alpha^2 \cdot k_B \cdot T} \right],$$

θ ist ein Koeffizient, der die elastische Wechselwirkung charakterisiert, R_{c0} , R_c und τ sind charakteristische, von den Randbedingungen abhängige Parameter.

Die mit Hilfe der Gleichungen (5.6) – (5.8) erhaltenen Größenverteilungsfunktionen nach einer Bestrahlungszeit von einem Jahr für die Parameter Bestrahlungstemperatur T_{irr} und dpa-Rate sind in Abb. 5.2 wiedergegeben. Es wird grundsätzlich der in den SANS-Experimenten gefundene feindisperse Verteilungspeak nahe einem Cluster-radius von 1 nm gefunden. Mit der Bestrahlungstemperatur verschiebt sich der Modalwert der Größenverteilung zu höheren Radien. Der Einfluss der dpa-Rate ist in dieser Darstellung eher als Fluenzabhängigkeit zu interpretieren, da bei konstanter Bestrahlungszeit die verschiedenen dpa-Raten zu unterschiedlichen Fluenzen führen. In Übereinstimmung mit den Experimenten wächst mit der Fluenz die Peakhöhe, während die Peaklage davon kaum beeinflusst wird. Die mit dem Modell berechnete Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils der Leerstellencluster ist in Abb. 5.3 gezeigt. Die berechneten Volumenanteile sind in der Größenordnung der experimentellen Befunde. Der Einfluss der Bestrahlungstemperatur wird im Modell tendenziell nicht richtig wiedergegeben.

5.2 Kinetik der Bildung kupferreicher Ausscheidungen

Die Cluster-Dynamik-Näherung wurde auch zur Modellierung der Kinetik der Bildung kupferreicher Ausscheidungen benutzt. Unter Vernachlässigung der Diffusion von Kupferatompaares oder höherzahligen Komplexen folgt die Bildung von Kupferausscheidungen einer kinetischen Beziehung der Form [SCH 00]

$$\frac{df}{dt} = W_{(n-1),n}^{(+)} \cdot f(n-1,t) + W_{(n+1),n}^{(-)} f(n+1,t) - W_{n,(n+1)}^{+} \cdot f(n,t) - W_{n,(n-1)}^{(-)} f(n,t) \quad (5.9)$$

$f(n,t)$ ist die Größenverteilungsfunktion der Cluster der Größe n zur Zeit t , n die Anzahl der Cu-Atome im Cluster (= kupferreiche Ausscheidung), $W_{n,n-1}^{(+)}$ ist die Zutrittswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für ein Cu-Atom zu einem Cluster der Größe $(n-1)$ und $W_{n,n-1}^{(-)}$ die entsprechende Ablösewahrscheinlichkeit im Cluster der Größe n . Diese Wahrscheinlichkeiten sind aus den entsprechenden Veränderungen der Gibbs'schen freien Energie ΔG zu berechnen.

$$W_{n,n-1}^{(-)} = W_{n-1,n}^{(+)} \cdot \exp\left(\frac{\Delta G(n) - \Delta G(n-1)}{k_B \cdot T}\right) \quad (5.10)$$

Unter der Annahme einer idealen Lösung, einer Grenzflächenspannung σ zwischen Cu-Cluster und Fe-Matrix und eines bestrahlungsbedingten effektiven Diffusionskoeffizienten D_m^* für Cu in der Fe-Matrix ergibt sich für $W_{n-1,n}^{(+)}$ die Gleichung

$$W_{(n-1),n}^{(+)} = 4\pi D_m \cdot \frac{f_1(t) a_{Cu}^{(m-1)}}{\sqrt[3]{\left(\frac{3\Omega_{Fe} \cdot n}{4\pi}\right)^{m-2}}} \quad (5.11)$$

Der Parameter m wird dabei durch den geschwindigkeitsbestimmenden Mechanismus des Wachstums bestimmt. $m = 0$ bedeutet, dass die Kinetik durch die Grenzflächenreaktion bestimmt wird, für $m = 2$ ist die Gitterdiffusion und für $m = 3$ die Diffusion entlang der Korngrenzen oder des Versetzungsnetzwerkes der geschwindigkeitsbestimmende Prozess.

Zur numerischen Lösung des Gleichungssystems (5.9) unter Beachtung von Gleichungen der Art (5.10) und (5.11) wurde wiederum ein eigenes Computerprogramm CLUDYN III entwickelt. Es nutzt das kommerzielle Programm DO2EAF (NAG Fortran Library Manual), das ein steifes System erster Ordnung über eine variable-order-variable-step-Methode mit Rückwärts-Differentiation integriert. Mit anderen Programmen konnten bei der hohen Anzahl von Gleichungen im Gleichgewichtssystem (5.9) keine stabilen Lösungen erhalten werden.

Das Modell wird an den SANS-Messungen an der Fe-Basis-Mehrstoff-Modellierung ML-B kalibriert. Für diese Legierung mit einem hohen Cu-Gehalt von 0,42 % ist die Bildung kupferreicher Ausscheidungen als Strahlendefekt besonders plausibel. Der Parameter m und der effektive bestrahlungsbedingte Diffusionskoeffizient D_m^* werden dabei zur Modelljustierung benutzt. Abb. 5.4 zeigt den Einfluss von m auf die Größenverteilungsfunktion. Die beste Übereinstimmung wird bei einem Wert von $m = 0,82$ gefunden. Für $m > 0,82$ sind die Defekte zu klein und der Cu-Gehalt in der Matrix ist zu hoch, für $m < 0,82$ sind umgekehrt die Defekte größer als experimentell bestimmt und der Cu-Gehalt in der Matrix ist zu klein. Ein Wert $0 < m < 1$ bedeutet physikalisch, dass die Grenzflächenreaktion mit einer der Diffusionsgeschwindigkeit vergleichbaren Geschwindigkeit abläuft.

Der sich mit diesem Parameter ergebende Entwicklungsablauf ist in den Abbn. 5.5 und 5.6 dargestellt. Der Keimbildungsprozess verläuft sehr rasch und führt zu einer großen Zahl sehr kleiner Ausscheidungen. Im Wachstumsstadium wachsen diese sehr langsam, vornehmlich durch Abnahme des Cu-Gehaltes in der Matrix, wobei die Größenverteilung breiter und das Maximum zu höheren Werten verschoben wird. Eine Vergrößerungsphase tritt im 1-Jahr-

Bestrahlungszeitraum nicht auf. Unterschiedliche Neutronenflussdichten wirken sich auf die Kinetik kaum aus. Letzteres steht im Einklang mit dem Experiment. Den eigentlichen kinetischen Ablauf können die verfügbaren Experimente nicht verifizieren. Vergleicht man die Ergebnisse des Rechenmodells mit dem experimentellen Ergebnis, das an der Modelllegierung ML-A gewonnen wurde, so zeigt sich eine schlechte Übereinstimmung. Da in dieser Cu-freien Legierung (Cu = 0,015 %) die Bildung von kupferreichen Ausscheidungen nicht auftreten kann, ist die Diskrepanz zur Modellrechnung ein indirekter Nachweis für die Brauchbarkeit des Modells.

5.3 Multi-Komponenten-Cluster

APFIM-Untersuchungen zeigen die Existenz von nanodispersen Strahlendefekten, die aus mehreren Komponenten zusammengesetzt sind (= Multi-Komponentencluster) [ODE 98a,b]. Sie enthalten neben Fe unterschiedliche Anteile von Mn, Si, Ni, Cu oder P. Da Leerstellen mit APFIM nicht nachweisbar sind, müssen auch Leerstellen als eine potentielle Komponente betrachtet werden. Die Bildung von Mn-, Si- oder Ni-haltigen Clustern ist aus dem konventionellen thermodynamischen Gleichgewichtsbedingungen nicht verständlich, da die gängigen Anteile dieser Elemente in den RDB-Stählen im Löslichkeitsbereich liegen. Allerdings können die hohen Punktdefektkonzentrationen als Folge der Bestrahlung Entmischungsvorgänge bis hin zur Bildung neuer Phasen induzieren.

Für eine erste Abschätzung der Möglichkeit eines solchen Verhaltens wurde die Keimbildung von Multi-Komponenten-Clustern aus thermodynamischer Sicht untersucht. Die Abschätzung basiert auf einer von Schmelzer und Mitarbeitern (SCH 99) aus der klassischen Gibbs'schen Keimbildungstheorie für binäre Systeme abgeleiteten Näherung.

Nach [SCH 99] definiert eine Funktion f die thermodynamische Bedingung einer Clusterbildung. Clusterbildung tritt nur auf, wenn die Funktion f negativ ist. Die Zusammensetzung der Cluster entspricht dem Minimum oder einem lokalen Minimum (Sattelpunkt) von f .

$$f(X_A^M, X_A^{Cl}, X_B^M, X_B^{Cl}) = X_B^{Cl} \left[\ln(X_B^{Cl}/X_B^M) + \frac{W_{BA}}{k_B} \frac{1}{T} (X_A^{Cl^2} - X_A^{M^2}) \right] + X_A^{Cl} \left[\ln(X_A^{Cl}/X_A^M) + \frac{W_{BA}}{k_B} \frac{1}{T} (X_B^{Cl^2} - X_B^{M^2}) \right] \quad (5.12)$$

W_{BA} ist die Bindungsenergie zwischen den Komponenten A und B; $X_{A,B}^{M,Cl}$ sind die molaren Anteile von A und B in Matrix bzw. Cluster.

Eine Verallgemeinerung für ein mehrkomponentiges System mit i Komponenten führt zu

$$f(X_A^M, X_A^{Cl}, X_B^M, X_B^{Cl}, \dots, X_i^M, X_i^{Cl}) = X_B^{Cl} \left[\ln(X_B^{Cl}/X_B^M) + W_{BA}/k_B \cdot T (X_A^{Cl^2} - X_A^{M^2}) \right] + W_{BC}/k_B T (X_C^{Cl^2} - X_C^{M^2}) + \dots + W_{Bi}/k_B T (X_i^{Cl^2} - X_i^{M^2}) + X_A^M \left[\ln(X_A^{Cl}/X_A^M) + W_{AB}/k_B \cdot T (X_B^{Cl^2} - X_B^{M^2}) \right] + W_{AC}/k_B \cdot T (X_C^{Cl^2} - X_C^{M^2}) + \dots + W_{Ai}/k_B \cdot T (X_i^{Cl^2} - X_i^{M^2}) + \dots \quad (5.13)$$

W_{AB} (= W_{BB}), W_{AC} , ..., W_{Ai} ... $W_{i-1,i}$ sind die Wechselwirkungsenergien zwischen den Atompaaren der Komponenten A-B, B-C usw. Leider sind derartige Parameter in der Literatur nicht oder nur für einzelne Paarungen verfügbar. Als erste Näherung wurde $W_{AB}=W_{AC}=\dots=2T_c \cdot k_B$ benutzt. T_c ist die kritische Temperatur, bei der die Cluster verschwinden. Aus den

Ergebnissen der Ausheilexperimente wurde T_c im Bereich von 400...500 °C festgelegt und die Funktion f für ein 4-Komponentensystem Fe-Mn-Si-Leerstelle bzw. für ein 5-Komponentensystem Fe-Mn-Si-Cr-Leerstelle mit allen Variationen in 1%-Schritten berechnet. Dem 4-Komponentensystem wurde eine Legierungszusammensetzung vom Typ Sv10KhMFT und dem 5-Komponentensystem vom Typ 15Kh2MFA zugrunde gelegt.

Die Modellrechnungen führen zu folgenden Ergebnissen:

- Negative f -Werte treten nur dann auf, wenn in der Umgebung der Multi-Komponenten-Cluster sehr hohe Leerstellenkonzentrationen von mindestens 50 % angenommen werden.
- Es tritt im Allgemeinen kein Sattelpunkt, sondern ein absolutes Minimum auf.
- Die Zusammensetzung der Multi-Komponenten-Cluster ist kaum von der angenommenen kritischen Temperatur im gewählten Bereich abhängig.
- Bei minimalem f liegt die Zusammensetzung für die Legierung Sv10KhMFT im Bereich von Fe = 44-48 At-%, Mn = 7-10 At-%, Si = 8-9 At-%, Leerstellen = 36-46 % und für die Legierung 15Kh2MFA bei Werten von 53-3-2-6(Cr)-31. Die Matrixzusammensetzung um den Cluster hat dann einen Gehalt an Leerstellen von 90...99 %.
- Ein 6-Komponentensystem unter Berücksichtigung von Cu liefert 68 At-% Fe, 2 At-% Mn, 1 At-% Si, 3 At-% Cr, 2 At-% Cu und 24 % Leerstellen. Die umgebende Matrix besteht zu 92 % aus Leerstellen.

Die berechneten Zusammensetzungen liegen dicht an den in APFIM-Untersuchungen [MIL 00, 01] erhaltenen Ergebnissen. Die hohe Leerstellenkonzentration in der Matrix ist nur mit einem Schalenmodell erklärlich. Multi-Komponenten-Cluster erfordern nach dieser Abschätzung eine leerstellenreiche Randzone. Dieses Ergebnis ist konsistent mit molekulardynamischen Simulationsrechnungen.

5.4 Modellierung der Strahlenthärtung

Die Streckgrenzenerhöhung $\Delta R_{p0.2}$ durch Bildung von kupferreichen Ausscheidungen oder Multi-Komponentencluster (Strahlenthärtung) wurde unter Verwendung des Orowan- [KEL 73], Friedel- [STO 93] und Russel-Brown- [RUS 72]-Modells für einige der untersuchten Materialien und Bestrahlungsbedingungen auf der Basis des kinetischen Modells abgeschätzt und mit den experimentellen Werten verglichen.

Das Orowan-Modell setzt harte Teilchen voraus, die unter Bildung von Versetzungsschleifen überwunden werden. Es liefert eine obere Abschätzung der Größe

$$\Delta R_{p0.2} = 3.1 \cdot \frac{G \cdot b}{\beta} \sqrt{N_p \cdot d_p} \quad (5.14)$$

G ist der Gleitmodul ($= [8,81 \cdot 10^4 - 3,1 \text{ T}] \text{ MPa}$), b deren Burgersvektor ($= 0,249 \text{ nm}$), N_p die Anzahldichte und d_p der Durchmesser der Strahlendefekte. β ist Maß für die Barrierenfestigkeit und wird in Übereinstimmung mit [KOJ 91] zu $\beta = 4$ gewählt.

Das Friedel-Modell setzt schwache Versetzungsbarrieren voraus, die eine Art Reibungswiderstand für die Versetzungsbewegung darstellen.

Die Streckgrenzenerhöhung $\Delta R_{P0.2}$ berechnet sich danach zu

$$\Delta R_{P0.2} = 3,1 G \cdot b \cdot d \cdot N_p^{2/3} \cdot 1/\beta \quad (5.15)$$

mit $\beta = 8$ für krz-Metalle.

Das Modell von Russel-Brown wurde zur Deutung der Teilchenhärtung durch Cu-Ausscheidungen in binären Fe-Cu-Legierungen entwickelt und resultiert aus der Differenz des Gleitmoduls in Matrix und Ausscheidung. Es führt auf die Gleichung

$$\Delta R_{P0.2} = 3,1 \left\{ \begin{matrix} f_1 \\ 0,8 \end{matrix} \right\} G \cdot b/L \cdot \left(1 - \frac{E_{ppt}}{E} \right)$$

mit

$$E_{ppt} = \frac{1}{\ln\left(\frac{r_c}{r_o}\right)} \left[\frac{E_{ppt}^\infty}{E^\infty} \cdot \ln\left(\frac{r_{ppt}}{r_o}\right) + \ln\left(\frac{r_c}{r_{ppt}}\right) \right] \quad (5.16)$$

$\frac{E_{ppt}}{E^\infty}$ ist das Verhältnis der Gleitmodule in Ausscheidung und Matrix, $r_o = 2b$, $r_e = (\pi/\rho_n)^{-0,5}$; ρ_n ist die Versetzungsdichte. Der mittlere Abstand L der Ausscheidungen errechnet sich aus dem mittleren Teilchenradius r_{ppt} und dem Volumenanteil c_v zu $L = 1,77 \cdot \frac{r_{ppt}}{\sqrt{c_v}}$.

Die elastischen Konstanten der Strahlendefekte werden nach der Mischregel aus den für die reinen Metalle geltenden Werten berechnet. Die Zusammensetzung der Defekte wird dabei in Übereinstimmung mit den APFIM-Ergebnissen gewählt. Tabelle 5.2 gibt eine Zusammenstellung der nach den 3 Härtungsmodellen berechneten Wert für $\Delta R_{P0.2}$. Zum Vergleich sind die experimentell bestimmten Streckgrenzenänderungen mit aufgeführt. Grundsätzlich liefert das Orowan-Modell erwartungsgemäß zu hohe Werte, während das Friedel-Modell zu niedrige Werte abschätzt. Die Rechnungen mit dem Russel-Brown-Modell liefern teilweise eine dem experimentellen Ergebnis nahekommende Abschätzung. Insgesamt gesehen kann aber auch hier die Übereinstimmung nicht voll befriedigen.

Tabelle 5.2: Vergleich der experimentellen Erhöhung der Streckgrenze $\Delta R_{P0.2}$ mit Modellrechnungen ($\Delta R_{P0.2}$ in MPa)

Werkstoff	Fluenz/ $10^{18} \cdot \text{cm}^{-2}$	Experiment	Rechnung nach		
			Orowan	Friedel	Russel-Brown
ML-A	10	196	195	27	127
	80	256	384	65	250
ML-B	10	212	640	137	383
	80	189	550	98	250
D25	125	167	340	59	150
R19	65	324	510	101	115
JRQ	140	355	580	120	350

6. Bewertung der Ergebnisse

6.1 Beziehungen zwischen den Gefüge- und Eigenschaftsänderungen

TEM-, SANS- und PAS-Untersuchungen weisen klar bestrahlungsbedingte Gefügeänderungen aus. Quantifizierbar durch reproduzierbare Gefügeparameter sind diese Gefügeänderungen jedoch nur mit der SANS-Methode, mit der als charakteristische Erscheinungsform ein Defekttyp im Größenbereich $0 < R \leq 3$ mm bestimmt wird, dessen wesentliche, von Material und den Bestrahlungsbedingungen abhängige Größe seine Anzahldichte bzw. sein Volumenanteil ist. Auf der anderen Seite werden sowohl in den Festigkeits- als auch in den Zähigkeitseigenschaften ein deutlicher Bestrahlungseffekt festgestellt. Es erhebt sich die Frage, ob die mit SANS nachgewiesene Strukturänderung tatsächlich die Änderung der mechanischen Eigenschaften verursacht. In diesem Falle sollte ein Zusammenhang zwischen dem Volumenanteil an nanodispersen Strukturdefekten, die durch Bestrahlung gebildet worden sind, und der Eigenschaftsänderung nachzuweisen sein. In den Abbn. 6.1 – 6.3 sind die Streckgrenzerhöhung $\Delta R_{p0.2}$, die Härteänderung ΔHV_{10} und die Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{48J} in Abhängigkeit von der Änderung des Volumenanteils an nanodispersen Strukturdefekten für alle untersuchten Werkstoffe aufgetragen. Die Messpunkte repräsentieren dabei unterschiedliche Materialtypen, Hersteller, Bestrahlungstemperaturen, Neutronenfluenzen und -flussdichten. In Anbetracht des weiten Parameterfeldes, das darin zusammengefasst ist, ist das breitstreuende Punktfeld nicht überraschend. Es ergibt sich jedoch in jedem Fall eine erkennbare Korrelation (Tab. 6.1), die sich, wenn die Ergebnisse der Modell-Legierungen nicht berücksichtigt werden, durch 2 Geraden, besser durch eine Abhängigkeit von $\sqrt[2]{\Delta C}$ beschreiben lässt. Eine durch den Koordinaten-Nullpunkt gehende Korrelationsgerade beschreibt den Zusammenhang zwischen Streckgrenzen- bzw. Härteänderung und Volumenanteil schlecht.

Bei dieser Betrachtung wird von einer linearen Überlagerung der strahlenbedingten Härtungseffekte mit den bereits im Ausgangszustand vorhandenen ausgegangen. Für ein der vorliegenden Situation entsprechendes Strukturmodell mit Versetzungsbarrieren, die sich in ihrer Stärke, Konzentration und räumlicher Verteilung deutlich unterscheiden, ist eine Überlagerung der Form

$$\sigma = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$$

oder allgemein

$$\sigma^\alpha = \sigma_1^\alpha + \sigma_2^\alpha$$

mit $\frac{1}{2} \leq \alpha \leq \frac{3}{2}$ besser mit experimentellen Ergebnissen und Modellrechnungen verträglich [REP 93].

Tabelle 6.1: Korrelationskoeffizienten R bzw. R² für Korrelationen von Strahlenhärtung und Strahlenversprödung

	$\Delta R_{p0.2}$	$\Delta R_{p0.2}^{korrr}$	ΔHV_{10}	ΔHV_{10}^{korrr}	ΔT_{41J}
lineare Korrelation ¹⁾	0,43	-1,31	0,45	-0,12	0,70
²⁾	0,95	0,94	0,83	0,93	
Korrelation für n=1/2	0,90	0,40	0,70	0,82	0,78

¹⁾ Korrelationsgerade durch Koord.-ursprung ²⁾ freie lineare Korrelation

Für den Fall einer pythagoraischen Überlagerung ($\alpha = \frac{1}{2}$) ergibt sich der Bestrahlungseffekt

$$\Delta R_{p0.2} = \sqrt[3]{R_{p0.2}^2 - R_{p0.2,o}^2} \quad \text{bzw.} \quad (6.1a)$$

$$\Delta HV10 = \sqrt[3]{(HV10)_{irr}^2 - (HV10)_o^2} \quad (6.1b)$$

In den Abbn. 6.4 und 6.5 sind die Messwertpaare $\Delta c - \Delta R_{p0.2}$ bzw. $\Delta c - \Delta HV10$ nach Korrektur mit den Gleichungen (6.1a,b) aufgetragen und die sich dabei ergebenden Korrelationsbeziehungen dargestellt. Die Korrektur liefert kaum bessere Korrelationen, reduziert aber den breiten Streubereich. Eine Korrelation mit $n = 1/3$ oder $n = 1/6$ könnte den Zusammenhang besser abbilden.

Auch bei dieser Betrachtung fallen die Modell-Legierungen deutlich aus der Korrelation heraus. Die Modell-Legierungen zeigen, von der Legierung ML-B abgesehen, bei kleinen Struktureffekten bereits große Eigenschaftsänderungen. Diese Legierungen haben eine ferritische Ausgangsstruktur, die sich von dem bainitischen Gefüge der RDB-Stähle hinsichtlich Versetzungsdichte, Dichte der Klein- und Großwinkelkorngrenzen und dem Gehalt an Partikeln sowie an nanodispersen Strukturdefekten deutlich unterscheiden. Dieser Unterschied zeigt sich bereits im SANS-Effekt des unbestrahlten Effektes, der um etwa eine Größenordnung geringer ist als für die typischen RDB-Strukturen. Abb. 6.6 verdeutlicht das am Beispiel der SANS-Streuquerschnitte der Fe-Basis-Mehrstofflegierung ML-A und des WWER-1000-Schweißwerkstoff R19.

Eine besonders starke Abweichung vom Korrelationsverlauf zeigen auch die beiden Schweißmetalle. Hier wird eine hohe Übergangstemperaturverschiebung gemessen. Beide Chargen haben einen sehr breiten Übergangsbereich, der eigentlich nicht mit dem gleichen Formalismus bewertet werden kann wie die relativ steilen Übergangskurven der anderen Stähle. In diesem Fall sind zusätzliche Mechanismen der Bestrahlungswirkung nicht auszuschließen.

Von diesen Sonderfällen abgesehen, erlaubt der allgemeine Trend die Schlussfolgerung, dass die mit SANS ermittelten Strukturdefekte im Wesentlichen Ursache der strahlenbedingten Eigenschaftsänderungen sind.

Das bestätigen auch die Ergebnisse der Ausheilbehandlungen, in denen durch stufenweises Ausheilen unterschiedliche Anteile an Strukturdefekten erzielt worden sind. Korreliert man diese Anteile mit der Härte im jeweiligen Zustand, so lassen sich gute Korrelationen erkennen. Die Abbn. 6.7 und 6.8 demonstrieren das am Beispiel von Ergebnissen aus den 15Kh2MFA-Stahlchargen KAB und PA1-B sowie den dazugehörigen Schweißchargen KAB-W und PA1-W.

6.2 Einflussfaktoren

6.2.1 Neutronenfluenz und -flussdichte

Der Zusammenhang zwischen dem Volumenanteil der Strahlendefekte und der Neutronenfluenz im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg liefert für alle der untersuchten Werkstoffe qualitativ einen eindeutigen Befund der Art, dass mit wachsender Fluenz der Volumenanteil zunimmt (Abb. 6.9). Die Zunahme ist klar materialabhängig, der Werkstoff JFL vom Typ 508 Cl. 1 begrenzt dabei das Streuband nach unten und JRQ vom Typ A 533 B Cl. 3 nach oben. Mit diesem Streuband wird etwa eine Größenordnung der strukturbezogenen Strahlenempfindlichkeit abgedeckt. Eine tendenzielle gleiche Fluenzabhängigkeit mit ähnlicher Ordnung der Strahlenempfindlichkeit zeigt die Auswertung, wenn als Kriterium die Übergangstemperaturverschiebung ΔT_{48J} (Abb. 6.10) oder, mit stärkerer Streuung, die Härteänderung gewählt wird.

Das Bild wird weniger übersichtlich, wenn wie in Abb. 6.11 dargestellt, alle untersuchten Werkstoffe in die Betrachtung einbezogen werden. Eine eingehendere Analyse zeigt jedoch, dass die Fluenzabhängigkeit auf verschiedene Grundmuster zurückgeführt werden kann, deren Erscheinungsform vom Cu-Gehalt des Stahles abhängig ist. Stähle bzw. Fe-Legierungen mit einem Cu-Gehalt $\leq 0.12\%$ lassen sich näherungsweise mit einer linearen Proportionalität $\Delta c \sim \phi$ beschreiben. Für Stähle mit einem mittleren Cu-Gehalt zwischen $0,18 \dots 0,22\%$ bei WWER-RDB-Stahl, beim ASTM-Stahl A 533 B Cl. 3, Code JRQ bereits bei $0,15\%$ Cu ist die Abhängigkeit formal besser mit $\sqrt[3]{\phi}$ anzunähern. Die Fe-Basis-Legierung ML-B mit $0,42\%$ Cu zeigt eine starke Defektbildung bei einer Fluenz von $10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$], die bis $80 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ kaum weiter ansteigt und etwa einer Proportionalität $\Delta c \sim \sqrt[6]{\phi}$ folgt.

Ein Einfluss der Neutronenflussdichte kann nicht nachgewiesen werden. Unterschiedliche Neutronenflussdichten ergeben sich zum Beispiel zum einem im Vergleich zwischen den Ergebnissen der Surveillance-Proben RO-W und AR-W oder RO-B und KO-B oder der Modell-Legierungen ML-A und ML-B, bei denen jeweils die Bestrahlungen in WWER-440-Reaktoren mit voll- oder reduziertem Kern vorgenommen worden sind, und zum anderen im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg durch Vergleich von Target- und Surveillance-Kanalproben. In jedem Fall liegen hierbei nicht nur Flussdichte-, sondern vor allem auch Fluenzunterschiede vor. Da sich die Ergebnisse unabhängig von der vorliegenden Flussdichte in den gleichen Trend der Fluenzabhängigkeit einordnen lassen, ist die Annahme eines Flussdichteinflusses eher unwahrscheinlich.

6.2.2 Legierungszusammensetzung

Im russischen Regelwerk wird die Zusammensetzung, wie im Abschnitt 2.1 (s. Tab. 2-1) dargestellt, an den Cu- und P-Gehalt festgemacht und mit dem chemischen Faktor

$$A_F^{\text{St}} = 800 (c_P + 0,07 c_{\text{Cu}}) \quad (6.2)$$

beschrieben. Die Ergebnisse des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg sind in dieser Weise unter Berücksichtigung von Gleichung (2.1) mit $n = 1/3$ und unter Korrektur der von der Standardtemperatur $T^{\text{St}} = 270 \text{ }^\circ\text{C}$ abweichenden Bestrahlungstemperatur T_F gemäß

$$A_F = A_F^{\text{St}} + K (T^{\text{St}} - T_F) \quad (6.3)$$

ausgewertet worden. A_F ist der für die Bestrahlungstemperatur gültige Wert, wenn A_F^{St} die sich aus (6.2) ergebende Größe des chemischen Faktors ist. K ist ein Materialkoeffizient, der gleich $0,2$ für Grund- und $0,4$ für Schweißwerkstoff gesetzt wird. Das Ergebnis der Auswertung ist in Abb. 6.12 gezeigt. Die gestrichelte Linie gibt den Verlauf nach Gl. (6.2) wieder. Sie liefert eine Trendlinie, die den Einfluss von Kupfer und Phosphor wenigstens für die WWER-440-Stähle tendenziell richtig andeutet. Sie kann aber nicht wirklich die Strahlenversprödungsempfindlichkeit quantitativ wiedergeben.

Um aus den Ergebnissen mit ihrem weiten Bereich der Parametervariation die Abhängigkeit der gefügebezogenen Strahlenempfindlichkeit von der Zusammensetzung erkennen zu können, wird ein Zusammenhang der Form

$$\Delta c = A^{\text{MS}} \cdot \phi^n \quad (6.4)$$

zugrunde gelegt. A^{MS} ist der gefügebezogene Koeffizient der Strahlenempfindlichkeit. Für den Parameter n wird die in 6.2.1 beschriebene Abhängigkeit vom Cu-Gehalt benutzt. Soweit für einige Werkstoffe Ergebnisse nach unterschiedlichen Fluenzen vorlagen, ist A^{MS} als Mittelwert der Einzelbeobachtungen berechnet worden. Die auf diese Weise ermittelten Volumenanteile an feindispersen Strahlendefekten nach einer Fluenz von $10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ und nach $100 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] sind in den Abbn. 6.13 und 6.14 in Abhängigkeit vom Cu-Gehalt wiedergegeben. Der Fluenzbereich charakterisiert genähert den Bereich zwischen den ersten Einsatzjahren bis zur Mitte der Projektlebenszeit eines WWER-440-Reaktors. In einer ersten Näherung kann eine einfache Proportionalität zwischen dem Volumenanteil an Strahlendefekten und dem Cu-Gehalt angenommen werden. Der Kupfereinfluss hängt dabei vom Legierungstyp ab. Er ist am höchsten bei den Ni-haltigen Legierungen (JRQ, R16, R17) und deutlich geringer bei den nickelfreien oder -armen WWER-440-RDB-Grund- und Schweißwerkstoffen. Insbesondere der V-haltige WWER-RDB-Stahl 15Kh2MFA hat eine bessere „Cu-Verträglichkeit“. Es bleibt aber ein weiter Streubereich, der vor allem im Gebiet der typischen Cu-Gehalte der WWER-440-RDB-Stähle von 0,09 – 0,13 % Cu liegt. Nur teilweise sind die Ergebnisse der Fe-Basis-Mehrstofflegierungen in die Grundtendenz einzuordnen. Der hohe Effekt des WWER-1000-Schweißmetalles R19 und der hochreinen ferritischen Modell-Legierung ML-A sind mit dem Cu-Einfluss in keiner Weise in Verbindung zu bringen.

Ein zusätzlicher P-Einfluss auf die Strahlendefektbildung lässt sich aus den SANS-Ergebnissen nicht eindeutig herauskristallisieren. Wertet man die Ergebnisse mit einer Skala gemäß der Gleichung (6.2) unter Bezug auf $(0,07 c_{Cu} + c_P)$ aus, wird der Streubereich eher verbreitert als reduziert. Die Modell-Legierungen, die teilweise sehr hohe P-Gehalte aufweisen (ML-E, -H) besitzen eindeutig keinen P-Einfluss. Auch für die 4 RDB-Stähle vom Typ 15Kh2MFA des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I, deren P-Gehalt sich bei nahezu gleichem Cu-Gehalt immerhin um den Faktor 2,2 unterscheidet, sind die Unterschiede im Volumenanteil der Strahlendefekte darauf nicht zurückzuführen. Immerhin könnte die erhöhte gefügebezogene Strahlenempfindlichkeit der WWER-440-RDB-Schweißmetalle aus den P-Einfluss resultieren, allerdings nicht in der Wichtung nach Gleichung (6.2).

Die Untersuchung des Ni-Einflusses war nicht Gegenstand der Arbeit, da innerhalb der niedrigen Ni-Spezifikationsgrenze der WWER-440-RDB-Stahl kein Ni-Effekt zu erwarten ist. Grundsätzlich scheint die höhere Strahlenempfindlichkeit, die die Ni-haltigen ASTM- und WWER-1000-Stähle bei vergleichbaren Cu-Gehalten aufweisen, auf einen Ni-Einfluss hinzuweisen. Ein einfacher additiver Einfluss scheint den Ni-Effekt nicht beschreiben zu können. Die Bewertung der SANS-Ergebnisse auf einer Skala $(c_{Ni} + 10c_{Cu} + 100c_P)$, wie in Abb. 6.15 gezeigt, liefert zwar einen Trendhinweis und beseitigt z.T. Unterschiede zwischen den Stahltypen, kann aber in keiner Weise die besonders hohen Effekte bei den Legierungen ML-A, R19, JRQ und ML-B oder die niedrige Empfindlichkeit der Legierung ML-H und ML-E erklären.

6.2.3 Einfluss der Bestrahlungstemperatur

Bis auf die Bestrahlungen der Werkstoffe TA-1 und -2 sind die Bestrahlungen entweder auf den Bestrahlungspositionen des WWER-440 oder des WWER-2 vorgenommen worden, die sich im Hinblick auf die Kühlwassertemperatur an den Bestrahlungspositionen um $\leq 15 \text{ }^\circ\text{C}$ unterscheiden. Da Messungen der Temperatur an den Bestrahlungsproben im WWER-440-Surveillance-Programm ebenso wie im Bestrahlungsexperiment Rheinsberg fehlten oder nur unzureichend realisiert waren, ist eine belastbare Bewertung der jeweiligen Bestrahlungstemperatur nicht möglich. Im Rahmen der erläuterten Abhängigkeiten lassen sich aber keine systematischen Abweichungen herausfiltern, die auf die Temperaturunterschiede zwischen den WWER-440- und WWER-2-Bestrahlungen hinweisen würden. Es wird deshalb eingeschätzt,

dass die gefügebezogenen Ergebnisse aus dem Bestrahlungsprogramm Rheinsberg repräsentativ für WWER-440-Bedingungen sind.

6.2.4 Einfluss des Werkstofftyps

Für die gefügebezogene Strahlenempfindlichkeit bleibt eine Abhängigkeit vom Werkstofftyp, der nicht auf die Fluenz oder den Gehalt an den Elementen Cu, P und/oder Nickel zurückgeführt werden kann.

Offensichtlich ist eine Klassifizierung der Art

- Modell-Legierung
- ASTM-bezogene RDB-Stahlchargen JRQ (JFL)
- WWER-440-RDB-Grund- und Schweißwerkstoffe
- WWER-1000-RDB-Grundwerkstoffe
- WWER-1000-RDB-Schweißwerkstoffcharge R19.

Dabei sind die WWER-440-RDB-Stähle am unempfindlichsten und R19 sowie JRQ am empfindlichsten gegen Strahlendefektbildung. Die Modell-Legierungen zeigen ein sehr wechselhaftes, sich vielfach nicht in das allgemeine Grundmuster einordnendes Verhalten.

Als potentielle Ursachen können für diese Werkstofftyp spezifische Strahlenempfindlichkeit der Gefügetyp des Ausgangsgefüges und der Anteil an karbidbildenden Legierungselementen (Cr, Mo, V) herangezogen werden. Außerdem werden deutliche Unterschiede im Gehalt an feindispersen Strukturdefekten im unbestrahlten Zustand beobachtet. Dabei scheinen sich die Ergebnisse in die Regel einzuordnen, dass mit wachsendem Gehalt an feindispersen Strukturdefekten die Strahlenempfindlichkeit abnimmt. Damit sind beispielsweise die aus der Zusammensetzung nicht erklärbaren Unterschiede der Strahlenempfindlichkeit für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogramms Rheinsberg I in der Tendenz richtig einzuordnen. Auch für die ASTM-Stahlchargen korrespondiert die hohe Strahlenempfindlichkeit mit dem niedrigen feindispersen Strukturdefektanteil im Ausgangszustand. Vom Gefügetyp sind die Modell-Legierungen rein ferritisch, die ASTM-RDB-Stahlchargen zeigen einen körnigen Bainit mit hohem Ferritanteil, während die WWER-440-Stähle stärker zum unteren Bainit hin tendieren. In die Erklärungshypothese fügt sich allerdings nicht ein, dass die deutlichen Gefügeunterschiede zwischen WWER-440-RDB-Schweiß- und -Grundmetall sich nicht ebenso klar auch in einer unterschiedlichen Strahlenempfindlichkeit manifestieren.

In der richtigen Reihenfolge lässt sich die Strahlenempfindlichkeit auch mit dem Parameter „Anteil an karbidbildenden Elementen“ ordnen. Es besteht hier natürlich auch ein enger Zusammenhang zum Gefügetyp.

Grundsätzlich muss man eine vom Werkstofftyp abhängige Strahlenempfindlichkeit akzeptieren, ohne dass dafür gegenwärtig schon der Strukturparameter definiert werden könnte, der diese Abhängigkeit beschreibt.

6.2.5 Ausheilverhalten

Auch im Ausheilverhalten sind werkstoffspezifische Unterschiede festzustellen. Für die WWER-Stähle des Bestrahlungsprogrammes wird in der Regel der bereits oberhalb 300 °C einsetzende Abbau des feindispersen Gefügeanteiles beobachtet, wobei keine oder nahezu keine Verschiebung der Verteilungskurve zu größeren Defektgrößen auftritt. Das ist besonders deutlich in der Größenverteilung der Anzahldichte zu erkennen, wie Abb. 6.16 für das Schweißmetall R19 zeigt. Eine Ausheilbehandlung von 475 °C/150 h reproduziert zu etwa 90 % den Ausgangszustand. Hochbestrahlte Zustände heilen in der Tendenz vollständiger aus. Werkstoffe mit hohem Cu-Gehalt entsprechen diesem Verhalten nicht. Die in diesen Werk-

stoffen erzeugten Strahlendefekte werden erst bei höheren Temperaturen reduziert. Gleichzeitig tritt eine Teilchenvergrößerung ein. Das ist sowohl bei der Modell-Legierung ML-B mit 0,42 % Cu als auch bei der Sonderschmelze ESW-C mit 0,34 % Cu nachweisbar. Für letztere ist die Änderung der Größenverteilungsfunktion in Abb. 6.17 wiedergegeben.

An den beiden hochbestrahlten Surveillance-Proben KO-B und AR-W wird der feindisperse Gefügeanteil mit zunehmender Ausheiltemperatur allmählich abgebaut und vergrößert. Das ist besonders ausgeprägt für die Charge AR-W. Zur Veranschaulichung sind in Abb. 6.18 die relativen Größenverteilungskurven für beide Werkstoffe gezeigt. Das besondere Ausheilverhalten der Chargen ist möglicherweise damit in Verbindung zu bringen, dass in beiden Fällen durch die hohe Neutronenfluenz während der Bestrahlung bereits größere Defekte entstanden sind.

6.3 Vergleich mit Trendgleichungen

Die im Abschnitt 2.1 erwähnte Trendgleichung (2.2) muss als die qualifizierteste Korrelation zur Abschätzung der Charpy-Übergangstemperaturverschiebung betrachtet werden. Sie beruht auf einer umfangreichen Datenbasis aus den Surveillance-Ergebnissen der US-amerikanischen Reaktoren, wendet qualifizierte statistische Methoden an und wichtet die Fit-Parameter auf der Grundlage der gegenwärtig gesicherten Vorstellungen zum Mechanismus der Strahlenversprödung. Es ist naheliegend, das Modell zum Vergleich mit den Ergebnissen dieses Vorhabens heranzuziehen.

Abb. 6.19 veranschaulicht das Ergebnis dieses Vergleiches. Die ASTM-RDB-Stahl-Chargen JRQ und JFL liegen in der Nähe der Modellvorhersage. Für JFL werden zu hohe Werte vorhergesagt. Diese RDB-Stahlcharge besitzt sehr hohe Reinheit und ist untypisch für das in der Datenbank zur Ableitung des Modells verwendete Material. Außerdem sind derartige Abweichungen auch innerhalb der verwendeten Datenbank nicht ungewöhnlich. Auch die Ni-haltigen WWER-1000-RDB-Stähle des Types 15Kh2NMFAA sind mit dem Modell auf einem akzeptablen Niveau konsistent. Die Übereinstimmung mit dem Cr-Mo-V-legierten WWER-440-Stahl vom Typ 15Kh2MFA ist jedoch unbefriedigend. In diesem Fall sagt das Modell eine höhere Versprödung voraus als im Experiment tatsächlich gemessen wird. Das deutet auf eine geringere Versprödungsanfälligkeit dieser Stahlsorte hin. Nicht anwendbar ist das Modell auch zur Vorhersage des Versprödungsverhaltens von rein ferritischen Legierungen, wie die starken Abweichungen im Falle der Modell-Legierungen zeigen. Schließlich sei auf die Abweichung bei der WWER-1000-Schweißmetallcharge R19 hingewiesen. In diesem Fall ist der experimentelle Wert wesentlich größer als der mit dem Modell erwartete. Dieses Ergebnis fällt auch sonst aus allen Vorhersagen deutlich heraus. Da das experimentelle Ergebnis auf völlig unabhängigen Weg (andere Probensätze, bestrahlt in anderen Positionen und Reaktorzyklen) auch von der Materialprüfanstalt Stuttgart im Rahmen eines anderen Vorhabens [FÖH 99] bestätigt worden ist, kann ein experimenteller Fehler ausgeschlossen werden. Das Ergebnis ist insofern besonders beachtenswert, da der Probensatz aus dem Bestand der Surveillance-Proben für ein ukrainisches KKW stammt.

7. Schlussfolgerungen

Bestrahlung erzeugt in bainitischen WWER-RDB-Stählen in ähnlicher Weise wie in ferritischen Eisen-Legierungen oder in den ASTM-bezogenen RDB-Stählen westlicher Provenienz nanodisperse Strukturdefekte mit einem Durchmesser von wenigen Nanometern. Mit Neutronenkleinwinkelstreuung lassen sich diese Defekte eindeutig nachweisen und ihre Größenverteilung bestimmen. Für Fluenzen $\leq 50 \cdot 10^{19}/\text{cm}^2$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] bleiben die Defektgrößen so klein, dass sich Unterschiede der mittleren Teilchengrößen nicht mit hinreichender Sicher-

heit bestimmen lassen. Mit Vorbehalt ermöglichen SANS-Analysen auch die Bestimmung des Volumenanteils oder der Anzahldichte. Der Vorbehalt resultiert aus der Tatsache, dass Zusammensetzung und Struktur der Defekte und somit ihr Streukontrast aus den Untersuchungen nicht bestimmbar sind. Mit Hilfe des A-Verhältnisses lassen sich aber Hinweise auf Unterschiede in der Zusammensetzung oder Struktur gewinnen.

Als weniger geeignet erweist sich die Röntgen-Kleinwinkelstremethode, da der Streukontrast der Strukturdefekte für Röntgenstrahlung zu gering ist. Sie werden deshalb in Anbetracht anderer im Material enthaltener Strukturinhomogenitäten von den Röntgenstrahlen „übersehen“. Die Durchstrahlungsmikroskopie liefert nur punktuell bei günstiger Gefügekonstellation Aussagen über die nanodispersen Strahlenschäden, deren Repräsentativität für den Gesamtwerkstoff nicht zweifelsfrei nachgewiesen werden kann.

Die Zusammenhänge zwischen der Entwicklung der Strukturdefekte und den Parametern der Belastung (Fluenz, Flussdichte, Temperatur) sowie des Materials (Zusammensetzung, Ausgangsgefüge) sind komplex und nicht auf einfache Korrelationsbeziehungen reduzierbar. Das Modell eines monomodalen Mechanismus mit Bildung einer einzigen Art von Strahlendefekten erklärt die experimentellen Befunde nicht. Stattdessen sind (mindestens) 2 Defekttypen anzunehmen, die sich in ihrer Zusammensetzung und – ganz besonders – in ihrer Bildungskinetik deutlich unterscheiden, zwischen denen aber auch fließende Übergänge nicht auszuschließen sind. Der wesentliche Parameter ist dabei der Cu-Gehalt des Stahles. Mit zunehmendem Cu-Gehalt wird vorzugsweise ein sich bereits im Fluenzbereich bis $10 \cdot 10^{18}/\text{cm}^2$ [$E > 0,5$ MeV] bildender Defekttyp dominant. Er wird in Anlehnung an die Literatur als kupferreiche Ausscheidung bezeichnet, obwohl weder aus den Ergebnissen der elektronenmikroskopischen noch der SANS-Untersuchungen auf einen sehr hohen Kupferanteil in den Strukturdefekten geschlossen werden kann. Daneben bildet sich ein zweiter Defekttyp, der mit einem in der Literatur häufig als Matrixdefekt bezeichneten und als Leerstellencluster interpretierten Strukturphänomen korrespondiert.

Der Einfluss von Cu auf die Bildung der Strukturdefekte lässt sich mit einer linearen Korrelation über einen relativ großen Variationsbereich des Cu-Gehaltes annähern (Abb. 6.14)

$$\Delta c = (\alpha \cdot c_{\text{Cu}} - \beta) \quad (7.1)$$

α und β sind Stahltyp abhängige Konstanten. Für die WWER-440-RDB-Grund- und Schweißwerkstoffe ist der Anstieg der Korrelationsgeraden gleich. Ein Cu-Einfluss tritt erst ab einem bestimmten Mindestgehalt an Cu auf. Dieser Schwellwert liegt etwa bei ca. 0,12 % für Grund- und 0,09 % für Schweißwerkstoff. Eine Temperaturabhängigkeit des Cu-Einflusses deutet sich im Untersuchungsbereich nicht an.

Ein Phosphoreinfluss ist nicht nachweisbar. Selbst Legierungen mit stark überhöhten P-Gehalten zeigen keine stärkere Strahlendefektbildung. Der Ni-Einfluss wurde nicht systematisch untersucht, jedoch wurde in einer hoch-Ni-haltigen WWER-1000-Schweißcharge eine hohe Strahlensensibilität festgestellt.

Der wesentliche Belastungsparameter ist die Fluenz. Als geeigneter Fluenzparameter wird dabei der dpa-Wert oder die integrierte Neutronenfluenz für Energien $> 0,5$ MeV betrachtet. Die Fluenzabhängigkeit unterscheidet sich deutlich für die verschiedenen Stahltypen oder -chargen. Das breite Streufeld der Ergebnisse lässt sich näherungsweise ordnen, wenn dem Verhalten das Modell eines bimodalen Mechanismus infolge einer strahlenbeschleunigten und einer strahleninduzierten Defektbildung zugrunde gelegt wird.

In Abb. 7.1 sind die Ergebnisse in dieser Weise geordnet. In RDB-Stählen mit ausreichendem Cu-Gehalt entstehen rasch Cu-haltige Strahlendefekte infolge bestrahlungsbeschleunigter Diffusion und/oder Keimbildung. Bereits nach Neutronenfluenzen $\leq 10 \cdot 10^{18}$ n/cm² [$E > 0,5$

MeV] ist die Defektbildung weitestgehend abgeschlossen. Auf diesen Vorgang hat der Ni-Gehalt Einfluss. Ni-haltige Legierungen zeigen den Sättigungseffekt der Ni-armen, Cu-haltigen Legierungen nicht, oder erst nach hohen (hier nicht erfassten) Fluenzen.

Simultan zur Bildung der Cu-haltigen Ausscheidungen entstehen leerstellenreiche Fremdatomkomplexe, deren Anzahl näherungsweise linear mit der Fluenz wächst. Mit zunehmender Bestrahlungstemperatur nimmt die Anzahldichte dieser Fremdatom-Leerstellen-Cluster ab. In erster Näherung ist die Kinetik nicht vom Ausgangsgefüge abhängig und für WWER-440-Grund- und Schweißwerkstoffe gleich.

Eine einfache Summation von beiden Bildungsmechanismen kann die vorliegenden Ergebnisse nicht voll erklären. So ist die Fluenzabhängigkeit der stark Cu-haltigen Charge KAB für $\phi > 10 \cdot 10^{18}/\text{cm}^2$ deutlich flacher als aus einem simplen Überlagerungsmodell zu folgern wäre. Für die hochbestrahlte, Cu-arme WWER-440-RDB-Surveillancecharge KO-B hingegen würde eine höhere als die gemessene Defektbildung zu erwarten sein.

In grober Näherung ergibt sich die Fluenzabhängigkeit bis zu Fluenzen von $200 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ nach

$$\Delta c = \alpha (c_{\text{Cu}} - \beta) F + \gamma e^{\delta/T_{\text{ir}}} \cdot \phi / 10^{18} \text{ cm}^{-2} \quad (7.2)$$

F ist eine Funktion der Form

$$F = \phi / \phi_{\text{gr}} \text{ für } \phi \leq \phi_{\text{gr}} = 10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2} [E > 0,5 \text{ MeV}] \\ = 1 \quad \text{für } \phi > \phi_{\text{gr}}$$

α , β , γ und δ sind materialabhängige Konstanten.

Die zur Verfügung stehenden experimentellen Daten erlauben nicht die Konstanten mit einer abschätzbaren statistischen Sicherheit zu ermitteln. Die in Tabelle 7.1 angegebenen Daten sind als Richtwerte zu betrachten, mit denen für eine Reihe der Ergebnisse größenordnungsmäßig richtige Abschätzungen erhalten werden.

Tabelle 7.1: Korrelationskonstanten nach Gleichung (7.1) und (7.2)

Materialtyp	α	β	$\gamma/10^{-16}$	δ/K
15Kh2MFA	1,23	0,111	3,94	15043
SV10KhMFT	1,23	0,145	3,94	15043
JRQ, JFL	1,23	0	-	-

In den Größenverteilungskurven lassen sich die beiden Defekttypen nicht unterscheiden. Die Lage des Maximums und die Breite der Größenverteilung sind weder vom Cu-Gehalt noch, zumindest im Fluenzbereich $\leq 100 \cdot 10^{18} \text{ cm}^2$, von der Fluenz abhängig.

Die ermittelten A-Werte, das Ausheilverhalten und die Ergebnisse der PAS-Untersuchungen an den Modell-Legierungen (s. in [CUM 01], [CUM 02]) unterstützen die Annahme eines bimodalen Mechanismus der Strahlenschädigung. Cu-haltige RDB-Stähle haben stets höhere A-Werte. Mit der Fluenz verändern sich die A-Werte. Der Defekttyp 'Leerstellen-Fremdatom-Komplex' wird durch Glühen bei $475 \text{ }^\circ\text{C}/100 \text{ h}$ nahezu vollständig wieder aufgelöst. Für Cu-haltige Defekte ist dies nicht in jedem Fall anzunehmen. Nach Langzeitbestrahlung bis zu hoher Fluenz ist eher, zumindest partiell, eine Vergrößerung der Teilchen festzustellen. Das bedeutet, dass Cu-arme Legierungen sich bei Wiederbestrahlung nach Ausheilung wie bei der Erstbestrahlung verhalten. Für RDB-Werkstoffe mit höherem Cu-Gehalt ist bei Wiederbestrahlung eine verminderte Strahlenanfälligkeit zu erwarten.

Die Gefügeänderungen infolge Bestrahlung sind für die WWER-RDB-Stähle vom gleichen Grundtyp wie die für ASTM-RDB-Stähle. Im Vergleich zu Ni-armen WWER-440-RDB-Stählen zeigen die ASTM-RDB-Stähle nach Bestrahlung bei 255 °C eine wesentlich stärkere Cu-Abhängigkeit und keinen Sättigungseffekt im Fluenzbereich $\leq 150 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$. Die schädliche Wirkung von Cu vermindert sich mit dem Gehalt an karbidbildenden Elementen bzw. mit dem Anteil an feindispersen Karbiden im Ausgangsgefüge. In dieser Form ist ein solcher Befund wahrscheinlich erstmals ausgewiesen worden. Eine Erklärung dafür kann gegenwärtig nicht gegeben werden.

Zwischen den Festigkeits- und Zähigkeitsparametern lassen sich – insbesondere im Hinblick auf deren Änderung bei Bestrahlung – Korrelationen ausweisen.

Die Vickershärte HV10 und die Streckgrenze $R_{p0,2}$ folgen einer Gleichung der Form (Abb. 7.2).

$$R_{p0,2}/\text{MPa} = [3,443 \cdot \text{HV10} - 214,2] \pm 50 \quad (7.3)$$

Die Korrelation kann benutzt werden, um bei fehlenden Zugversuchen Werte der Streckgrenze aus den gemessenen Härtewerten abzuschätzen.

Der Vergleich zwischen der strahlenbedingten Härte- und Streckgrenzenänderung ergibt

$$\Delta R_{p0,2}/\text{MPa} = 3,445 \Delta \text{HV10} \pm 60 \quad (7.4)$$

in Übereinstimmung mit Gl. (7.3), wobei die rein ferritischen Modell-Legierungen schlechter in die Korrelationsbeziehung hineinpassen. Der Anstieg der Korrelationsgeraden stimmt bis auf eine Differenz $< 5 \%$ mit der von Mancuso u.a. (zit. in [ENG 90]) für A533B angegebenen Korrelation überein.

Der Zusammenhang zwischen der Übergangstemperaturverschiebung ΔT_{T48J} und der Streckgrenzen- ($\Delta R_{p0,2}$) bzw. Härteänderung ($\Delta \text{HV} 10$) wird genähert durch

$$\Delta T_{T48J}/\text{K} = 0,53 \cdot \Delta R_{p0,2}/\text{MPa} \pm 25 \quad (7.5)$$

$$\Delta T_{T48J}/\text{K} = 2 \cdot \text{HV10} \pm 30 \quad (7.6)$$

Gleichung (7.5) stimmt gut mit der aus den Gleichungen (7.3) und (7.6) sich ergebenden Korrelation überein. Diese Korrelationen liegen nahe dem Streuband anderer im Schriftgut publizierter Näherungsgleichungen [ODE 83], [LUC 83], [PAV 93], [ENG 90], [GER 02], die sich häufig für Grund- und Schweißwerkstoffe unterscheiden. Der Unterschied ist im Trend uneinheitlich und wird mit dem Umfang der benutzten Datenmenge in der Regel kleiner. Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen diesen Unterschied nicht. Sie liegen stattdessen eher nahe dem Mittelwert der sonst getrennt ausgewiesenen Korrelationen.

Eine stark streuende, aber statistisch signifikante Korrelation (Abb. 7.3) ergibt sich für den Zusammenhang zwischen der bestrahlungsbedingten Streckgrenzen-(oder Härte-)änderung und dem Volumenanteil von Strahlendefekten.

$$\Delta R_{p0,2}/\text{MPa} = 476 \sqrt[2]{\Delta c/\%} \pm 38 \quad (7.7)$$

Eine Abhängigkeit der Potenz 0,5 ist näherungsweise aus der Theorie der Matrixhärtung durch nanodisperse Strukturdefekte zu erwarten.

Das vorhandene Datenmaterial reicht nicht aus, einen potentiellen Einfluss der Legierungszusammensetzung oder der Fluenz auf die Korrelation zu erkennen. Nach dem postuliertem bimodalen Strahlenschädigungsmodell wäre ein derartiger Effekt zu erwarten, wenn den beiden Defektarten eine unterschiedliche Effektivität hinsichtlich ihrer Wirkung auf die Versetzungsbewegung zuzuordnen ist.

Die Annahme einer nichtlinearen Superposition der Härtungswirkung von strahlenunbeeinflussten Gefügephänomenen und von Strahlendefekten bzw. der beiden Strahlendefektarten liefert keine besseren Korrelationen.

Aus den Korrelationen (7.2), (7.5) und (7.7) ergibt sich für Fluenzen bis zu $200 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] eine empirische Beziehung der Fluenzabhängigkeit der Übergangstemperaturverschiebung für WWER-440-Grundwerkstoff der Form

$$\Delta T_{48J} = 252 \sqrt{(1,232 \cdot c_{\text{Cu}}/\% - 0,1454) + 3,94 \cdot 10^{-16} \cdot e^{\frac{15043}{T_{\text{irr}}}} \cdot \phi/10^{18} \text{ cm}^{-2}} \quad (7.8)$$

und für WWER-440-Schweißwerkstoff

$$\Delta T_{48J} = 252 \sqrt{(1,232 \cdot c_{\text{Cu}}/\% - 0,1111) + 3,94 \cdot 10^{-16} \cdot e^{\frac{15043}{T_{\text{irr}}}} \cdot \phi/10^{18} \text{ cm}^{-2}} \quad (7.9)$$

Tabelle 7.2: Vergleich der experimentell bestimmten und der nach Gl. (7.8) und (7.9) berechneten Übergangstemperaturverschiebungen ΔT_{48J}

Code	$\phi/10^{18} \text{ cm}^{-2}$	Cu-Gehalt/%	$\Delta c_I/\%^{1)}$	$\Delta c_{II}/\%^{2)}$	$\Delta T_{\text{ber}}/\text{K}$	$\Delta T_{\text{exp}}/\text{K}$	
R1	44	0,10	0	0,040938	51	13	
R2	81	0,12	0,00244	0,07536	7	32	
R3	46	0,12	0,00244	0,04280	54	47	
D25	128	0,11	0	0,11909	87	76	
KAB	3,5	0,22	0,12564	0,004838	91	-	
	5,2					54	
	70					108	
	139					182	
KAB-W	92	0,19	0,1230	0,085597	115	281	
ESW-B	3,3	0,14	0,02708	$3,07 \cdot 10^{-3}$	44	46	
	C	2,8	0,34	0,27348	$2,605 \cdot 10^{-3}$	132	74
	D	3,1	0,32	0,24884	$2,884 \cdot 10^{-3}$	127	71
RO-B	62	0,14	0,02708	0,026257	58	53	
KO-B	480	0,09	0	0,20328	113	196	
AR-W	630	0,18	0,11066	0,2668	155	280	
RO-W	62			0,026257	94	120	
PA-B	67	0,09	0	0,02837	42	59	
	146			0,06183	63	88	
	228			0,096558	78	103	
PA-W	67	0,08	0	0,02837	42	67	
	146			0,06183	63	81	
	228			0,096558	78	100	

¹⁾ Anteil der Cu-reichen Strahlendefekte (Strahlendefekttyp I)

²⁾ Anteil der leerstellenreichen Fremdatomkomplexe (Strahlendefekttyp II)

Die berechneten Übergangstemperaturverschiebungen sind in Tab. 7.2 mit den experimentellen Werten verglichen. Die Übereinstimmung ist unbefriedigend. Bei niedrigeren Fluenzen ($\phi \leq 100 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$) werden zu hohe und für hohe Fluenzen zu niedrige Werte berechnet. Vor allem die beträchtlichen Verschiebungen, die für die Surveillance-Proben nach Bestrahlung bis zu hoher Fluenz oder für den Schweißwerkstoff KAB-W gemessen wurden, werden damit nicht erfasst. Das zeigt, dass ein einfaches bimodales Modell der additiven Superposition von zwei voneinander unabhängigen Bildungsmechanismen, von denen der eine bei niedrigen Fluenzen Sättigung erreicht und der andere linear von der Neutronenfluenz abhängig ist, die mikrostrukturellen Prozesse nicht ausreichend beschreibt.

Ein verbessertes Modell erfordert die Verbreiterung der Datenbasis. Ein geeigneter Ansatz ist die Einbeziehung von SANS- und – punktuell – APFIM-Untersuchungen in die Versprödungsüberwachungs-Programme der WWER-Reaktoren.

Literaturverzeichnis

- [AHL 92] R. Ahlstrand, M. Valo, Experience of irradiation embrittlement in the Loviisa reactor pressure vessels, *Nuclear Engineering and Design* 137 (1992) 433-436
- [ALE 81] N. N. Aleksenko, A. D. Amayev, I. V. Gorynin, V. A. Nikolaev, *Radiation Damage of Water-Water Reactor Vessel Steel*, Energoizdat, Moscow, 1981
- [AMA 93] A. D. Amaev, A. M. Kryukov, I. L. Vladimir, M. A. Sokolov, Radiation Stability of WWER-440 Vessel Materials, *Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume)*, ASTM STP 1170, L. E. Steele, (Eds.), American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 9-29
- [AMA 96] A. D. Amayev, A. M. Kryukov, V. I. Levit, P. A. Platonov, M. A. Sokolov, Mitigation of Irradiation Embrittlement by Annealing, *Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium*, ASTM STP 1270, D. S. Gelles, R. K. Nanstad, A. S. Kumar, E. A. Little, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 1996, p. 232
- [AMA 99a] A. D. Amaev, D. Yu. Erak, A. M. Kryukov, Recovery of mechanical properties of irradiated WWER-1000 pressure vessel materials, *IWG-LMNPP-99/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation*, Madrid, 1999, p. 106
- [AMA 99b] A. D. Amaev, D. Yu. Erak, A. M. Kryukov, Radiation embrittlement of WWER-1000 pressure vessel materials, *IWG-LMNPP-99/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation*, Madrid, 1999, p. 374
- [BAC 95] D. J. Bacon, A. F. Calder, F. Gao, V. G. Kapinos, S. J. Wooding, Computer Simulation of Defect Production by Displacement Cascades in Metals, *Nucl. Instrum. and Meth. B* 102 (1995) 37
- [BAC 96] D. J. Bacon, in *Computer Simulation on Material Science*, Kluwer Academic, Dordrecht, 1996, pp. 189
- [BAR 95] H.-U. Barz, B. Böhmer, J. Konheiser, I. Stephan, Ermittlung der Neutronendosis von bestrahlten WWER-Reaktordruckbehältermaterialien, *Forschungszentrum Rossendorf, FZR-87*, Juni 1995
- [BEA 86] P. A. Beaven, F. Frisius, R. Kampmann, R. Wagner, Analysis of Defect Microstructures in Irradiated Ferritic Alloy, in „Atomic Transport and Defects in Metals by Neutron Scattering“, C. Junit, W. Petry, D. Richter, T. Springer (eds.), Berlin, 1986, pp. 228
- [BEC 91] F. Becvar, Y. Jiraskova, E. Keilova, J. Kocik, L. Lestak, I. Prochazka, B. Sedlak, M. Sob, Positron annihilation studies of neutron irradiated CrMoV-type pressure vessel steel, *9th Int. Conf. Positron Annihilation*, Szombathely, 1991

- [BOE 95] J. Böhmert, M. Große, H.-W. Viehrig, Abhängigkeit der mechanischen Eigenschaften, des Bestrahlungs- und des Ausheilverhaltens von der Tiefenlage in Schmiedestücken des WWER-Reaktordruckbehälterstahles 15Xh2MFA, FZR-93, Rossendorf, April 1995
- [BOE 99a] J. Böhmert, A. Krzykov, Yu. A. Nikolaev, Yu. Korolev, D. Yu. Erak, S. Gerashenko: Einfluss der Zusammensetzung auf die Strahlenversprödung von Eisenlegierungen, FZR-255, Febr. 1999
- [BOE 99b] J. Böhmert, G. Müller, H.-W. Viehrig, Einfluss von Seigerungen in dickwandigen Teilen aus Druckbehälterstählen auf die Zähigkeitskennwerte, in „Gefüge und Bruch“, Internationale Tagung, Tagungsband, Bochum 1999, Vortrag-Nr. 19
- [BOE 02] J. Böhmert, H. W. Viehrig, A. Ulbricht, Einfluss des Gefüges auf die Neutronenversprödung von Reaktordruckbehälterstählen, 7. Tagung „Gefüge und Bruch“, April 2002, Montanuniversität Leoben
- [BOH 02] B. Böhmer, J. Konheiser, H. Kumpf, K. Noack, P. Valdimirov, Einfluss der Gammastrahlung auf die Schädigung von Druckbehältermaterialien und auf reaktordosimetrische Messungen, Wissenschaftlich-technischer Bericht, Forschungszentrum Rossendorf, FZR-356, Oktober 2002
- [BRA 87] G. Brauer, K. Popp, Neutron Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels: A Challenge to Positron Annihilation and other Methods, Phys. Stat. Sol. (a), 102 (1987) 79
- [BRA 90] G. Brauer, W. Matz, C. Fetzer, Experience with Neutron Irradiated Reactor Pressure Vessel Steels – A Mössbauer Study, Hyperfine Interactions 56 (1990) 1563
- [BRA 91] G. Brauer, L. Liskay, B. Molnar, R. Krause, Microstructural aspects of neutron embrittlement of reactor pressure vessel steels – A view from positron annihilation spectroscopy, Nuc. Eng. Des. 127 (1991) 47-68
- [BRA 93] G. Brauer, F. Eichhorn, F. Frisius, R. Kampmann, Investigation of Neutron Irradiated Soviet Type Reactor Pressure Vessel Steels by Small Angle Neutron Scattering, Effects of Radiation on Materials: 16th International Symposium, ASTM STP 1175, A. S. Kumar, D. S. Gelles, R. K. Nanstad, Eds., ASTM, Philadelphia, 1993
- [BRA 95a] G. Brauer, M. J. Puska, M. Sob, T. Korhonen, Positron Affinity for Precipitates in Reactor Pressure Vessel Steels, Nucl. Eng. Des. 158 (1995) 149
- [BRA 95b] G. Brauer, Positronenannihilationsspektroskopie (PAS), in: Werkstoffanalytische Verfahren, H.J. Hunger (ed.), Leipzig, 1995, S. 524ff
- [BRU 87] M. Brumovsky, Service Life of VVER-Type Reactor Pressure Vessels, Skoda Works, Research Report, Plzen, Czech., ZJE-277, 1987

- [BRU 93a] M. Brumovsky, Lifetime and Reliability of VVER-Type Reactor Pressure Vessel from the Point of View of Materials Properties, *Nucleon* 3-4 (1993) 4
- [BRU 93b] M. Brumovsky, T. Pav, Surveillance of WWER-440C Reactor Pressure Vessel, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume), ASTM STP 1170, L. E. Steele, (Eds.), American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 57-70
- [BRU 95] M. Brumovsky et al., Problems in a standard surveillance programme of WWER-1000 reactor pressure vessels, IWG-LMNPP-95/5, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Espoo, 1995, Vol. II
- [BRU 97] M. Brumovsky, M. Falcnik, M. Kytka, J. Malek, P. Novosad, Comparison of Transition Temperature Shifts from Static and Dynamic Tests, IWG-LMNPP-97/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Vladimir, Russia, September 1997, p. 321
- [BRU 00] M. Brumovsky, O. Erben, P. Novosad, Supplementary Surveillance Program for Reactor Pressure Vessels of VVER-440/V-213 Type Reactors in NPP Dukovany, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 220
- [BRU 02] M. Brumovsky, P. Novosad, M. Kytka, Surveillance Programmes for Reactor Pressure Vessels of VVER-440/V-213C Type Reactors in NPP Dukovany, TWG-LMNPP-01/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Gloucester, UK, 2002, p. 98
- [BUS 90] J. T. Buswell, C. A. English, M. G. Hetherington, W. J. Phythian, G. D. W. Swith, G. M. Worrall, in: "Effects of Radiation on Materials: 14th International Symposium (Vol. II), ASTM STP 1046, ASTM, Philadelphia, PA, 1990, p. 127
- [BUS 93] J. T. Buswell, P. J. E. Bischler, S. T. Feuton, A. E. Ward, Microstructural Developments in Neutron-irradiated Mild Steel Submerged-arc Weld Metal, *J. Nucl. Mater.* 205 (1993) 198
- [BUS 95] J. T. Buswell, W. J. Phythian, R. J. Mc Elroy, S. Dumbill, P. H. N. Ray, J. Mace, R. N. Sinclair, Irradiation-induced microstructural changes, and hardening mechanisms, in model PWR reactor pressure vessel steels, *J. Nucl. Mater.* 225 (1995) 196
- [BUS 99] J. T. Buswell, E. A. Little, R. N. Sinclair, An Analysis of Radiation Effects in Model A533B Pressure Vessel Steels Containing Copper, Phosphorus and Nickel Additions, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., ASTM, West Conshohocken, PA, 1999, p. 30

- [CAR 01] R. G. Carter, N. Sonoda, K. Dohi, J. M. Hyde, C. A. English, W. L. Server, Microstructural characterization of irradiation-induced Cu-enriched cluster in reactor pressure vessel steels, *J. Nucl. Mater.* 298 (2001) 211
- [CAT 00] G. L. Catchen, Dep. of Mechanical and Nuclear Engineering, Penn. State University, USA, persönliche Mitteilung
- [CUM 01] S. E. Cumblidge, G. L. Catchen, A. T. Motta, G. Brauer, J. Böhmert, Effects of Neutron Irradiation and Thermal Annealing on Model Alloys using Positron Annihilation Techniques, *Effects of Radiation on Materials: 20th International Symposium*, ASTM STP 1405, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, T. R. Allen, and A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2001, p. 247
- [CUM 02] S. E. Cumblidge, A. T. Motta, G. L. Catchen, G. Brauer, J. Böhmert, Evidence for neutron-induced metallic preprecipitates in model alloys and pressure vessel weld steel, *J. Nucl. Mater.* 2002, accepted
- [CVI 99] M. Cvitanovic, E. Oreb, V. Mudronja, V. Zado, H. Bezljaj, M. Petkov, J. Gledatchev, St. Radomirski, T. Ribarska, B. Kroes, Boat sampling and inservice inspections of the reactor pressure vessel weld No. 4 at Kozloduy NPP, Unit 1, *Nucl. Eng. Des.* 191 (1999) 293-312
- [DAH 81] W. Dahl, *Stahl der Zukunft – Forderungen und Möglichkeiten*, *Stahl und Eisen*, 101 (1981) 967
- [DAV 97] L. M. Davies, *A Comparison of Western and Eastern Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels*, AMES Report No. 10, European Commission, EUR 17327 EN, Brussels, 1997
- [DRU 90] S. G. Druce, *Application of a United Kingdom Magnox Steel Irradiation Model to the HFIR Pressure Vessel*, *Radiation Effects on Materials: 14th International Symposium*, ASTM STP 1046, Vol. II, N. H. Packan, R. E. Stoller, A. S. Kumar (Eds.), Philadelphia, 1990, pp. 30
- [DUY 92] J. C. Van Duysen, J. Bourgoïn, Ch. Janot, J. M. Penisson, Evolution of the Microstructure of PWR Pressure Vessel Steels from the CHOOZ A Reactor Surveillance Program after Long-Term Irradiation, "Effects of Radiation on Materials: 15th International Symposium", ASTM STP 1125, R. E. Stoller, A. S. Kumar, D. S. Gelles, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1992, pp. 117
- [ELR 87] W. N. McElroy, R. Gold, R. L. Simon, J. H. Roberts, Trend Curve Data Development and Testing, Influence of Radiation on Material Properties: 13th International Symposium, ASTM STP 956, F. A. Garner, C. H. Henager, N. Igata (Eds.), Philadelphia, 1987, pp. 505

- [ENG 90] C. A. English, A. J. Fudge, R. J. McElroy, W. J. Phytian, J. T. Buswell, C. J. Bolton, P. J. H. Heffer, R. B. Jones, T. J. Williams, Approach and Methodology for Condition Assessment of Thermal Reactor Pressure Vessels, IAEA/CSNI Workshop on Safety Assessment of Thermal Reactor Pressure Vessels, Espoo (Finland), Oct. 1990
- [ENG 01] C. A. English, S. R. Ortner, G. G. William, L. Server, S. T. Rosinski, Review of Phosphorus Segregation and Intergranular Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels, Effects of Radiation on Materials: 20th International Symposium, ASTM STP 1405, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, T. R. Allen, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2001, S. 151
- [FAB 93] A. Fabry, E. van Walle, R. Chaonadi, J. P. Wanniju, A. Verstrepen, J. L. Puzzolante, Th. Van Ransbeek, J. Van de Velde, RPV Steel Embrittlement: Damage Modelling and Micromechanics in an Engineering Perspective, IAEA/OECD Specialists Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris, Sept. 1993, IWG-LMNPP 93/03, p. 269
- [FAB 96a] A. Fabry, J. Van de Velde, J. L. Puzzolante, T. Van Ransbeek, A. Verstrepen, E. C. Biemiller, R. G. Carter, T. Petrova, Research to Understand the Embrittlement Behaviour of Yankee/BR3 Surveillance Plate and Other Outlier RPV Steels, Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium, ASTM STP 1270, D. S. Gelles, R. K. Nanstad, A. S. Kumar, E. A. Little, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 1996, p. 138
- [FAB 96b] A. Fabry, E. van Walle, J. van de Velde, R. Chaondi, J. L. Puzzolank, Th. v. Rausbeck, A. Verstrepen, On the Use of the Instrumented Charpy V Impact Signal for Assessment of RPVs Embrittlement, Evaluation Material Properties by Dynamic Testing, ESIS 20 (Ed. by E. van Walle), 1996, Mechanical Engineering Publication, London, pp. 59
- [FAL 93] M. Falcnik, M. Brumovsky, T. Pav, Analysis and Results from Standard Surveillance Programmes of WWER 440/V-213 Reactor Pressure Vessels, IWG-LMNPP 93/03, Spec. Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris 1993, p. 129
- [FAL 95] M. Falcnik, Influence of neutron irradiation on static fracture toughness of WWER reactor pressure vessels, IWG-LMNPP-95/5, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Espoo, 1995, Vol. I
- [FIS 87] S. B. Fisher, J. T. Buswell, A Model for PWR Pressure Vessel Embrittlement, International Journal of Pressure Vessel and Piping, 27 (1987) 91
- [FÖH 99] J. Föhl, T. Weißenberg, Einfluss der Neutronenbestrahlung auf die Werkstoffeigenschaften sowjetischer RDB-Stähle, Abschlussbericht zum Vorhaben 1500892, Staatliche Materialprüfungsanstalt (MPA), Universität Stuttgart, Stuttgart, März 1999

- [FRI 83] F. Frisius, R. Kapmann, P. A. Beaven, R. Wagner, A molecular dynamics study of displacement cascades in α -iron, in: Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys, Vol.1, BNES, London, 1983, p. 171
- [GAL 93] A. F. Galder, D. J. Bacon, A molecular dynamics study of displacement cascades in α -iron, J. Nucl. Mat. 270 (1993) 25
- [GER 95] R. Gerard, Survey of National Regulatory Requirements, AMES Report No. 4, EUR 16305 EN, 1995
- [GER 02] Gerardi, SCK/CEN, persönliche Mitteilung, 2002
- [GHA 87] K. Ghazi-Wakili, U. Zimmermann, J. Brunner, P. Tipping, W. B. Waeber, F. Heinrich, Phys. Stat. Sol. (a) 102 (1987) 153
- [GIL 89] F. Gillemot, P. Trampus, J. Rittinger, Evaluation of WWER-440 Surveillance at Paks NPS, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Third Volume), ASTM STP 1011, L. E. Steele, Ed., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1989, pp. 73-82
- [GIL 93] F. Gillemot, F. Oszwald, P. Trampus, G. Uri, Surveillance Extension Experience at WWER-440 Type Reactors, IWG-LMNPP 93/03, Spec. Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris 1993, p. 179
- [GLA 80] O. Glatter, Determination of Particle-Size Distribution Functions from Small-Angle Scattering Data by Means of the Indirect Transformation Method, J. Appl. Cryst. 13 (1980) 7
- [GOK 00] A. Gokhman, J. Böhmert, A. Ulbricht, Contribution to the Determination of Microstructural Parameters from Small Angle Scattering Experiments at Reactor Pressure Vessel Steels, Wiss.-techn. Berichte, Forschungszentrum Rossendorf, Dresden, FZR-288, Febr. 2000
- [GOK 02a] A. R. Gokhman, J. Böhmert, A. Ulbricht, A Kinetic Study of Cluster Ensemble Evolution under VVER-type Reactor Conditions, in: Nucleation Theory and Applications, J. W. P. Schmelzer, G. Röpke, V. P. Priez-zhev (eds.), Dubna JINR 2002, vol. 14, pp. 313
- [GOK 02b] A. R. Gokhman, J. Böhmert, A. Ulbricht, A Kinetics Study of Vacancy Cluster Evolution under VVER-type Reactor Conditions, Radiation-Effects and Defects in Solids, erscheint demnächst
- [GOK 02c] A. R. Gokhman, J. Böhmert, A. Ulbricht, A Kinetic Study of Copper Precipitates under VVER-type Reactor Condition, Radiation Effects and Defects in Solids, zur Veröffentlichung eingereicht

- [GOR 96] I. V. Gorynin, E. V. Nesterova, V. A. Nikolaev, V. V. Rybin, Microstructure and Mechanical Properties of WWER-440 Reactor Vessel Metal after Service Life Expiration and Recovery Anneal, Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium, ASTM STP 1270, D. S. Gelles, R. K. Nanstad, A. S. Kumar, E. A. Little, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 1996, p. 248
- [GRO 96] M. Große, F. Eichhorn, J. Böhmert, G. Brauer, Characterization of Irradiation-Induced Precipitates by Small Angle X-Ray and Neutron Scattering Experiments, Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium, ASTM STP 1270, David S. Gelles, Randy K. Nanstad, Arvind S. Kumar, and Edward A. Little, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 1996, p. 1123
- [GRO 00] M. Große, A. Gokhman, J. Böhmert, Dependence of the ratio between magnetic and nuclear small angle neutron scattering on the size of the heterogeneities, Nucl. Instr. and Meth. in Phy. Res. B, 160 (2000) 518
- [GUR 97] B. A. Gurovich, O. V. Lavrenchuk, The Structural Changes in Russian Pressure Vessel Weld Metal Induced by Irradiation, Recovery Annealings and Reirradiation, IWG-LMNPP-97/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Vladimir, Russia, September 1997, p. 362
- [GUR 99a] B. A. Gurovich, Y. N. Korolev, E. A. Kuleshova, Y. A. Nikolaev, Y. I. Shtrombakh, Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels due to Mechanisms other than Radiation Hardening, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., West Conshohocken, PA, 1999, p. 271
- [GUR 99b] B. A. Gurovich, E. A. Kuleshova, O. V. Lavrenchuk, K. E. Prikhodko, Ya. I. Shtrombakh, The principal structural changes proceeding in Russian pressure vessel steels as a result of neutron irradiation, recovery annealing and re-irradiation, J. Nucl. Mater. 264 (1999) 333-353
- [GUR 00] B. A. Gurovich, E. A. Kuleshova, Ya. I. Shtrombakh, O. O. Zabusov, E. A. Krasikov, Intergranular and intragranular phosphorus segregation in Russian pressure vessel steels due to neutron irradiation, J. of Nucl. Mater. 279 (2000) 259-272
- [HAU 92] H.-G. Haubold, Röntgenkleinwinkelstreuung an Synchrotronstrahlungsquellen, 3. IFF-Ferienkurs „Synchrotronstrahlung zur Erforschung kondensierter Materie“, ISBN 3-89336-088-3, FZ Jülich (1992), S.
- [HAW 00] J. R. Hawthorne, M. A. Sokolov, W. L. Server, Exploratory Test of 288 °C Radiation Resistance of Two USSR-Produced Reactor Pressure Vessel Steels, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 16

- [HEM 00] A. Hempel, M. Saneyasu, Z. Tang, M. Hasegawa, G. Brauer, F. Plazaola, S. Yamaguchi, F. Kano, A. Kawai, „Effects of Neutron Irradiation on Fe-Cu Model Alloys and RPV Steels Probed by Positron Annihilation and Hardness Measurements“, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, and M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 560
- [HYD 01] J. M. Hyde, D. Ellis, C. A. English, T. J. Williams, Microstructural Evolution in High Nickel Submerged Arc Welds, Effects of Radiation on Materials: 20th International Symposium, ASTM STP 1405, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, T. R. Allen, A. S. Kumar, Eds., ASTM, West Conshohocken, PA, 2000, p. 262
- [ILO 02] R. Ilola, V. Nadutov, M. Valo, H. Hänninen, On irradiation embrittlement and recovery annealing mechanisms of Cr-Mo-V type pressure vessel steels, J. of Nucl. Mater. 302 (2002) 185-192
- [JUM 01] S. Jumel, C. Domain et al., European Contribution to the REVE project : Simulation of Radiation Effects in RPV Steels, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Embrittlement and Mitigation, Gloucester, May 2001, TWG-LMNPP-01/2, pp. 78
- [KAM 99] T. Kamenova, St. Vodenicharov, On the Neutron Induced Embrittlement of WWER 1000 Weld Metal, IWG-LMNPP-99/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Madrid, 1999, p. 344
- [KEL 73] P. M. Kelly, International Metallurgical Review 18 (1973) 31
- [KEN 94] E. A. Kenik, Application of analytical electron microscopy to radiation damage studies, J. Nucl. Mater. 216 (1994) 157
- [KOC 92] J. Kocik, E. Keilova, Radiation Damage Microstructure of Cr-Mo-V-Type Ferritic Steel, Materials Science Forum, Vols. 97-99 (1992) 337-342
- [KOC 00] J. Kocik, E. Keilova, I. Prochazka, J. Cizek, Microstructure of the Neutron Irradiated VVER-type Reactor Pressure Vessel Steels, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 354
- [KOC 02] J. Kocik, E. Keilova, J. Cizek, I. Prochazka, TEM and PAS study of neutron irradiated VVER-type RPV steels, J. Nucl. Mat. 303 (2002) 52-64
- [KOE 91] L. Koester, H. Rauch, E. Scymann, Neutron Scattering Length: A Survey of Experimental Data and Methods, in Atomic Data and Nuclear Data Tables 49 (1991) 65-120
- [KOJ 91] S. Kojima, S. J. Zinkle, H. L. Heinrich, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 982

- [KOR 98] Yu. N. Korolev, A. M. Kryukov, Yu. A. Nikolaev, P. A. Platonov, Ya. I. Shtrombakh, R. Langer, C. Leitz, C. Y. Reig, Assessment of irradiation response of WWER-440 welds using samples taken from Novovoronezh, unit 3 and 4 reactor pressure vessels, Nucl. Eng. Des. 195 (1998) 309-317
- [KOR 00] Yu. N. Korolov, A. Kryukov, Y. Nikolaev, P. Platonov, Y. Shtrombakh, R. Langer, C. Leitz, C. Y. Rieg, V. Nikolaev, The properties of WWER-440 type reactor pressure vessel steels cut out from operated units, Nucl. Eng. Des. 195 (2000) 137-142
- [KOS 79] G. Kosterz, Small-angle scattering and its application to materials science, in: Treatise on Materials Science and Technology, Vol. 15: Neutron Scattering, ed. By G. Kosterz, Academic Press, New York, 1979, pp. 227-289
- [KOU 94] J. Koutsky, J. Kocik, Radiation Damage of Structural Materials, Academia Prague, 1994
- [KRA 97] Ye. A. Krasikov, V. A. Nikolaenko, Lower embrittlement at higher fast neutron fluence and impurities concentration in weld metal of NV NPP-1 RPV: anomaly or natural phenomenon?, IWG-LMNPP-97/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Vladimir, Russia, September 1997, p. 280
- [KRY 93] A. M. Kryukov, E. Klausnitzer, C. Leitz, C.Y. Rieg, Investigation of the Templates cut out of the Kozloduy Unit 2 Reactor Pressure Vessel, IWG-LMNPP 93/03, Spec. Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris, 1993, p. 91
- [KRY 94] A. M. Kryukov, V. I. Levit, P. A. Platonov, On the Mechanisms of the Radiation Embrittlement of VVER-440 Type Pressure Vessel Steel and the Effect of Phosphorus, Proc. of the 5. Deutsch-Russisches Seminar "Komponentensicherheit und Qualitätssicherung", Stuttgart, 1994, pp. 25
- [KRY 96a] A. Kryukov, P. Platonov, Ya. Strombakh, V. Nikolaev, E. Klausnitzer, C. Leitz, C.-Y. Rieg, Investigation of Samples Taken from Kozloduy Unit 2 Reactor Pressure Vessel, Nucl. Engn. Des. 160 (1996) 59
- [KRY 96b] A. M. Kryukov, Investigation of Boat Samples of Novovoronezh 3 and Preliminary Results on Novovoronezh 4, TACIS Nuclear Safety, Project 91-1.1 Reactor Pressure Vessel Embrittlement, Statusbericht, Erlangen, 1996
- [KRY 97] A. M. Kryukov, Basic results of the Russian WWER-1000 surveillance program, Nucl. Eng. Des. 173 (1997) 333-339
- [KRY 98] A. M. Kryukov, Yu. A. Nikolaev, A. V. Nikolaeva, Behavior of mechanical properties of nickel-alloyed reactor pressure vessel steel under neutron irradiation and post-irradiation annealing, Nucl. Eng. Des. 186 (1998) 353-359
- [KRY 00] A. M. Kryukov, Yu. A. Nikolaev, The properties of WWER-1000 type materials obtained on the basis of a surveillance program, Nuc. Eng. Des. 195 (2000) 143-148

- [KUL 02] E. A. Kuleshova, B. A. Gurovich, Ya. I. Shtrombakh, D. Yu. Erak, O. V. Lavrenchuk, Comparison of microstructural features of radiation embrittlement of VVER-440 and VVER-1000 reactor pressure vessel steels, *J. Nucl. Mater.* 300 (2002) 127-140
- [KUP 93a] L. Kupca, P. Beno, S. Cepcek, M. Tomasich, The Results of the Surveillance Specimen Program Performed in the RPVs NPP V-2 in Jaslovske Bohunice, IWG-LMNPP 93/03, Spec. Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris 1993, p. 149
- [KUP 93b] L. Kupca, P. Beno, Analysis of the Results from the Surveillance Specimen Program for Reactor Pressure Vessel of Nuclear Power Plant W-2 in Jaslovske Bohunice, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume), ASTM STP 1170, L. E. Steele, (Eds.), American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 147-160
- [KUP 02] L. Kupca, Surveillance Specimen Programmes Realization Results in Slovak Republic, TWG-LMNPP-01/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Gloucester, UK, 2002, p. 93
- [LEV 99] V. I. Levit, Yu. N. Korolev, Ph. Tipping, R. N. T. Lessa, Empirical Correlation of Observed Three Stages of Fast Neutron Irradiation Hardening and Embrittlement in WVER-440 Pressure Vessel Materials, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, 1999, p. 541
- [LIF 61] I. M. Lifschitz, V. V. Slezov, *J. Phys. Chem. Solids* 19 (1961) 35
- [LOP 89] C. Lopes Gil, A. P. De Lima, N. Ayres de Campos, J. V. Fernandes, G. Kögel, P. Sperr, W. Triftshäuser, D. Pachur, *J. Nucl. Mater.* 161(1989) 1
- [LUC 85] G. E. Lucas, G. R. Odette, P. M. Lombrozo, J. W. Sheckehard, Effects of Composition, Microstructure, and Temperature on Irradiation Hardening of Pressure Vessel Steels, Effects of Radiation on Materials: Twelfth International Symposium, ASTM STP 870, F. A. Garner, J. S. Perrin, Eds. Philadelphia, 1985, pp. 900
- [MAT 97] M. H. Mathon, A. Barbu, F. Dunsteller, F. Maury, N. Lorenzelli, C. H. de Novion, Experimental study and modelling of copper precipitation under electron irradiation in dilute FeCu binary alloys, *J. Nucl. Mater.* 245 (1997) 224
- [MAU 99] G. Maussner, L. Scharf, R. Langer, B. Gurovich, Microstructure alterations in the base material, heat affected zone and weld metal of a 440-VVER-reactor pressure vessel caused by high fluence irradiation during long term operation; material: 15Ch2MFA \approx 0.15 C-2.5 Cr-07 Mo-0.3 V, *Nucl. Eng. Des.* 193 (1999) 359-376

- [MIL 84] M. K. Miller, S. S. Brenner, FIM - Atom Probe Study of Irradiated Pressure Vessel Steels, *Res. Mech.* 10 (1984) 161
- [MIL 89] M. K. Miller, M. G. Hetherington, M. G. Burke, Atom Probe Field-Ion Microscopy: A Technique for Microstructural Characterization of Irradiated Materials on the Atomic Scale, *Met: Trans.* 20A (1989) 2651
- [MIL 92] M. K. Miller, M. G. Burke, An Atom Probe Field Ion Microscopy Study of Neutron-Irradiated Pressure Vessel Steels, *J. Nucl. Mater.* 195 (1992) 68
- [MIL 94] M. K. Miller, R. Jayaram, P. J. Othen, G. Brauer, APFIM characterization of 15Kh2MFA Cr-Mo-V and 15Kh2NMFA Ni-Cr-Mo-V type steels, *Applied Surface Science* 76/77 (1994) 242-247
- [MIL 95] M. K. Miller, R. Jayaram, K. F. Russell, Characterization of Phosphorus Segregation in Neutron-Irradiated Russian Pressure Vessel Steels, *J. Nucl. Mater.* 225 (1995) 215
- [MIL 97] M. K. Miller, K. F. Russell, Atom Probe Characterization of Copper Solubility in the Midland Weld after Neutron Irradiation and Thermal Annealing, *J. Nucl. Mater.* 250 (1997) 223
- [MIL 00] M. K. Miller, K. F. Russell, J. Kocik, E. Keilova, Embrittlement of Low Copper VVER 440 Surveillance Samples Neutron-Irradiated to High Fluences, *J. Nucl. Mater.* 282 (2000) 83-88
- [MIL 01] M. K. Miller, K. F. Russell, J. Kocik, E. Keilova, *Micron* 32 (2001) 749
- [NAN 99] R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar (Eds.), *Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, Section Pressure Vessel Steels – Recovery of Properties by Thermal Annealing*, American Society for Testing and Materials, 1999, pp. 379-452
- [NIK 96] V. A. Nikolaev, Investigation on Novovoronezh 2, Decommissioned Reactor Pressure Vessel (Base Metal), TACIS Nuclear Safety, Project 91-1.1 Reactor Pressure Vessel Embrittlement, Statusbericht, Erlangen, 1996
- [NIK 97b] A. V. Nikolaeva, Yu. A. Nikolaev, Mechanism of the drop in the dependence of yield stress on neutron irradiation dose for low-alloy steel, *Materials Science and Engineering A* 234-236 (1997) 915-917
- [NIK 00a] Yu. A. Nikolaev, A. V. Nikolaeva, Application of the Floating Curve Model for Estimation of Re-Irradiation Embrittlement of VVER-440 RPV Steels, *Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366*, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 460

- [NIK 00b] A. V. Nikolaeva, Y. R. Kevorkyan, Y. A. Nikolaev, Comparison of Observed and Predicted Data on Radiation Induced Grain Boundary Phosphorus Segregation in VVER Type Steels, Effects of Radiation on materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 399
- [NIK 00c] Yu. A. Nikolaev, Radiation Embrittlement of VVER-1000 RPV Steels, Proc. of the Workshop on RPV Life Prediction, Commission of the European Communities, PCP3-ENUKRA(OO)-D4, Madrid, 2000, pp. 35
- [NIK 02] Yu. A. Nikolaev, A. V. Nikolaeva, Ya. I. Shtrombakh, Radiation Embrittlement of Low-Alloy Steels, IWG-LMNPP-01/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Gloucester, UK, 2002, p. 131
- [ODE 83] G. R. Odette, On the dominant Mechanism of Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels, Scripta Metallurgica 17 (1983) 1183
- [ODE 95] G. R. Odette, Radiation Induced Microstructural Evolution in Reactor Pressure Vessel Steels, MRS Soc. Symp. Proc. 373, Pittsburgh, (1995) 137
- [ODE 98a] G. R. Odette, G. E. Lucas, Recent Progress in Understanding Reactor Pressure Vessel Steel Embrittlement, Radiation Effects & Defects in Solids, 144 (1998) 189
- [ODE 98b] G. R. Odette, Modeling Irradiation Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels, in: Neutron Irradiation Effects in Reactor Pressure Vessel Steels and Weldments, M. Davies (Ed.), IAEA-JWG-LMNPP-98/3 Vienna, 1998, pp. 438
- [ODE 01] G. R. Odette, B. D. Wirth, D. J. Bacon, N. M. Ghoniem, Multiscale-Multiphysics Modelling of Radiation-Damaged Materials: Embrittlement of Pressure Vessel Steels, MRS Bulletin, March 2001, 178
- [OSZ 93] F. Oszwald, P. Trampus, Analysis of the Surveillance Results at Paks Nuclear Power Plant, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume), ASTM STP 1170, L. E. Steele, (Eds.), American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 49-56
- [OSZ 95] F. Oszwald et. al., Preliminary results of the surveillance extension programme of NPP Paks, IWG-LMNPP-95/5, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Espoo, 1995, Vol. I
- [OSZ 99] F. Oszwald, Preliminary evaluation of the results from the surveillance specimens for RPV of Paks NPP according to proposal Master curve, IWG-LMNPP-99/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Madrid, 1999, p. 261

- [PAV 93] T. Pav, J. Kocik, E. Keilova, Influence of Neutron Irradiation on the Microstructure and Mechanical Properties of 15Kh2MFA Steel, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume), ASTM STP 1170, L. E. Steele, Ed., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 300-308
- [PAR 96] P. Pareige, M. K. Miller, Characterization of Neutron-Induced Copper-Enriched Clusters in Pressure Vessel Steel Weld: An APFIM Study, Appl. Surface Sc. 94/95 (1996) 370
- [PEL 94] R. Pelli, K. Törrönen, State of the Art Review on Thermal Annealing, AMES-Report No. 2, Espoo, Dec. 1994, EUR 16278 EN
- [PET 96] P. Petrequin, Review of Formulas for Predicting Irradiation Embrittlement of Reactor Vessel Materials, AMES Report 6, Paris, EUR 16455 EN, 1996
- [PHY 92] W. J. Phythian, A. J. E. Foreman, C. A. English, J. T. Buswell, M. Hetherington, K. Roberts, S. Pizzini, The Structure and Hardening Mechanism of Copper Precipitation in Thermally Aged or Irradiated Fe-Cu and Fe-Cu-Ni Model Alloys, in: Effects of Radiation on Materials: 15th International Symposium, ASTM STP 1125, R. E. Stoller, A. S. Kumar, D. S. Gelles, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1992, pp. 131
- [PHY 93] W. J. Phytian, C. A. English, Microstructural evolution in reactor pressure vessel steels, J. Nucl. Mater. 205 (1993) 162
- [PIZ 90] S. Pizzini, K. J. Roberts, W. J. Phythian, C. A. English, G. N. Greaves, A fluorescence EXAFS study of the structure of copper-rich precipitates in Fe-Cu and Fe-Cu-Ni alloys, Phil. Mag. Letters 61 (1990) 223
- [PLA 94] T. Planman, R. Petti, K. Törrönen, Irradiation Embrittlement Mitigation, AMES Report No. 1, EUR 16072 EN, Brussels, 1995
- [PLA 99] P. Platonov, Ya. I. Shtrombakh, A. Kryukov, B. Gurovich, Ju. Korolev, J. Schmidt, Results on research of templates from Kozloduy-1 reactor pressure vessel, Nuclear Engineering and Design 191 (1999) 313-325
- [POK 02] V. V. Pokrovsky, Problem of Accuracy of Radiation Life Calculation for WWER-1000 Reactor Pressure Vessels, NATO Advanced Research Workshop: Scientific Fundamentals for the Lifetime Extension of Reactor Pressure Vessels, Kiev (Ukraine), April 2002, NATO Science Series, in prep.
- [POP 89] K. Popp, H.-P. Schützler, H.-W. Viehrig: Bestrahlungsexperimente zur Untersuchung der Neutronenversprödung von Reaktordruckbehälterstählen, Zentralinstitut für Kernforschung Rossendorf, ZfK-679, Sept. 1989
- [POT 88] J. A. Potton, G. J. Daniell, B. D. Reinford, Particle Size Distributions from SANS Data using the Maximum Entropy Method, J. Appl. Cryst. 21 (1988) 663 and 891

- [POR 82] G. Porod, General Theory, in: "Small Angle X-ray Scattering", O. Glatter, O. Kratky (eds.), London, 1982
- [REP 93] B. Reppich, Particle Strengthening, in: Materials Science and Technology, R. W. Cahn, P. Haase, E. J. Kramer (eds.), Vol. 6: Plastic Deformation and Fracture of Materials, vol. ed.: H. Mugrabi, Weinheim, 1993, pp. 345
- [REV 00] Review of Phosphorus Segregation and Intergranular Embrittlement in Reactor Pressure Vessel Steels (PWRMRP-19): PWR Materials Reliability Project (PWRMRP). EPRI, Palo Alto, CA: 2000, TR-114783
- [ROS 99] S. T. Rosinski, J. R. Hawthorne, G. E. Rochan, Experimental Tests of Irradiation-Anneal-Reirradiation Effects on Mechanical Properties of RPV Plate and Weld Materials, in [NAN 99], p. 388
- [RUS 72] K. C. Russel, L. M. Brown, Acta Met. 20 (1972) 969
- [SCH 99] J. W. P. Schmelzer, J. Schmelzer jr., I. S. Gutzow, Reconciling Gibbs and van der Waals: A New Approach to Nucleation Theory, in: Nucleation Theory and Applications, in: J. W. P. Schmelzer, G. Röpke, V. P. Priezhev (eds.), JINR Dubna, 1999, ch. 8, pp. 237
- [SCH 00] J. Schmelzer, U. Lembke, R. J. Kranold, J. Chem. Phys. 113 (2000) 1268
- [SER 00] W. Server, S. Rosinski, R. Lott, S. Byrne, K. Yoon, Validation of Master Curve Fracture Toughness Methodology for RPV Integrity Assessment (PWR MRP-26) Techn. Report, EPRI, Palo Alto, Dec. 2000
- [SER 01] W. Server, C. English, D. Naiman, S. Rosinski, Charpy Embrittlement Correlations-Status of Combined Mechanistic and Statistical Bases for U. S. RPV Steels (MRP-45), PWR Materials Reliability Program (PWRMRP), Final Report, Palo Alto, USA, May 2001
- [SHA 93] L. C. Shao, Technical Issues and U.S. Nuclear Regulatory Commission's Research Related to the Primary Pressure Boundary, SMIRT-12, K. Kussmaul (Ed.), 1993 Elsevier Sc. Publ. B. V., Amsterdam, Vol. A, Suppl., DIV.F, p. 21
- [SHT 95] Ya., I. Shtrombakh, Yu. Korolev, A. Kryukov, P. Platonov, V. Nikolaev, R. Langer, C. Leitz, C. Y. Reig, Approach and Technique of Operating Reactor Pressure Vessel Material Investigation, IWG-LMNPP-95/5, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Espoo, 1995, Vol. I
- [SHT 96] Ya. I. Shtrombakh, Investigation on Novovoronezh 2, Decommissioned Reactor Pressure Vessel (Weld Metal), TACIS Nuclear Safety, Project 91-1.1 Reactor Pressure Vessel Embrittlement, Statusbericht, Erlangen, 1996
- [SHT 99] Ya. I. Shtrombakh, Examination of VVER-440 RPV Steel Re-irradiation Behavior Using Materials from Operating Units, IWG-LMNPP-99/2, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Madrid, 1999, p. 118

- [SLU 98] V. Slugen, V. Magula, The Microstructural Study of 15Kh2MFA and 15Kh2NMFA Reactor Pressure Vessel Steels Using Positron-Annihilation Spectroscopy, Mössbauer Spectroscopy and Transmission Electron Microscopy, Nucl. Eng. Des. 186 (1998) 323
- [SLU 99a] V. Slugen, Dep. of Nuclear Physics and Technology, Slovak University of Technology Bratislava, persönl. Mitteilung
- [SLU 99b] V. Slugen, D. Segers, P. M. A. de Bakker, E. De Grave, V. Magula, T. Van Hoecke, B. Van Waeyenberge, Annealing behaviour of reactor pressure-vessel steels studied by positron-annihilation spectroscopy, Mössbauer spectroscopy and transmission electron microscopy, J. Nucl. Mater. 274 (1999) 273-286
- [SOK 99] M. A. Sokolov, S. Spooner, G. R. Odette, B. D. Wirth, G. E. Lucas, SANS Study of High-Copper RPV Welds in Irradiated and Annealed Conditions, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., ASTM, West Conshohocken, PA, 1999, p. 333
- [SOK 00] M. A. Sokolov, A. A. Chernobaeva, R. K. Nanstad, Yu. A. Nikolaev, Yu. N. Korolev, Irradiation, Annealing, and Re-irradiation Effects on American and Russian Reactor Pressure Vessel Steels, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 415
- [SOL 90] G. Solt, F. Frisius, W. B. Waeber, W. Bührer, SANS and DENS Study of Irradiation Damage in a Reactor Pressure Vessel Material with a Systematic Variation of Irradiation Dose and Heat Treatment, Effects of Radiation on Materials: 14th International Symposium (Vol. II), ASTM STP 1046, N. H. Packan, R. E. Stoller, A. S. Kumar, Eds., ASTM, Philadelphia, 1999, pp. 154
- [SOL 92] G. Solt, W.B. Waeber, F. Frisius, U. Zimmermann, Radiation Induced Phase Separation in Fe-based Copper Containing Alloys, Materials Science Forum 97-99 (1992) 273
- [STE 75] L. E. Steele, Neutron Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels, Technical Reports Series No. 163, IAEA, Vienna, 1975
- [STE 02] I. Stephan, B. Böhmer: Ergebnisse der Neutronendosimetrie zu dem Bestrahlungsexperiment Rheinsberg, Wissenschaftlich-technischer Bericht, Forschungszentrum Rossendorf, FZR-360, November 2002
- [STE 03] I. Stephan, F. Prokert, A. Scholz, J. Böhmert: Bestimmung der Bestrahlungstemperatur im Bestrahlungsprogramm Rheinsberg II, Wiss.-techn. Bericht, Forschungszentrum Rossendorf, FZR-376, 2003
- [STO 92] R. E. Stoller, NUREG/CR-5859, Oak Ridge National Laboratory, 1992

- [STO 93] R. E. Stoller, The Role of Point Defect Clusters in Reactor Pressure Vessel Embrittlement, 6th International Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors, R. E. Gold, E. P. Simonen, Eds., The Minerals, Metals & Materials Society, 1993, pp. 741
- [STO 96] R. E. Stoller, Pressure Vessel Embrittlement Predictions Based on a Composite Model of Copper Precipitation and Point Defect Clustering, Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium, ASTM STP 1270, D. S. Gelles, R. K. Nanstadt, A. S. Kumar, E. A. Little, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, P. A., 1996, p. 25
- [STO 00a] R. E. Stoller, Evaluation of Neutron Energy Spectrum Effects and RPV Thin-Wall Attenuation Based on Molecular Dynamics Cascade Simulations, Nucl. Eng. Des. 195 (2000) 129
- [STO 00b] R. E. Stoller, The Role of Cascade Energy and Temperature in Primary Defect Formation in Iron, J. Nucl. Mater. 276 (2000) 22
- [TÖR 79] K. Törrönen, Microstructural Parameters and Yielding in a Quenched and Tempered Cr-Mo-V Pressure Vessel Steel, Materials and Processing Technology Publication 22, Technical Research Centre of Finland, Espoo, 1979
- [VAL 93] M. Valo, B. Bärs, R. Ahlstrand, Irradiation Embrittlement of Some 15Kh2MFA Pressure Vessel Steels Under Varying Neutron Fluence Rates, IWG-LMNPP 93/03, Spec. Meeting on Irradiation Embrittlement and Optimization of Annealing, Paris 1993, p. 109
- [VAL 95] M. Valo, R. Ahlstrand, Annealing response of Greifswald Unit-2 material measured with pressure vessel trepan samples, IWG-LMNPP-95/5, Proc. of the IAEA Specialists Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Espoo, 1995, Vol. II
- [VAL 00] M. Valo, A. D. Amaev, R. Ahlstrand, D. A. Chistiakov, E. Krasikov, A. Kryukov, A. M. Morosov, V. A. Nikolaev, P. Platonov, R. Rintamaa, V. V. Rybin, Y. Shtrombakh, K. Wallin, Characterization of the Decommissioned Novovoronezh-1 Pressure Vessel Wall Materials by Through-Wall Trepan, Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium, ASTM STP 1366, M. L. Hamilton, A. S. Kumar, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2000, p. 98
- [VIE 97] H.-W. Viehrig, H.-U. Barz, J. Böhmert, B. Böhmer, Consideration of Neutron Flux Gradients for Sophisticated Evaluation of Irradiation Experiments, presented at the IAEA Specialist's Meeting on Irradiation Effects and Mitigation, Vladimir, Russia, 15-19 September, 1997, IWG-LMNPP-97/2, Vienna 1997, p. 230

- [VIE 00] H.-W. Viehrig, H. Richter: Untersuchungen des Zusammenhanges zwischen bruchmechanischen und mechanisch-technologischen Kennwerten bei bestrahlten Reaktordruckbehälterstählen. Abschlussbericht zum Forschungsvorhaben Reaktorsicherheitsforschung Nr. 1500919, Forschungszentrum Rossendorf, FZR-FWSM, 6/2000
- [VIE 01] H.-W. Viehrig, J. Böhmert, J. Dzugan, H. Richter, Master Curve Evaluation of Irradiated Russian VVER Type Reactor Pressure Vessel Steels, „Effects of Radiation on Materials: 20th International Symposium, ASTM STP 1405”, S. T. Rosinski, M. L. Grossbeck, T. R. Allen, A. A. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, West Conshohocken, PA, 2001, 109
- [VIE 02] H.-W. Viehrig, J. Böhmert, J. Dzugan, Some issues by using the master curve concept, Nucl. Eng. Des. 212 (2002) 115
- [VIS 93] O. M. Vishkarev, Yu. I. Zvezdin, V. K. Shamardin, G. A. Tulyakov, Radiation Embrittlement of Soviet 1000-MW Pressurized Water Reactor Vessel Steel 15Kh2NMFAA, Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume), ASTM STP 1170, L. E. Steele, (Eds.), American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1993, pp. 218-226
- [VOD 99] St. B. Vodenicharov, G. Z. Zlateva, Tz. Z. Kamenova, Microstructure of the NPP Kozloduy Unit 1 Weld 4 Metal, Nucl. Eng. Des. 191 (1999) 327-335
- [WAL 93] J. C. Walmsley, A. Ward, R. Scowen, Atomic Number Contrast Imaging and Microanalysis of Copper Precipitates in Irradiated Ferritic Pressure Vessel Steels, Phil. Mag. Lett. 67, 2 (1993) 131
- [WAL 99] K. Wallin, The master curve method: a new concept for brittle fracture, Int. J. of Materials and Product Technology 14 (1999) 342
- [WAN 99] J. A. Wang, Development of Embrittlement Prediction Models for U.S. Power Reactors and the Impact of the Head-Affected Zone to Thermal Annealing, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, West Conshohocken, P. A., 1999, pp. 525
- [WIL 96] T. J. Williams, W. J. Phythian, Electro Microscopy and Small Angle Neutron Scattering Study of Precipitation in Low Alloy Steel Submerged-ARC-Welds, Effects of Radiation on Materials: 17th International Symposium, ASTM STP 1270, D. S. Gelles, R. K. Nanstad, A. S. Kumar, E. A. Little, Eds., ASTM, 1996, p. 191
- [WIR 99] B. D. Wirth, G. R. Odette, W. A. Pavinich, G. E. Lucas, S. E. Spooner, Small Angle Neutron Scattering Study of Linde 80 RPV Welds, Effects of Radiation on Materials: 18th International Symposium, ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar, Eds., ASTM, West Conshohocken, PA, 1999, p. 102

[WOL 96] H. J. Wollenberger, Point defects, in: Physical Metallurgy, R. W. Cahn, P. Haasen (Eds.), Vol. II, Chap. 19, Fourth edition, North-Holland, 1996, pp. 1708

Verzeichnis der Abkürzungen

ASAXS	Anomal small angle X-ray scattering
ATEM	Analytische Transmissionselektronenmikroskopie
APFIM	Atomsondenfeldionenmikroskopie (atom probe field ion microscopy)
ASME	American Society of Mechanical Engineers
dpa	displacement per atom
EDX	energiedispersive Röntgenspektroskopie
EPRI	Electric Power Research Institute
EXAFS	extended X-ray absorption fine structure
FEG/STEM	Field emission gun scanning transmission electron microscopy
KKW	Kernkraftwerk
LWR	Leichtwasserreaktor
NDT	Nil ductility transition
OPoSAP	Optical positron-sensitive atom probe
PAS	Positronenannihilationsspektroskopie
PKA	primary knock-on atom
RDB	Reaktordruckbehälter
RRC KI	Russian Research Center Kurchatov Institute
SCK/CEN	Studiecentrum voor Kernenergie / Centre D'etude de L'Energie Nucléaire
SANS	Neutronenkleinwinkelstreuung (small angle neutron scattering)
SAXS	Small angle X-ray scattering
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TT	Transitiontemperatur
US NRC	United States Nuclear Regulation Commission
VTR	Virtual Test Reactor
WWER	Wassergekühlter Wasser-moderierter Energiereaktor
ZfK	Zentralinstitut für Kernforschung

Verzeichnis der Abbildungen

- Abb. 2.1: Entwicklungsphasen und Hauptprozesse der strahlenbedingten Gefügemodifikationen in RDB-Stählen
- Abb. 2.2: Mechanismen der Strahlenversprödung
- Abb. 2.3: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{42J} in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Kh2MFA-Surveillance-Proben aus Loviisa-1 und -2 nach [VAL 93]
- Abb. 2.4: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben des KKW Paks nach [GIL 89] und [OSZ 93]
- Abb. 2.5: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben aus dem KKW Bohunice, Block 3 (oben) und 4 (unten)
- Abb. 2.6: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben aus dem KKW Kolskaya-4 (oben) und Armenien-2 (unten) nach [KRU 94]
- Abb. 3.1: Querschnitt des Reaktors WWER-2 Rheinsberg mit Bestrahlungspositionen
- Abb. 3.2: Querschnittssegment des Reaktors WWER-2 Rheinsberg mit Lage der Bestrahlungskanäle
- Abb. 3.3: Probenanordnung (Charpy-V-Proben) und Neutronenfluenzverteilung RH 8/1, Targetkanal 1, Höhenposition 112,25 mm
- Abb. 3.4: Kleinzugprobe
- Abb. 3.5: Strukturfaktor $S(Q)$ für kugelförmige Teilchen
- Abb. 3.6: Größenverteilungsfunktionen
a) Teilchenanzahldichteverteilungen (Log. Normalverteilung) mit den Parametern I: $R_0=0,75$ nm, $\sigma = 0,25$; II: $R_0=e=2,71$ nm, $\sigma = 1,0$
b) resultierende Volumenverteilungsfunktion
- Abb. 3.7: Berechnete differentielle makroskopische Streuquerschnitte für nichtferromagnetische Teilchen entsprechend den Größenverteilungsfunktionen I und II der Abb. 3.6 (Streukontrast $\Delta\eta^2=2,5 \cdot 10^{-7} \text{ nm}^{-4}=(nb_{\text{Fe-magn}})^2$)
- Abb. 3.8: Äquivalente Größenverteilungsfunktionen zur Abb. 3.6 a,b (Ordinate im gleichen Maßstab für beide Verteilungen und Abszisse linear skaliert)
- Abb. 3.9: Q-Abhängigkeit der magnetischen Streuquerschnitte für Teilchen einheitlicher Größe R_i und gleichem Volumengehalt $c = 0,3$ %, berechnet mit einem Streukontrast $\Delta\eta^2 = 2,57 \cdot 10^{-7} \text{ nm}^{-4}$

- Abb. 3.10: Struktur der Mess- und Auswerteprozedur für SANS-Messungen
- Abb. 3.11: Gemessene SANS-Streuwirkungsquerschnitte, a) senkrecht ($\alpha=\pi/2$) und b) parallel ($\alpha=0$) zu einem äußeren Magnetfeld, c) Differenz aus a) und b)
- Abb. 3.12: Bestimmung des inkohärenten SANS-Streuteils
- Abb. 3.13: Kohärente SANS-Querschnitte
a) Gesamtstreuquerschnitt, b) nuklearer Streuquerschnitt,
b) magnetischer Streuquerschnitt
- Abb. 3.14: Volumenverteilungsfunktion von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 3.13
a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen
- Abb. 3.15: Energieabhängigkeit des Realteiles $f'(Z,E)$ der Streulängendichte für Cu, Fe und VC im Energiebereich von 5,2 – 7,3 keV
- Abb. 4.1: Kerbschlagarbeit-Temperatur-Kurven für den RDB-Stahl 15Xh2MFA, Code KAB in verschiedenen Zuständen
- Abb. 4.2: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Stähle des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)
- Abb. 4.3: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben
- Abb. 4.4: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen
- Abb. 4.5: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Stähle des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)
- Abb. 4.6: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben
- Abb. 4.7: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstoff-legierungen
- Abb. 4.8: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)
- Abb. 4.9: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben
- Abb. 4.10: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen
- Abb. 4.11: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J}
- Abb. 4.12: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Härteänderung ΔHV_{10}
- Abb. 4.13: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Änderung der Streckgrenze $\Delta R_{p0.2}$
- Abb. 4.14: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Änderung der Zugfestigkeit ΔR_m

- Abb. 4.15: Ergebnis für Übergangstemperatur TT_{48J} und Härte HV10
- Abb. 4.16: Ergebnisfeld für Übergangstemperatur TT_{48J} und Streckgrenze $R_{p0.2}$
- Abb. 4.17: Ergebnisfeld für Streckgrenze $R_{p0.2}$ und Härte HV10
- Abb. 4.18: Ergebnisfeld für bestrahlungsbedingte Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J} und Härteänderung $\Delta HV10$
- Abb. 4.19: Ergebnisfeld für bestrahlungsbedingte Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J} und Streckgrenzenerhöhung $\Delta R_{p0.2}$
- Abb. 4.20: Gefüge eines Stahles 15Kh2MFA, Surveillance-Proben RO-B
- Abb. 4.21: Gefüge eines Schweißwerkstoffes Sv10KhMFT, Surveillance-Probe RO-W
- Abb. 4.22: TEM-Aufnahme eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-0) mit größeren Karbiden an den Bainitlattengrenzen und feineren Karbiden im Korninneren
- Abb. 4.23: TEM-Aufnahme einer Extraktionsreplika eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-8), Verteilung der größeren Karbide
- Abb. 4.24: Größenverteilung der groben Karbide eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-3)
- Abb. 4.25: Versetzungsstruktur eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB), TEM-Aufnahme
- Abb.4.26a,b: TEM-Aufnahme eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-3) nach Bestrahlung bis $3.1 \cdot 10^{19} / \text{cm}^2$ [$E > 1 \text{ MeV}$], Ferritkorn mit hoher Defektdichte (oben) und niedriger Defektdichte (unten)
- Abb. 4.27: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe AR-W, unbestrahlt
- Abb. 4.28: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe AR-W, bestrahlt (a, b - unterschiedliche Probenausschnitte)
- Abb. 4.29: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe KO-B, unbestrahlt
- Abb.4.30a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe KO-B, bestrahlt (a, b - unterschiedliche Probenausschnitte)
- Abb. 4.31: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe RO-B, ausgeheilt
- Abb.4.32a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe RO-B, bestrahlt (a, b - unterschiedliche Probenausschnitte)
- Abb.4.33a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe PA-B, bestrahlt (a, b - unterschiedliche Probenausschnitte)
- Abb. 4.34: TEM-Aufnahme mit EDX-Spektren der Surveillance-Probe KO-B, bestrahlt, Pfeile weisen auf zu den Spektren gehörige Position

- Abb. 4.35: Kohärender makroskopischer SANS-Querschnitt des Werkstoffs KAB-B, a) nuklear + magnetisch, b) nuklearer, c) magnetischer Streuanteil
- Abb. 4.36: Volumenanteil-Größenverteilungskurve, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.35, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, c) für nicht-ferromagnetische Streudefekte
- Abb. 4.37: A-Verhältnisse für Werkstoff KAB-B, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.35
- Abb. 4.38: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte für den RDB-Stahl 15Kh2MFA, Charge 25, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt
- Abb. 4.39: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.38, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen
- Abb. 4.40: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.38
- Abb. 4.41: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte für den RDB-Stahl 15Kh2NMFAA, Charge R17, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt
- Abb. 4.42: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.41, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen
- Abb. 4.43: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.41
- Abb. 4.44: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte für Schweißwerkstoff 10KhGMFAA, Charge R19, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt
- Abb. 4.45: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.44, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen
- Abb. 4.46: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.44
- Abb. 4.47: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte für den RDB-Stahl A533 B Cl.1, Charge JRQ, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt
- Abb. 4.48: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.47, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nichtferromagnetische Teilchen
- Abb. 4.49: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.47
- Abb. 4.50: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte für den RDB-Stahl A508 Cl. 3, Charge JFL, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

- Abb. 4.51: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.47, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nichtferromagnetische Teilchen
- Abb. 4.52: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4-50
- Abb. 4.53: Volumenanteil-Größenverteilungskurve für nickelfreie (oben) und nickelhaltige (unten) Fe-Basis-Mehrstofflegierungen
- Abb. 4.54: Größenverteilungsfunktion für das Surveillance-Schweißmetall AR-W und RO-W
- Abb. 4.55: Größenverteilungsfunktion für die Surveillance-Probe KO-B
- Abb. 4.56: SAXS-Intensitätsverlauf bei einer Röntgenenergie von 5,471 keV für einen RDB-Stahl 15Kh2MFA (Herst.: Skoda-Werke) im unbestrahlten Zustand und nach einer Bestrahlung mit $\phi = 21 \cdot 10^{18}$ n/cm² [E > 0,5 MeV] bei 306 °C
- Abb. 4.57: Energieabhängigkeit der Differenz der SAXS-Intensität bei Q=0 zwischen dem bestrahlten und unbestrahlten Zustand (Werkstoff und Zustand wie in Abb. 4.56)
- Abb. 4.58: Vergleich der Energieabhängigkeit der SAXS-Streuintensität in der Nähe der $V_{K\alpha}$ -Kante für Vanadium in unterschiedlicher Wertigkeit (Kurve a, Wertigkeit = 0, Kurve v, Wertigkeit = +3) mit der Lage der Messpunkte (Detail aus Abb. 4.57)
- Abb. 4.59: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für den Werkstoff ESW-C
- Abb. 4.60: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für den Werkstoff KAB-3
- Abb. 4.61: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für das Surveillance-Material KO-B
- Abb. 4.62: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für das Surveillance-Material AR-W
- Abb. 4.63: 2-d-SAXS-Streubilder für das Surveillance-Material AR-W
- Abb. 4.64: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I
- Abb. 4.65: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg II
- Abb. 4.66: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Surveillance-Proben
- Abb. 4.67: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen
- Abb. 5.1: Zeitabhängigkeit der Leerstellen- (oben) und Zwischengitteratom-(unten)-Konzentration für unterschiedliche dpa-Raten und Bestrahlungstemperaturen

- Abb. 5.2: Größenverteilungsfunktion für Leerstellencluster nach einer einjährigen Bestrahlungszeit bei unterschiedlichen dpa-Raten und Bestrahlungstemperaturen
- Abb. 5.3: Volumenanteil der Leerstellencluster in Abhängigkeit von der dpa-Rate nach einer 1-jährigen Bestrahlungszeit bei Bestrahlungstemperaturen T_{irr} von 255 °C und 270 °C
- Abb. 5.4: Berechneter Verlauf der Größenverteilung für ML-B nach einer einjährigen Bestrahlung ($\phi = 80 \cdot 10^{18}/\text{cm}^2$, $E > 0,5$ MeV) für unterschiedliche Werte von m
- Abb. 5.5: Berechnete zeitliche Entwicklung der Größenverteilungskurven für ML-B (Flussdichte = $30 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)
- Abb. 5.6: Entwicklung des mittleren Radius R_m , des Volumenanteiles f_{crp} , der Anzahl-dichte N_p und der Kupferkonzentration c_{Cu} nach Modellrechnungen für ML-B (Flussdichte = $30 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
- Abb. 6.1: Korrelation der strahlenbedingten Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}$ mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte
- Abb. 6.2: Korrelation der strahlenbedingten Härteänderung $\Delta HV10$ mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte
- Abb. 6.3: Korrelation von Übergangstemperaturverschiebung ΔT_{48J} und Volumenanteil Δc der Strahlendefekte
- Abb. 6.4: Korrelation der strahlenbedingten Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}^{corr}$ bei nicht-linearer Superposition (berechnet mit Gl. (6.1a) mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte
- Abb. 6.5: Korrelation der strahlenbedingten Härteänderung $\Delta HV10^{corr}$ bei nichtlinearer Superposition (berechnet mit Gl. [6.1b]) mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte
- Abb. 6.6: Vergleich der SANS-Streuquerschnitte einer Fe-Basis-Mehrstofflegierung (ML-A) und eines RDB-Stahles (R19)
- Abb. 6.7: Abhängigkeit der Härte HV10 von der Anzahl-dichte der feindispersen Strukturanteile für das Material KAB-B (oben) und PA-B (unten)
- Abb. 6.8: Abhängigkeit der Härte HV10 von der Anzahl-dichte der feindispersen Strukturanteile für das Material KAB-W (oben) und PA1-W (unten)
- Abb. 6.9: Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte Ergebnisse des Bestrahlungsprogramms Rheinsberg
- Abb. 6.10: Fluenzabhängigkeit der Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{48J} Ergebnisse des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg
- Abb. 6.11: Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte Gesamtergebnis

- Abb. 6.12: Experimentell ermittelte Versprödungsempfindlichkeit A_F in Abhängigkeit vom Gehalt an Phosphor (c_P) und Kupfer (c_{Cu}), gewichtet nach Gleichung (6.2)
- Abb. 6.13: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Cu-Gehalt nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenfluenz von $10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,05 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))
- Abb. 6.14: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Cu-Gehalt nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenfluenz von $100 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))
- Abb. 6.15: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Gehalt an Kupfer, Phosphor und Nickel nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenfluenz von $100 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))
- Abb. 6.16: Volumenverteilungsfunktion D_V und Teilchenanzahlverteilungsfunktion D_N , für den WWER-1000-Schweißwerkstoff R19 nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 10 \text{ h}$)
- Abb. 6.17: Größenverteilungsfunktion D_v , gewichtet mit dem Streukontrast, nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 100 \text{ h}$) für die Charge ESW-C
- Abb. 6.18: Größenverteilungsfunktion D_v , gewichtet mit dem Streukontrast, nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 100 \text{ h}$) für die Chargen KO-B (oben) und AR-W (unten)
- Abb. 6.19: Vergleich der Ergebnisse mit der Versprödungstrendgleichung (2.2) nach [SER 01]
- Abb. 7.1: Einfluss der Neutronenfluenz ($E > 0,5 \text{ MeV}$) auf den Volumenanteil Δc_v der Strahlendefekte
- Abb. 7.2: Korrelation zwischen Streckgrenze $R_{p0.2}$ und Härte HV10
- Abb. 7.3: Zusammenhang zwischen Strahlenhärtung (bezogen auf die Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}$) und dem Volumenanteil Δc_v an Strahlendefekten

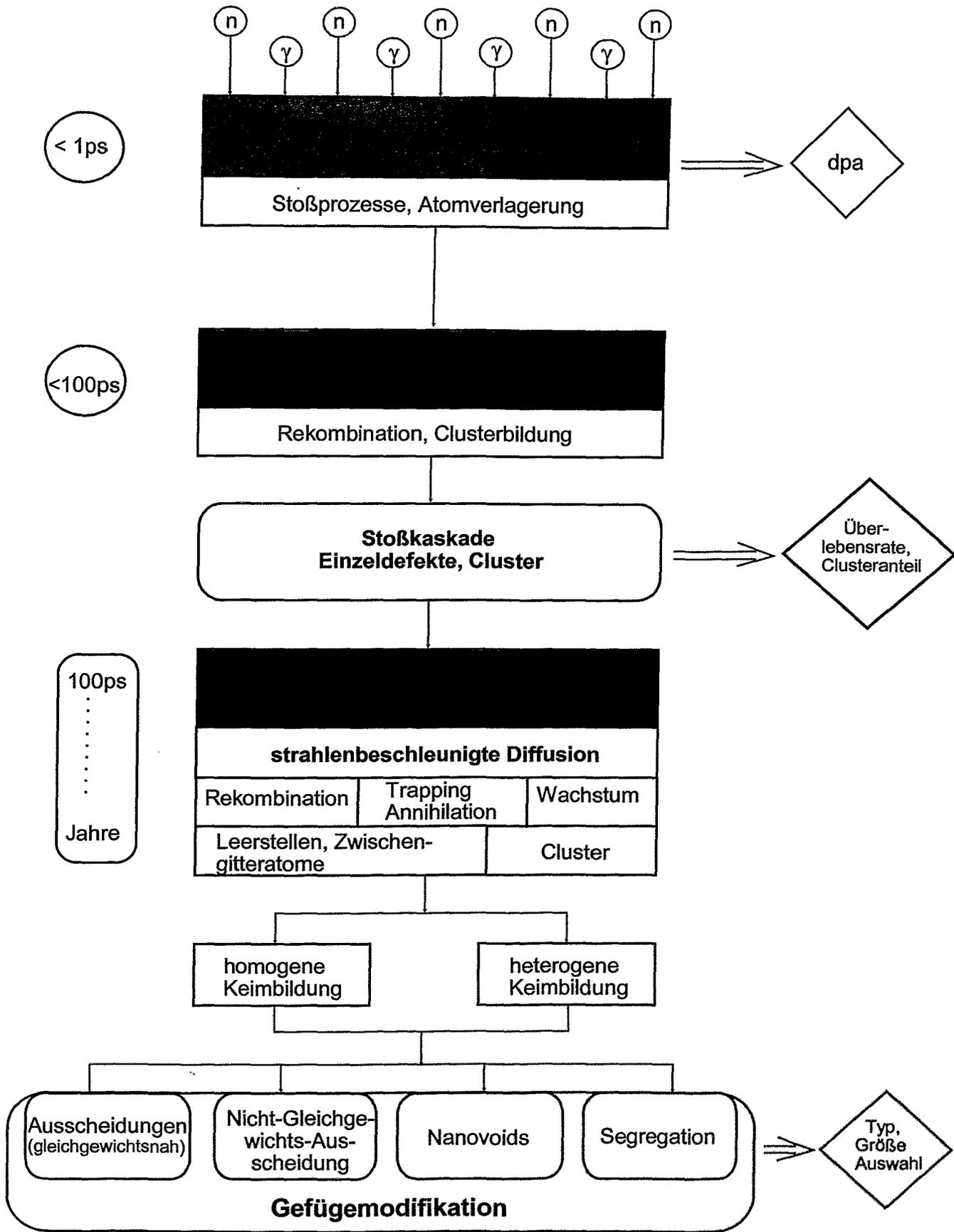


Abb. 2.1: Entwicklungsphasen und Hauptprozesse der strahlenbedingten Gefügemodifikation in RDB-Stählen

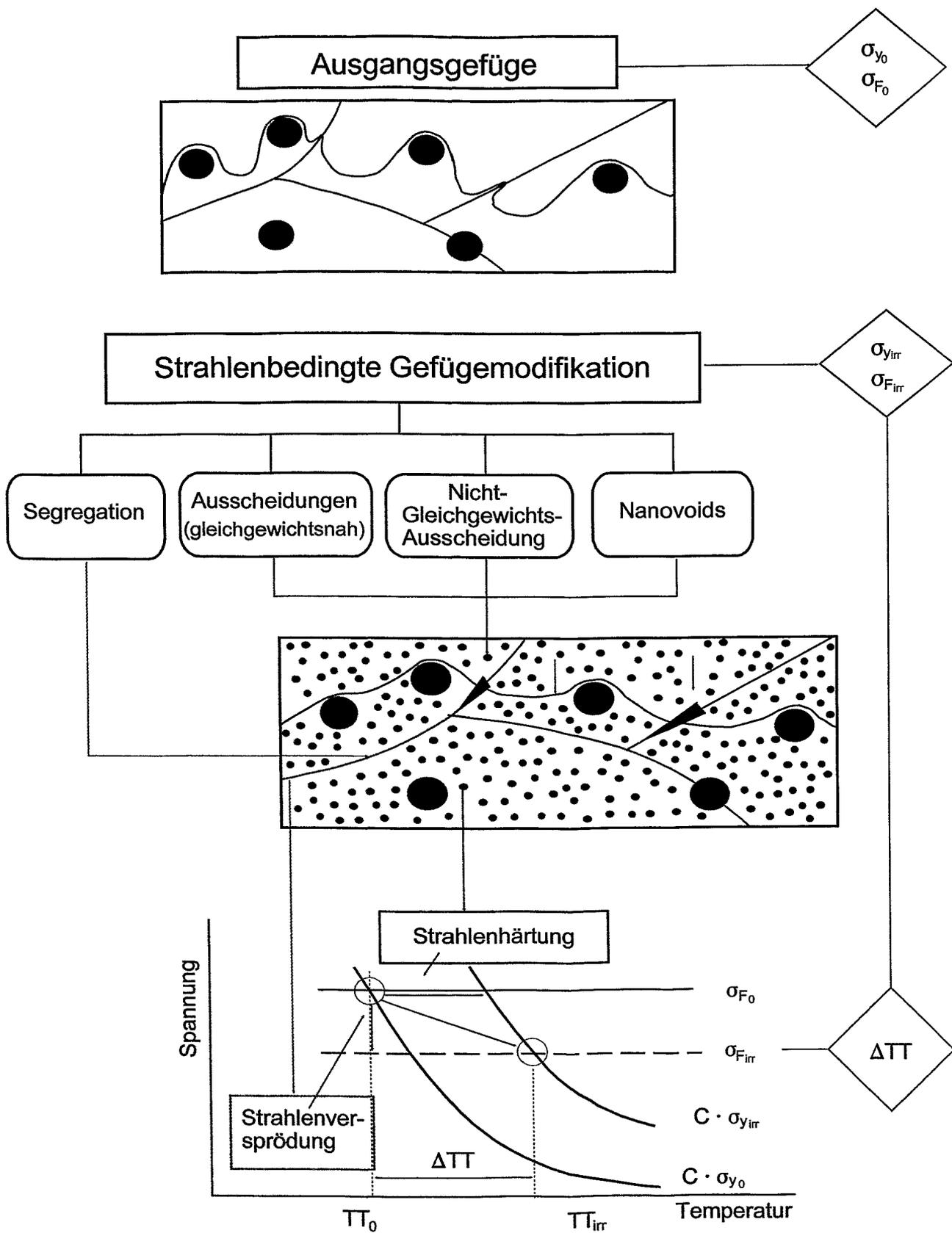


Abb. 2.2: Mechanismen der Strahlenversprödung

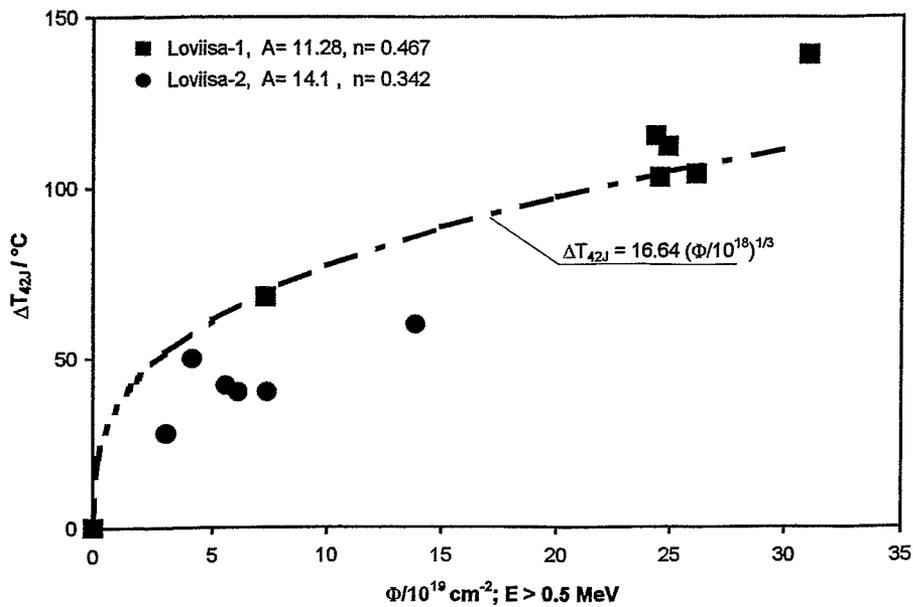


Abb. 2.3: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{42J} in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Kh2MFA-Surveillance-Proben aus Loviisa-1 und -2 nach [VAL 93]

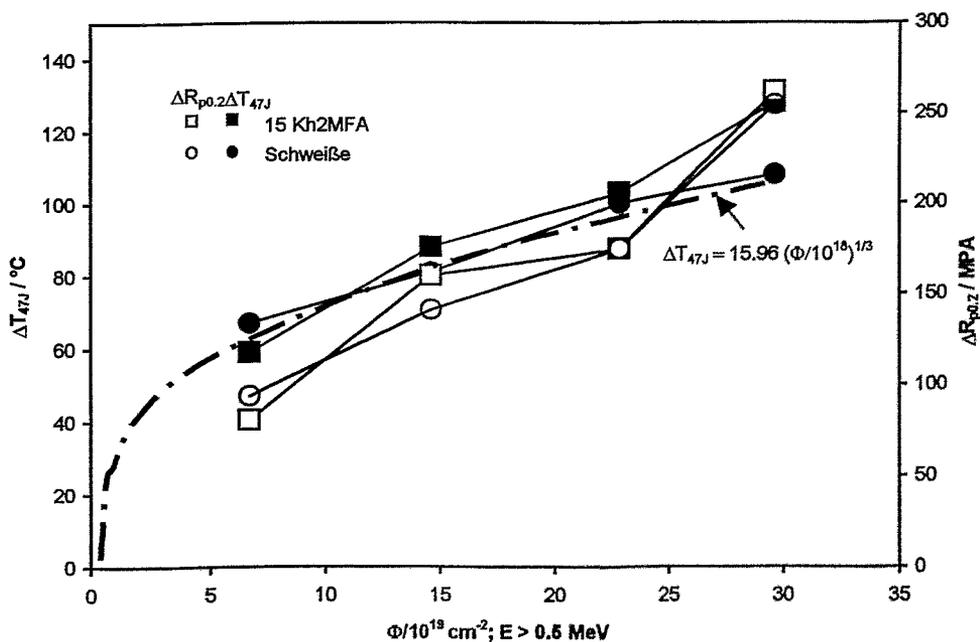


Abb. 2.4: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben des KKW Paks nach [GIL 89] und [OSZ 93]

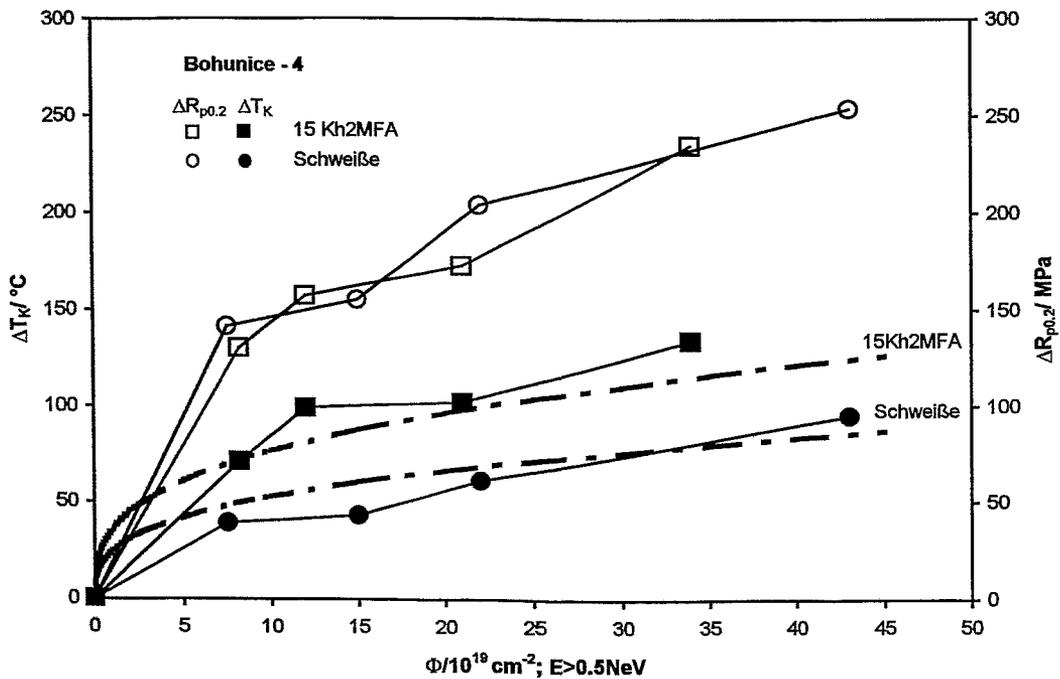
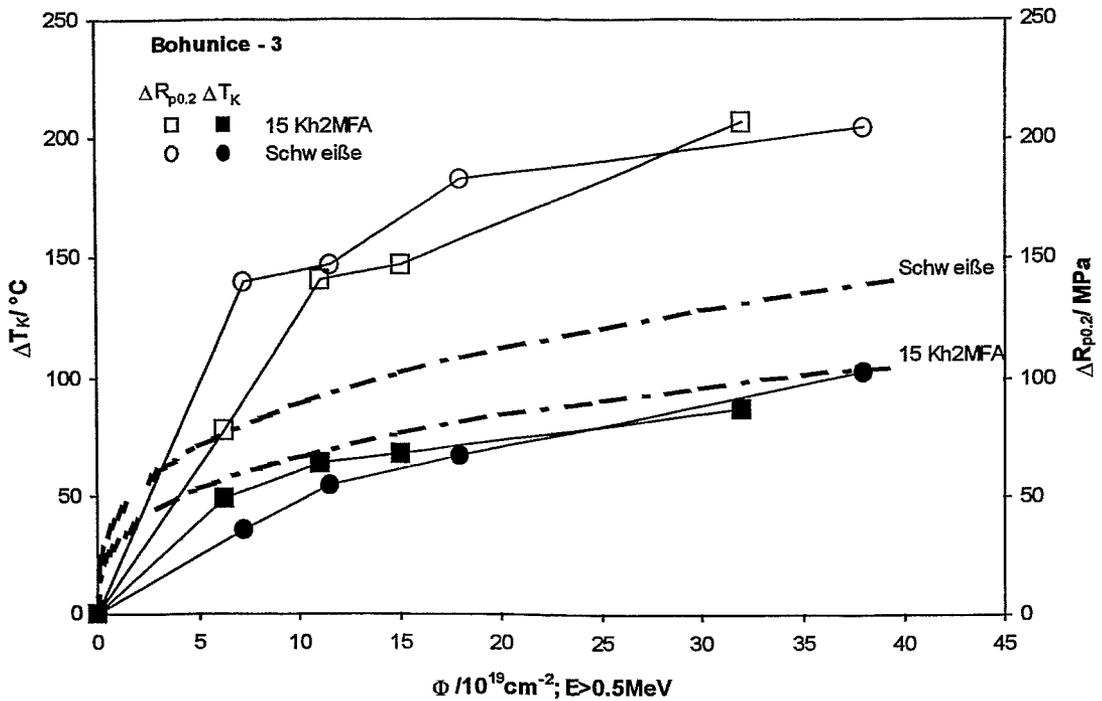


Abb. 2.5: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben aus dem KKW Bohunice, Block 3 (oben) und 4 (unten) nach [KUP 93] und [FAL 95]

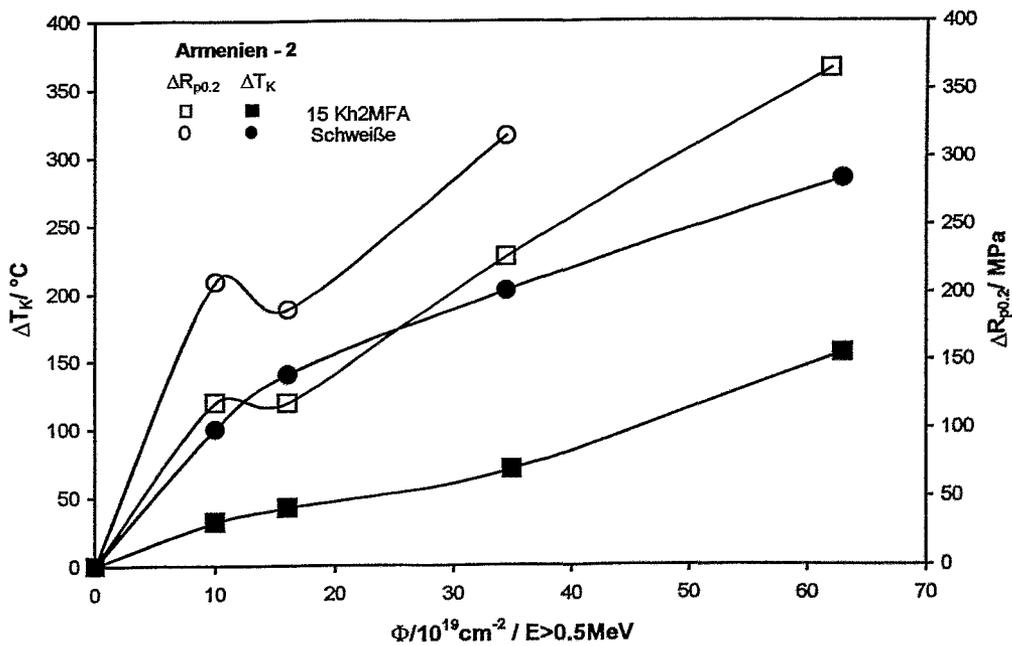
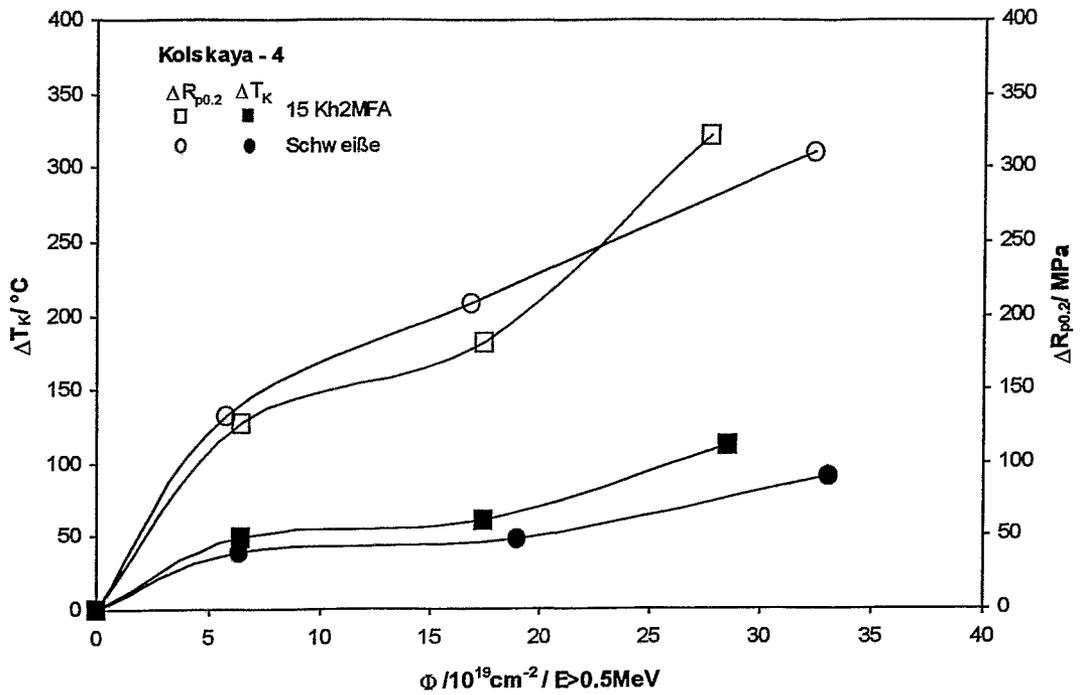


Abb. 2.6: Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{47J} und Erhöhung der Fließgrenze $\Delta R_{p0.2}$ in Abhängigkeit von der Fluenz Φ für Surveillance-Proben aus dem KKW Kolskaya-4 (oben) und Armenien-2 (unten) nach [KRU 94]

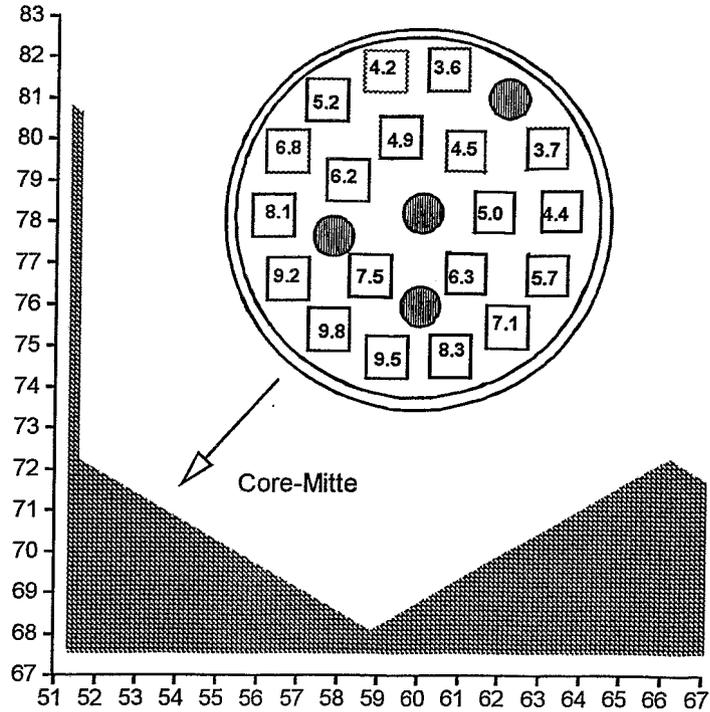


Abb. 3.3: Probenanordnung (Charpy-V-Proben) und Neutronenflussverteilung im Experiment RH8/1, Targetkanal 1, Höhenposition 112.25 mm [VIE 2000] (Zahlen am Probenort – Neutronenfluss in 10^{19} n/cm^2 [$E > 1 \text{ MeV}$])

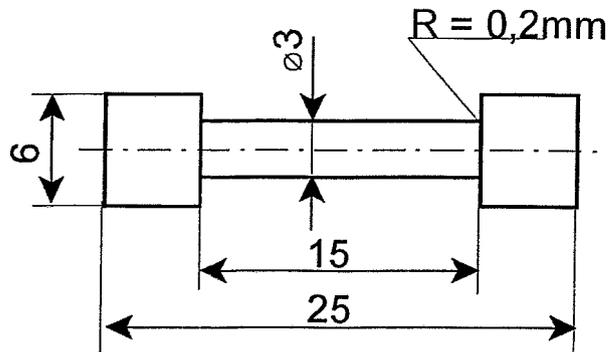


Abb. 3.4: Kleinzugprobe

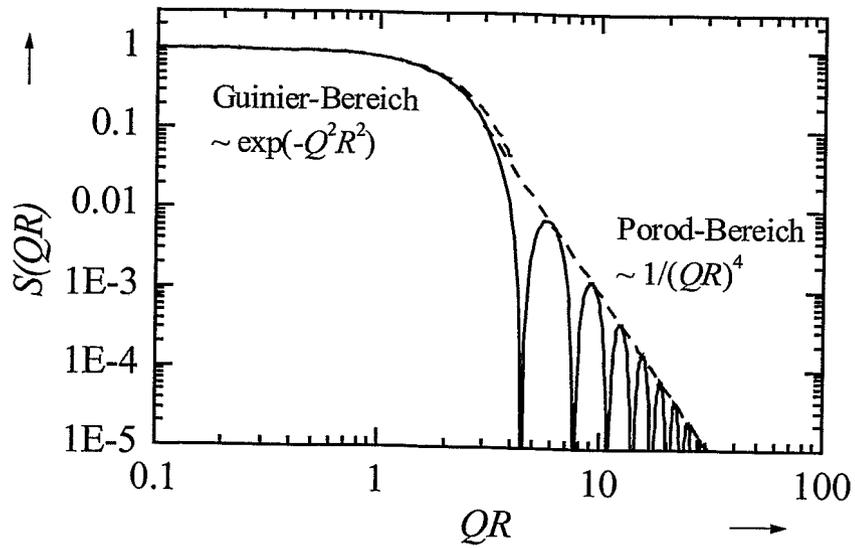


Abb. 3.5: Strukturfaktor $S(Q)$ für kugelförmige Teilchen

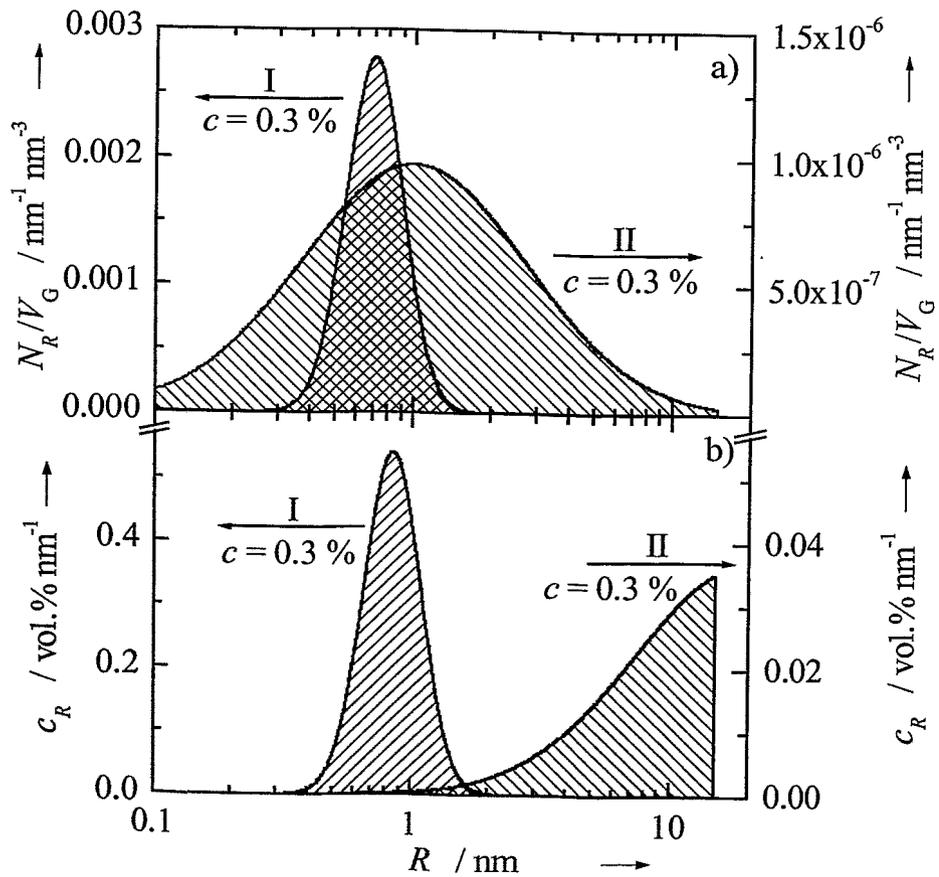


Abb. 3.6 Größenverteilungsfunktionen
 a) Teilchenanzahldichteverteilungen (Log. Normalverteilung) mit den Parametern I: $R_0=0,75 \text{ nm}$, $\sigma = 0,25$; II: $R_0=e=2,71 \text{ nm}$, $\sigma = 1,0$
 b) resultierende Volumenverteilungsfunktion

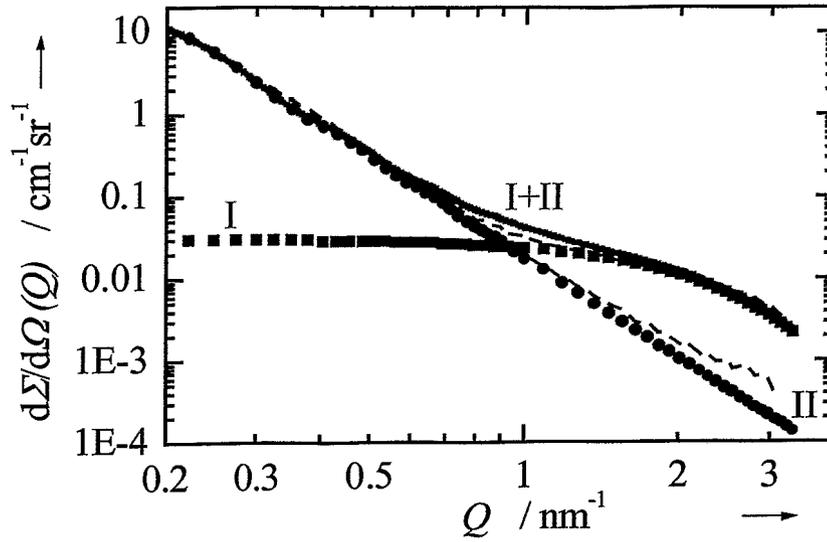


Abb. 3.7: Berechnete differentielle makroskopische Streuquerschnitte für nichtferromagnetische Teilchen entsprechend den Größenverteilungsfunktionen I und II der Abb. 3.6 (Streukontrast $\Delta\eta=2,5 \cdot 10^{-7} \text{ nm}^{-4}=(n_{\text{Fe-magn}})^2$)

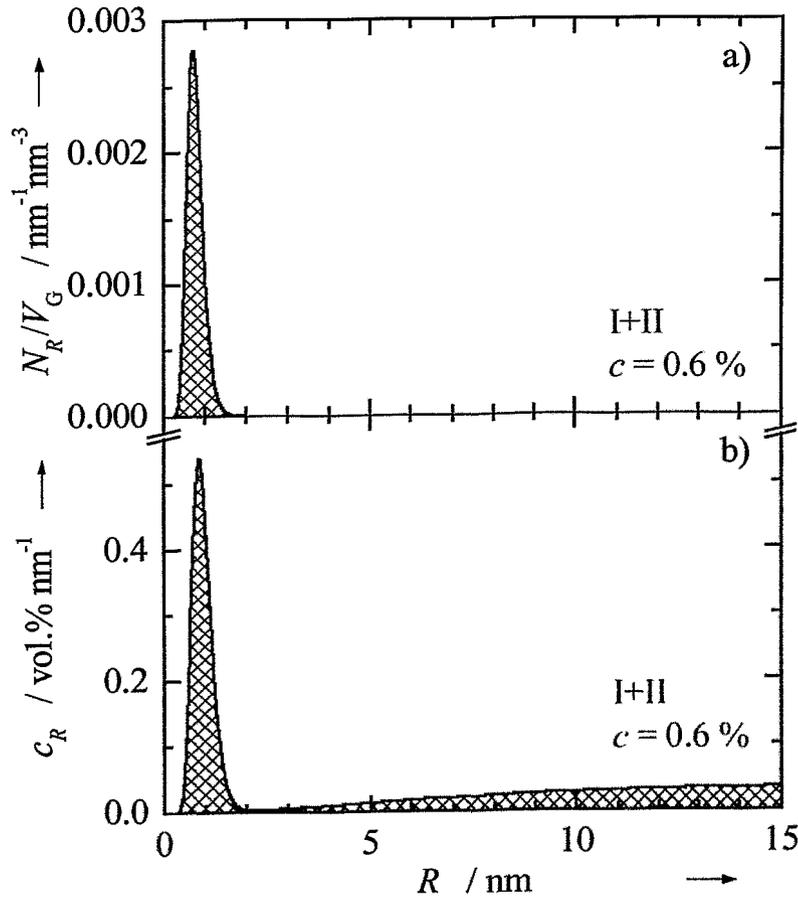


Abb. 3.8: Äquivalente Größenverteilungsfunktionen zur Abb. 3.6 a,b (Ordinate im gleichen Maßstab für beide Verteilungen und Abszisse linear skaliert)

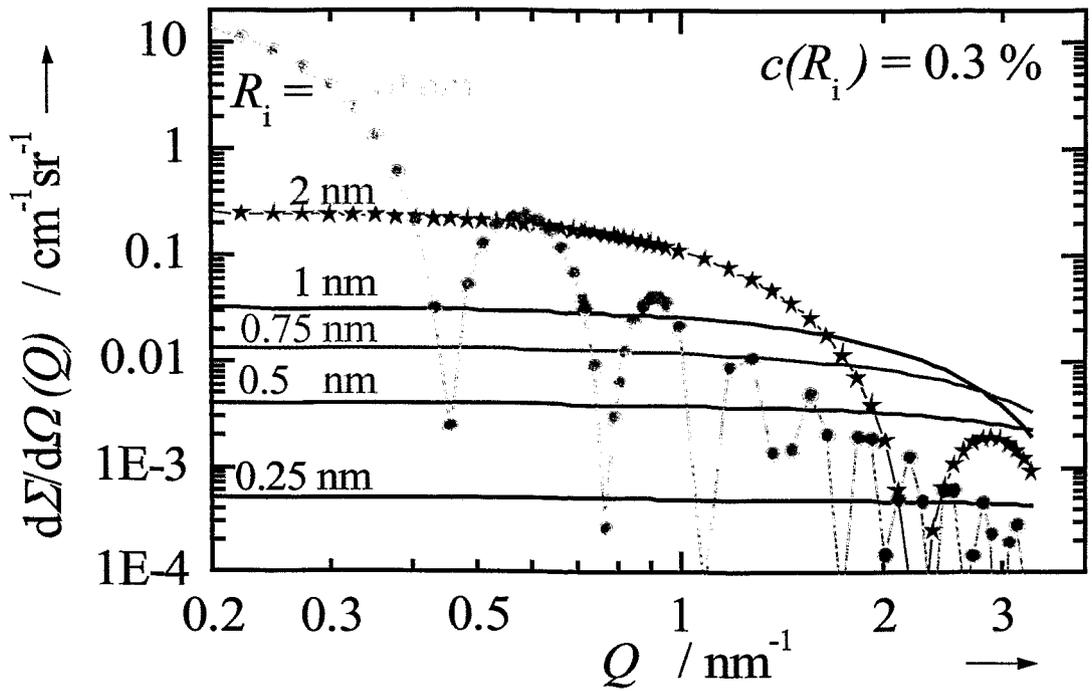


Abb. 3.9: Q-Abhängigkeit der magnetischen Streuquerschnitte für Teilchen einheitlicher Größe R_i und gleichem Volumengehalt $c = 0,3 \%$, berechnet mit einem Streukontrast $\Delta\eta^2 = 2,57 \cdot 10^{-7} \text{ nm}^{-4}$

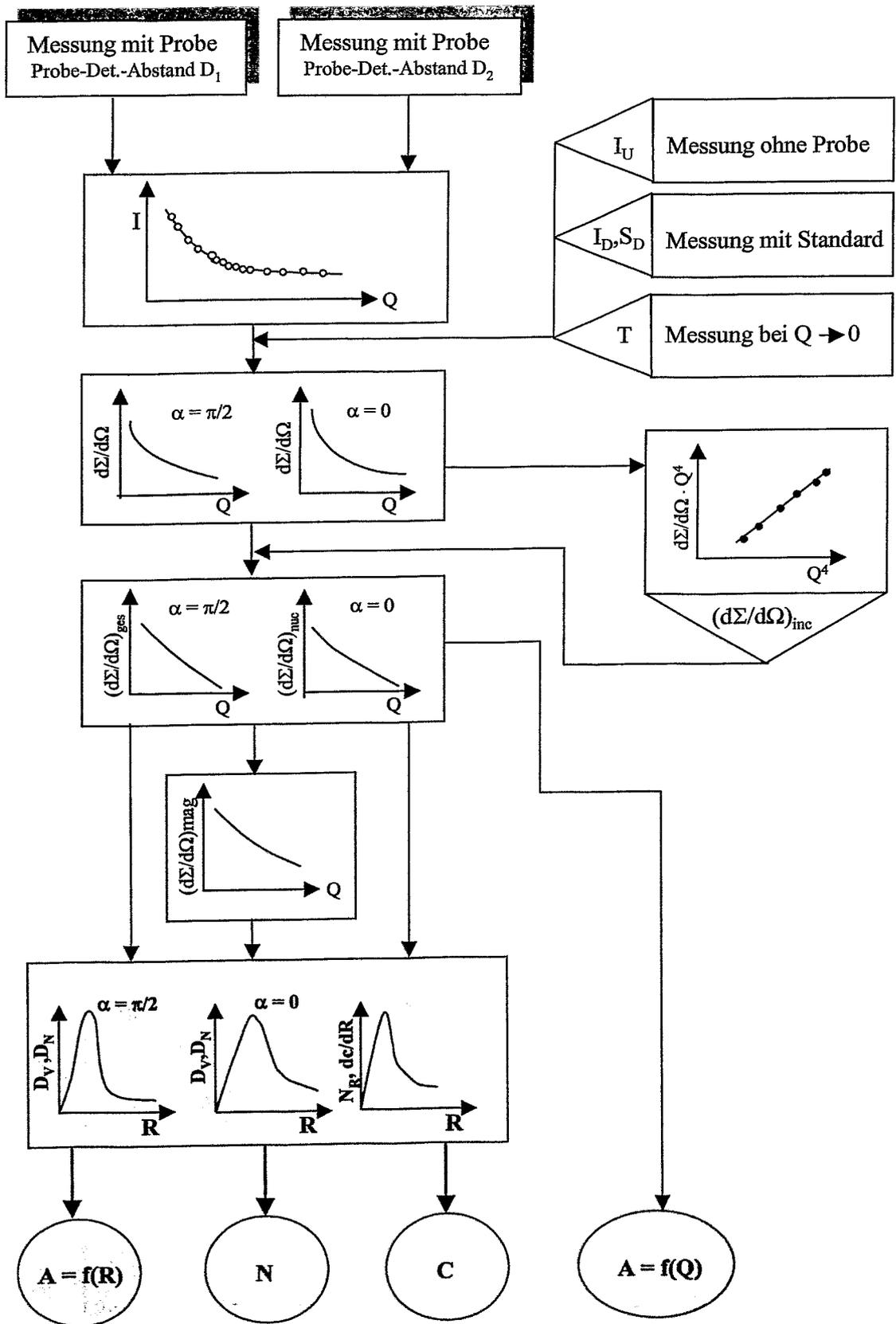


Abb. 3.10: Struktur der Mess- und Auswerteprozedur für SANS-Messungen

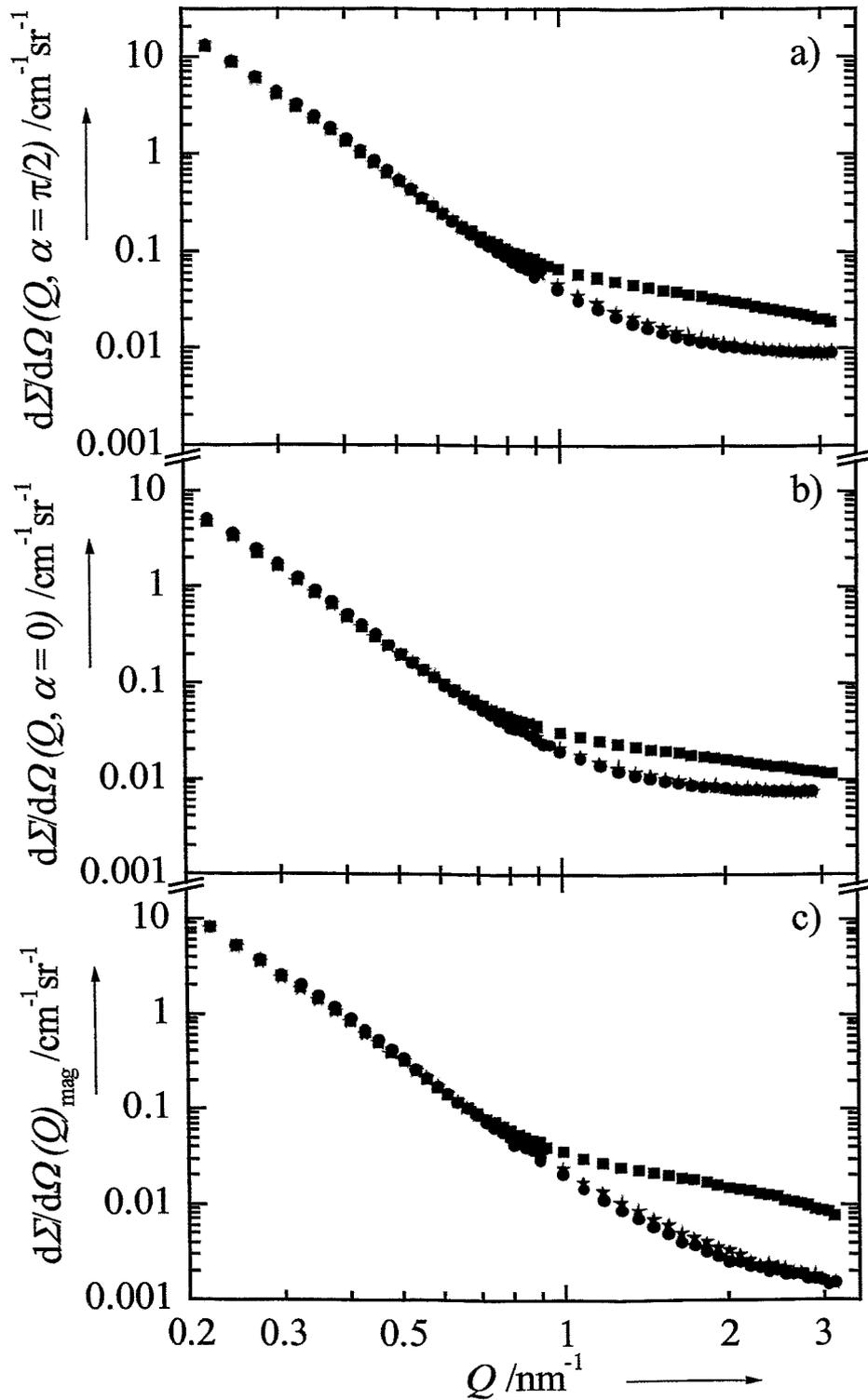


Abb. 3.11: Gemessene SANS-Streuwirkungsquerschnitte a) senkrecht ($\alpha=\pi/2$) und b) parallel ($\alpha=0$) zu einem äußeren Magnetfeld, c) Differenz aus a) und b)

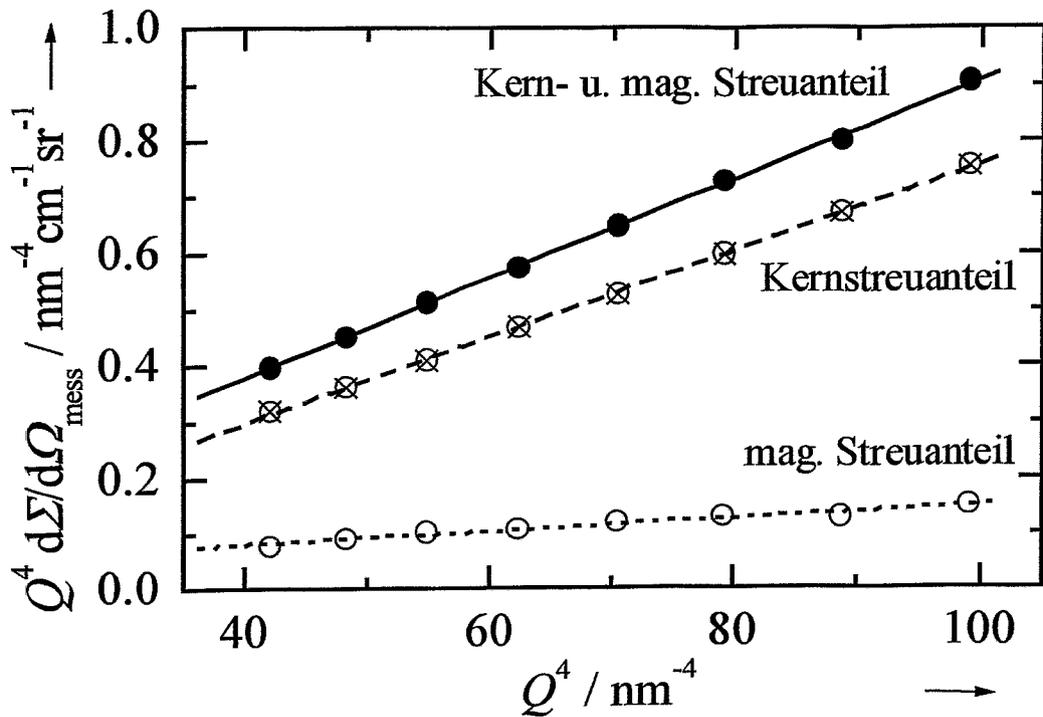


Abb. 3.12: Bestimmung des inkohärenten SANS-Streuanteils
 Porod-Darstellung der Streukurven des unbestrahlten Materialzustandes
 in Abb. 3.11 (Anstieg der Geraden ist der inkohärente Streuanteil)

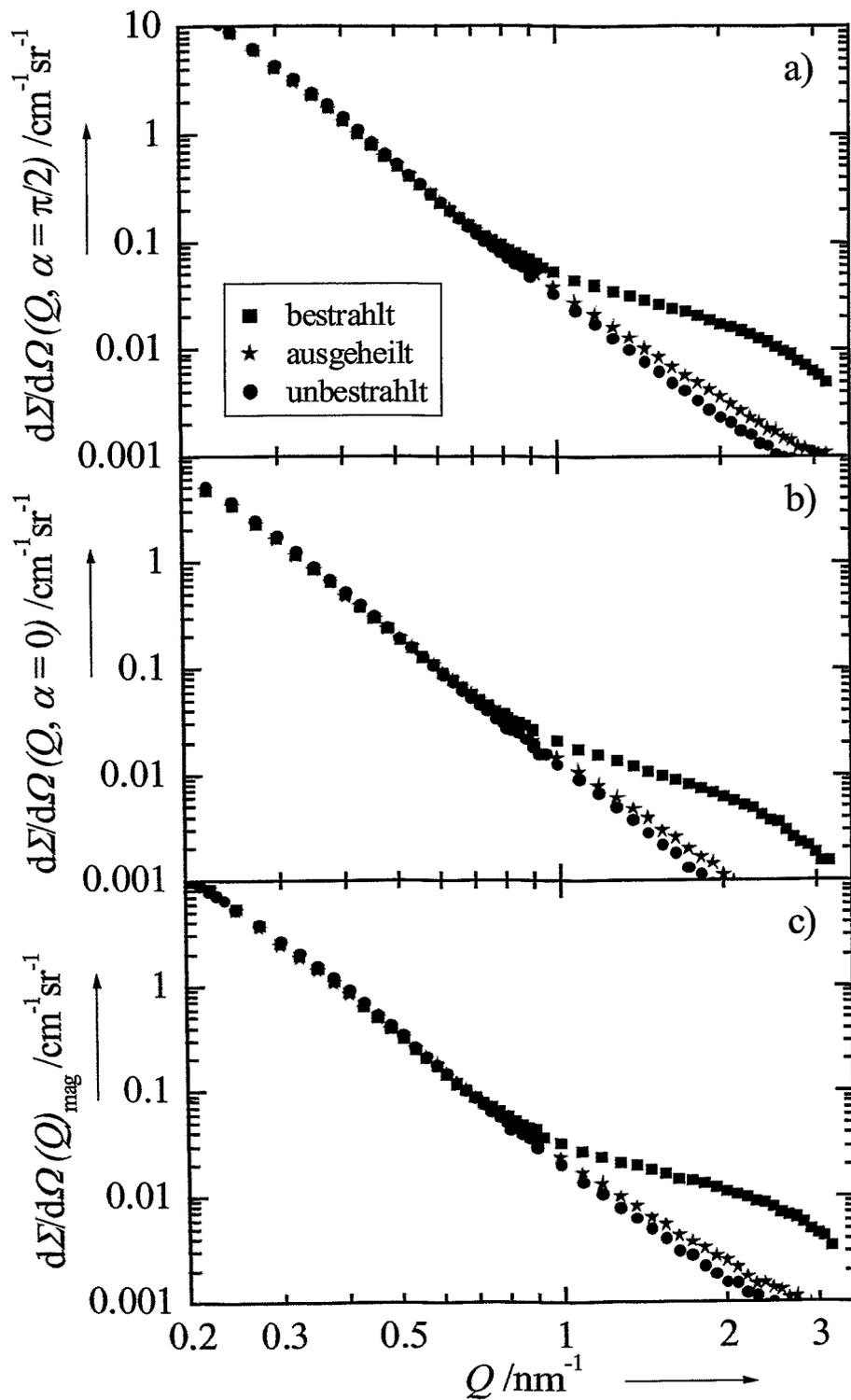


Abb. 3.13: Kohärente SANS-Querschnitte
 a) Gesamtstreuquerschnitt, b) nuklearer Streuquerschnitt,
 c) magnetischer Streuquerschnitt

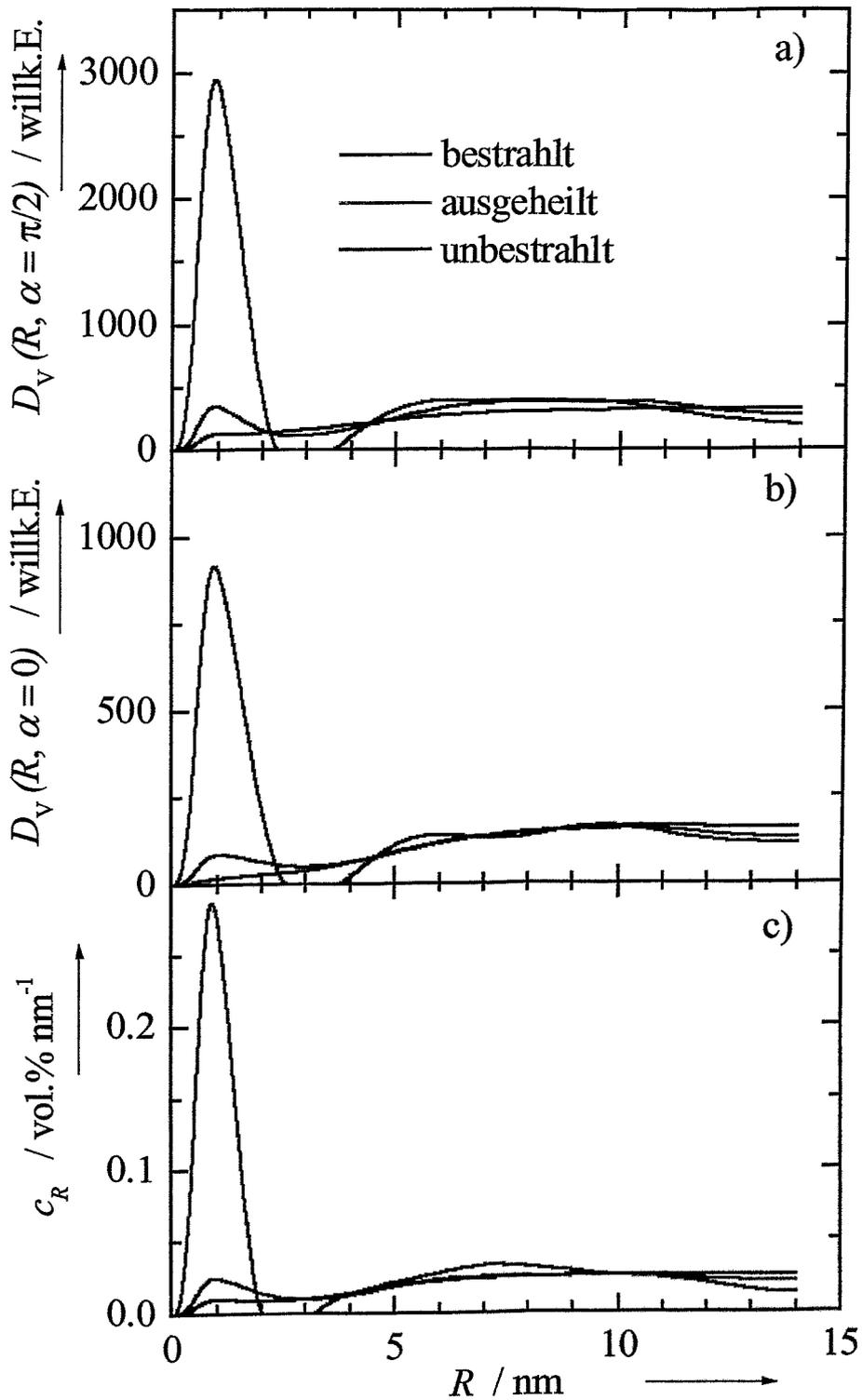


Abb. 3.14: Volumenverteilungsfunktion von Strukturhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 3.13
 a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten,
 c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

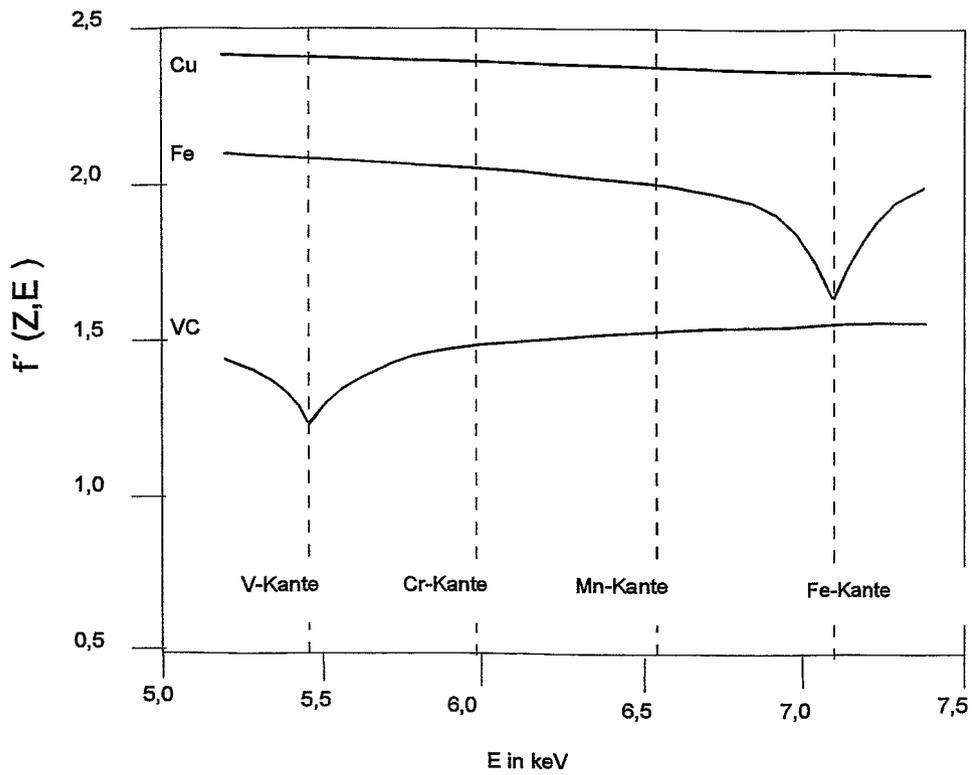


Abb. 3.15: Energieabhängigkeit des Realteiles $f'(Z,E)$ der Streulängendichte für Cu, Fe und VC im Energiebereich von 5,3 – 7,3 keV

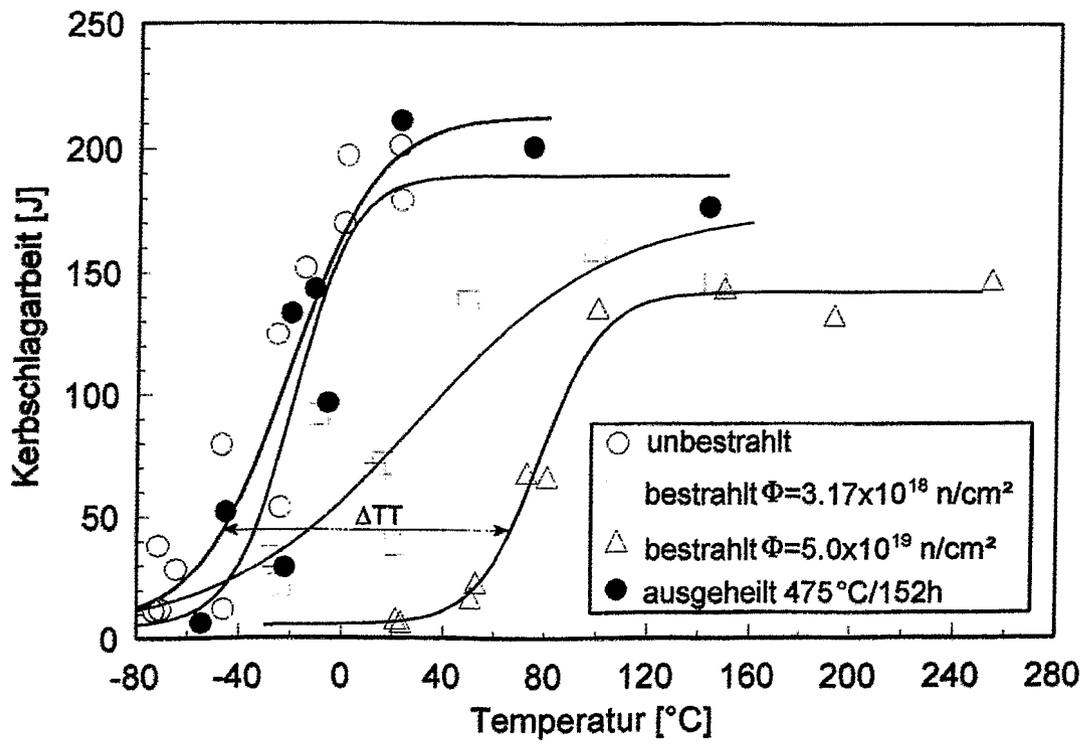


Abb. 4.1: Kerbschlag-Temperatur-Kurven für den RDB-Stahl 15Kh2MFA, Code KAB in verschiedenen Zuständen

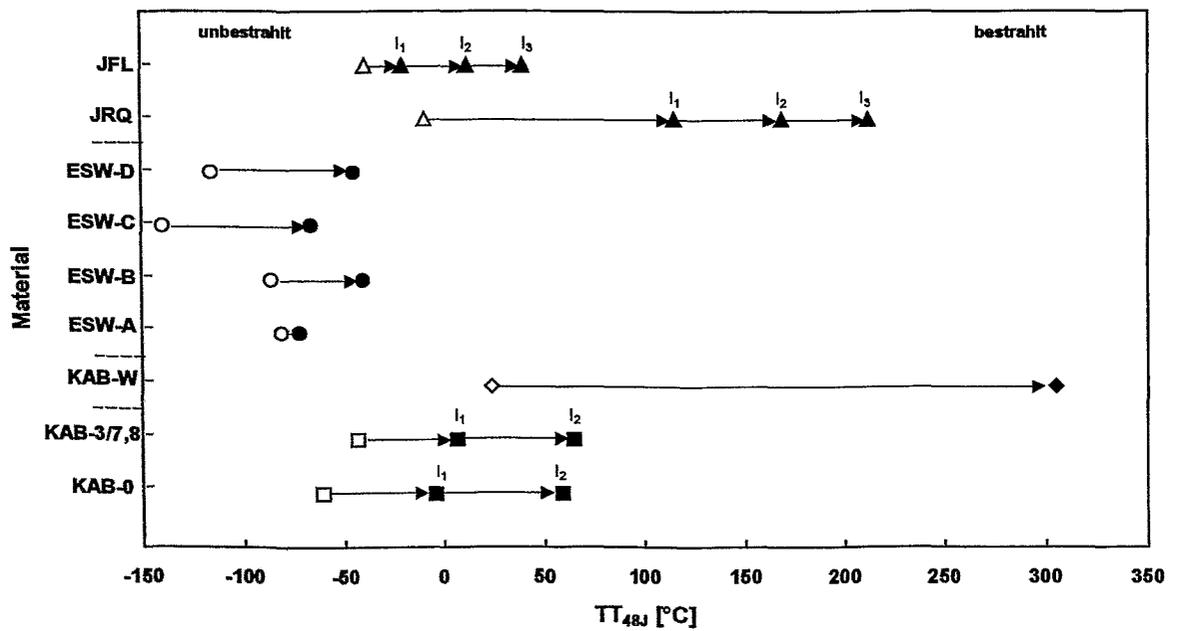
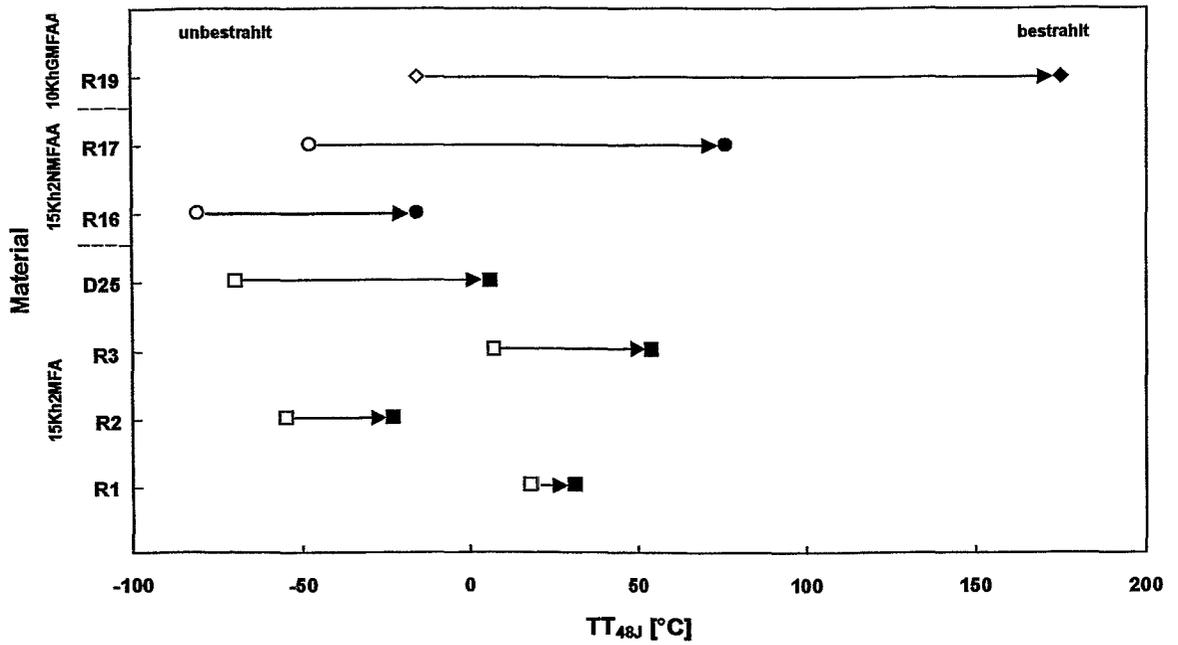


Abb. 4.2: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Stähle des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)

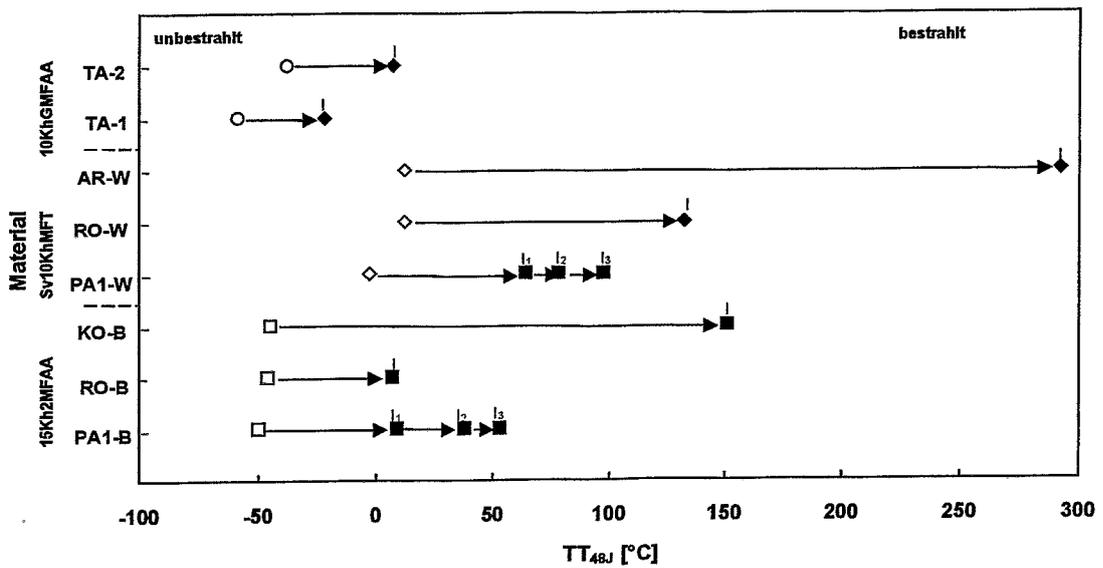


Abb. 4.3: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben

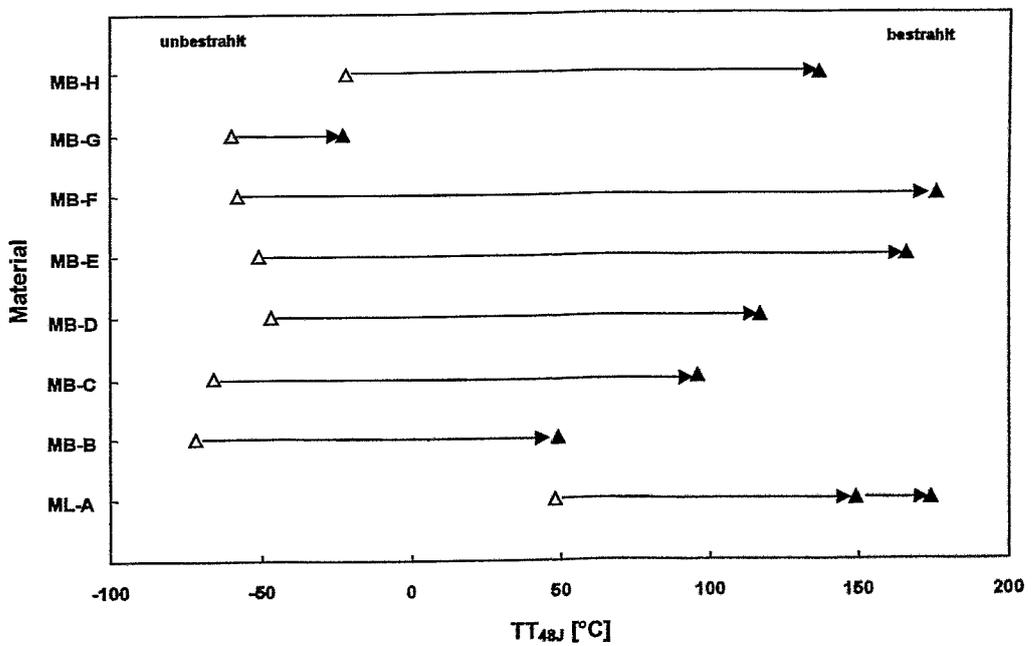


Abb. 4.4: Übergangstemperatur TT_{48J} im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen

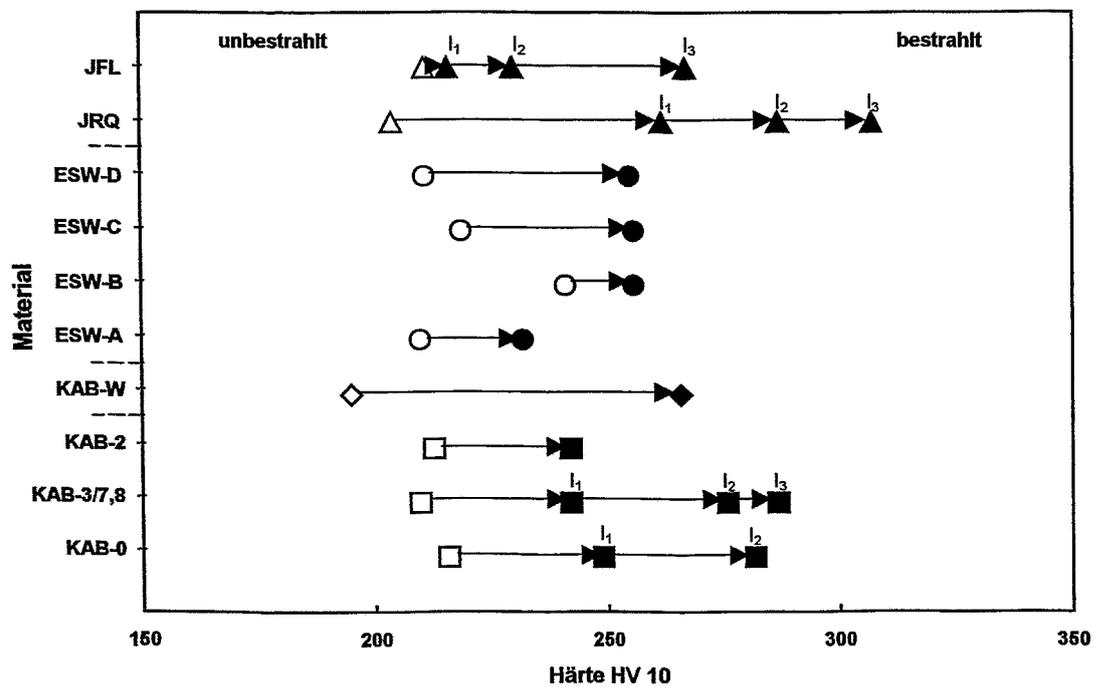
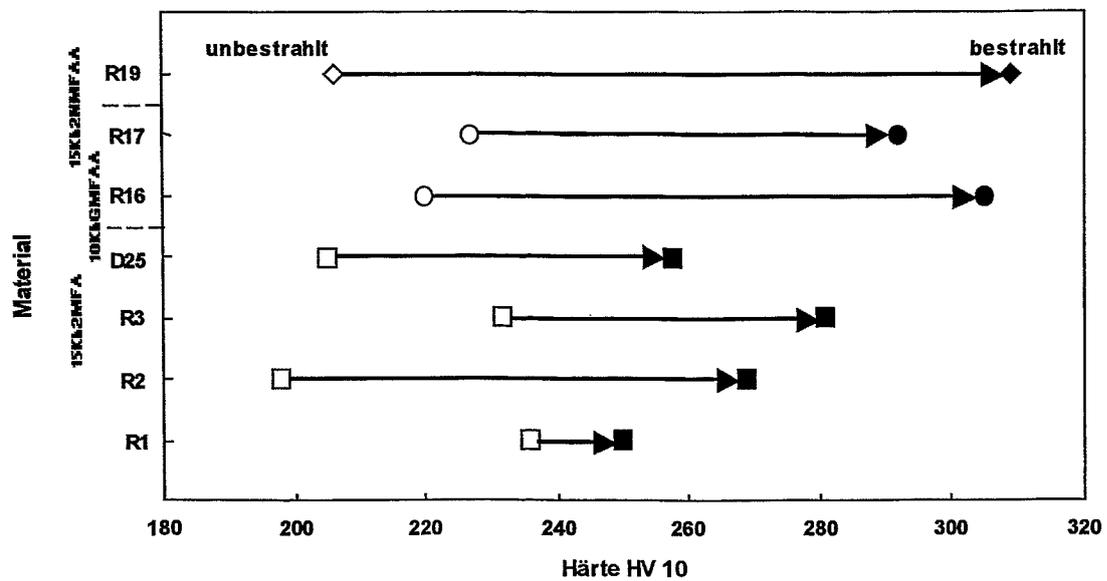


Abb. 4.5: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Stähle des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)

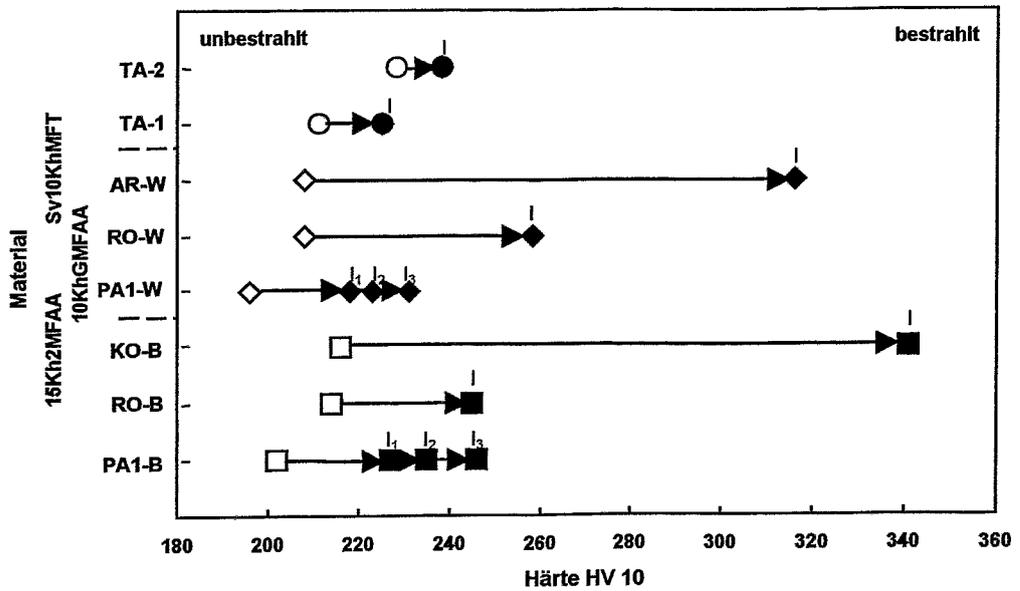


Abb. 4.6: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben

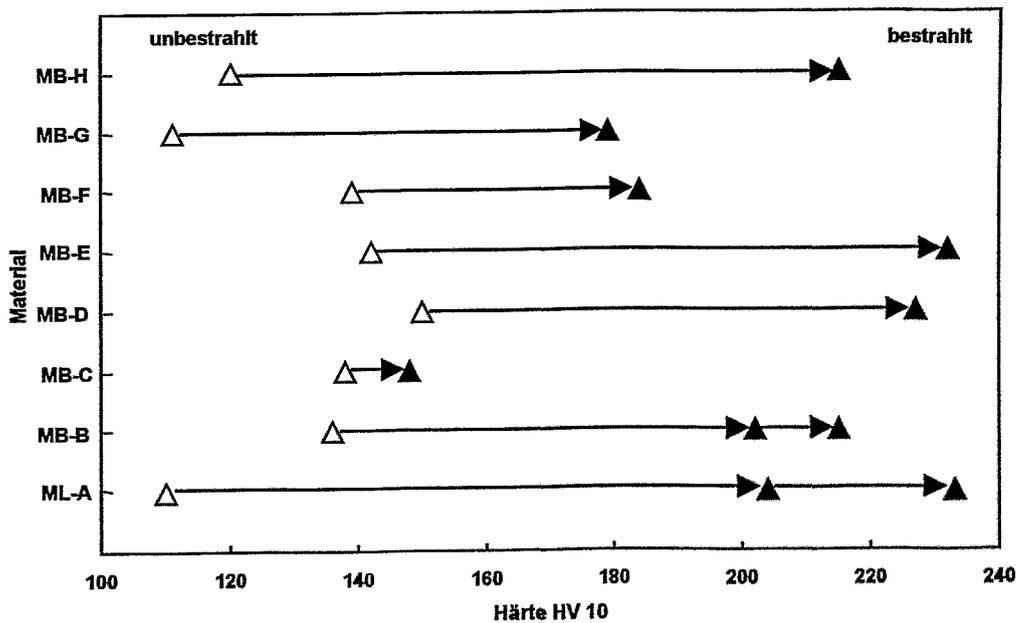


Abb. 4.7: Härte im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen

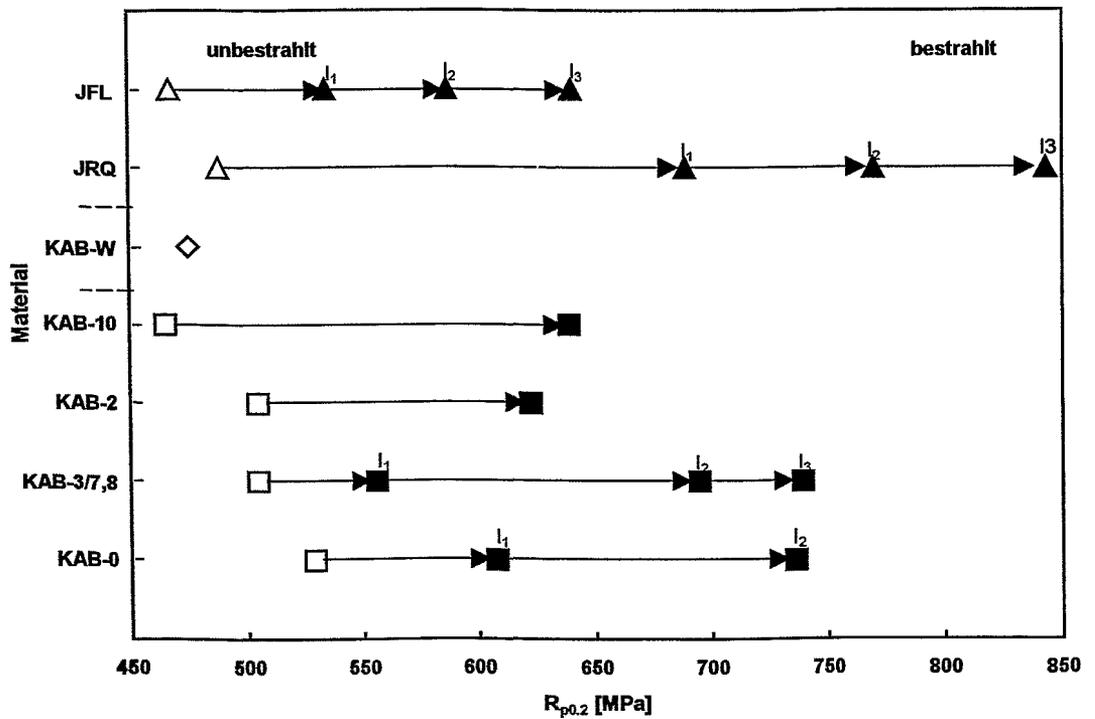
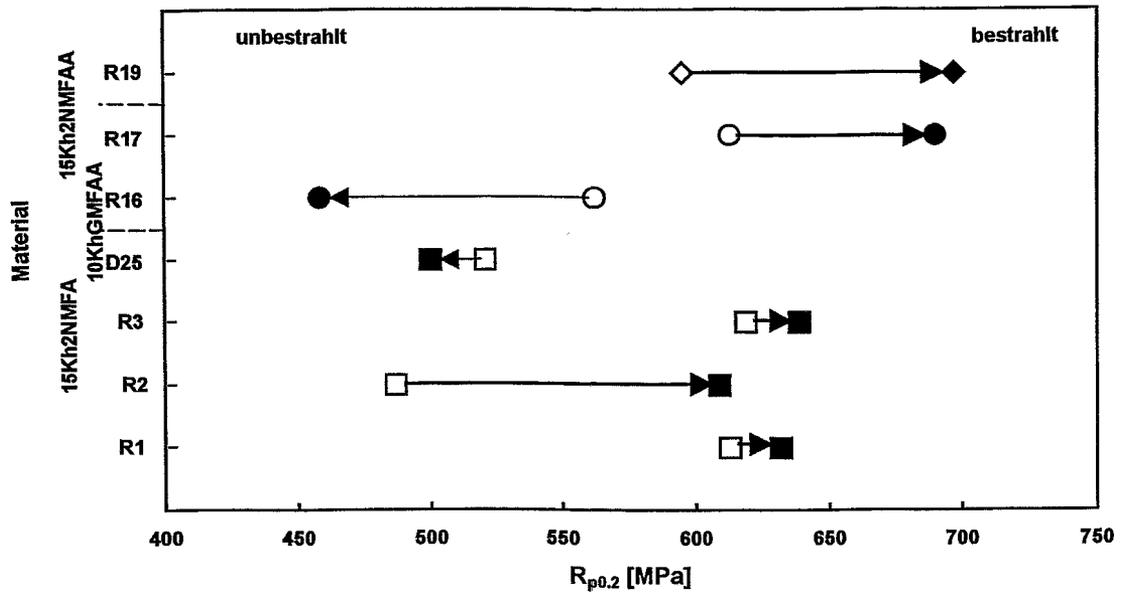


Abb. 4.8: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I (oben) und II (unten)

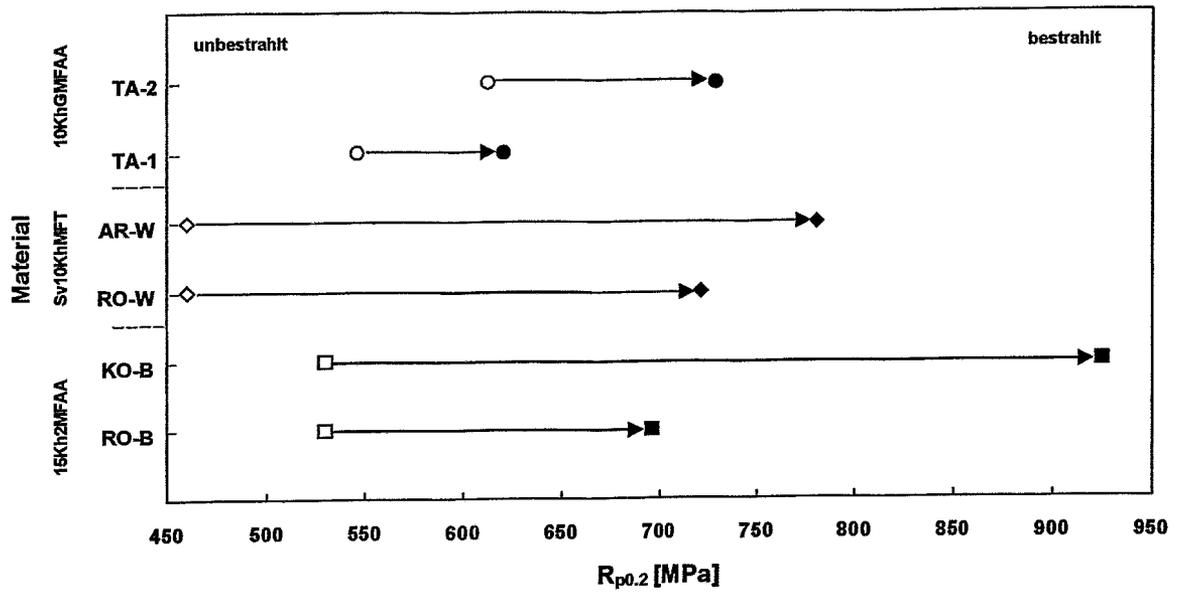


Abb. 4.9: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Surveillance-Proben

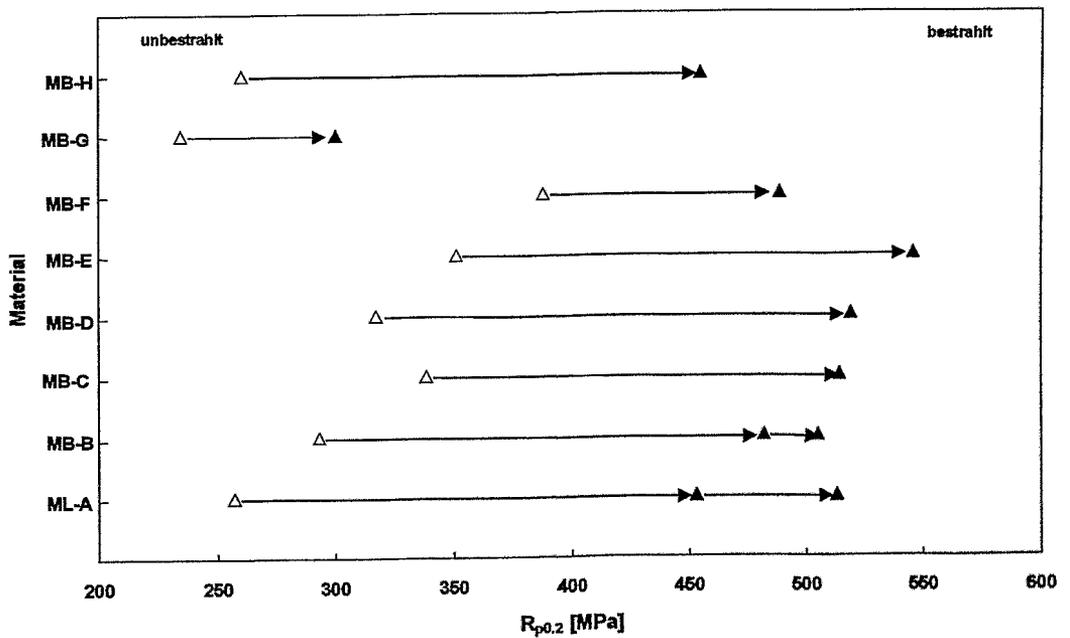


Abb. 4.10: Streckgrenze im un- und bestrahlten Zustand für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen

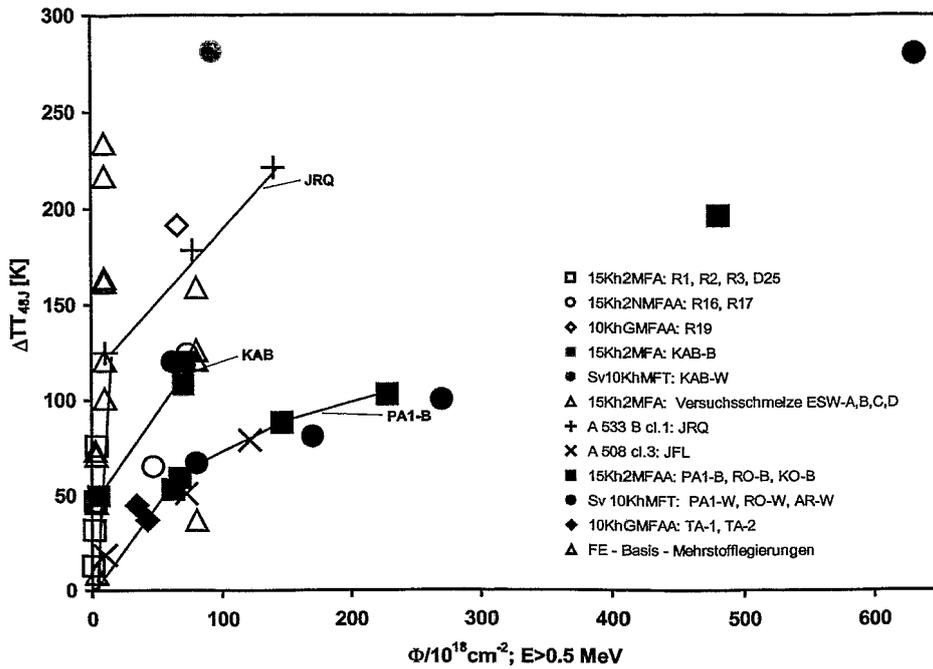


Abb. 4.11: Einfluss der Neutronenfluss auf die Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J}

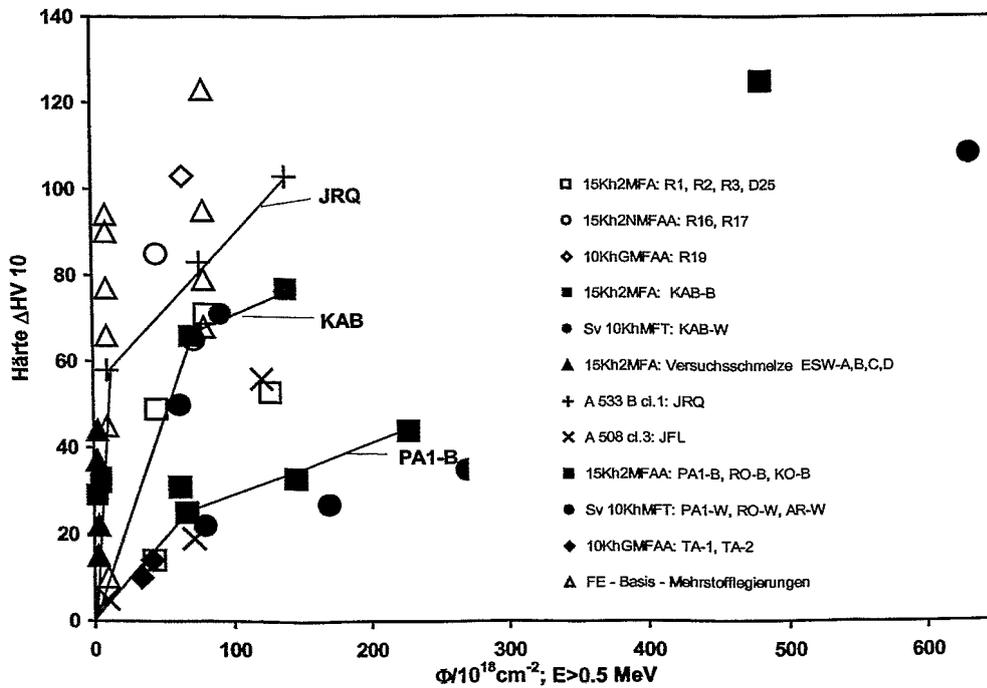


Abb. 4.12: Einfluss der Neutronenfluss auf die Härteänderung ΔHV_{10}

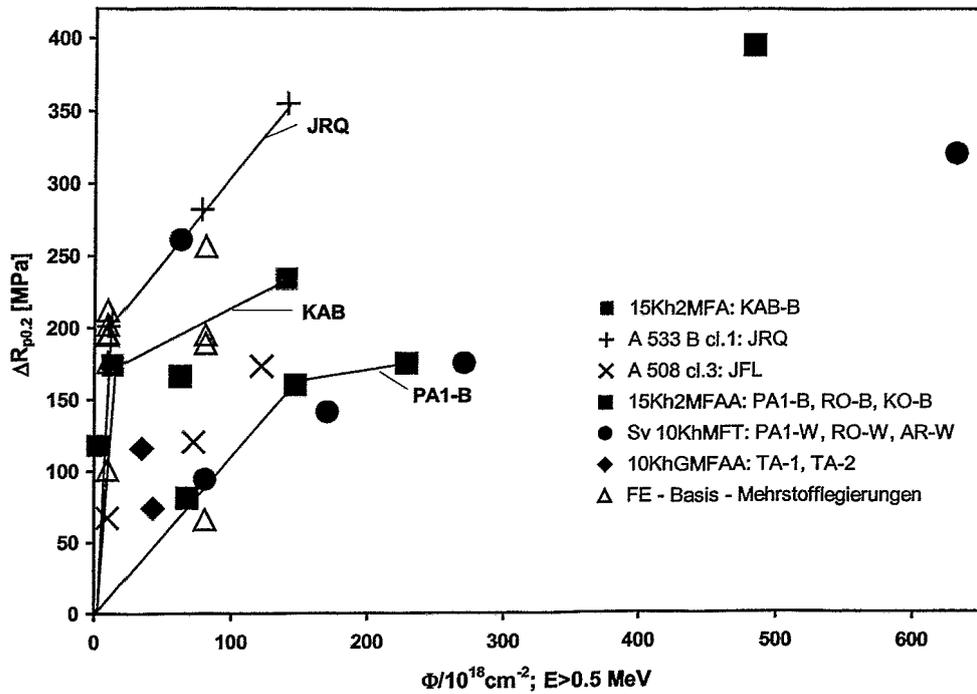


Abb. 4.13: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Änderung der Streckgrenze $\Delta R_{p0.2}$

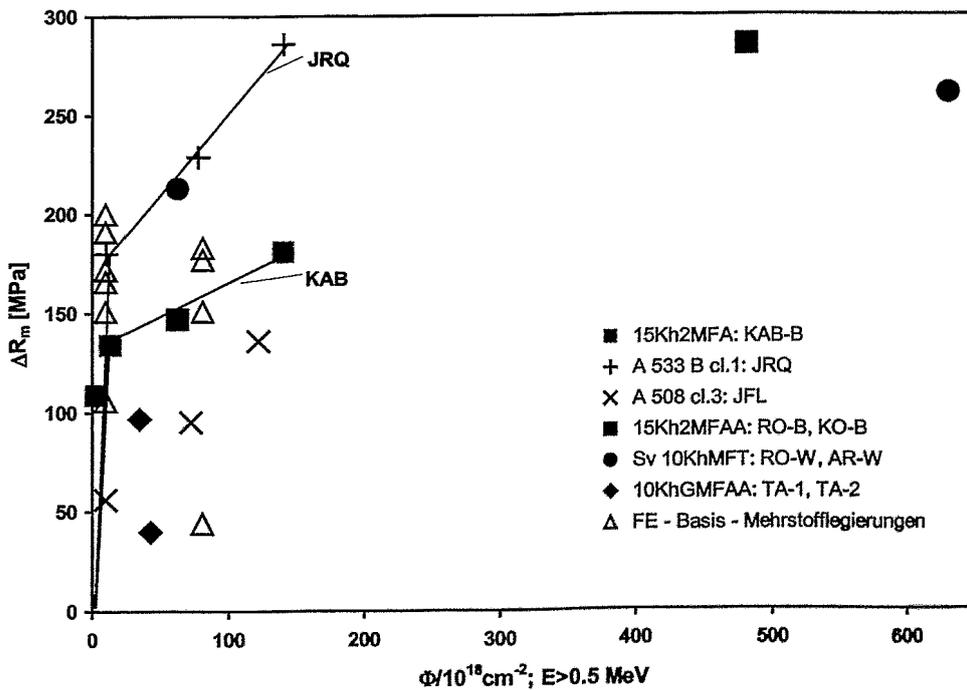
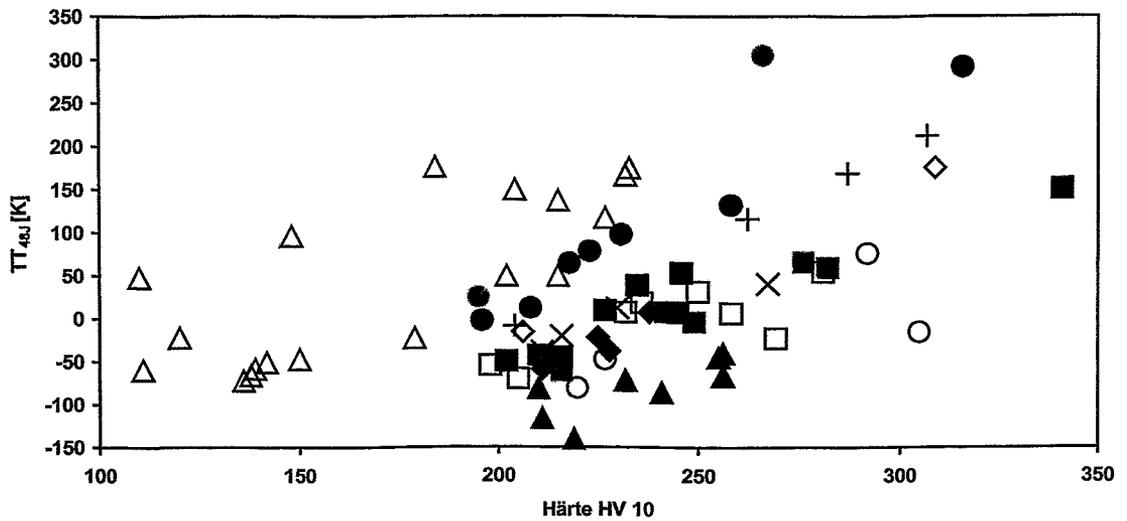


Abb. 4.14: Einfluss der Neutronenfluenz auf die Änderung der Zugfestigkeit ΔR_m



- | | |
|--------------------------------|--|
| □ 15Kh2MFA: R1, R2, R3, D25 | ○ 15Kh2NMFAA: R16, R17 |
| ◇ 10KhGMFAA: R19 | ■ 15Kh2MFA: KAB-B |
| ● Sv 10KhMFT: KAB-W | ▲ 15Kh2MFA: Versuchsschmelze ESW-A,B,C,D |
| + A 533 B cl.1: JRQ | × A 508 cl.3: JFL |
| ■ 15Kh2MFAA: PA1-B, RO-B, KO-B | ● Sv 10KhMFT: PA1-W, RO-W, AR-W |
| ◆ 10KhGMFAA: TA-1, TA-2 | △ FE - Basis - Mehrstofflegierungen |

Abb. 4.15: Ergebnisfeld für Übergangstemperatur TT_{48J} und Härte HV10

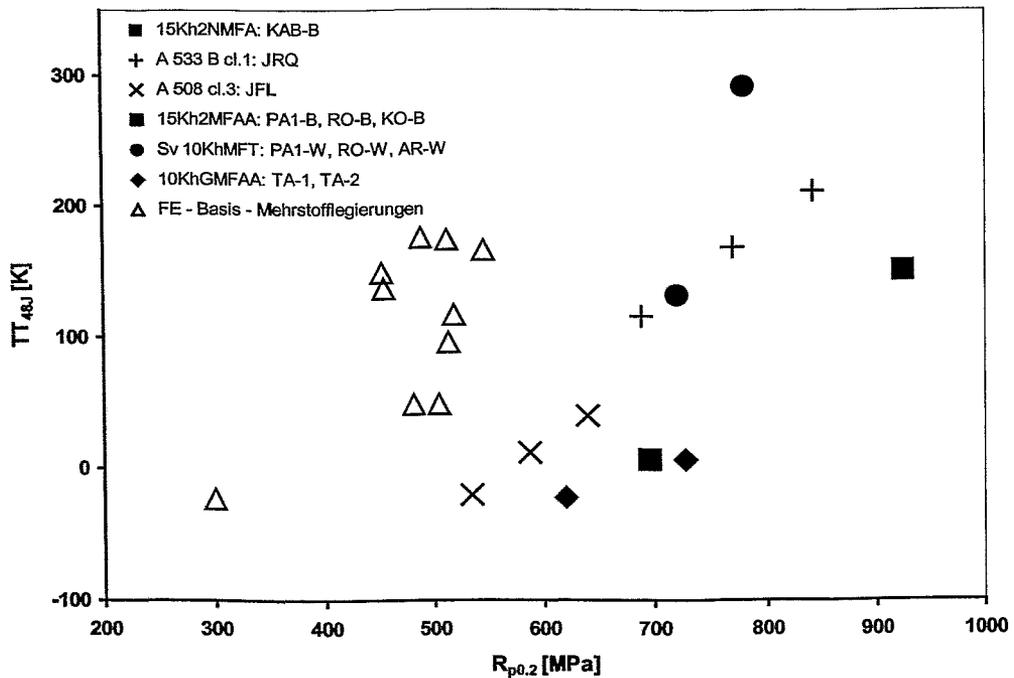


Abb. 4.16: Ergebnisfeld für Übergangstemperatur TT_{48J} und Streckgrenze $R_{p0.2}$

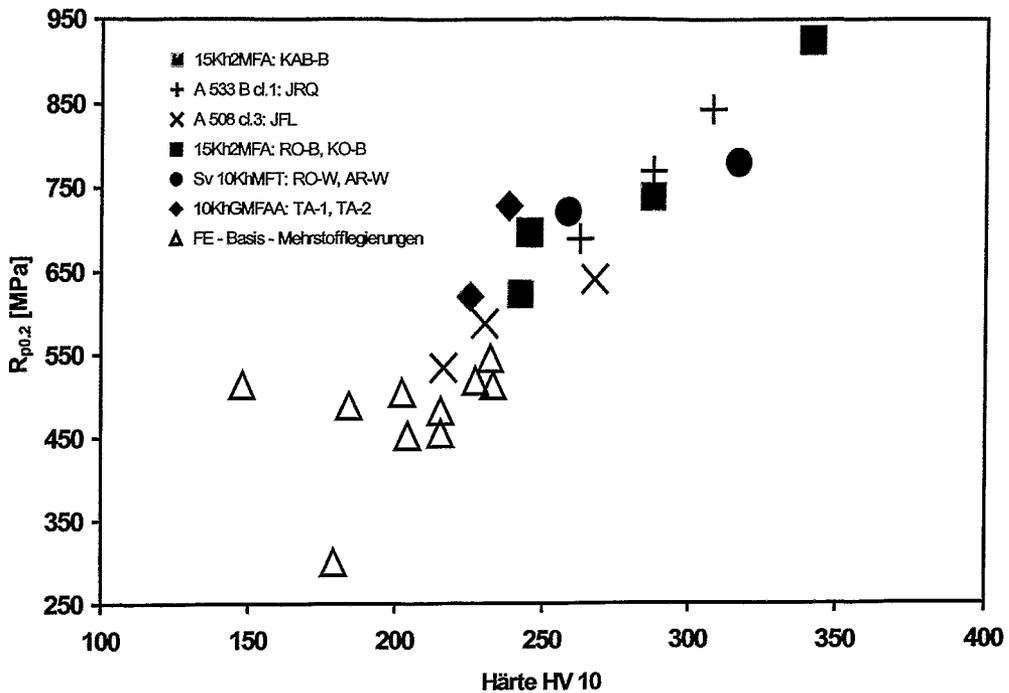


Abb. 4.17: Ergebnisfeld für Streckgrenze $R_{p0.2}$ und Härte HV10

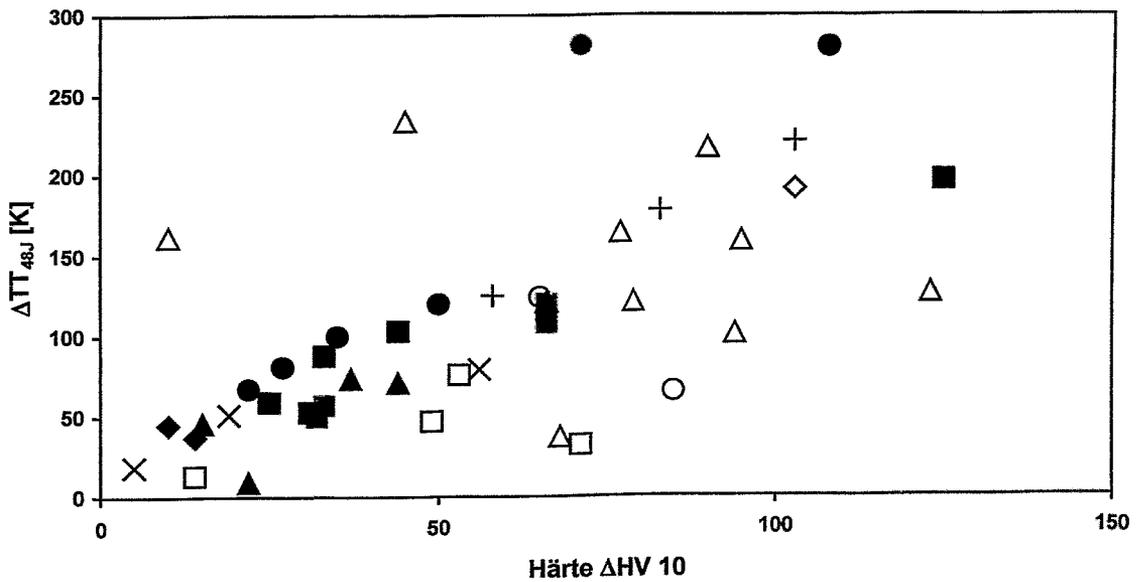


Abb. 4.18: Ergebnisfeld für bestrahlungsbedingte Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J} und Härteänderung $\Delta HV10$

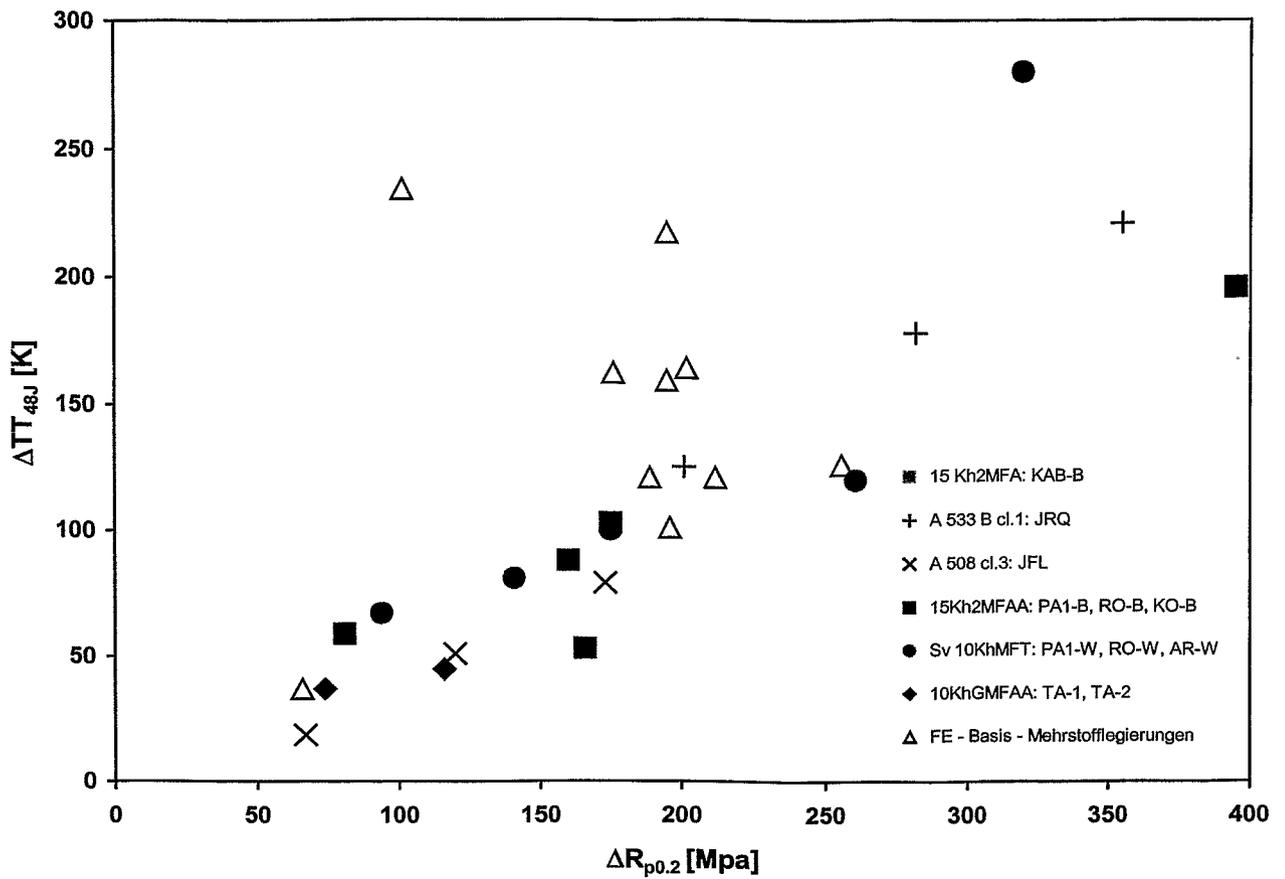


Abb. 4.19: Ergebnisfeld für bestrahlungsbedingte Verschiebung der Übergangstemperatur ΔTT_{48J} und Streckgrenzenerhöhung $\Delta R_{p0.2}$



Abb. 4.20: Gefüge eines Stahles 15Kh2MFA, Surveillance-Probe RO-B

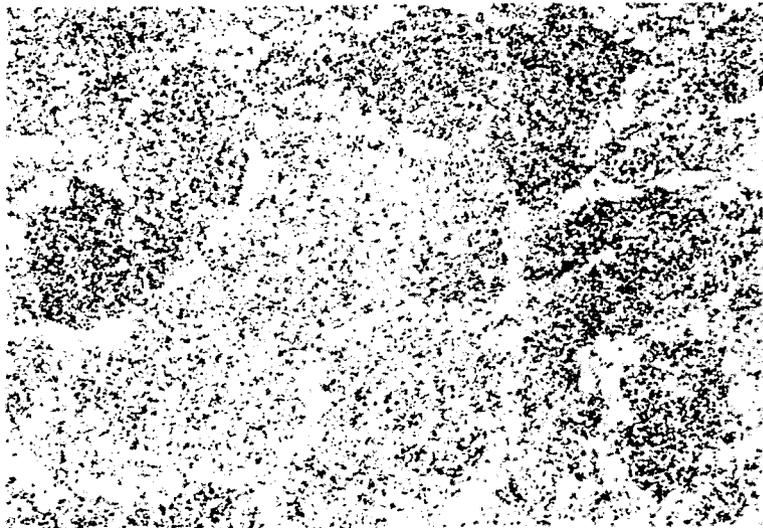


Abb. 4.21: Gefüge eines Schweißwerkstoffes Sv10KhMFT, Surveillance-Probe RO-W



Abb. 4.22: TEM-Aufnahme eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-0) mit größeren Karbiden an den Bainitlattengrenzen und feineren Karbiden im Korninneren

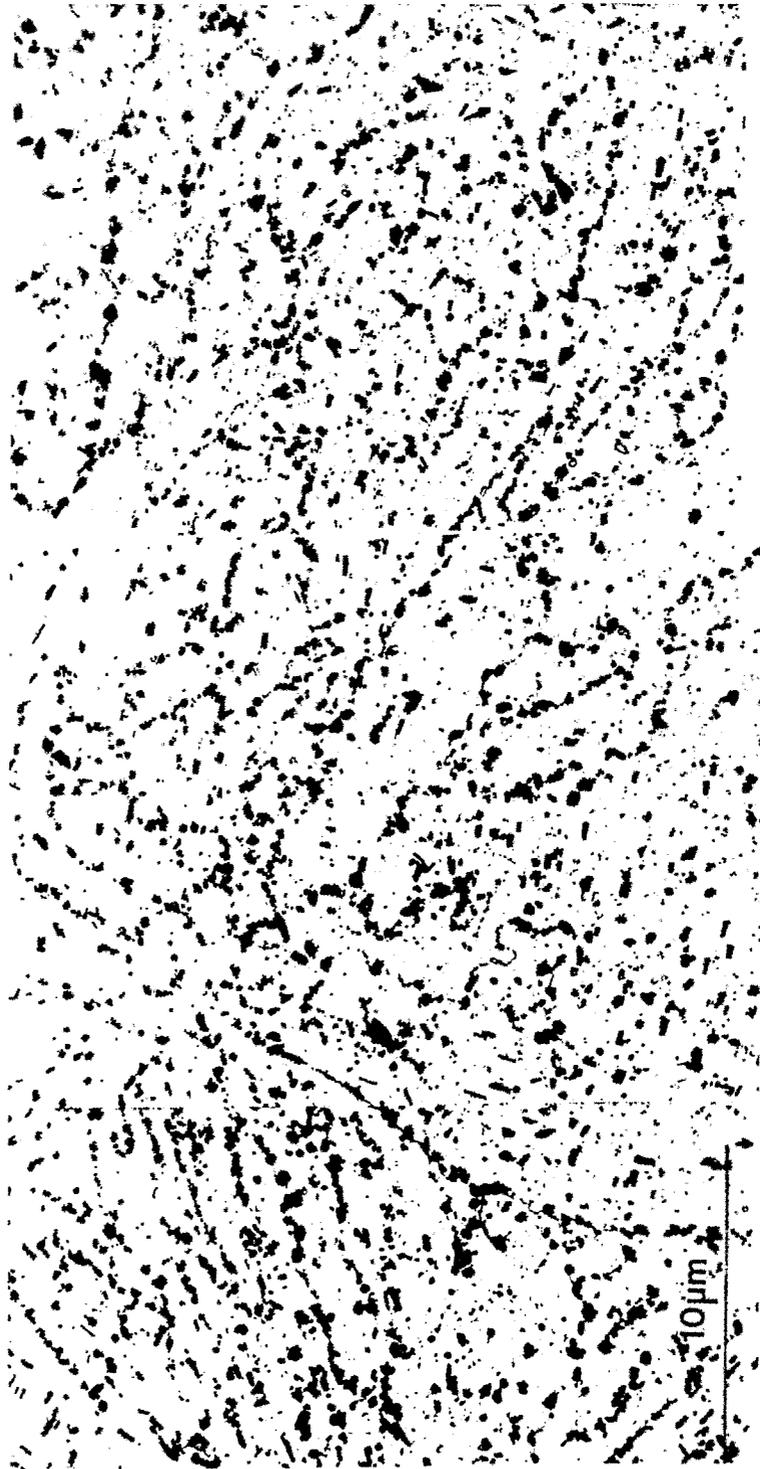


Abb. 4.23: TEM-Aufnahme einer Extraktionsreplika eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-8), Verteilung der größeren Karbide

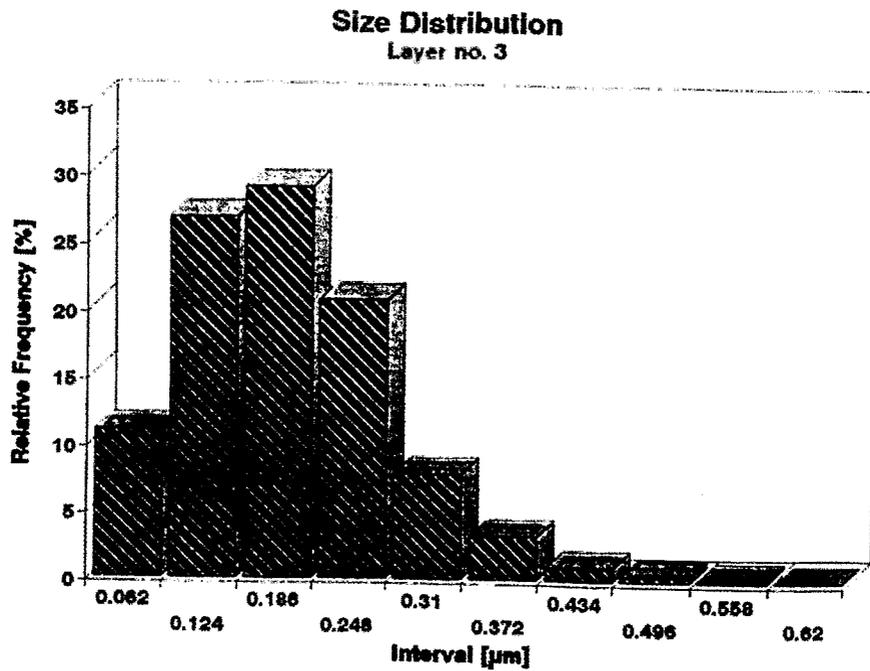


Abb. 4.24: Größenverteilung der groben Karbide eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-3)

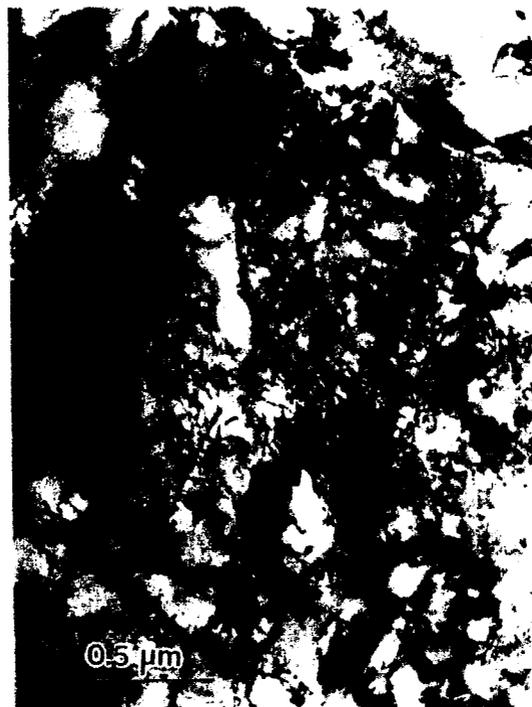
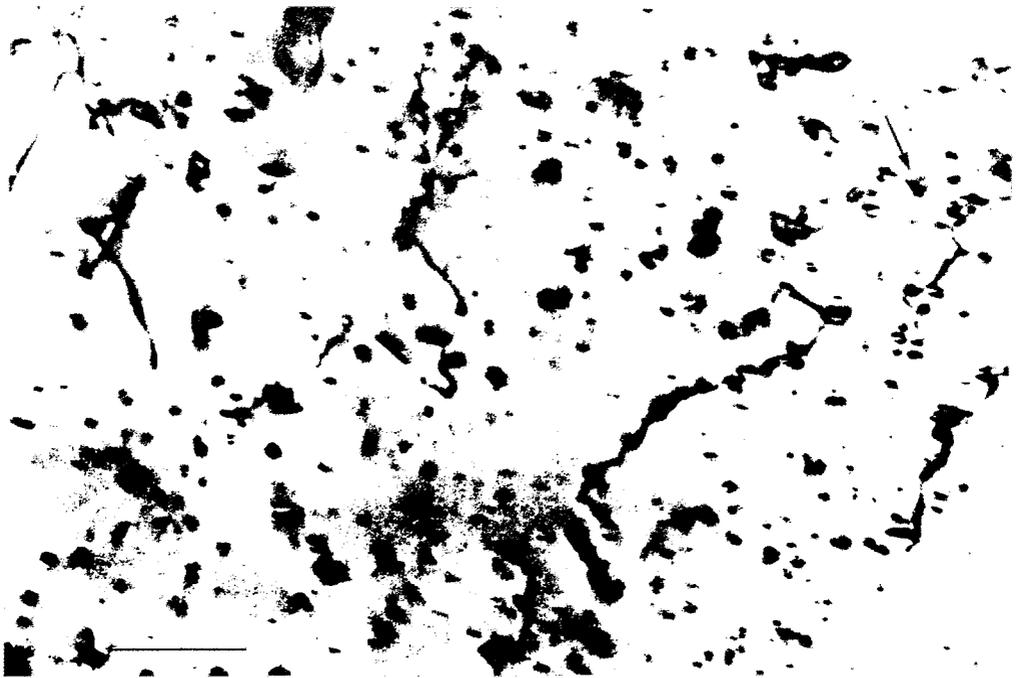
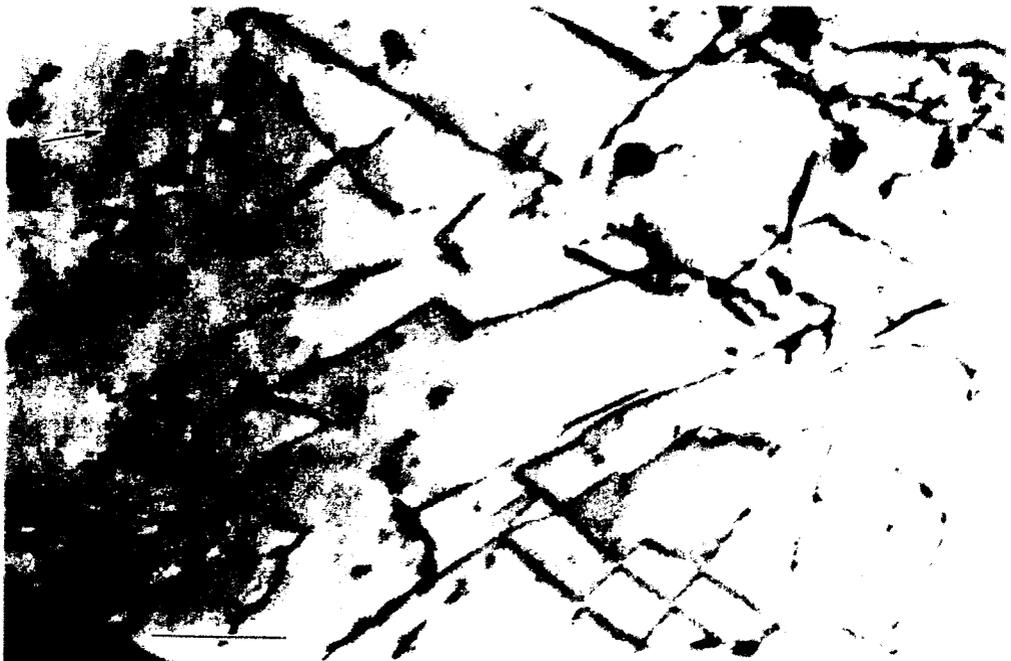


Abb. 4.25: Versetzungsstruktur eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB), TEM-Aufnahme



0,2 μm



0,2 μm

Abb. 4.26 a,b:

TEM-Aufnahme eines Stahles 15Kh2MFA (Charge KAB-3) nach Bestrahlung bis $3,1 \cdot 10^{19}/\text{cm}^2$ [$E > 1$ MeV], Ferritkorn mit hoher Defektdichte (oben) und niedriger Defektdichte (unten)

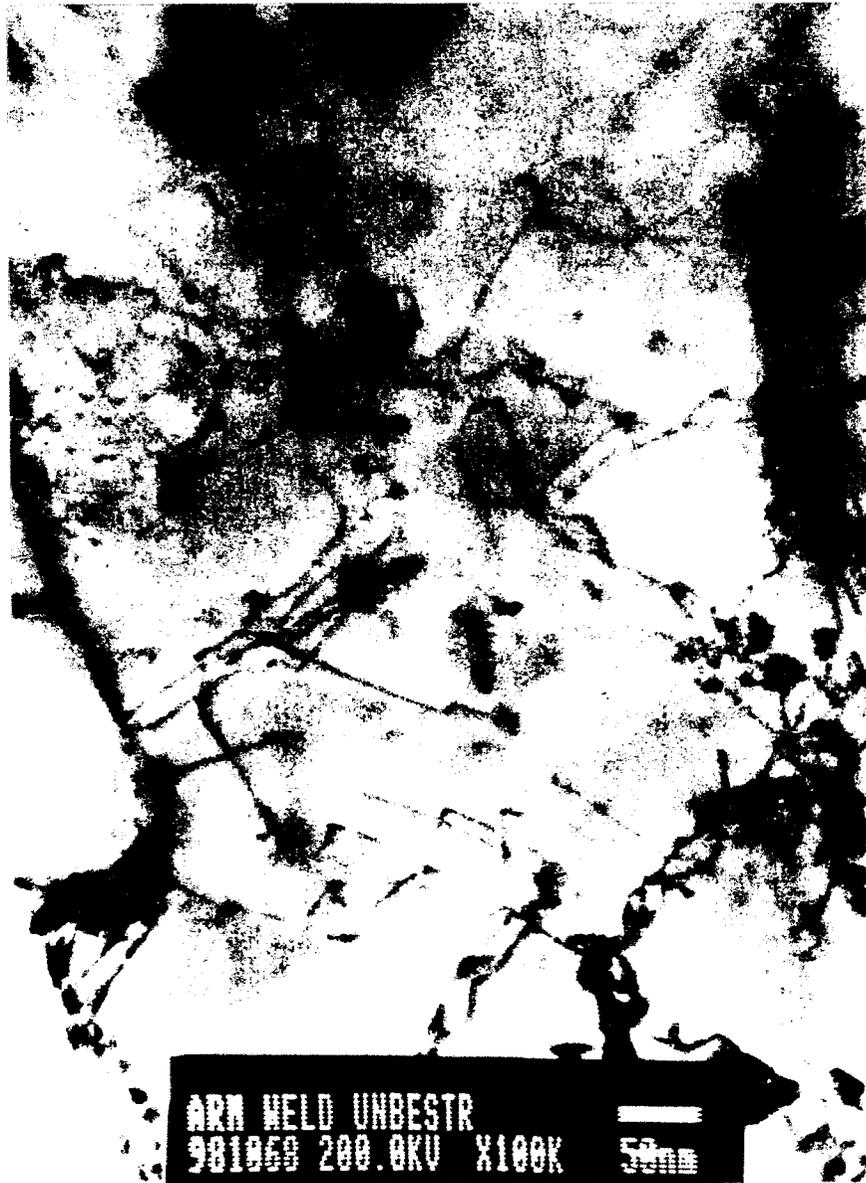


Abb. 4.27: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe AR-W, unbestrahlt



a)



b)

Abb. 4.28a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe AR-W, bestrahlt (a, b – unterschiedliche Probenausschnitte)



Abb. 4.29: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe KO-B, unbestrahlt

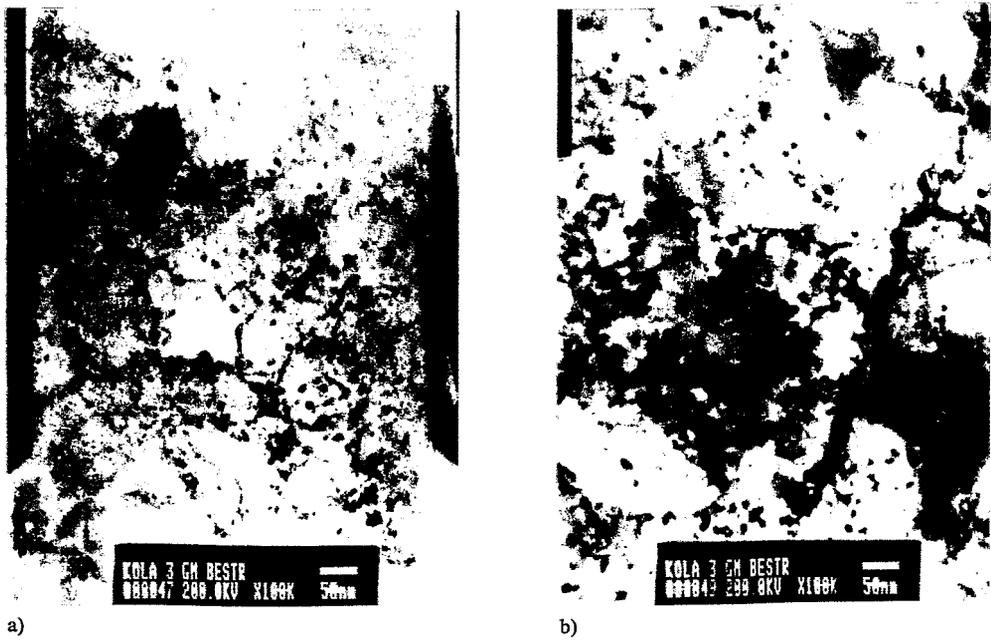


Abb. 4.30 a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe KO-B, bestrahlt (a, b – unterschiedliche Probenausschnitte)



Abb. 4.31: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe KO-B, ausgeheilt



a)



b)

Abb. 4.32 a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe RO-B, bestrahlt
(a, b – unterschiedliche Probenausschnitte)



a)



b)

Abb. 4.33 a,b: TEM-Aufnahme der Surveillance-Probe PA-B, bestrahlt
(a, b – unterschiedliche Probenausschnitte)



Abb. 4.34: TEM-Aufnahme mit EDX-Spektren der Surveillance-Probe KO-B, bestrahlt (Pfeile weisen auf zu den Spektren gehörige Position)

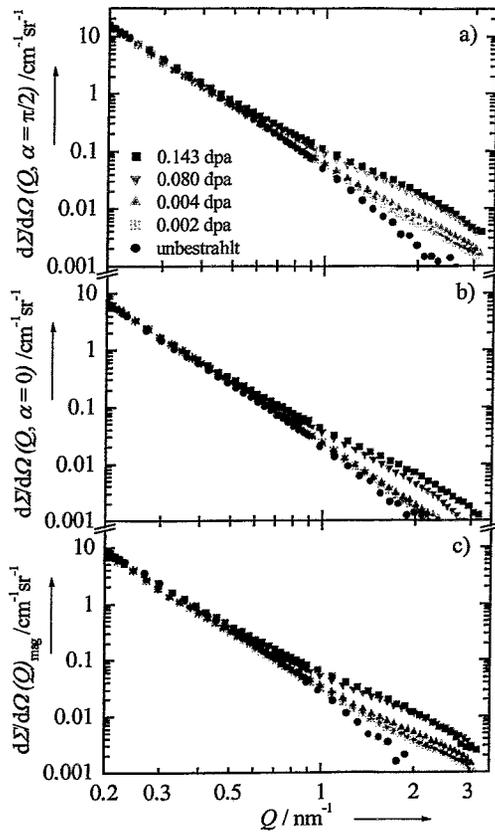


Abb. 4.35: Kohärenter makroskopischer SANS-Querschnitt des Werkstoffes KAB-B
 a) nuklear + magnetisch, b) nuklearer
 c) magnetischer Streuteil

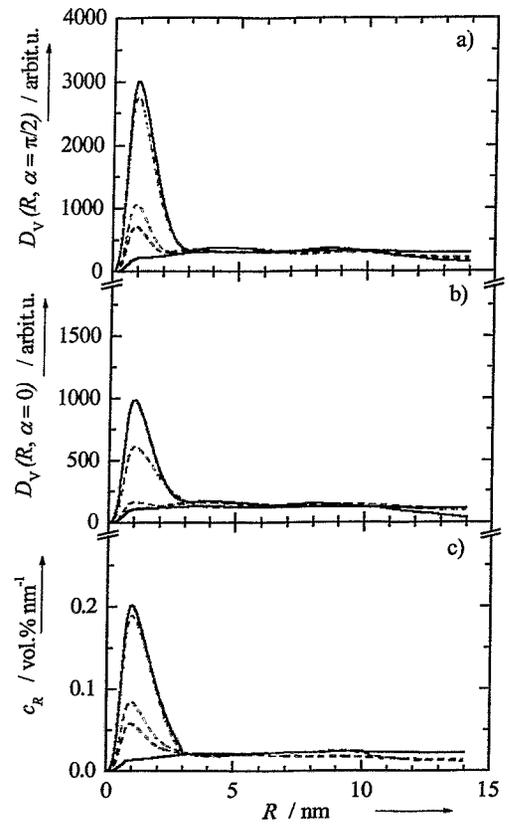


Abb. 4.36: Volumenanteil-Größenverteilungskurve, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.35
 a) und b) gewichtet mit Streukontrast
 c) für nicht-ferromagnetische Streudefekte

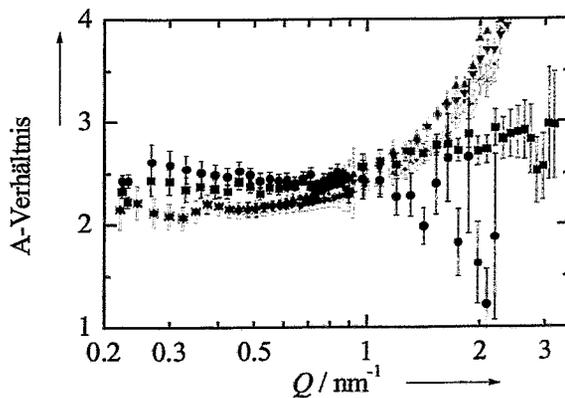


Abb. 4.37: A-Verhältnisse für Werkstoff KAB-B, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.35

Abn. 4.35 – 4.37:
 SANS-Ergebnisse für RDB-Stahl
 15Xh2MFA, Charge KAB

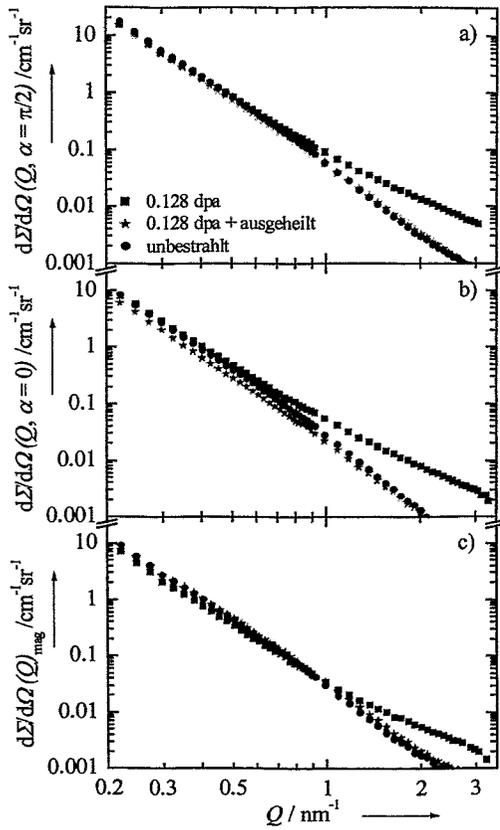


Abb. 4.38: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

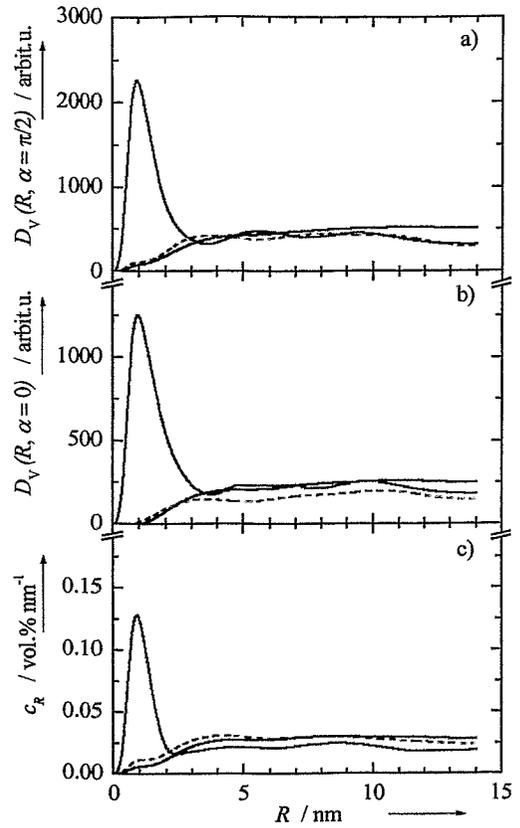


Abb. 4.39: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.38, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

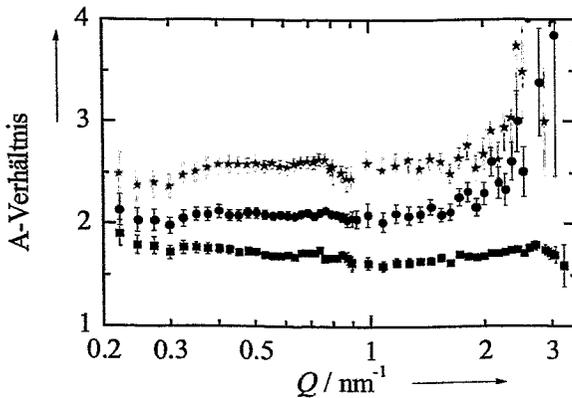


Abb. 4.40: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.38

Abn. 4.38 – 4.40:
SANS-Ergebnisse für RDB-Stahl
15Kh2MFA, Charge D25

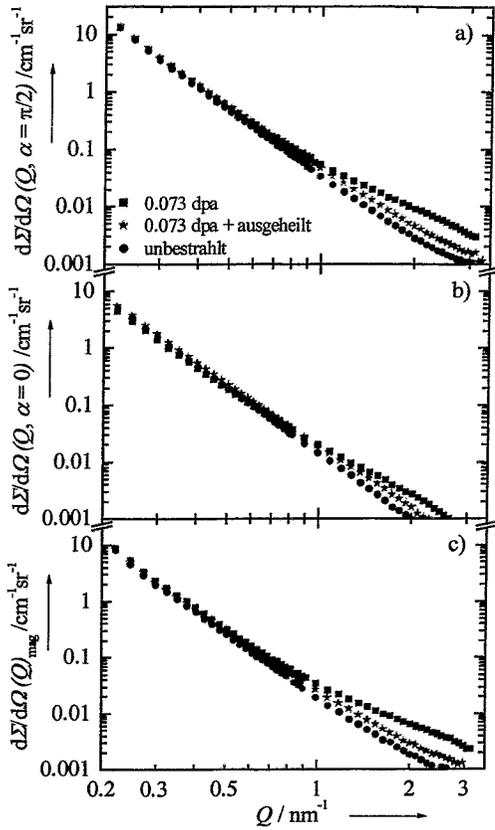


Abb. 4.41: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

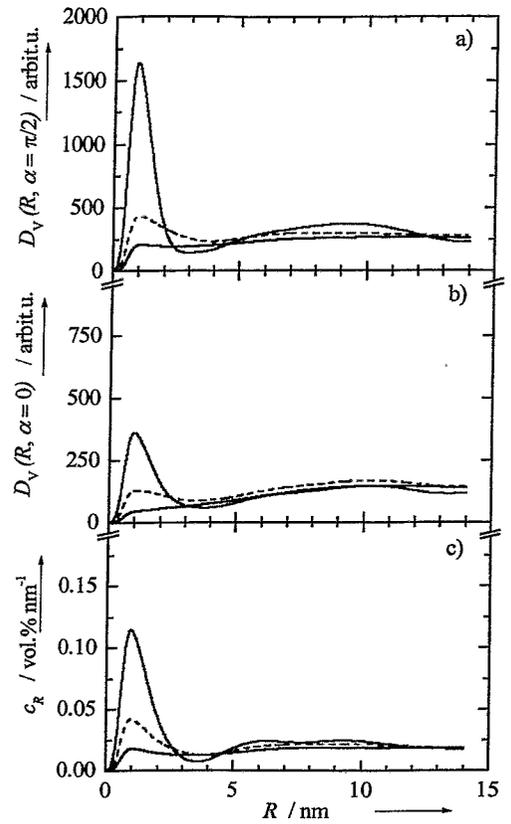


Abb. 4.42: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.41, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

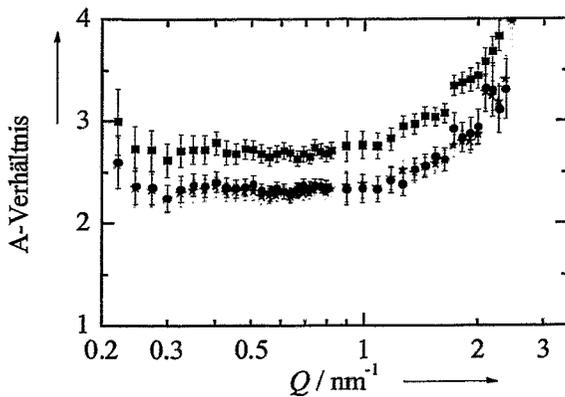


Abb. 4.43: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.41

Abbn. 4.41 – 4.43:
SANS-Ergebnisse für RDB-Stahl
15Kh2NMFAA, Charge R17

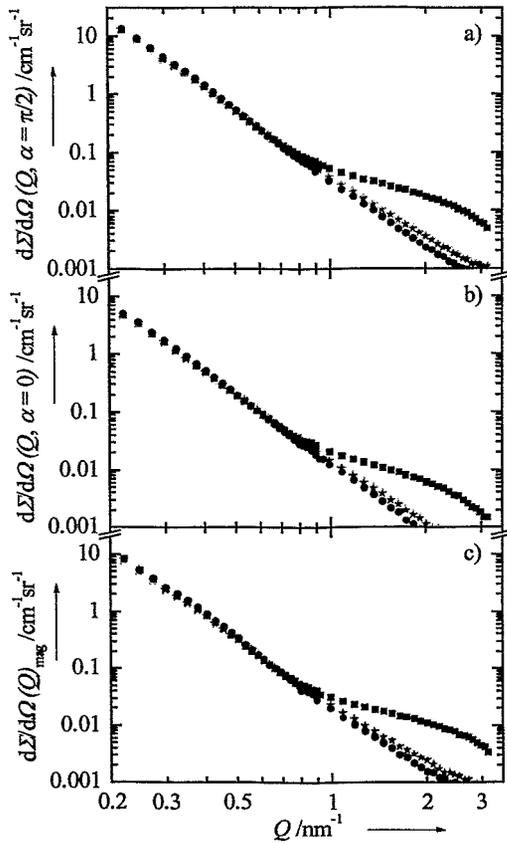


Abb. 4.44: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

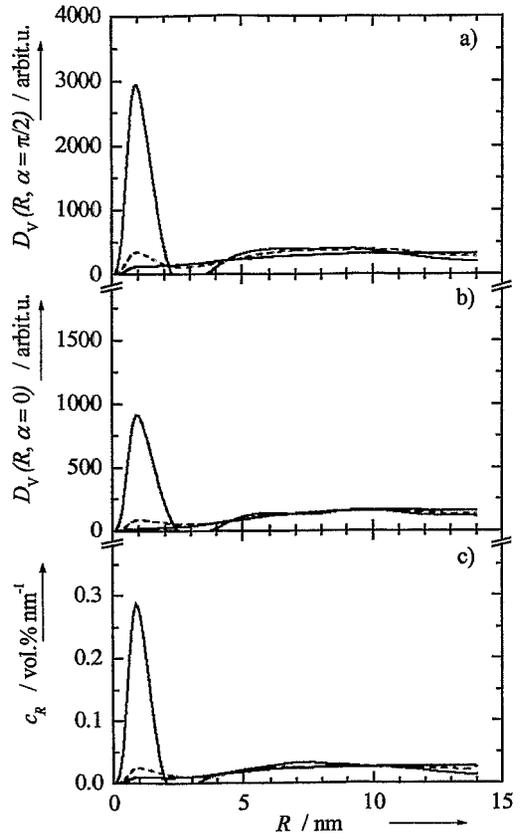


Abb. 4.45: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.44, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

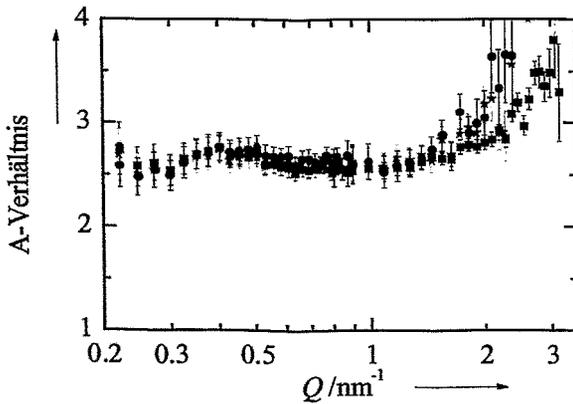


Abb. 4.46: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.44

Abn. 4.44 – 4.46:
SANS-Ergebnisse für Schweißwerkstoff
10KhGMFAA, Charge R19

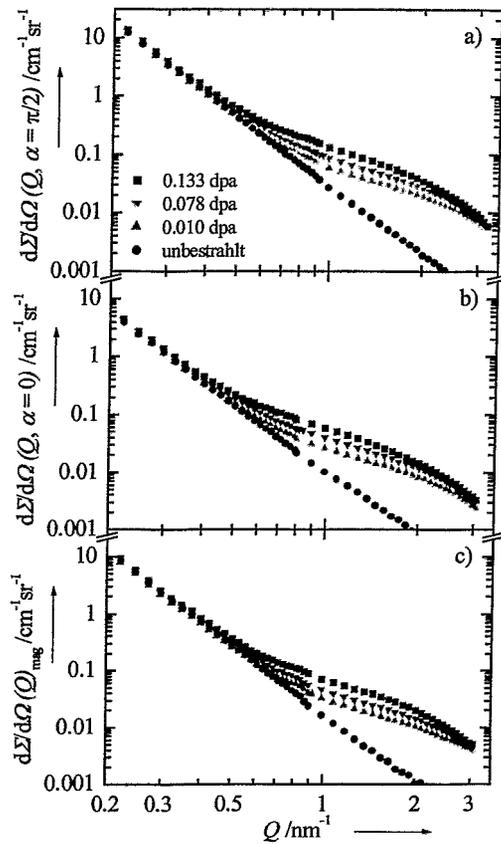


Abb. 4.47: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte, a) Gesamtstreuwirkungsquerschnitt, b) Kernstreuwirkungsquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

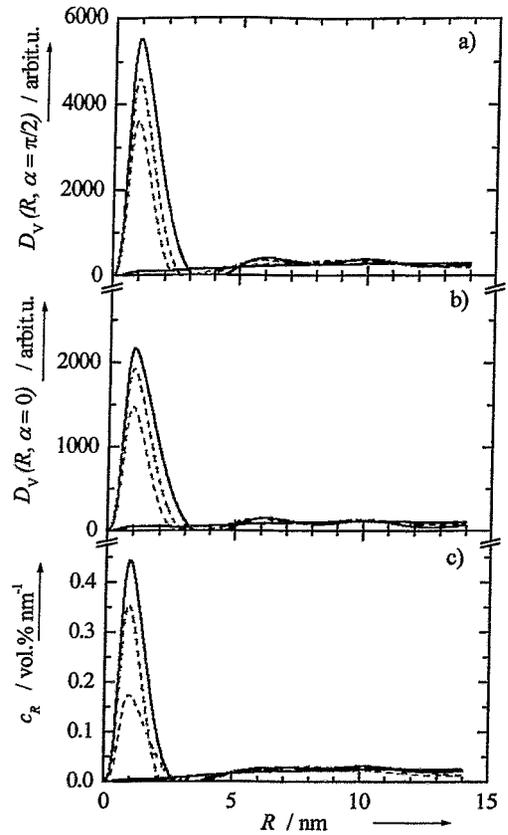


Abb. 4.48: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.47, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

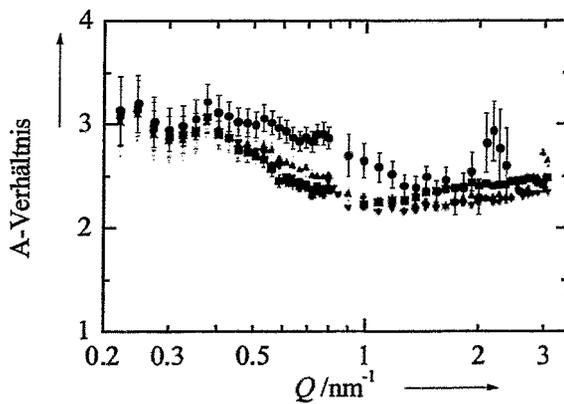


Abb. 4.49: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.47

Abb. 4.47 – 4.49:
SANS-Ergebnisse für RDB-Stahl
A533 B Cl. 1, Charge JRQ

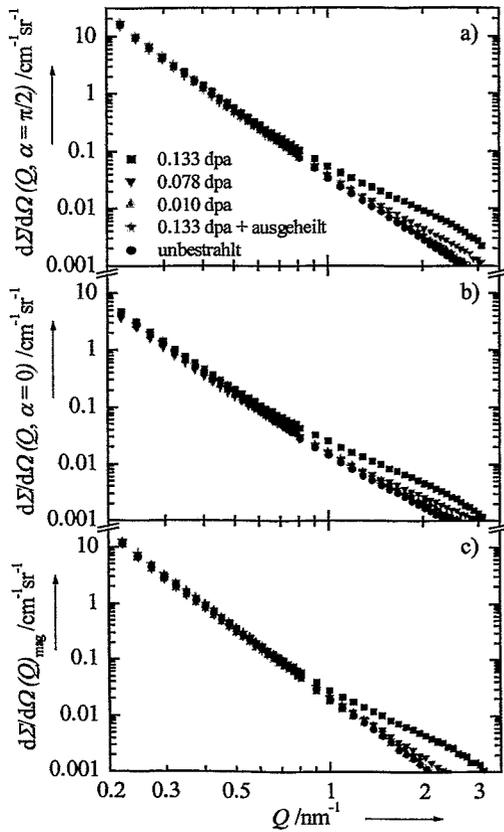


Abb. 4.50: Kohärente Streuwirkungsquerschnitte, a) Gesamtstreuquerschnitt, b) Kernstreuquerschnitt und c) magnetischer Streuwirkungsquerschnitt

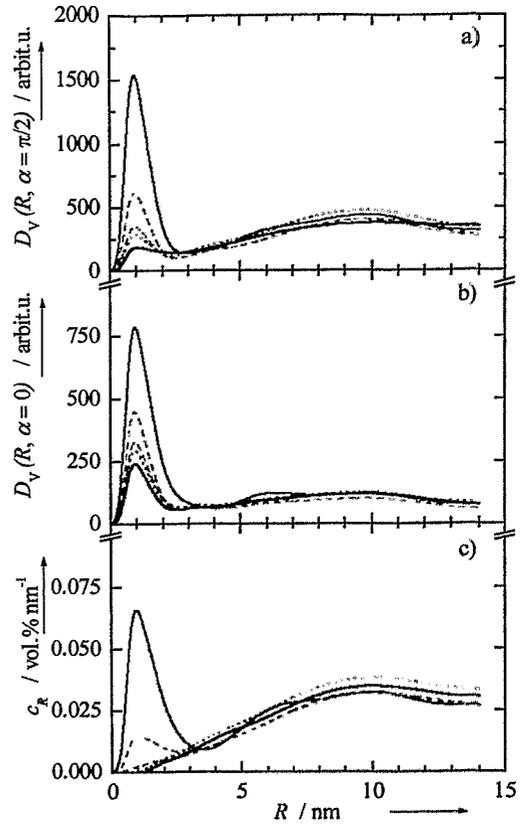


Abb. 4.51: Volumenverteilungsfunktionen von Strukturinhomogenitäten, berechnet aus dem Streuverlauf nach Abb. 4.50, a) und b) gewichtet mit Streukontrast, in willkürlichen Einheiten, c) für nicht-ferromagnetische Teilchen

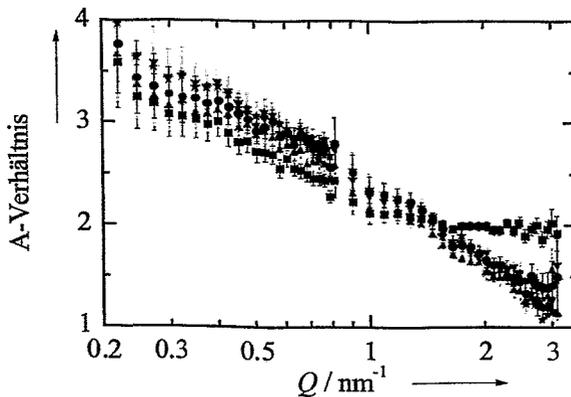


Abb. 4.52: A-Verhältnisse, berechnet aus dem Streuverlauf der Abb. 4.50

Abbn. 4.50 – 4.52:
SANS-Ergebnisse für RDB-Stahl
A508 Cl. 3, Charge JFL

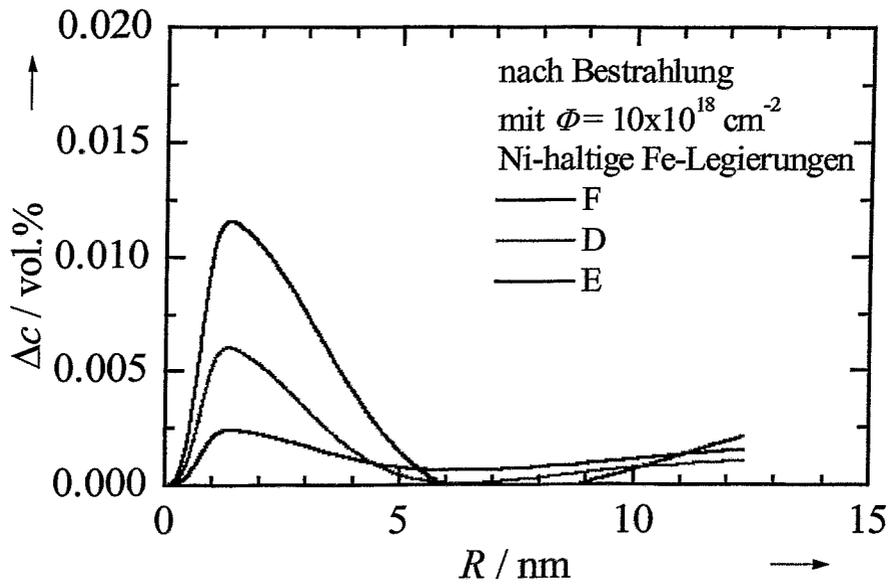
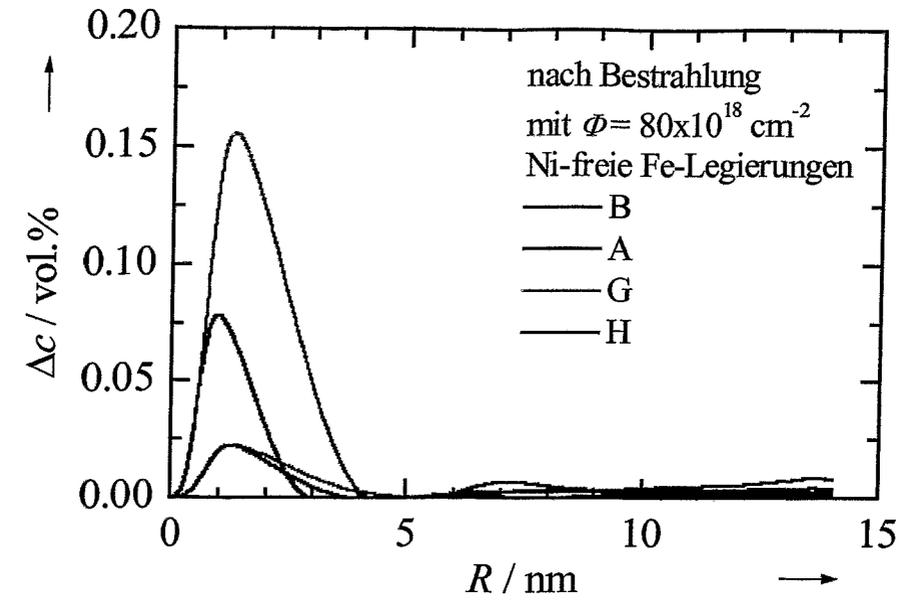


Abb. 4.53: Volumenanteil-Größenverteilungskurve für nickelfreie (oben) und nickelhaltige (unten) Fe-Basis-Mehrstofflegierungen

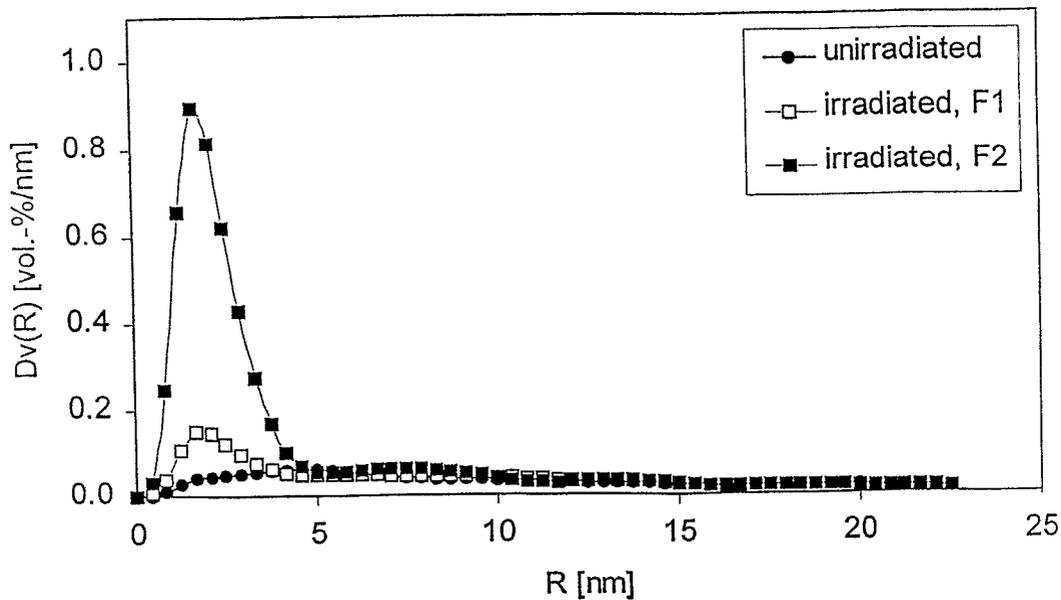


Abb. 4.54: Größenverteilungsfunktion für das Surveillance-Schweißmetall AR-W (F2) und RO-W (F1)

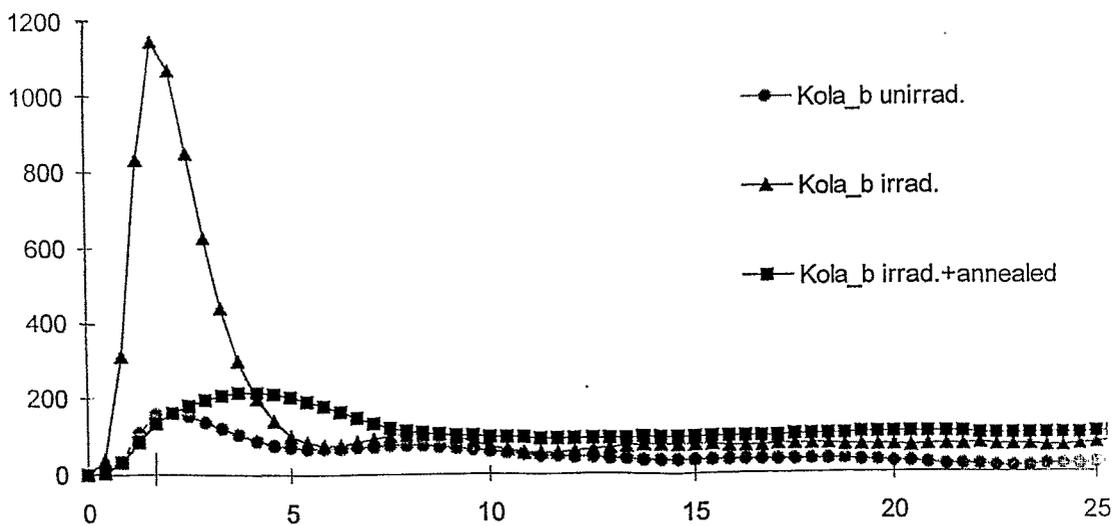


Abb. 4.55: Größenverteilungsfunktion für die Surveillance-Probe KO-B

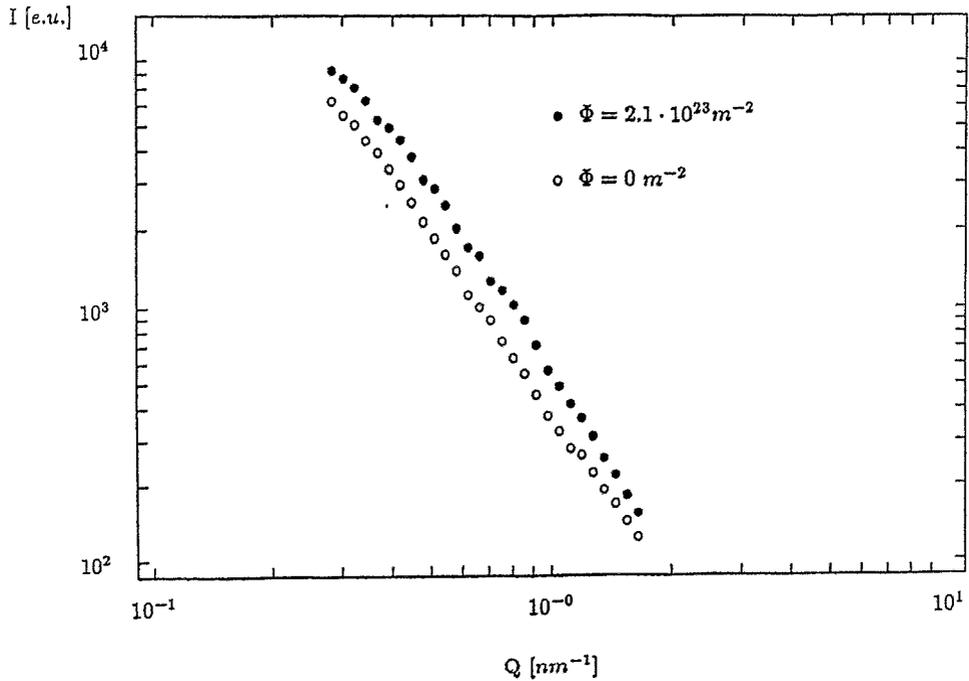


Abb. 4.56: SAXS-Intensitätsverlauf bei einer Röntgenenergie von 5,471 keV für einen RDB-Stahl 15Kh2MFA (Hersteller: Skoda-Werke) im unbestrahlten Zustand und nach einer Bestrahlung mit $\Phi = 21 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] bei $306 \text{ }^\circ\text{C}$

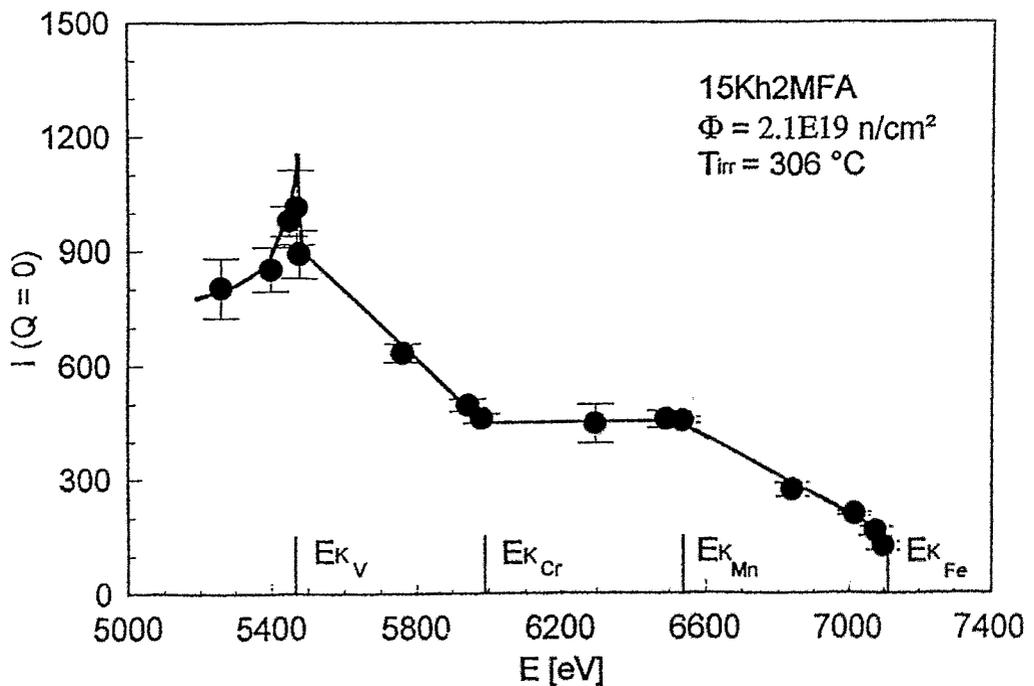


Abb. 4.57: Energieabhängigkeit der Differenz der SAXS-Intensität bei $Q = 0$ zwischen dem bestrahlten und unbestrahlten Zustand (Werkstoff und Zustand wie in Abb. 4.56)

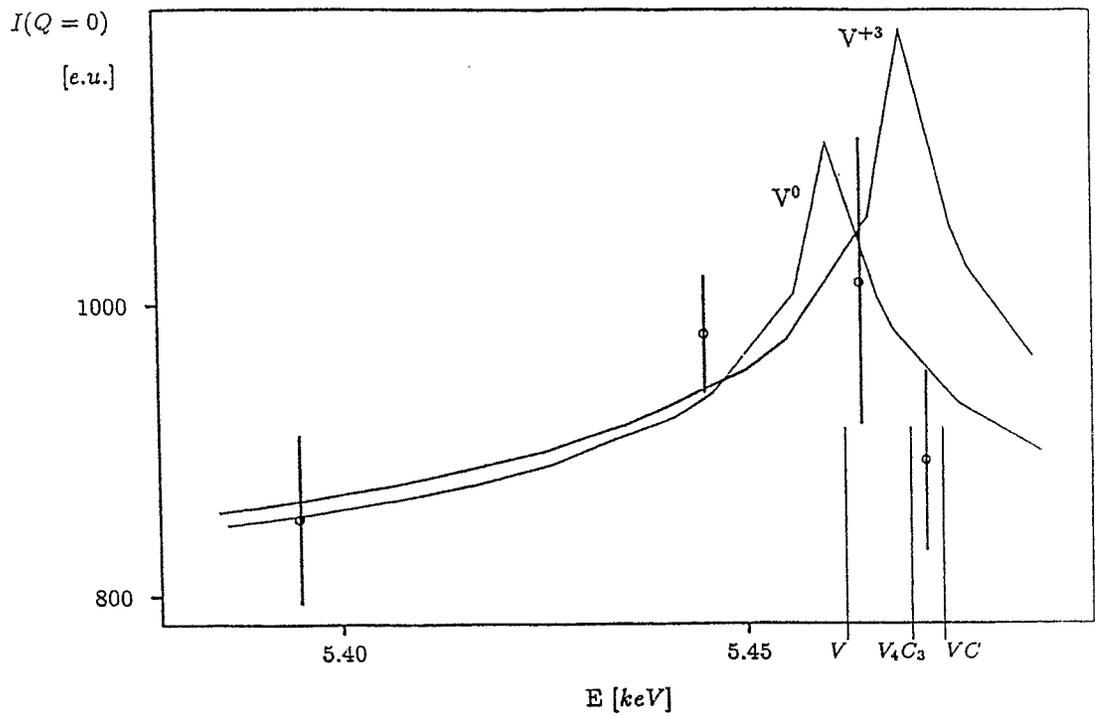


Abb. 4.58: Vergleich der Energieabhängigkeit der SAXS-Streuintensität in der Nähe der $V_{K\alpha}$ -Kante für Vanadium in unterschiedlicher Wertigkeit (Kurve V^0 , Wertigkeit = 0, Kurve V^{+3} , Wertigkeit = +3) mit der Lage der Messpunkte (Detail aus Abb. 4.57)

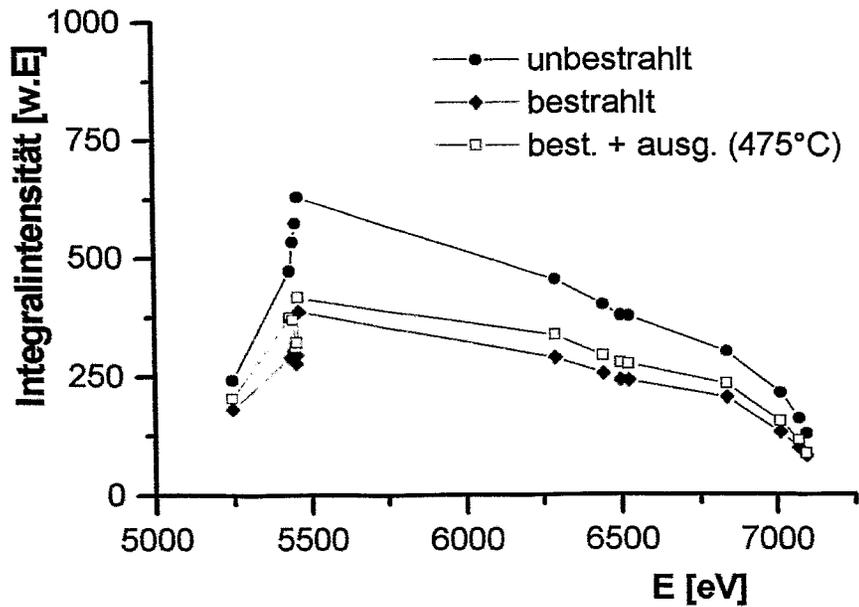


Abb. 4.59: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für den Werkstoff ESW-C

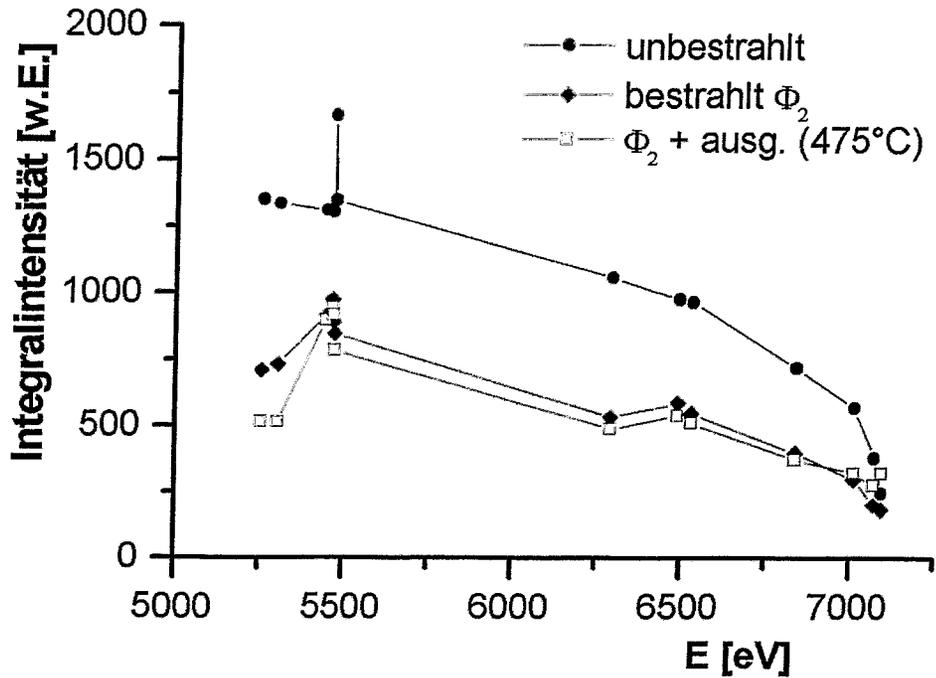


Abb. 4.60: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für der Werkstoff KAB-3

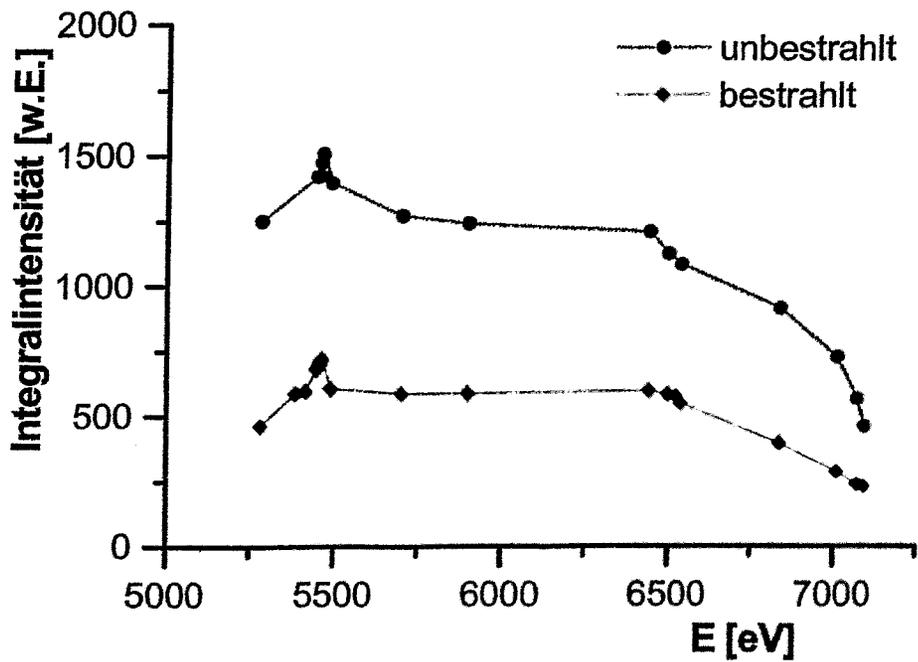


Abb. 4.61: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für das Surveillance-Material KO-B

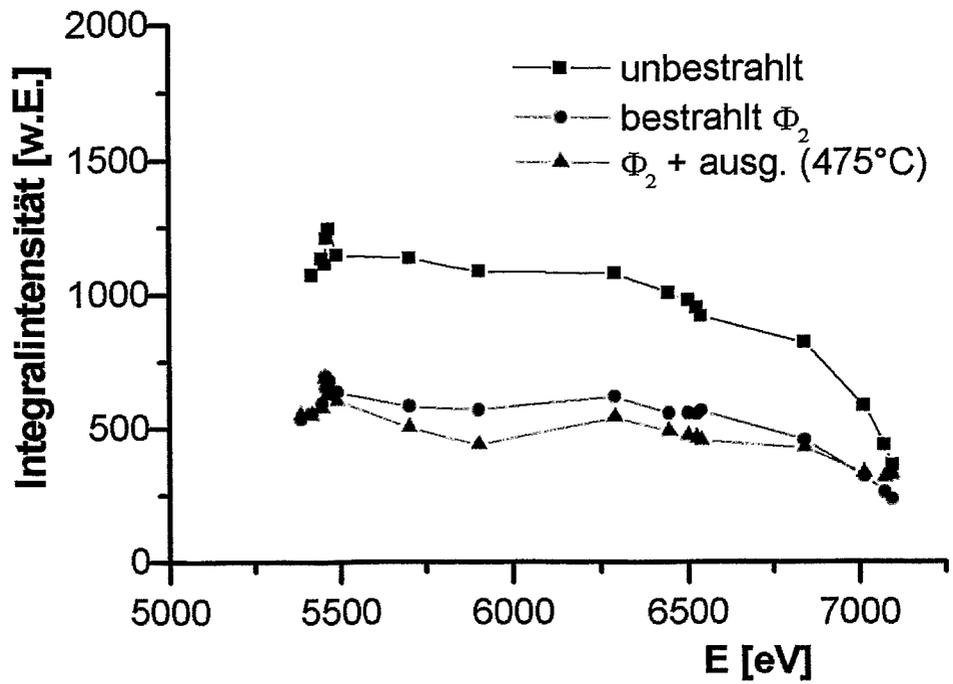


Abb. 4.62: Energieabhängigkeit der integralen SAXS-Intensität für den Werkstoff AR-W

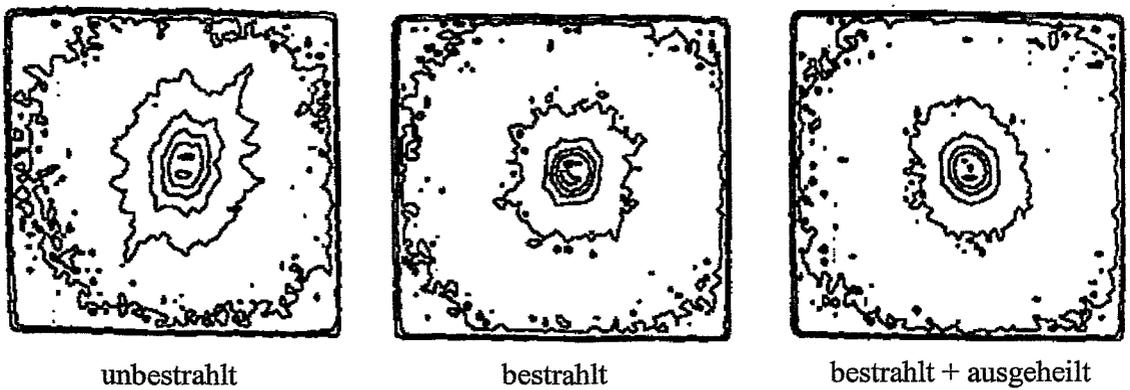


Abb. 4.63: 2-d-SAXS-Streubilder für das Surveillance-Material AR-W

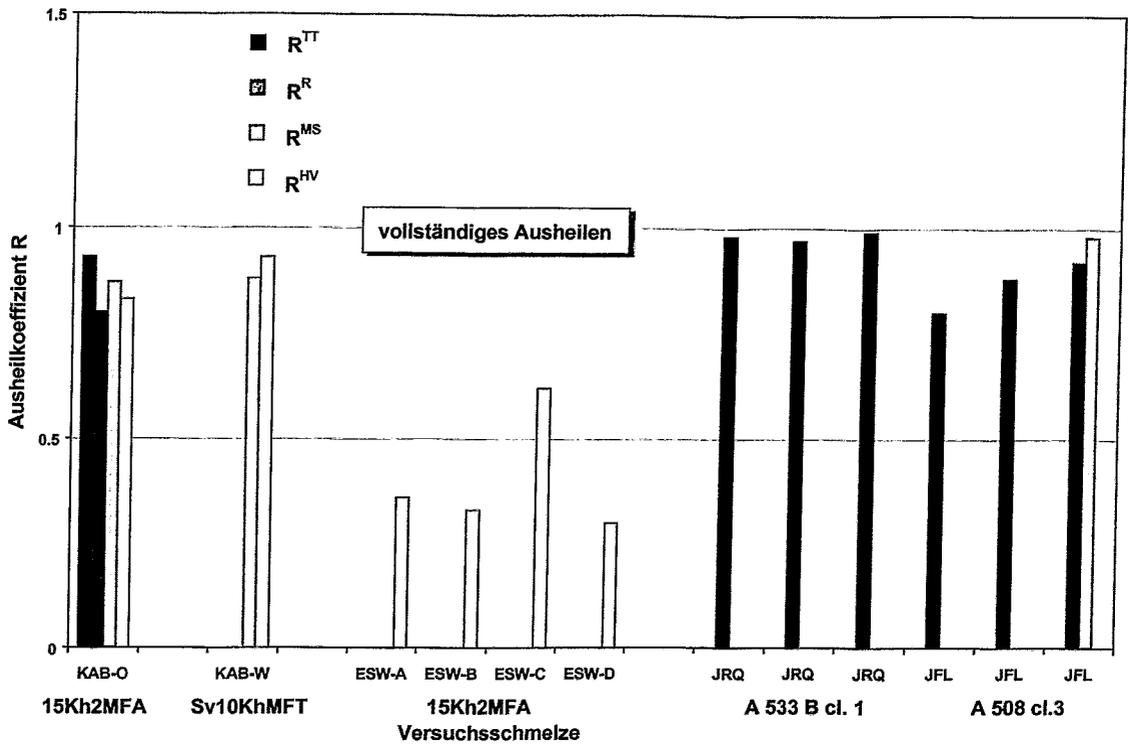


Abb. 4.64: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg I

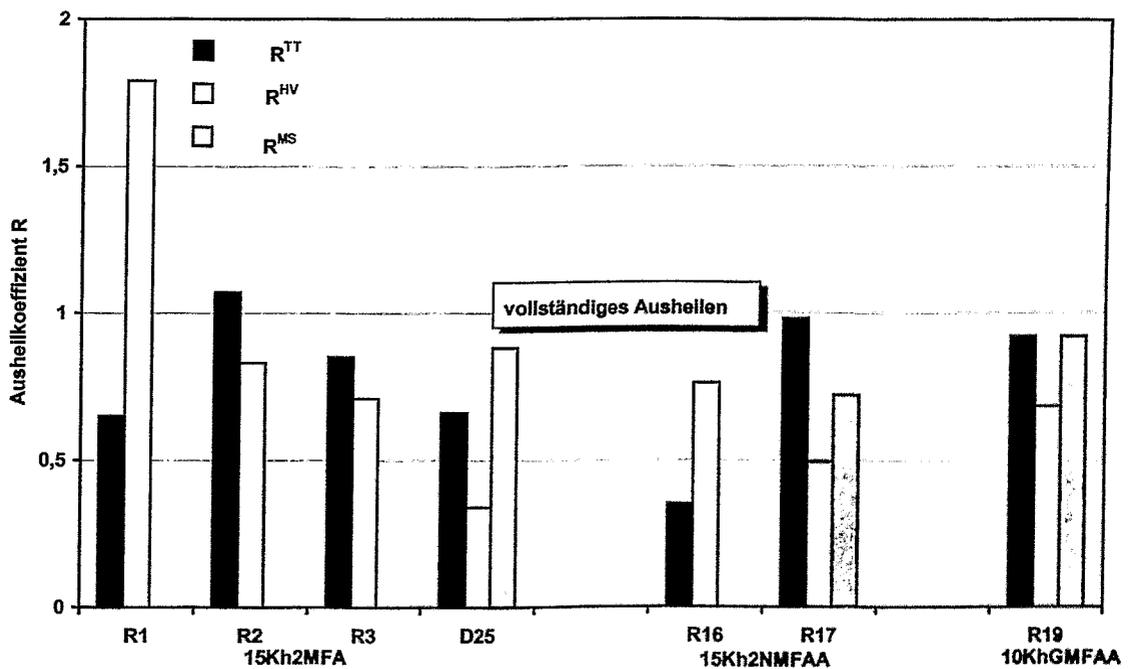


Abb. 4.65: Ausheilkoefizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Werkstoffe des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg II

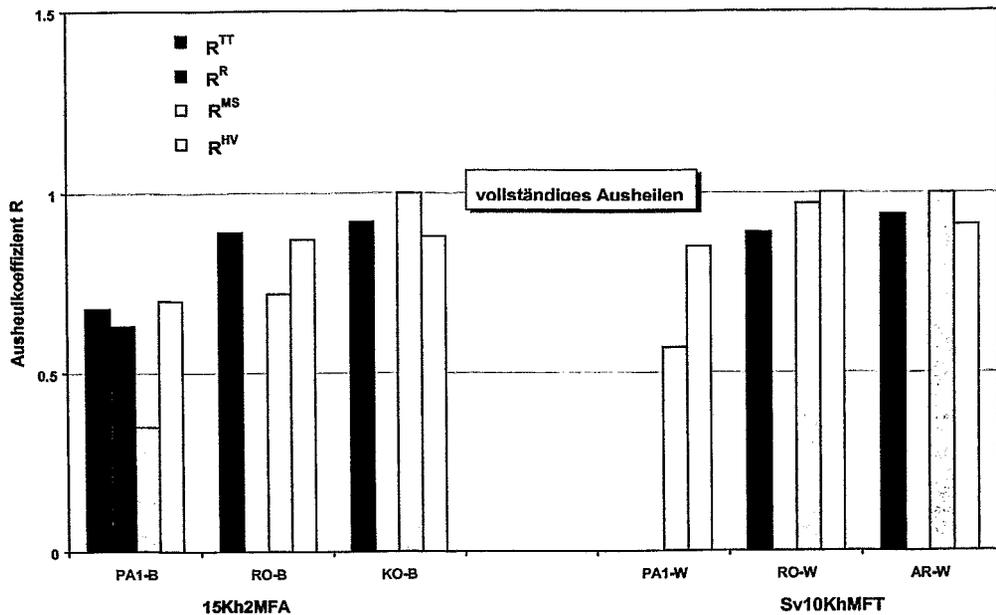


Abb. 4.66: Ausheilungskoeffizienten R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Surveillance-Proben

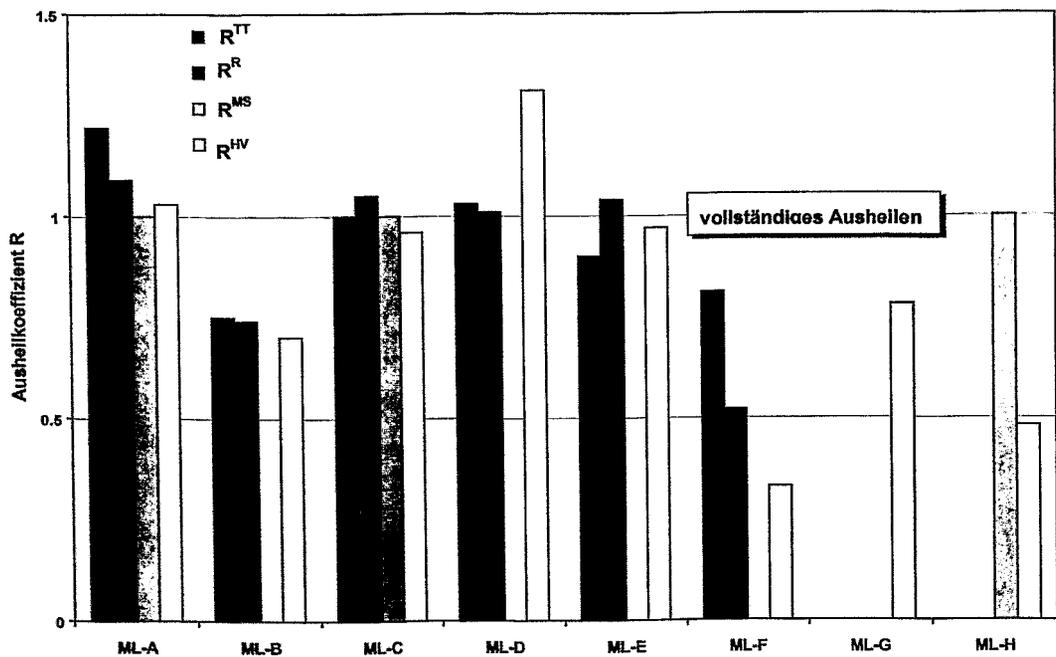


Abb. 4.67: Ausheilungskoeffizienten für R^{TT} , R^R , R^{HV} und R^{MS} für die Fe-Basis-Mehrstofflegierungen

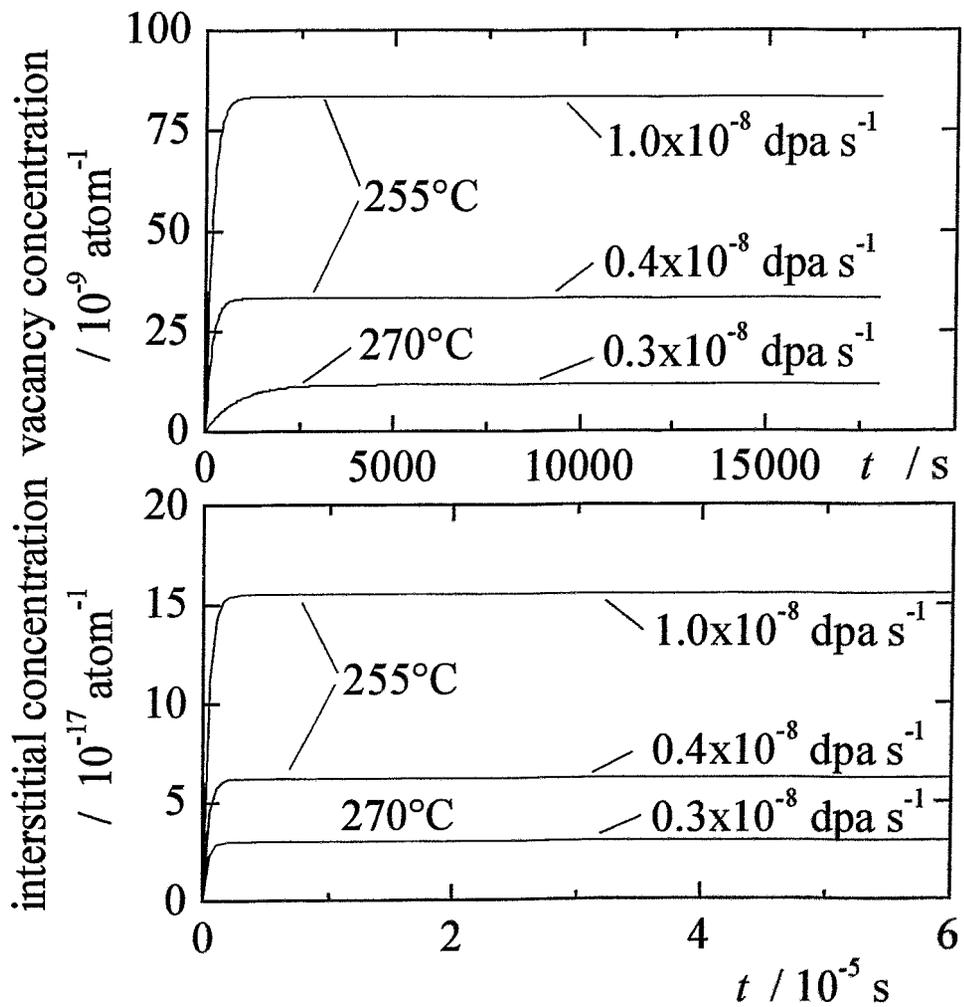


Fig. 5.1: Zeitabhängigkeit der Leerstellen- (oben) und Zwischengitteratom- (unten)-Konzentration für unterschiedliche dpa-Raten und Bestrahlungstemperaturen

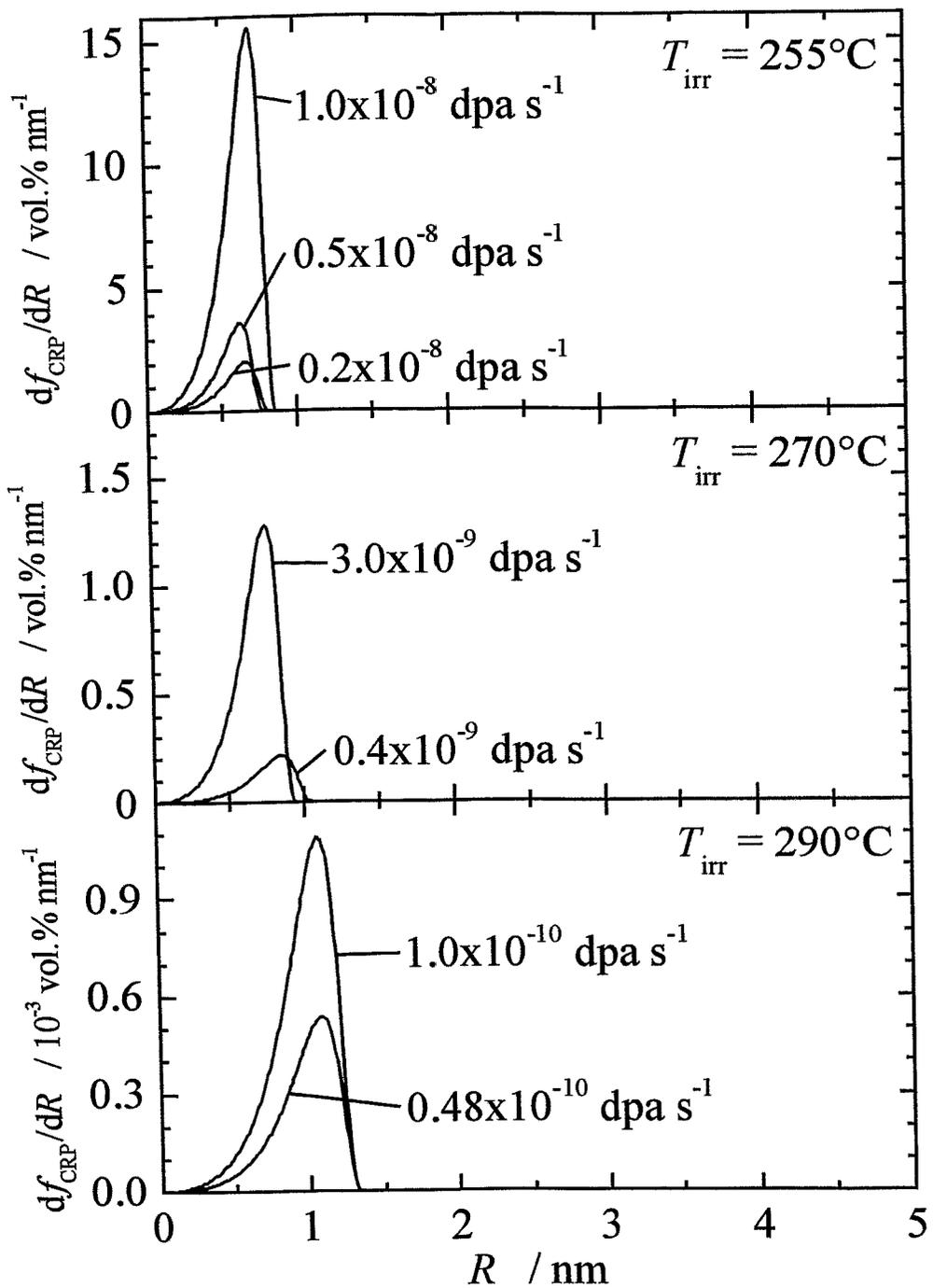


Fig. 5.2: Größenverteilungsfunktion für Leerstellencluster nach einer einjährigen Bestrahlungszeit bei unterschiedlichen dpa-Raten und Bestrahlungstemperaturen

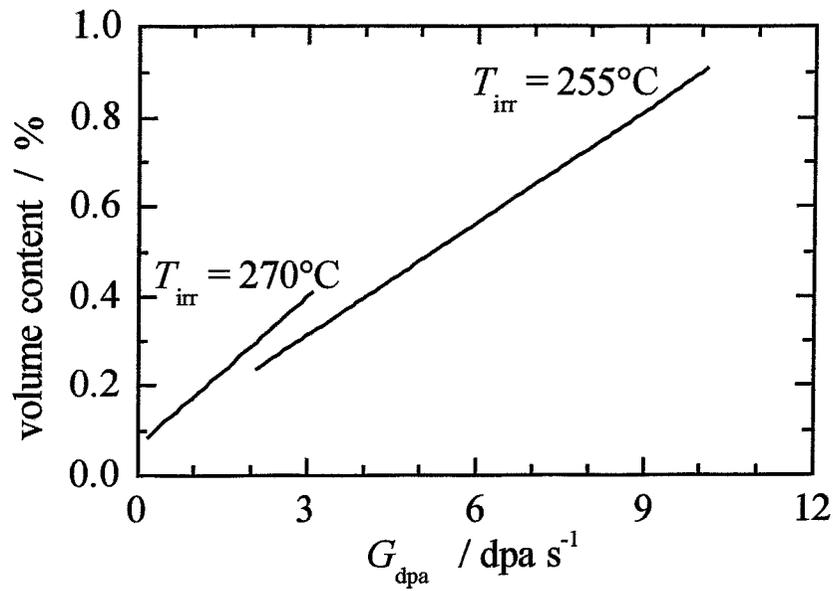


Fig. 5.3: Volumenanteil der Leerstellencluster in Abhängigkeit von der dpa-Rate nach einer 1-jährigen Bestrahlungszeit bei Bestrahlungstemperaturen T_{irr} von 255 °C und 270 °C

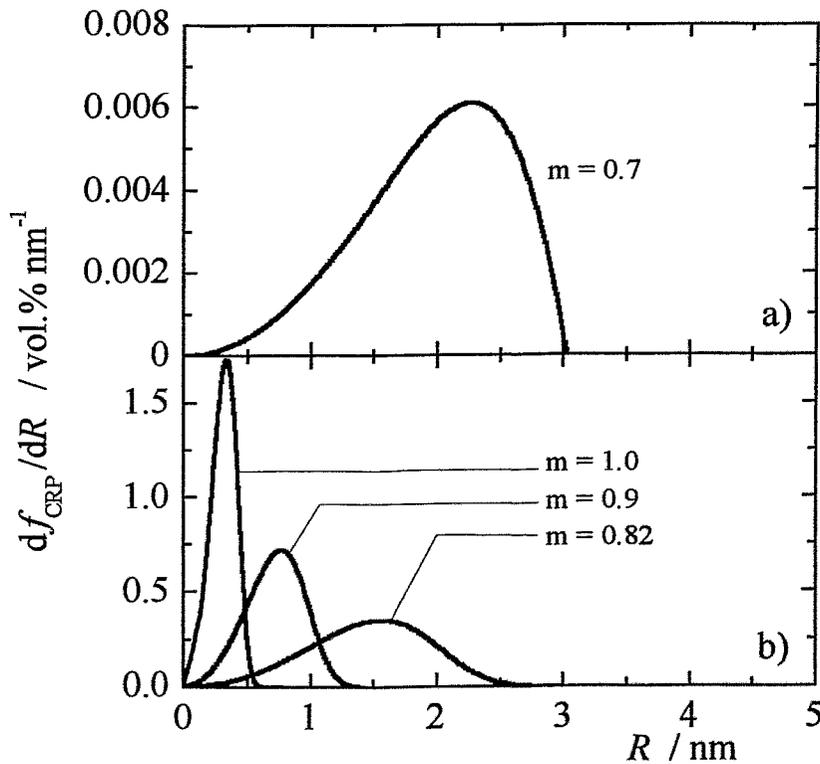


Fig. 5.4: Berechneter Verlauf der Größenverteilung für ML-B nach einer einjährigen Bestrahlung ($\phi = 80 \cdot 10^{18}/\text{cm}^2$, $E > 0,5 \text{ MeV}$) für unterschiedliche Werte von m

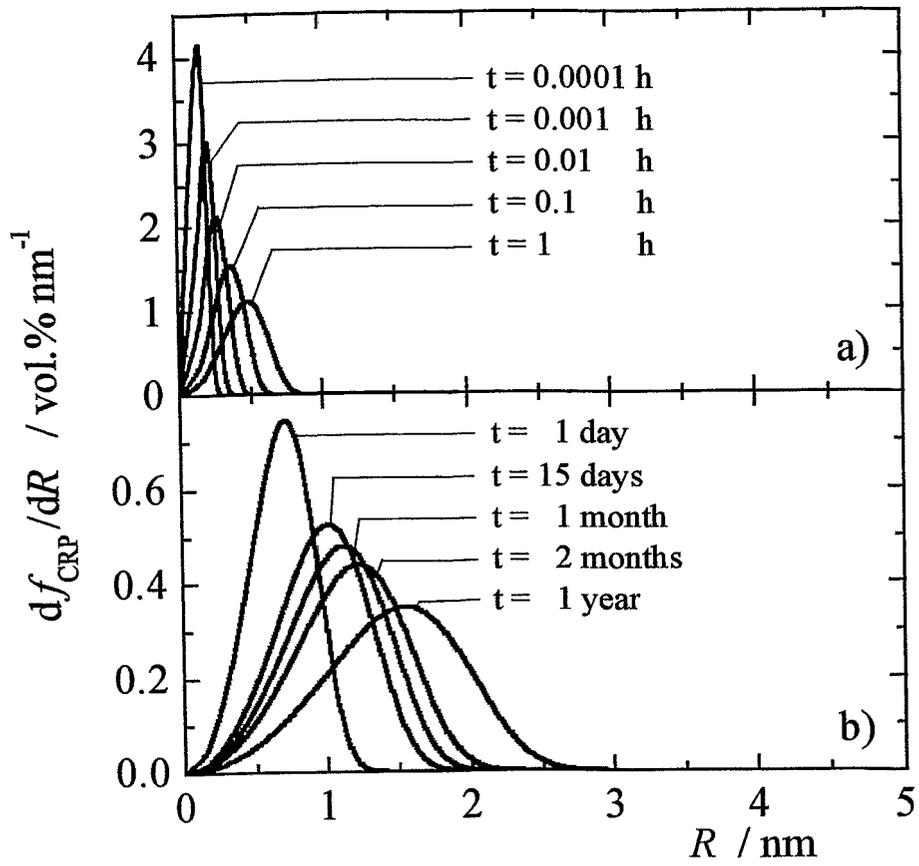


Fig. 5.5: Berechnete zeitliche Entwicklung der Größenverteilungskurven für die Fe-Basis-Mehrstofflegierung ML-B (Flussdichte = $30 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

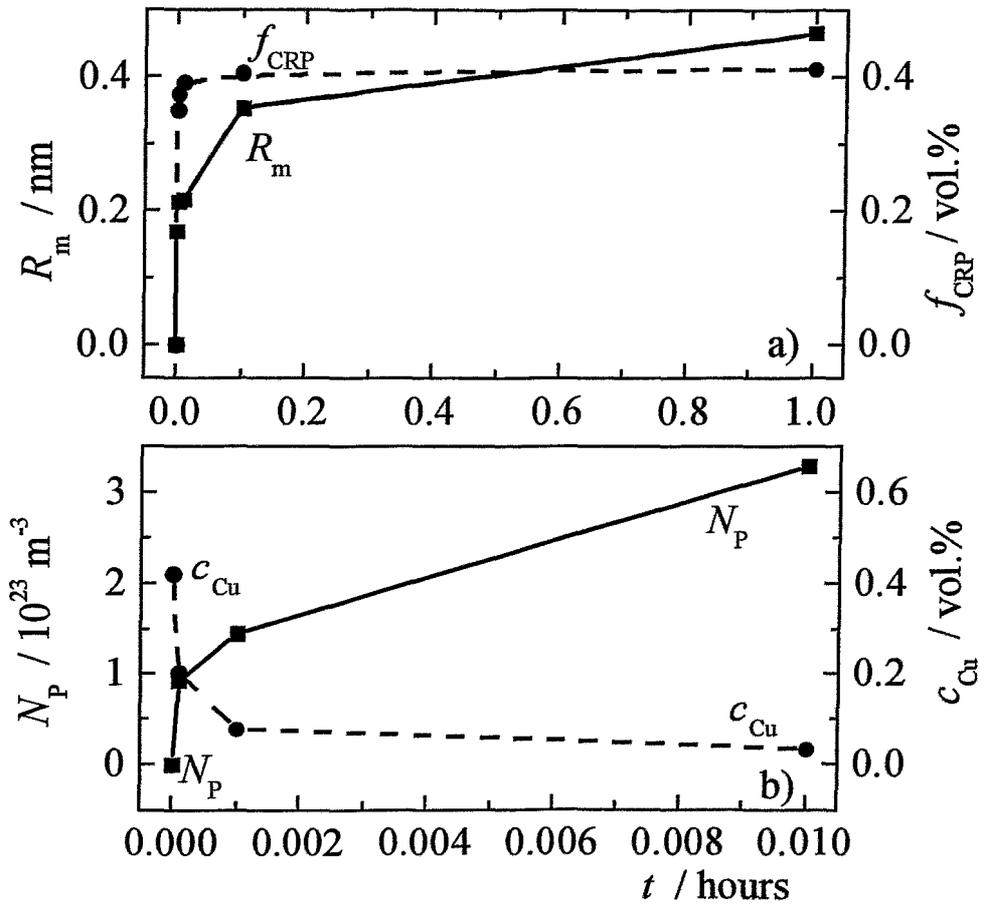


Fig. 5.6: Entwicklung des mittleren Radius R_m , des Volumenanteiles f_{crp} , der Anzahlichte N_p und der Kupferkonzentration c_{Cu} nach Modellrechnungen für die Fe-Basismehrstofflegierung ML-B (Flussdichte = $30 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)

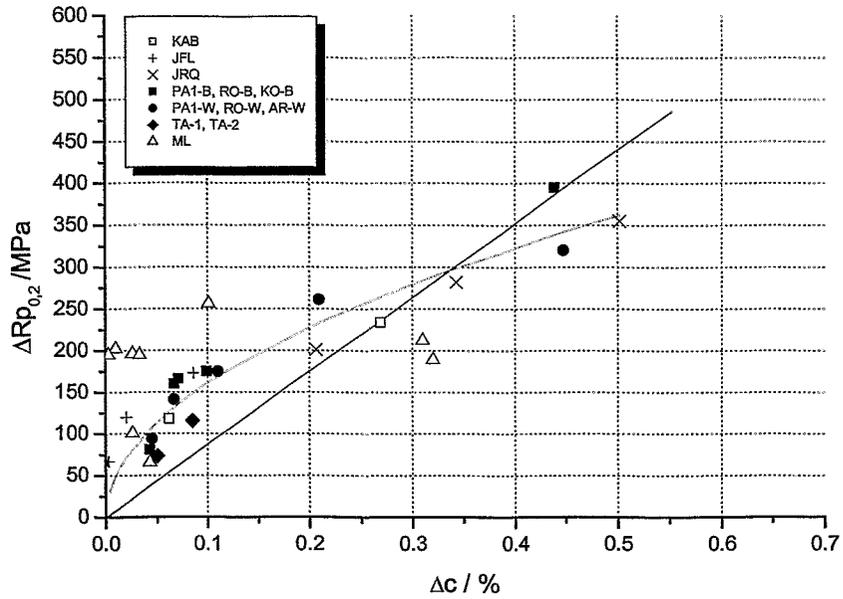


Abb. 6.1: Korrelation der strahlenbedingten Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}$ mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte

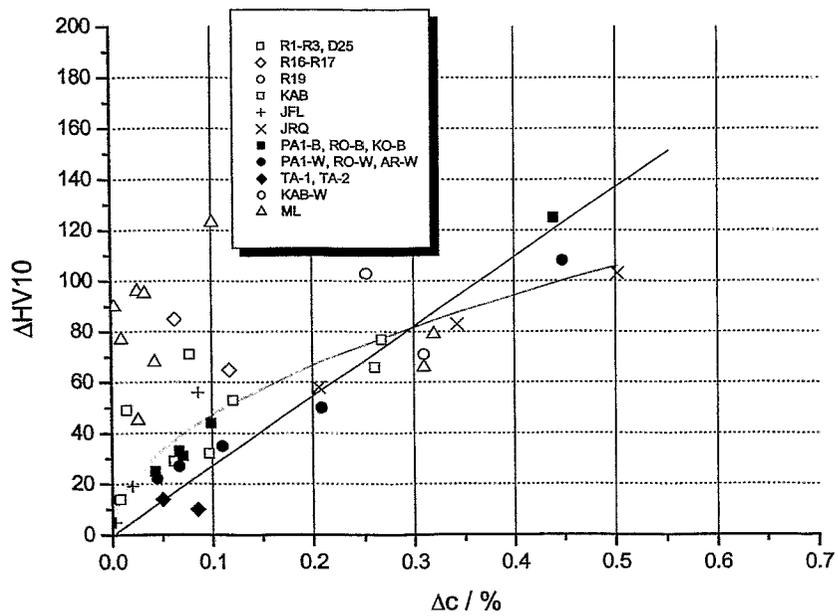


Abb. 6.2: Korrelation der strahlenbedingten Härteänderung ΔHV mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte

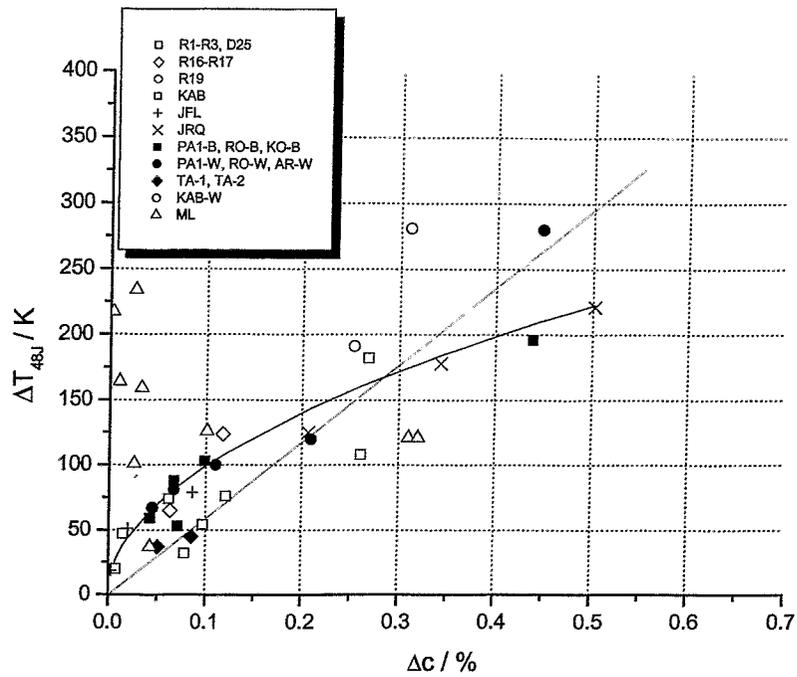


Abb. 6.3: Korrelation von Übergangstemperaturverschiebung ΔT_{48J} und Volumenanteil Δc der Strahlendefekte

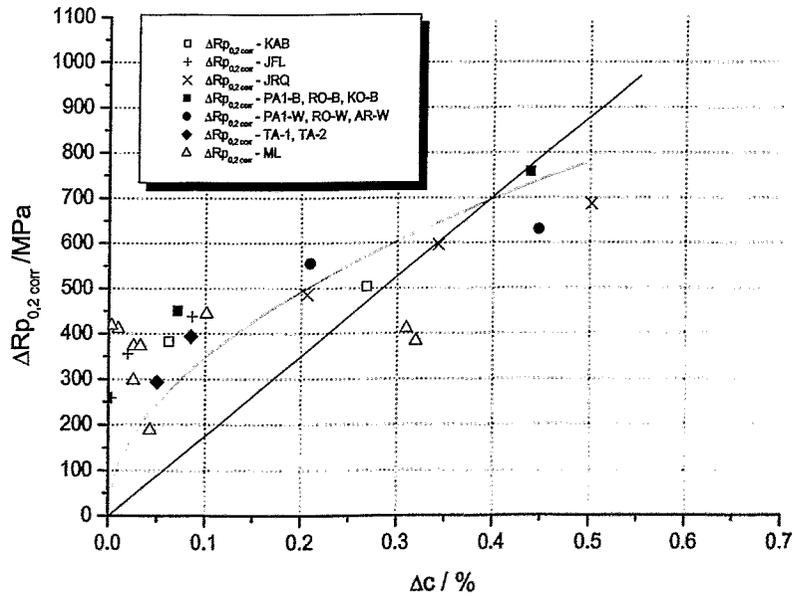


Abb. 6.4: Korrelation der strahlenbedingten Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}^{kor}$ bei nichtlinearer Superposition (berechnet mit Gl. (6.1a) mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte

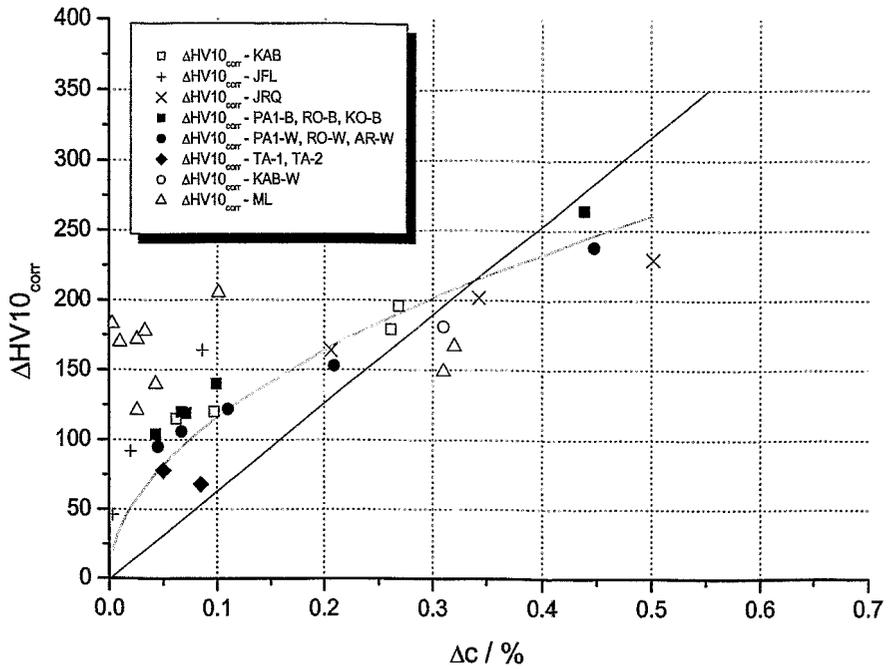


Abb. 6.5: Korrelation der strahlenbedingten Härteänderung $\Delta HV10^{corr}$ bei nicht-linearer Superposition (berechnet mit Gl. [6.1b]) mit dem Volumenanteil Δc der Strahlendefekte

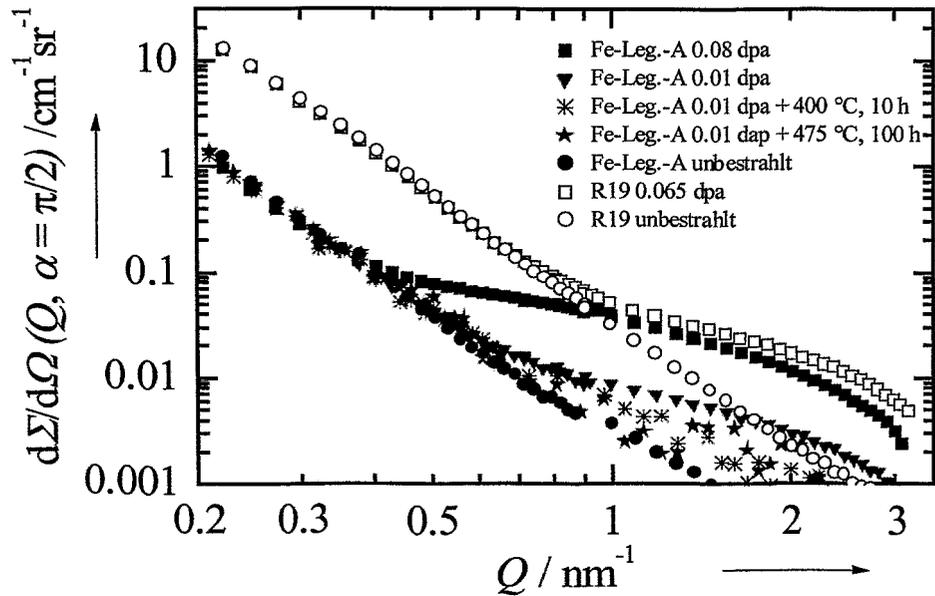


Abb. 6.6: Vergleich der SANS-Streuquerschnitte einer Fe-Basis-Mehrstofflegierung (ML-A) und eines RDB-Stahles (R19)

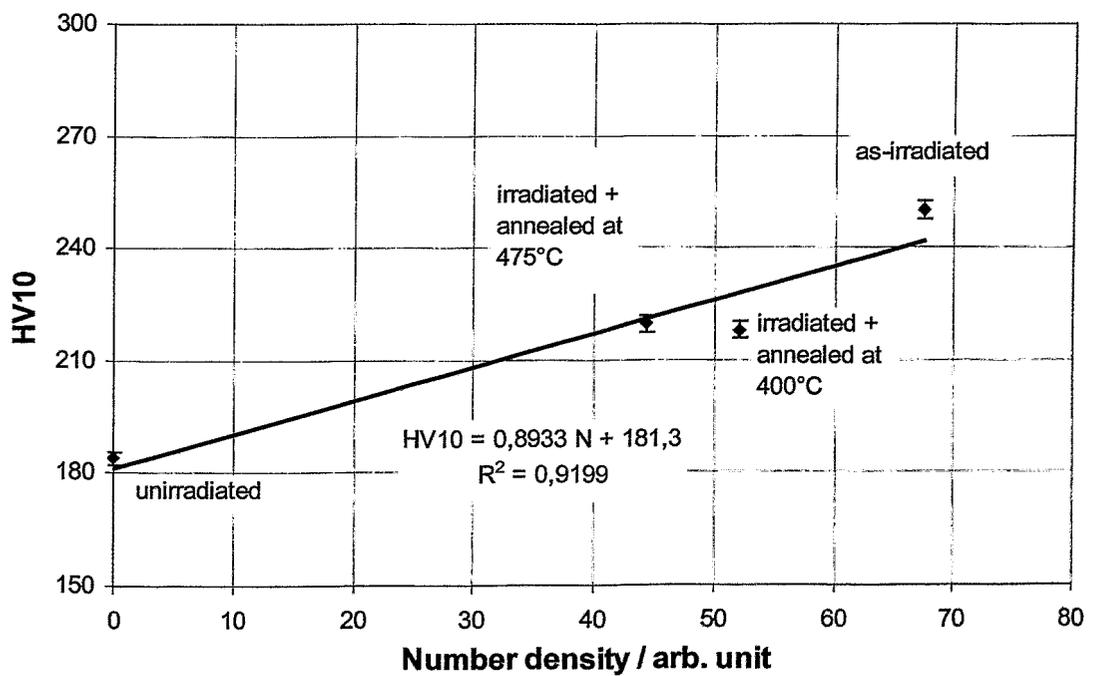
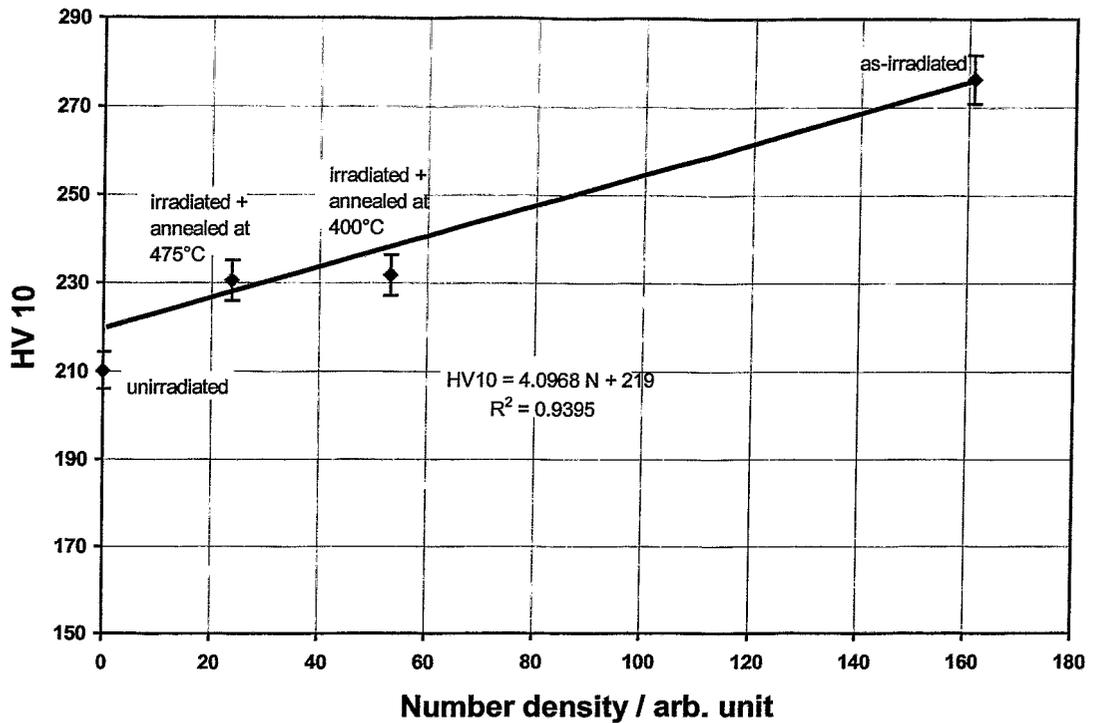


Abb. 6.7: Abhängigkeit der Härte HV10 von der Anzahlichte der feindispersen Strukturanteile für das Material KAB-B (oben) und PA-B (unten)

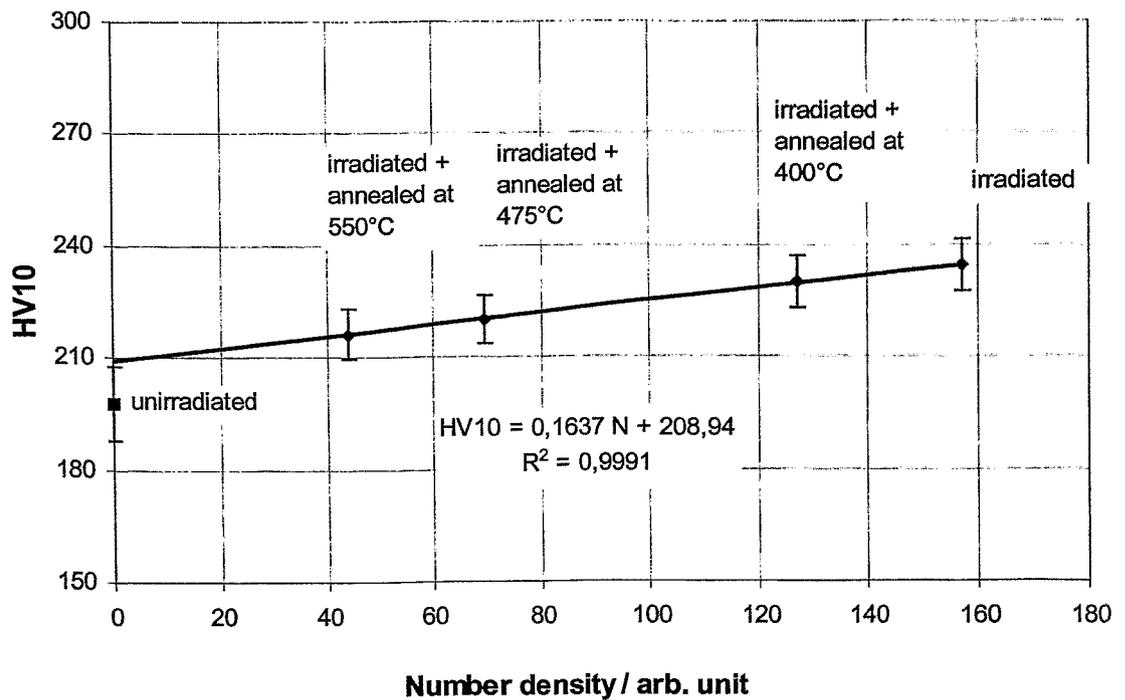
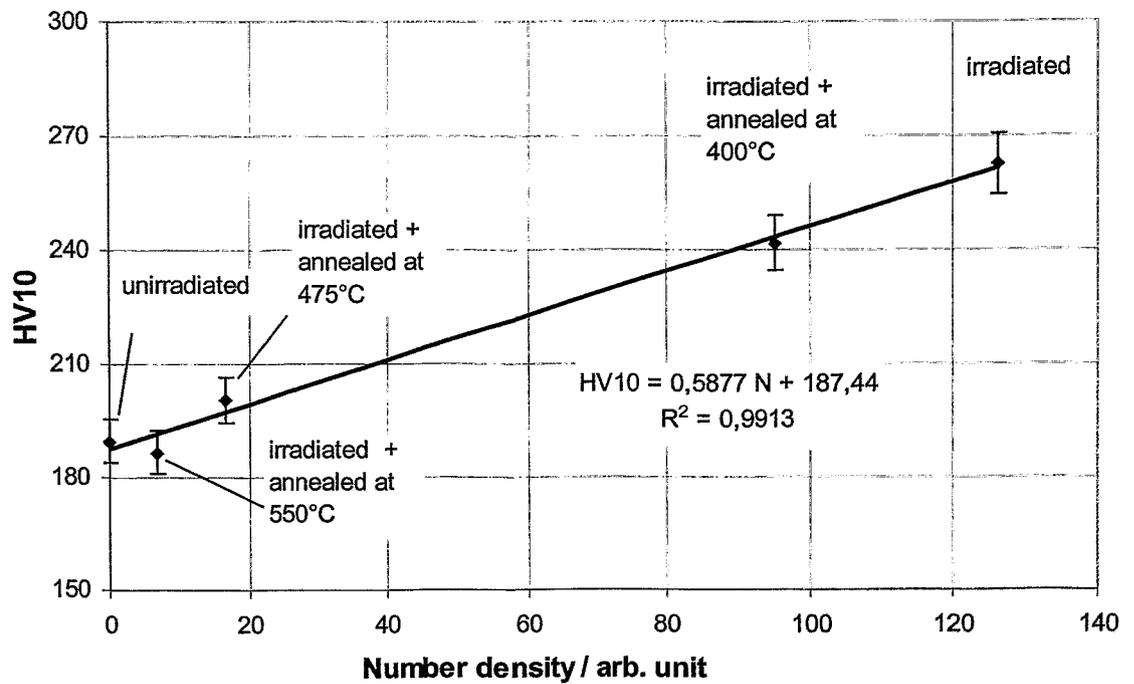


Abb. 6.8: Abhängigkeit der Härte HV10 von der Anzahlichte der feindispersen Strukturanteile für das Material KAB-W (oben) und PA1-W (unten)

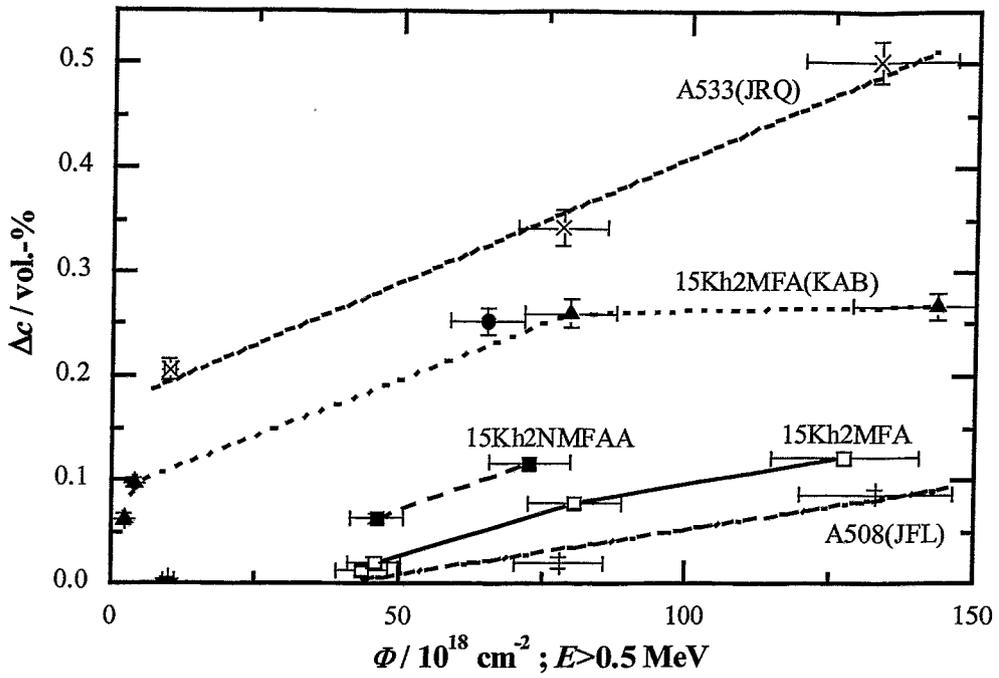


Abb. 6.9: Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte Ergebnisse des Bestrahlungsprogramms Rheinsberg

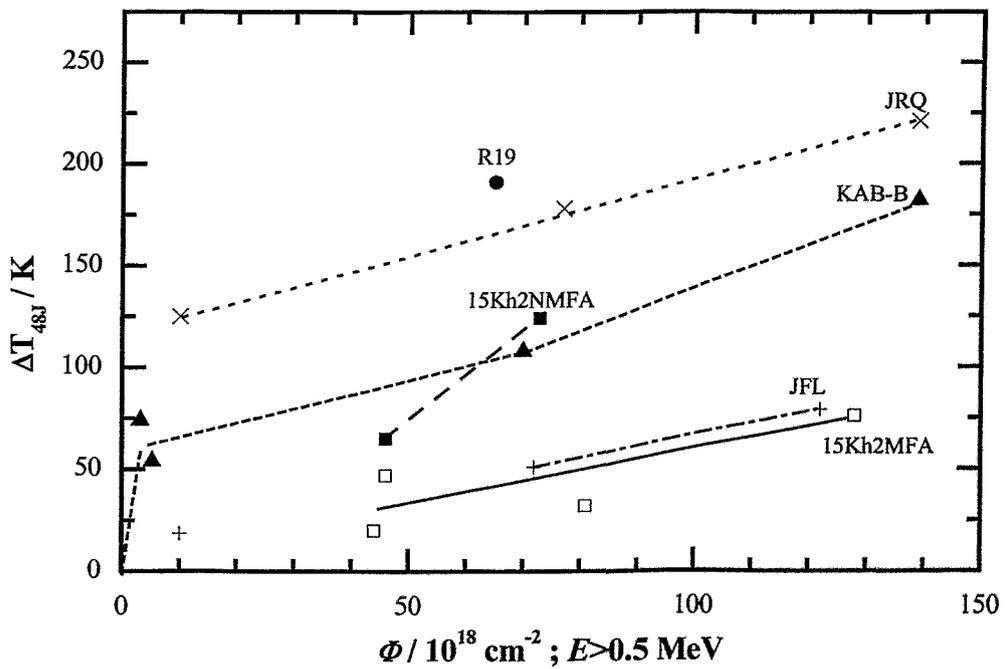


Abb. 6.10: Fluenzabhängigkeit der Verschiebung der Übergangstemperatur ΔT_{48J} Ergebnisse des Bestrahlungsprogrammes Rheinsberg

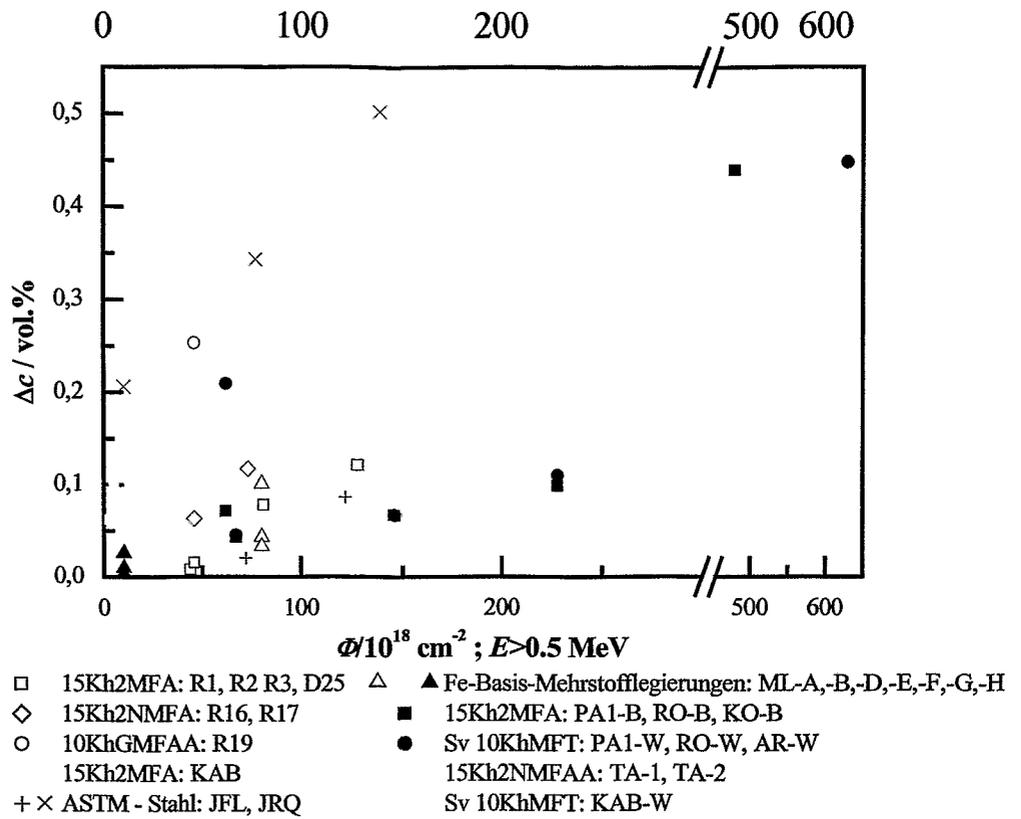


Abb. 6.11: Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte Gesamtergebnis

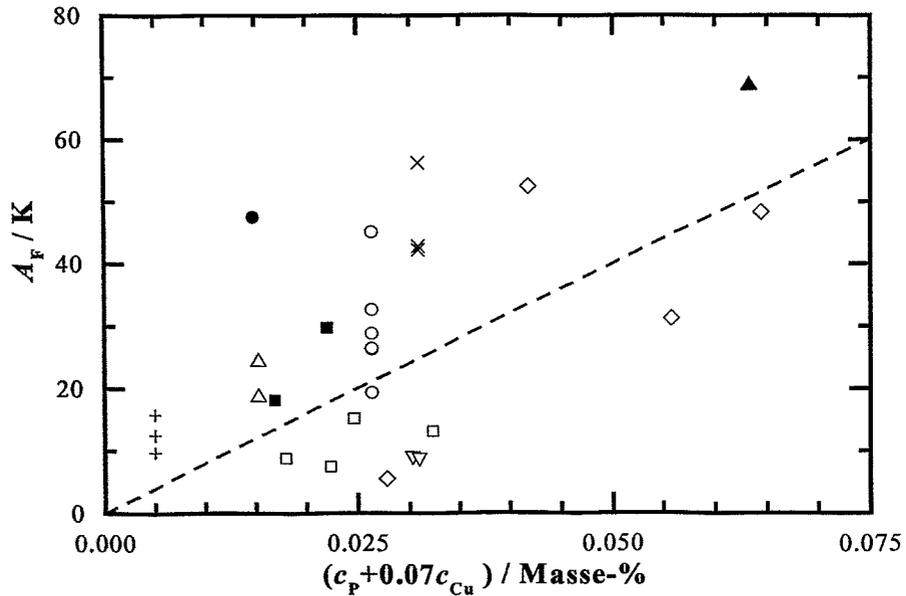


Abb. 6.12: Experimentell ermittelte Versprödungsempfindlichkeit A_F in Abhängigkeit vom Gehalt an Phosphor (c_P) und Kupfer (c_{Cu}), gewichtet nach Gleichung (6.2)

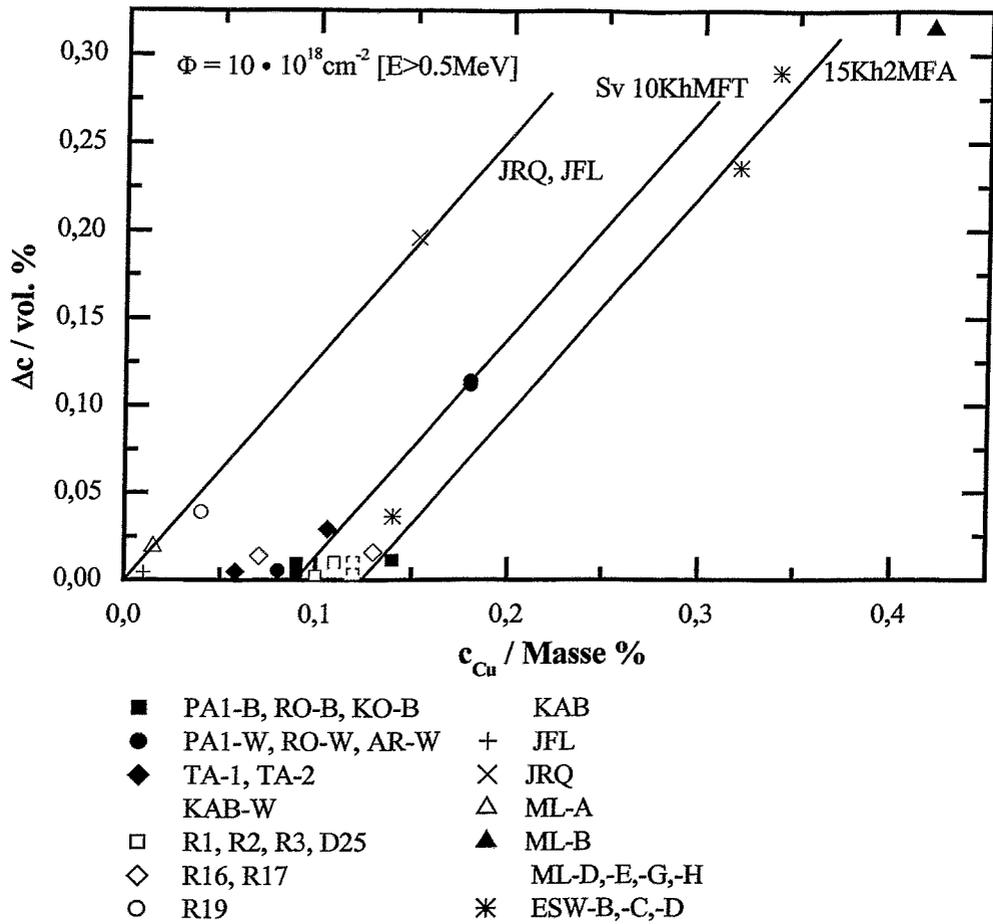


Abb. 6.13: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Cu-Gehalt nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenfluenz von $10 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,05 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))

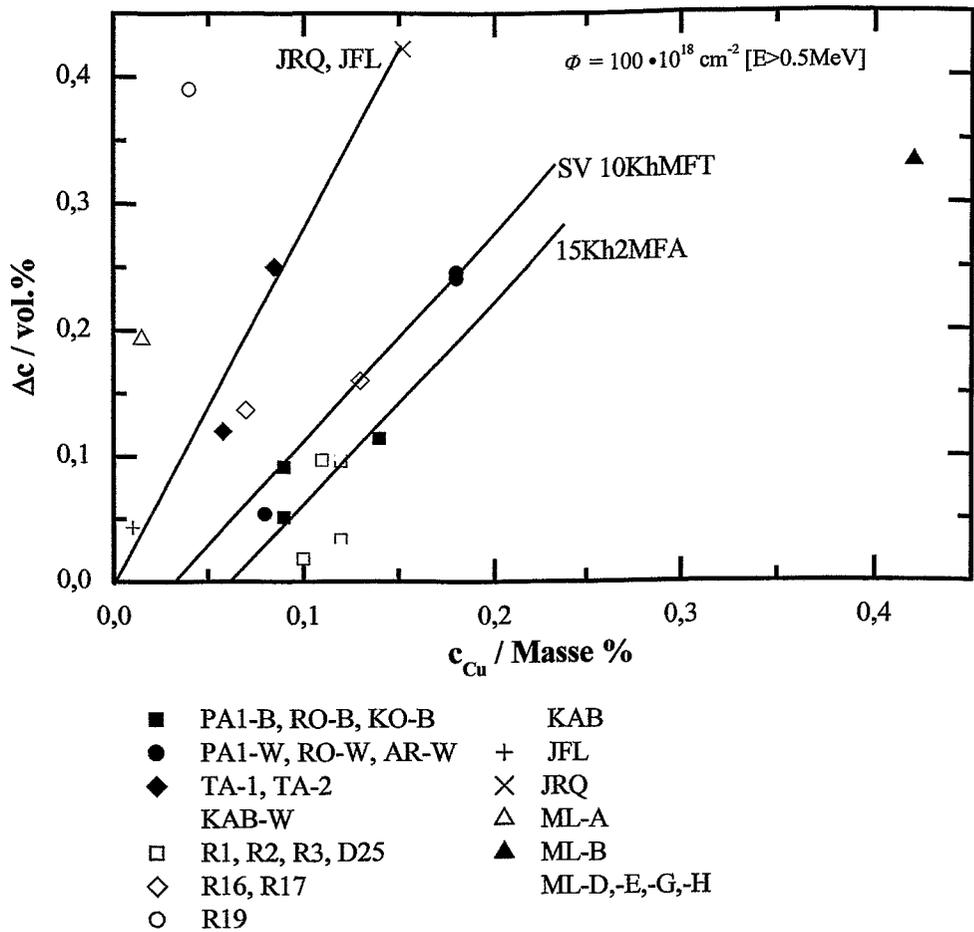


Abb. 6.14: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Cu-Gehalt nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenfluenz von $100 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))

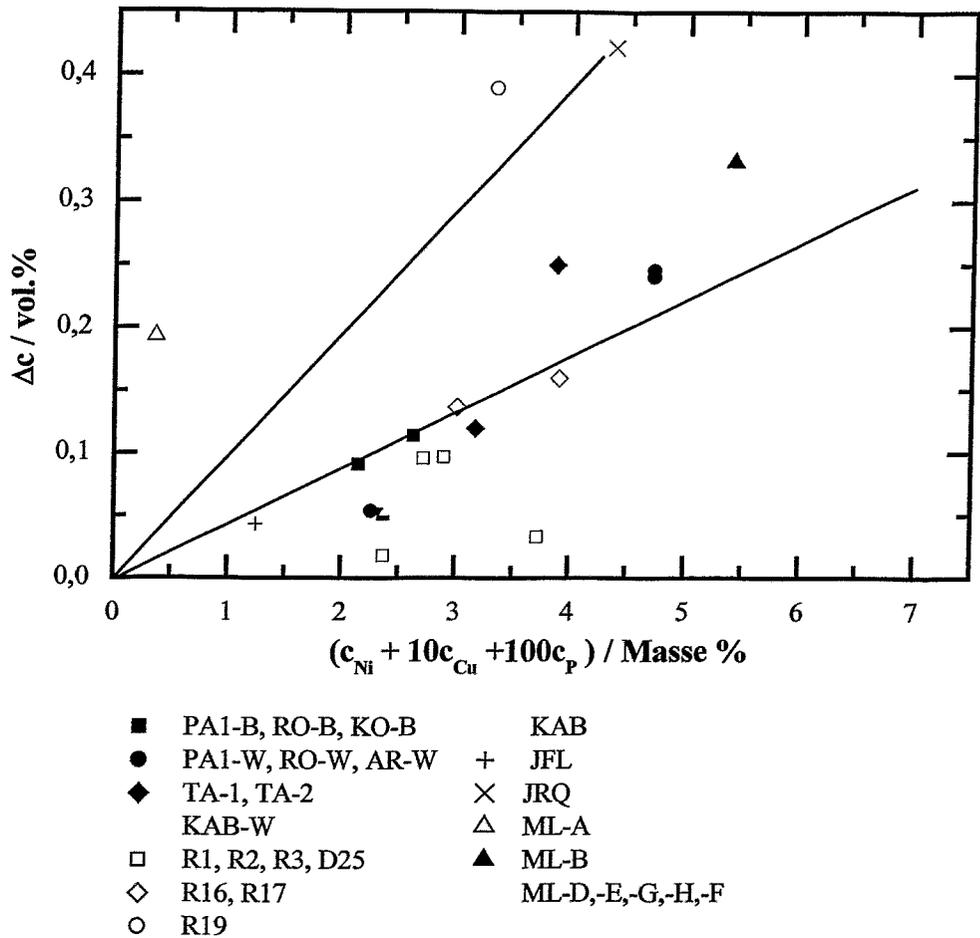


Abb. 6.15: Abhängigkeit des Volumenanteils Δc der Strahlendefekte vom Gehalt an Kupfer, Phosphor und Nickel nach Bestrahlung bis zu einer Neutronenflussdichte von $100 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ [$E > 0,5 \text{ MeV}$] (berechnet aus experimentellen Ergebnissen nach Gl. (6.4))

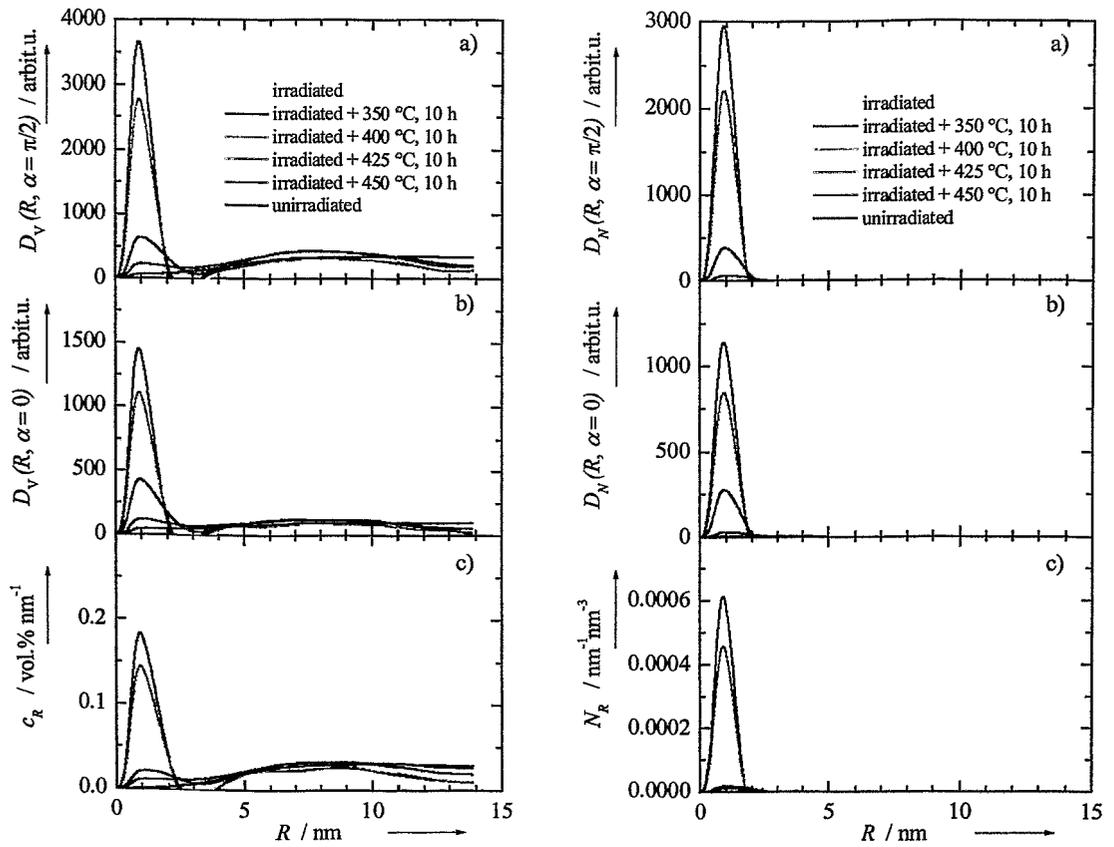


Abb. 6.16: Volumenverteilungsfunktion D_V und Teilchenanzahlverteilungsfunktion D_N , für den WER-1000-Schweißwerkstoff R19 nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 10$ h)

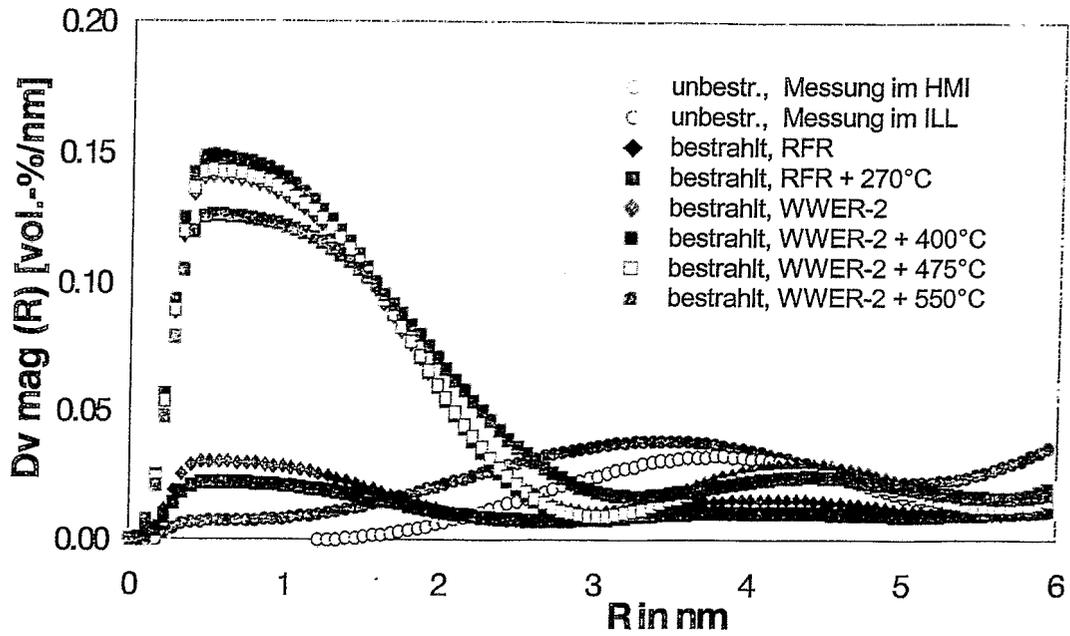


Abb. 6.17: Größenverteilungsfunktion D_v , gewichtet mit dem Streukontrast, nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 100 \text{ h}$) für die Charge ESW-C

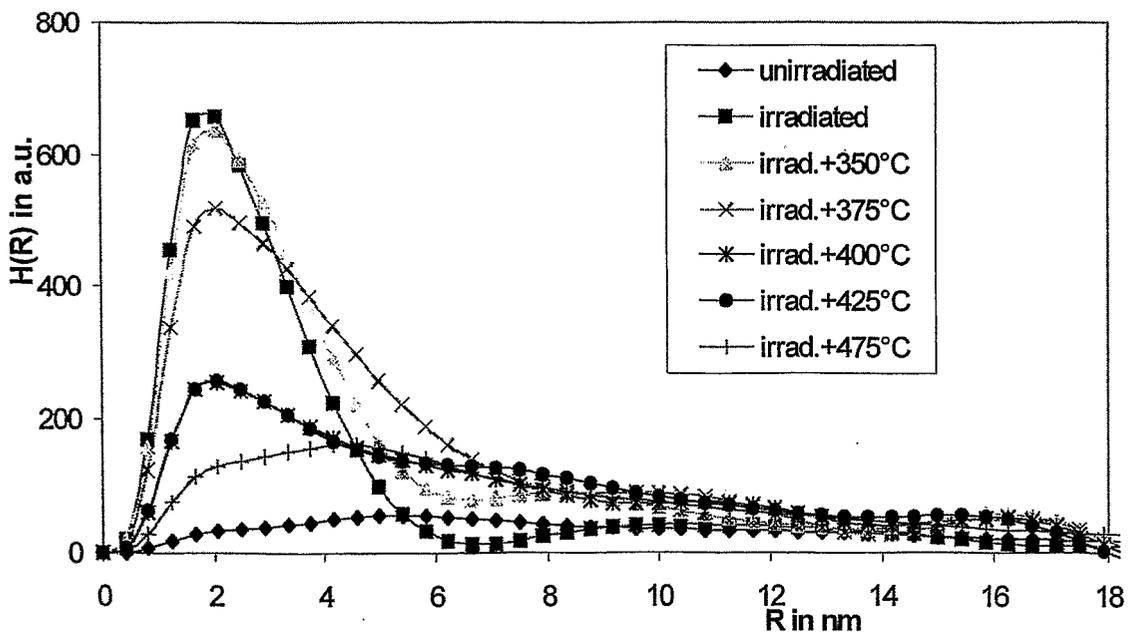
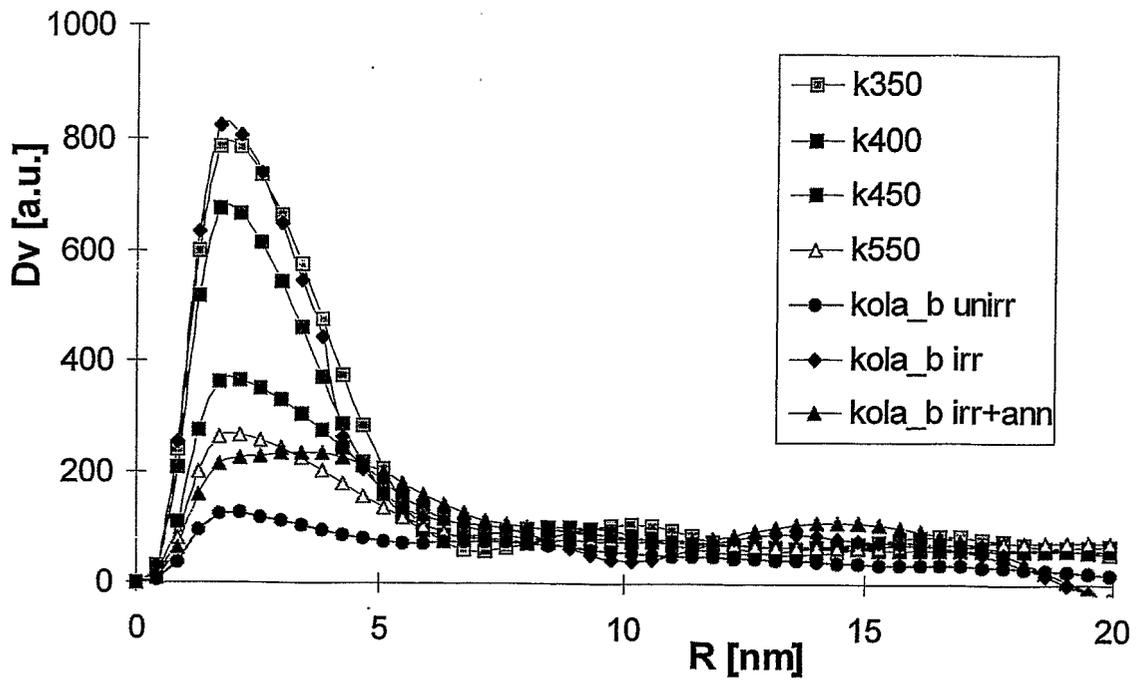
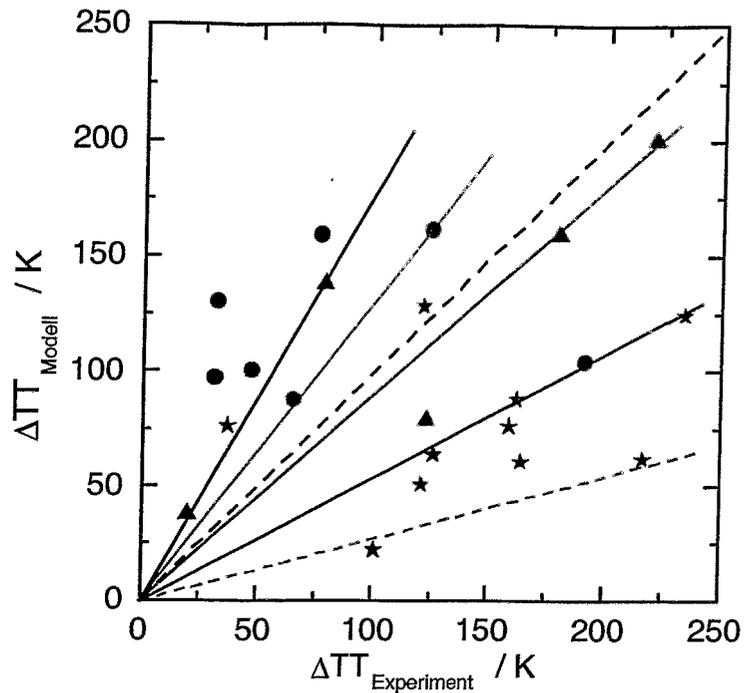


Abb. 6.18: Größenverteilungsfunktion D_v , gewichtet mit dem Streukontrast, nach unterschiedlichen Ausheilglühungen ($t = 100$ h) für die Chargen KO-B (oben) und AR-W (unten)



- 15Kh2MFA ● 15Kh2NMFAA ● 10KhGNMAA
- ▲ ASTM 508 ▲ ASTM 533B
- Modell-Leg.: ★ A ★ B ★ C, D, E ★ F ★ G, H

$$\Delta TT_{\text{Modell}} = A \exp \left[\frac{20730}{1.8 T_{\text{irr}} + 492} \right] \Phi^{0.5076} + B (1 + 2.106 [\text{Ni}]^{1.173}) F([\text{Cu}]) G(\Phi)$$

$$F([\text{Cu}]) = \begin{cases} 0 & , [\text{Cu}] < 0.072 \% \\ ([\text{Cu}] - 0.072)^{0.572} & , [\text{Cu}] > 0.072 \% \end{cases} \quad [\text{Cu}] < 0.305 \%$$

$$G(\Phi) = 0.5 + 0.5 \tanh \left[\frac{\lg \Phi - 18.24}{1.052} \right]$$

$$A = 3.71 \cdot 10^{-18}, B = 79 \text{ bzw. } 130, \Phi / \text{cm}^{-2}, T_{\text{irr}} / ^\circ\text{C}$$

Abb. 6.19: Vergleich der Ergebnisse mit der Versprödungstrendgleichung (2.2) nach [SER 01]

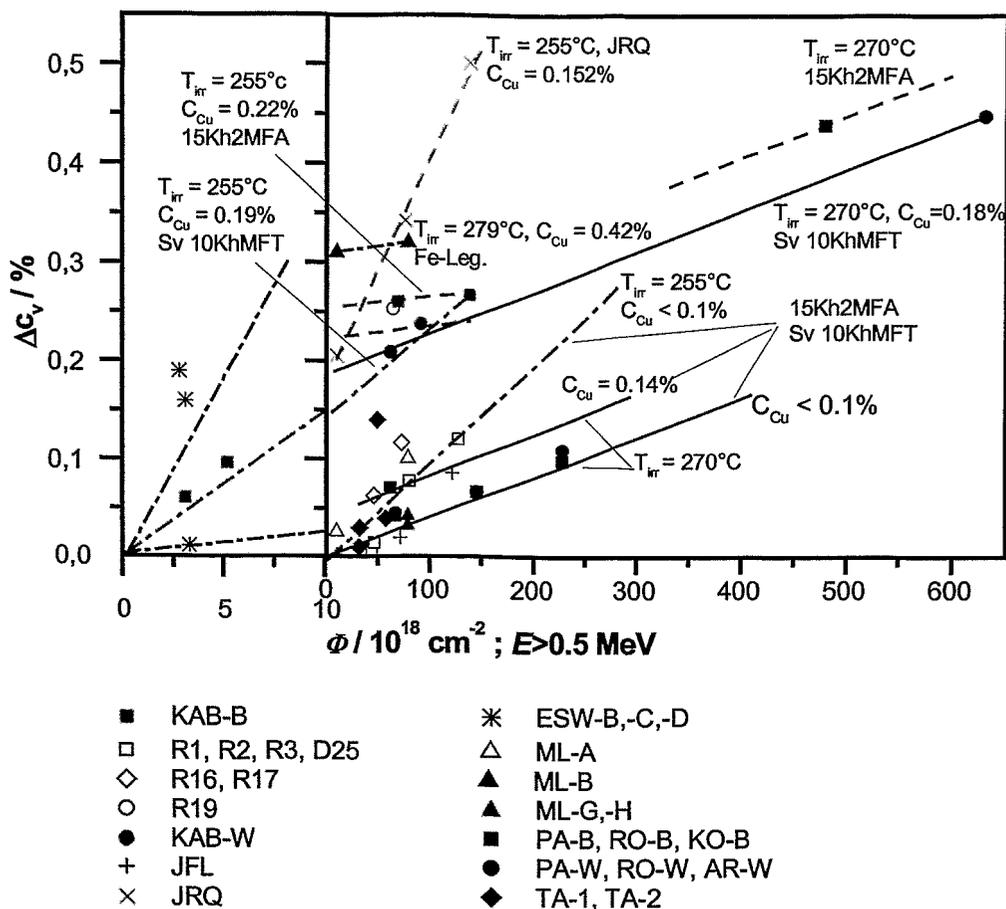


Abb. 7.1: Einfluss der Neutronenfluenz ($E > 0,5 \text{ MeV}$) auf den Volumenanteil Δc_v der Strahlendefekte

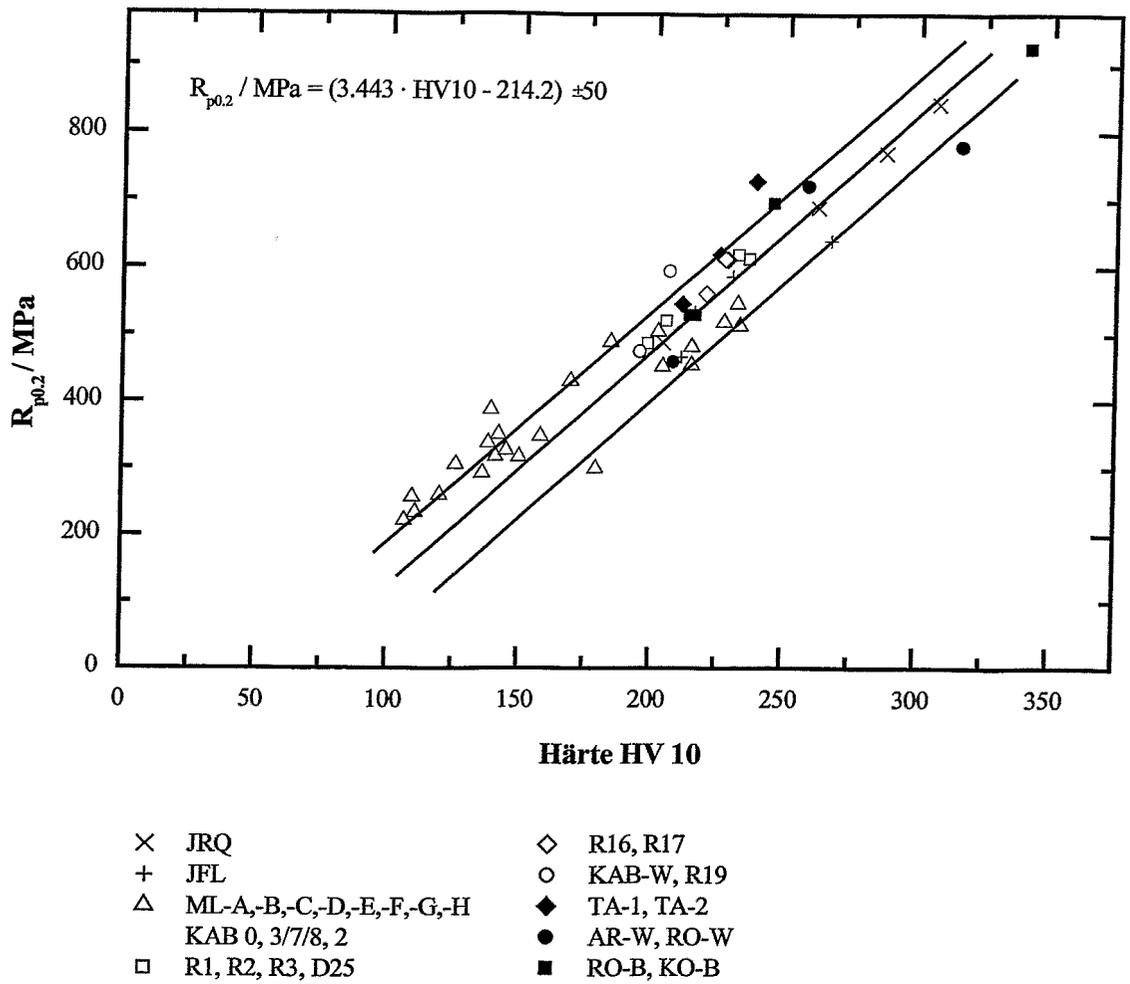


Abb. 7.2: Korrelation zwischen Streckgrenze $R_{p0.2}$ und Härte HV10

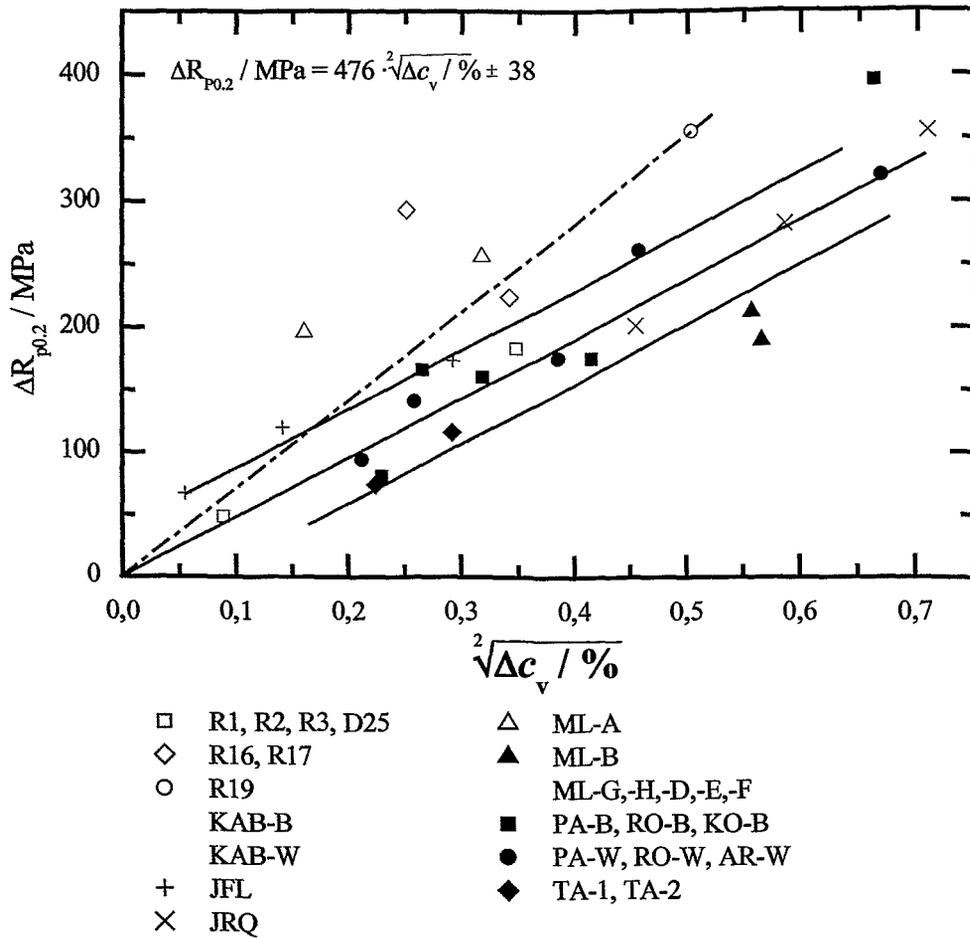


Abb. 7.3: Zusammenhang zwischen Strahlenhärtung (bezogen auf die Streckgrenzenänderung $\Delta R_{p0.2}$) und dem Volumenanteil Δc_v aus Strahlendefekten