

# **Validierung von Software-Komponenten zur Voraussage der strahleninduzierten Schädigung von RDB-Stahl**

## **Validation of software components for the prediction of irradiation-induced damage of RPV steel**

Frank Bergner, Uwe Birkenheuer,  
Andreas Ulbricht

April 2010

**Reaktorsicherheitsforschung**  
**Vorhaben-Nr.: 1501315**  
**Abschlussbericht**

**Reactor Safety Research**  
**Project Nr.: 1501315**  
**Final Report**



**Forschungszentrum  
Dresden Rossendorf**

**Institut für  
Sicherheitsforschung**

## **Abschlussbericht Final Report**

**Reaktorsicherheitsforschung – Vorhaben-Nr.: 1501315  
Reactor Safety Research – project No.: 1501315**

**Vorhabentitel:**

Validierung von Software-Komponenten zur Voraussage der strahleninduzierten Schädigung von RDB-Stahl

**Project Title:**

Validation of software components for the prediction of irradiation-induced damage of RPV steel

**Autoren / Author (s):**

**Frank Bergner, Uwe Birkenheuer und Andreas Ulbricht**

**Dienststelle des Autors / Performing Organisation:**

Forschungszentrum Dresden – Rossendorf e.V.

**Berichtsdatum / Publication Date:** 30. April 2010

**Berichts – Nr. / Report – No:** FZD-533

**Dresden, 30.04.2010**

**Hinweis:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie BMWi unter dem Förderkennzeichen 1501315 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Das Forschungszentrum Dresden-Rossendorf e.V. und die Berichtsteller übernehmen keine Haftung für Schäden, die aufgrund von weiterführenden fehlerhaften Anwendungen der in diesem Bericht dargestellten Ergebnisse entstehen.

## Kurzfassung

Die skalenübergreifende Modellierung der strahleninduzierten Schädigung von RDB-Stahl von den Primärschäden auf der atomaren Skala bis zu den Änderungen der mechanischen Eigenschaften auf der Makroskala trägt wesentlich zu einem verbesserten Verständnis des Phänomens der Neutronenversprödung bei. Sie kann sich zukünftig zu einem Bestandteil der Sicherheitsbewertung des RDB entwickeln. Der gewählte zweistufige Modellierungsansatz beruht auf der Kopplung eines ratentheoretischen Moduls zur Voraussage der Größenverteilung der strahleninduzierten Defekt-Fremdatom-Cluster mit einem Härtungs-Modul zur Voraussage der strahleninduzierten Streckgrenzenerhöhung. Gegenstand der Untersuchungen sind die Weiterentwicklung und Validierung entsprechender Software-Komponenten. Die Validierung erfolgt durch Gegenüberstellung der Berechnungsergebnisse mit Resultaten von Neutronenkleinwinkelstreuungsmessungen und Zugversuchen an neutronenbestrahlten RDB-Stählen.

Der entwickelte ratentheoretische Modul ermöglicht es, die Größe, Konzentration und Zusammensetzung gemischter Cu-Leerstellen-Cluster über die für RDB-Stähle relevanten Größenbereiche von bis zu 10000 Atomen und Zeitbereiche von bis zu mehreren 10 Jahren zu verfolgen. Die Verbindung der Ratentheorie zur Härtungsmodellierung beruht auf der Übergabe von berechneten mittleren Hindernisabständen und -stärken. Die Validierung der numerischen Werkzeuge hat ergeben, dass wesentliche Tendenzen der strahleninduzierten Streckgrenzenerhöhung von Cu-haltigen und Cu-armen RDB-Stählen richtig wiedergegeben werden. Erste Ansätze zur Erfassung des Einflusses des Legierungselements Nickel im Rahmen der Ratentheorie und der Härtungsmodellierung wurden verwirklicht.

## Abstract

The modelling of irradiation-induced damage of RPV steels from primary cascades up to the change of mechanical properties bridging length scales from the atomic level up to the macro-scale and time scales up to years contributes essentially to an improved understanding of the phenomenon of neutron embrittlement. In future modelling may become a constituent of the procedure to evaluate RPV safety. The selected two-step approach is based upon the coupling of a rate-theory module aimed at simulating the evolution of the size distribution of defect-solute clusters with a hardening module aimed at predicting the yield stress increase. The scope of the investigation consists in the development and validation of corresponding numerical tools. In order to validate these tools, the output of representative simulations is compared with results from small-angle neutron scattering experiments and tensile tests performed for neutron-irradiated RPV steels.

Using the developed rate-theory module it is possible to simulate the evolution of size, concentration and composition of mixed Cu-vacancy clusters over the relevant ranges of size up to 10.000 atoms and time up to tens of years. The connection between the rate-theory model and hardening is based upon both the mean spacing and the strength of obstacles for dislocation glide. As a result of the validation procedure of the numerical tools, we have found that essential trends of the irradiation-induced yield stress increase of Cu-bearing and low-Cu RPV steels are displayed correctly. First ideas on how to take into account the effect of Ni on both cluster evolution and hardening are worked out.

## Inhalt

<b>Kurzfassung</b> .....	3
<b>Abstract</b> .....	4
<b>1 Einleitung</b> .....	7
<b>1.1 Motivation und Ziele</b> .....	7
<b>1.2 Arbeitsplan</b> .....	8
<b>1.3 Stand von Wissenschaft und Technik</b> .....	12
<b>2 Experimentelle Untersuchungen</b> .....	16
<b>2.1 Werkstoffe</b> .....	16
2.1.1 Chemische Zusammensetzung und Wärmebehandlung.....	16
2.1.2 Gefüge.....	16
2.1.3 Bestrahlungsbedingungen.....	18
2.1.4 Mechanische Eigenschaften.....	18
2.1.5 Modelllegierungen.....	18
<b>2.2 Methoden</b> .....	20
2.2.1 Neutronenkleinwinkelstreuung.....	20
2.2.2 Vickers-Härte.....	21
<b>2.3 Experimentelle Ergebnisse</b> .....	22
2.3.1 Neutronenkleinwinkelstreuung.....	22
2.3.2 Vickers-Härte.....	27
<b>2.4 Diskussion</b> .....	28
2.4.1 Grundwerkstoffe P7 und P141 GW.....	28
2.4.2 Schweißgut P141 SG.....	29
2.4.3 Schweißgut P370 SG.....	29
2.4.4 Flusseffekt.....	30
2.4.5 Modelllegierungen.....	31
2.4.6 Gefüge-Eigenschafts-Beziehungen.....	32
<b>2.5 Schlussfolgerungen für die Modellierung</b> .....	34
<b>3 Modelle</b> .....	35
<b>3.1 Gesamtschema</b> .....	35
<b>3.2 Ratentheorie</b> .....	36
3.2.1 Das CD-P-Modell.....	36
3.2.2 Grenzen des CD-P-Modells.....	41
3.2.3 Das V3C-Modell.....	43
3.2.4 Der Einfluss von Nickel.....	48
<b>3.3 Härtung und Versprödung</b> .....	50
3.3.1 Überblick.....	50
3.3.2 Analytische Modelle.....	52
3.3.3 Versetzungssimulation.....	53
3.3.4 Streckgrenzenerhöhung.....	56
3.3.5 Übergangstemperaturverschiebung.....	57
<b>4 Codes und Validierung</b> .....	58
<b>4.1 Der ratentheoretische Modul</b> .....	58
4.1.1 Implementierung des Programms CD-trans.....	58
4.1.2 Fokker-Planck-Transformation.....	59
4.1.3 Kalibrierung.....	62
4.1.4 Validierung.....	68
4.1.5 Der Einfluss von Nickel.....	74
<b>4.2 Der versetzungstheoretische Modul</b> .....	76
4.2.1 Auswahl des Modells.....	76

---

4.2.2	Implementierung .....	76
4.2.3	Kalibrierung .....	77
4.2.4	Validierung .....	79
<b>4.3</b>	<b>Gesamtvalidierung und Folgerungen .....</b>	<b>82</b>
<b>5</b>	<b>Schlussfolgerungen .....</b>	<b>86</b>
<b>6</b>	<b>Literatur .....</b>	<b>88</b>
6.1	Referenzen .....	88
6.2	Relevante Arbeiten mit eigener Beteiligung .....	92
 <b>Anlagen</b>		
<b>A1</b>	<b>Programmdokumentation von CD-trans (englisch).....</b>	<b>93</b>
<b>A2</b>	<b>Excel-Arbeitsblätter Validierung .....</b>	<b>105</b>

## 1 Einleitung

### 1.1 Motivation und Ziele

Durch die Bestrahlung der Reaktordruckbehälter (RDB)-Wand mit schnellen Neutronen erfährt der RDB-Stahl nanometerskalige strukturelle Veränderungen, die zu einer bestrahlungsinduzierten Verschiebung der Spröd-duktil-Übergangstemperatur führen und wesentlich sicherheitsrelevant sind. Die physikalische Natur der Bildung bestrahlungsinduzierter Defekte sowie deren Einfluss auf Plastizität und Rissbildung sind seit einiger Zeit Gegenstand von internationalen Aktivitäten der Mehrskalmodellierung, die die Generierung von Computercodes zur Simulation der auf allen beteiligten Zeit und Längenskalen ablaufenden Prozesse sowie zur Voraussage der bestrahlungsinduzierten Degradation des RDB-Stahls zum Ziel haben. Da der Sicherheitsnachweis von Reaktorkomponenten unter Berücksichtigung des jeweils neuesten Erkenntnisstands der Wissenschaft und Technik erfolgt, ist der Eingang solcher Voraussagewerkzeuge in die Strategie der Sicherheitsbewertung langfristig absehbar.

Ziel des Vorhabens war es, vorhandene und neuentwickelte Voraussagewerkzeuge durch Vergleich von Simulationsergebnissen mit weitgehend vorliegenden, an Laborproben von RDB-Stählen und Modelllegierungen gewonnenen Messergebnissen hinsichtlich der Treffsicherheit der Voraussagen zu bewerten, die Voraussagewerkzeuge entsprechend weiterzuentwickeln sowie Empfehlungen bzw. Richtlinien für die zukünftige Anwendung zu erarbeiten. Da eine physikalisch begründete direkte Voraussage der mechanischen Eigenschaften von RDB-Stählen derzeit noch nicht möglich ist, wurde ein zweistufiger Modellansatz über den Zwischenschritt der bestrahlungsinduzierten Cluster gewählt (Bild 1.1). Ein Schwerpunkt des Vorhabens lag demzufolge auf der Anwendung fortschrittlicher Methoden der Rattentheorie auf Bildung und Wachstum bestrahlungsinduzierter Cluster. Die Validierung dieser Modelle erfolgte durch Vergleich der vorausgesagten mit der durch Kleinwinkelstreuungsexperimente ermittelten Clustergrößenverteilung. Der Übergang von den bestrahlungsinduzierten strukturellen Veränderungen auf der nm-Skala zu den makroskopischen Eigenschaftsänderungen wurde auf der Basis von versetzungstheoretischen Berechnungen vollzogen. Hier beruhte die Validierung auf dem Vergleich vorausgesagter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen bzw. Übergangstemperaturverschiebungen.

Ein komplementäres Ziel des Vorhabens bestand darin, Kraftwerksbetreibern und Genehmigungsbehörden Entscheidungshilfen bereitzustellen, ob bzw. zu welchem Zeitpunkt die Einbeziehung der Voraussagewerkzeuge in die Prozedur des Sicherheitsnachweises sinnvoll ist, und welche Voraussetzungen dafür zukünftig zu schaffen sind.



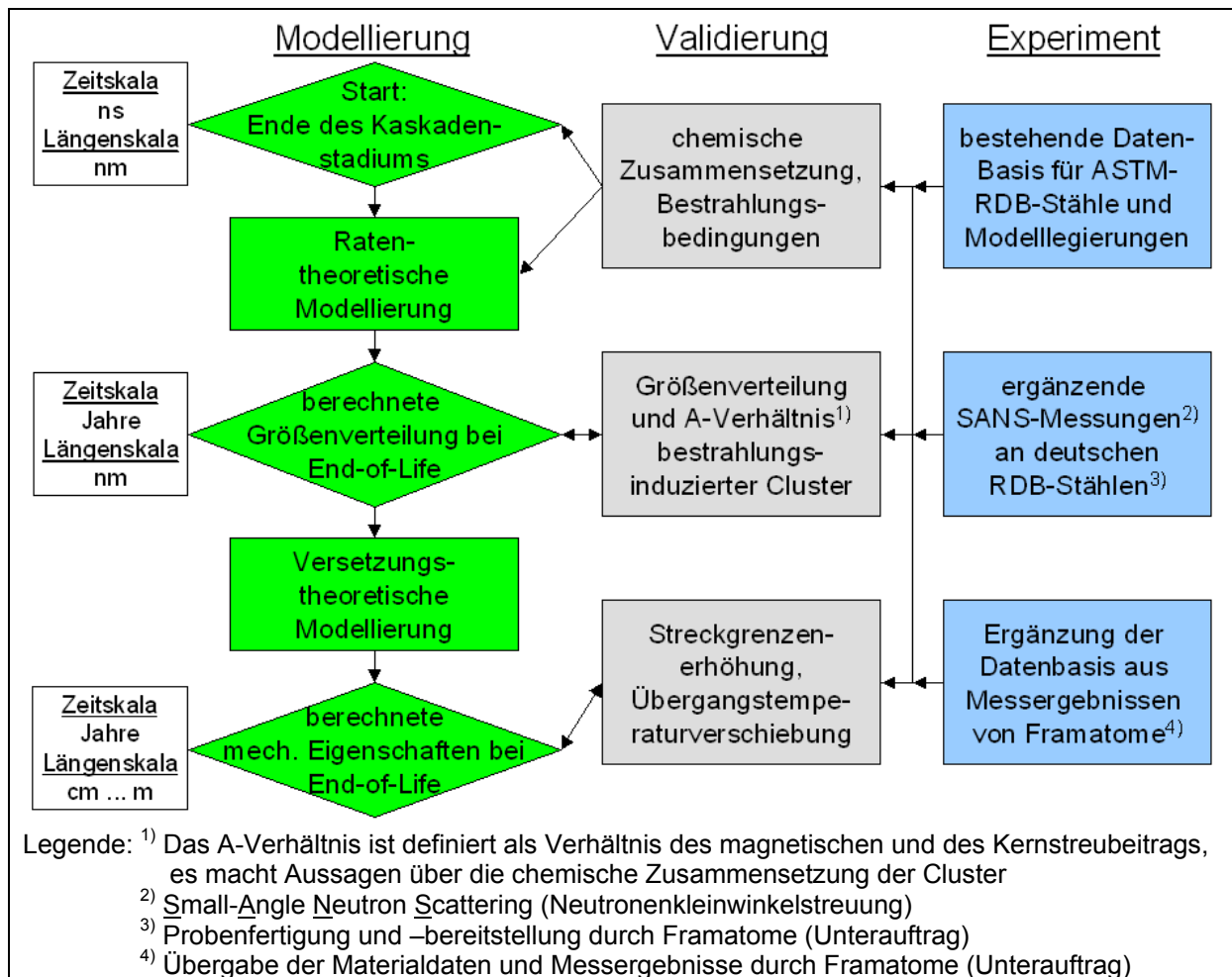


Bild 1.1 Flussdiagramm zur Charakterisierung der logischen Abfolge der Modellierungs- und Validierungsschritte.

## 1.2 Arbeitsplan

Das Flussdiagramm in Bild 1.1, welches dem ursprünglichen Arbeitsplan entnommen wurde, veranschaulicht die logische Abfolge der Modellierungs- und Validierungsschritte, die erforderlichen experimentellen Daten (Materialdaten, Bestrahlungsbedingungen, Messergebnisse) sowie die relevanten Zeit- und Längenskalen.

Das Vorhaben wurde in drei Arbeitspakete untergliedert:

- Arbeitsziel des Arbeitspakets 1 war die Validierung der vorliegenden Einzelkomponenten der Voraussagesoftware inklusive der Folgerungen für deren Weiterentwicklung. Dabei lag das Hauptaugenmerk auf der Voraussage der Clustergrößenverteilung und deren Vergleich mit Ergebnissen von Neutronenkleinwinkelstreu-Experimenten.
- Im Arbeitspaket 2 erfolgte die Weiterentwicklung der Softwarekomponenten nach den Validierungsergebnissen des Arbeitspakets 1. Das Ziel bestand in der Erhöhung der Treffsicherheit der ratentheoretischen Voraussagemodelle auf ein Genauigkeitsniveau, das dem Informationsgehalt der zur Validierung herangezogenen experimentellen Daten angemessen ist. Insbesondere sollten Mehrkomponentencluster berücksichtigt werden.

- Ziel des Arbeitspakets 3 war die Verknüpfung der Modellierungsebene der bestrahlungsinduzierten Cluster (nm-Skala) mit den makroskopischen mechanischen Eigenschaften (cm-Skala) auf der Grundlage der versetzungstheoretischen Modellierung.

Große Bedeutung kam der Dokumentation der Voraussageprogramme, der Materialdatenbasis und der Ergebnisse der durchgeführten Validierungen zu. Das Vorhaben wurde mit der Gesamtbewertung des Entwicklungsstands der Voraussagewerkzeuge sowie mit entsprechenden Empfehlungen abgeschlossen.

Aus den Arbeitszielen wurden für die jeweiligen Arbeitspakete die folgenden Teilaufgaben abgeleitet:

### Arbeitspaket 1 – Voraussetzungen und Validierung der Voraussagesoftware

#### *Aufgabe 1.1 – Rechentechnische Voraussetzungen:*

Die Bearbeitung des Vorhabens stellte hohe Anforderungen an die Rechentechnik, insbesondere in Bezug auf besonderen Speicherbedarf, hohe Rechengeschwindigkeit und hohe Verfügbarkeit. Durch den Antragsteller wurde der Zugang zum Linux-Cluster des Rechenzentrums bereitgestellt.

#### *Aufgabe 1.2 – Ergänzung der Datenbasis:*

Der überwiegende Teil der für die Validierung der Voraussagesoftware erforderlichen Materialdatenbasis lag bereits zu Projektbeginn vor. Die Daten waren in ein einheitliches Format zu überführen, um den Validierungsprozess zu standardisieren. Um den förderpolitischen Zielen in der Reaktorsicherheitsforschung gerecht zu werden, war die Ergänzung der Datenbasis mit Messergebnissen für die RDB-Stähle deutscher Reaktoren vorgesehen. Hierzu wurde ein Unterauftrag an die AREVA NP GmbH Erlangen erteilt. Im Rahmen dieses Unterauftrags wurden dem Antragsteller Ergebnisse von Zugversuchen und Kerbschlagbiegeversuchen für zwei Grundwerkstoffe und zwei Schweißmaterialien, je eine niedrig Cu-haltige und eine höher-Cu-haltige Qualität, bereitgestellt. Außerdem wurden dem Antragsteller von jedem dieser vier Werkstoffe je eine Scheibe im bestrahlten Zustand und eine unbestrahlte Referenzprobe für Neutronenkleinwinkelstreuexperimente übergeben. Einer der bestrahlten RDB-Stähle (Code P370) lag in zwei Bestrahlungszuständen vor, die sich durch gleiche Neutronenfluenzen aber um den Faktor 30 unterschiedliche Flussdichten auszeichneten. Das entsprechende Probenpaar bot beste Voraussetzungen, den Flussdichteeinfluss auf die Clustergrößenverteilung zu bewerten.

#### *Aufgabe 1.3 – Neutronenkleinwinkelstreuexperimente:*

Die Durchführung der Neutronenkleinwinkelstreuexperimente erfolgte am Hahn-Meitner-Institut Berlin (HMI). Die Realisierung der Aufgabe setzte eine intensive Betreuung des Projektbearbeiters bei der Antragstellung, Durchführung der Messungen und Auswertung der Messdaten voraus. Im Rahmen des regulären Proposalsystems des HMI wurden Anträge auf Durchführung wissenschaftlicher Experimente gestellt und von einer Kommission wissenschaftlich begutachtet. Um die Messzeit dem Vorhabensumfang entsprechend zusätzlich aufzustocken, wurde für einen der beiden vorgesehenen Messzyklen ein Unterauftrag an den Anlagenbetreiber erteilt.

#### *Aufgabe 1.4 – Testrechnungen:*

Einige Komponenten der Voraussagesoftware lagen bereits zu Projektbeginn vor. Dabei handelte es sich um bereits erprobten Fortrancode zur Berechnung der

Größenverteilung von Leerstellenclustern in Eisen (bzw. in Cu-armen Modelllegierungen) und um einen weitgehend fertiggestellten, aber noch nicht erprobten Fortrancode zur gekoppelten Betrachtung von Leerstellen- und Zwischengitteratomclustern. Nach Schaffung der rechentechnischen Voraussetzungen konnte deshalb umgehend mit ersten Testrechnungen begonnen werden. Eingabegrößen für die ratentheoretischen Modellrechnungen (Bild 1.1) waren die Bestrahlungsparameter (Zeit, Neutronenfluenz, Flussdichte, Temperatur) und die modellrelevanten Angaben zur chemischen Zusammensetzung sowie physikalische Materialparameter wie Diffusionskonstanten, Strukturparameter und Grenzflächenenergien. Bestrahlungsparameter und chemische Zusammensetzung waren durch die für die Modellvalidierung ausgewählten RDB-Stähle und Modelllegierungen festgelegt. Für die Materialparameter wurde zunächst von den besten aus der Literatur zugänglichen Abschätzungen ausgegangen.

*Aufgabe 1.5 – Modellvalidierung (erste Iteration):*

Die Validierung erfolgte durch Vergleich der Berechnungsergebnisse aus Aufgabe 1.4 mit experimentell mittels Neutronenkleinwinkelstreuung bestimmten mittleren Clusterradien und Clustervolumenanteilen (Bild 1.1). Bestandteil des Validierungsprozesses war die Kalibrierung des Modells. Darunter versteht man das Auffinden eines Satzes von Materialparametern innerhalb physikalisch sinnvoller Grenzen, der zu einer grundsätzlich richtigen Beschreibung der experimentellen Ergebnisse führt. Im Falle der ratentheoretischen Modellierung der Leerstellencluster dienten die spezifische Oberflächenenergie von Fe (im Bereich von 1 bis 2 J/m<sup>2</sup>) und die Versetzungsdichte ( $\sim 10^{14}$  m<sup>-2</sup>) dem Zwecke der Kalibrierung. Ein einmal aufgefundener Parametersatz wurde dann weitgehend beibehalten. War annähernde Übereinstimmung mit Messergebnissen dagegen nicht erreichbar, dann war das Modell zu modifizieren. Aus den Validierungsergebnissen wurden Folgerungen für die Weiterentwicklung der Voraussagesoftware gezogen.

Arbeitspaket 2 – Weiterentwicklung der Voraussagesoftware

*Aufgabe 2.1 – Qualifizierung der Versuchsauswertung:*

Hier sollten Voraussetzungen für die Erhöhung des Aussagegehalts der Validierungen geschaffen werden. Dazu sollte vom Vergleich zwischen Rechnung und Experiment hinsichtlich Clusterradius und Volumenanteil zum Vergleich der Größenverteilung als Ganzes übergegangen werden. Hierzu war auch die Messunsicherheit hinsichtlich der Größenverteilung als Ganzes zu charakterisieren. Außerdem sollten die Aussagen über die chemische Zusammensetzung der Cluster, die aus dem A-Verhältnis (Bild 1.1) gewonnen werden konnten, in die Validierung einbezogen werden. Zu klären war, inwieweit auf der Grundlage des A-Verhältnisses eine Trennung der Beiträge mehrerer Clusterarten möglich ist.

*Aufgabe 2.2 – Neu- und Weiterentwicklung von Modellen bzw. Software:*

Die Modifikation und Weiterentwicklung von Einzelkomponenten erfolgte in Abhängigkeit von den Ergebnissen des Arbeitspakets 1. Erforderliche Neuentwicklungen bezogen sich auf die Berücksichtigung des Mischcharakters der Cu-reichen Cluster unter besonderer Beachtung des Ni-Gehalts.

*Aufgabe 2.3 – Modellvalidierung (zweite Iteration):*

Diese Aufgabe umfasste die Durchführung bzw. Wiederholung des Validierungsprozesses durch Vergleich von berechneten und experimentell ermittelten Cluster-

größenverteilungen und A-Verhältnissen (Bild 1.1) gemäß Aufgabe 1.5 unter Berücksichtigung der Weiterentwicklungen gemäß Aufgaben 2.1 und 2.2.

### Arbeitspaket 3 – Programmoberfläche, Dokumentation, Bewertung und Empfehlung

#### *Aufgabe 3.1 – Versetzungstheoretische Modellierung:*

Die Ebene der nanometerskaligen bestrahlungsinduzierten Cluster war mit der Ebene der makroskopischen mechanischen Eigenschaften zu verknüpfen (Bild 1.1). Zu diesem Aspekt war zunächst eine Literaturstudie vorgesehen. In Abhängigkeit von den Ergebnissen der Literaturstudie war über die weitere Vorgehensweise zu entscheiden (Alternativen 1 und 2).

#### *Aufgabe 3.2a – Fortschrittliche analytische Modelle (Alternative 1):*

Es bestand die Überzeugung, dass über die Clustermodellierung hinaus die Verbindung zu den mechanischen Eigenschaften unbedingt herzustellen war. In Abhängigkeit von der in Aufgabe 3.1 vorgesehenen Literaturstudie war zu entscheiden, ob eine Konzentration auf fortschrittliche analytische Modelle beibehalten werden kann oder ob darüber hinaus auch komplexere Modellierungen auf der Basis von Versetzungssimulationen erforderlich sind.

#### *Aufgabe 3.2b – Versetzungssimulationen (Alternative 2):*

Als Alternative und Ergänzung zu rein analytischen Modellen war über die Durchführung von Modellierungsansätzen auf der Basis von Versetzungssimulationen zu entscheiden. Neben den konstitutiven Gleichungen ist dabei erfahrungsgemäß besonderer Wert auf die graphische Darstellung bzw. Visualisierung der simulierten Prozesse zu legen.

#### *Aufgabe 3.3 – Modellvalidierung für mechanische Eigenschaften:*

Im Rahmen dieser Teilaufgabe erfolgte die Validierung der versetzungstheoretischen Teilmodelle bzw. Programmcodes durch Vergleich gemessener und berechneter Streckgrenzenerhöhungen (Bild 1.1). Die Bewertung wurde anschließend auf das aus den raten- und versetzungstheoretischen Teilmodellen bestehende Gesamtmodell (Bild 1.1) ausgedehnt.

#### *Aufgabe 3.4 – Dokumentation:*

Diese Aufgabe umfasste die Programmdokumentation sowie Dokumentationen der Experimente und der Validierungsergebnisse.

#### *Aufgabe 3.5 – Empfehlungen, Berichte, Publikationen:*

Auf der Grundlage der im Rahmen des Vorhabens gewonnenen Erfahrungen sowie externer Quellen (z. B. Literaturstudie, wissenschaftliche Kontakte, Publikationen des EU-Projekts Perfect) waren Empfehlungen über die Anwendung der Voraussagewerkzeuge im Rahmen des Sicherheitsnachweises für RDB bzw. über erforderliche Weiterentwicklungen abzuleiten und zu vermitteln. Die Publikationstätigkeit erstreckte sich über den gesamten Bearbeitungszeitraum des Vorhabens.

Im Verlauf der Arbeiten zur Validierung der entwickelten Modelle und Computer-codes hat es sich gezeigt, dass es zwingend erforderlich ist, neben vor Projektbeginn vorhandenen und den im Rahmen des Vorhabens gewonnenen experimentellen Daten an RDB-Stählen auch Messergebnisse für geeignete Modelllegierungen einzubeziehen. Entsprechende Experimente wurden außerhalb des Vorhabens aber zeitgleich für einen Satz gleichartig neutronenbestrahlter Modelllegierungen mit

variieren Cu-, Mn- und Ni-Gehalten durchgeführt (siehe [Lambrecht 2008, Bergner 2010]). Die Analyse der SANS-Ergebnisse erfolgte in Analogie zu der im Rahmen des BMWi-Vorhabens weiterentwickelten und angewendeten Auswerteprozedur, so dass die Vergleichbarkeit der Ergebnisse gewährleistet ist. Es erweist sich als zweckdienlich, die Darstellung dieser Ergebnisse in den vorliegenden Bericht einzubeziehen (siehe Abschnitt 2.1.5).

Der Übergang von der Simulation des Verhaltens von Modelllegierungen unter Bestrahlung zum Verhalten von realen RDB-Stählen beruht maßgeblich auf der adäquaten Berücksichtigung des Einflusses des Legierungselements Ni. In der Tat besteht eines der grundlegenden Ergebnisse des Vorhabens darin, dass der gesamte Cu-Gehalt der Stähle nicht ausreicht, um die jeweils gemessenen Volumenanteile der bestrahlungsinduzierten Cluster zu erklären. Deshalb wurden erste Ansätze verfolgt, den Beitrag des Elements Ni in den Simulationen explizit zu berücksichtigen, ohne jedoch das Problem der ratentheoretischen Simulation eines ternären Systems vollständig lösen zu können (siehe Abschnitt 1.3).

Die Beschreibung des Standes der Wissenschaft und Technik zu Vorhabensbeginn unter Einbeziehung von weiterführenden Trends ist Gegenstand des Abschnitts 1.3. Im Kapitel 2 werden die experimentellen Details zu den untersuchten RDB-Stählen und den eingesetzten Untersuchungsmethoden, die erzielten Ergebnissen sowie empirische Interpretationsansätze dargestellt. Im Kapitel 3 erfolgt die Beschreibung der ratentheoretischen und versetzungstheoretischen Modelle, die Grundlage für die entwickelten Simulationswerkzeuge sind. Letztere werden zusammen mit der Codevalidierung im Kapitel 4 behandelt. Schließlich werden im fünften Kapitel die Ergebnisse der Codevalidierung bewertet und Folgerungen für die Sicherheitsbewertung von RDB-Stählen abgeleitet.

### **1.3 Stand von Wissenschaft und Technik**

Das Material eines RDB erfährt insbesondere im kernnahen Bereich durch die Bestrahlung mit schnellen Neutronen strukturelle Veränderungen auf der nm-Skala, die mit zunehmender Neutronenfluenz zu einer fortschreitenden Versprödung führen. Wegen der sicherheitstechnischen Bedeutung dieses Phänomens schreibt das kerntechnische Regelwerk (KTA-Regel 3203 [KTA 2001]) die Überwachung des Bestrahlungsverhaltens von RDB-Stählen vor. Dies erfolgt durch die mechanisch-technologische Prüfung voreilend bestrahlter Einhängenproben. Bruchmechanische Herangehensweisen werden derzeit abgesichert und finden Eingang in das Regelwerk. Einflussfaktoren der Neutronenversprödung von RDB-Stählen sind die Bestrahlungsbedingungen (primär: Neutronenfluenz und Bestrahlungstemperatur, sekundär: Neutronenflussdichte) und die chemische Zusammensetzung (primär: Cu und Ni). Durch breit angelegte Untersuchungen wurden empirische Korrelationen zwischen diesen Einflussfaktoren und der Übergangstemperaturverschiebung aufgefunden [Server 2001].

Die neutronenbestrahlungsinduzierte Minderung der Bruchzähigkeit bzw. Verschiebung der Spröduktile-Übergangstemperatur von RDB-Stählen ist ein typisches Multiskalenphänomen [Odette 2001]. Sowohl hinsichtlich der Entwicklung neuartiger Ansätze für Teilphänomene als auch hinsichtlich der skalenüberbrückenden Modellierung des Gesamtphänomens [Jumel 2002] wurden in den letzten Jahren auf

internationaler Ebene rasante Fortschritte erzielt. Für die beteiligten Phänomene wurden optimierte Modellierungstechniken [Raabe 1998] entwickelt (Auswahl):

- Die Molekulardynamik (MD) ist zur Beschreibung der Bildung und Kurzzeitentwicklung von Stoßkaskaden geeignet [Bacon 2003].
- Die Evolution bestrahlungsinduzierter Defekt- und Fremdatomcluster kann mit der Monte-Carlo-Simulation [Domain 2004] und der Ratentheorie [Christien 2004] erfasst werden.
- MD eignet sich auch zur Analyse der Wechselwirkung von Einzelversetzungen mit Clustern [Bacon 2004, Nedelcu 1999].
- Mit Versetzungssimulationen (Dynamik diskreter Versetzungen) wird die Entwicklung der Versetzungsanordnung unter äußerer Belastung bei verteilten Gleithindernissen untersucht [Hiratani 2004, Ghoniem 2002].
- Versetzungssimulationen im Rissspitzenfeld ermöglichen es, die Brücke zum Bruchverhalten und zum Spröd-duktil-Übergang zu schlagen [Hartmaier 1999].
- Die Verbindung zum Bauteil wird schließlich mit der Finite-Elemente-Methode auf der Grundlage bruch- bzw. schädigungsmechanischer Ansätze hergestellt.

Ausscheidungs Vorgänge in kupferhaltigen RDB-Stählen unter thermischer Beanspruchung wurden von Schmauder und Mitarbeitern in einer Reihe von Vorhaben untersucht [Schmauder 2002, Schmauder 2004]. Hierbei kam die atomistische Monte-Carlo-Simulation zur Anwendung. Größenverteilung und zeitliche Entwicklung der Cu-Ausscheidungen konnten umfassend charakterisiert werden [Binkele 2003]. Die Ergebnisse sind nur bedingt auf die Situation in der RDB-Wand übertragbar, da sich die Ausscheidungs Vorgänge unter den Bedingungen der Neutronenbestrahlung grundlegend von den in den genannten Vorhaben untersuchten, infolge thermischer Beanspruchung ablaufenden Prozessen unterscheiden.

Unter den Modellierungstechniken gestattet es die Ratentheorie als einzige, die Entwicklung bestrahlungsinduzierter Defektcluster vom Ende des Kaskadenstadiums (Nanosekundenskala) über die gesamte Bestrahlungszeit einer Laborprobe oder der Betriebsdauer eines Reaktors mit sinnvollem Rechenaufwand zu verfolgen [Christien 2004]. Der Anfangszustand für die Ratentheorie ergibt sich aus der molekulardynamischen Beschreibung der Stoßkaskaden. Die Monte-Carlo-Methode weist derzeit Grenzen hinsichtlich der Zeitdauer der simulierten Vorgänge und der statistischen Absicherung der Clustergrößenverteilung auf. Sie stellt dennoch eine sinnvolle Ergänzung zur Ratentheorie dar, da sie zusätzlich Aussagen über die räumliche Ungleichverteilung der Cluster zulässt [Binkele 2003].

Der Übergang von der Clusterebene zu den makroskopischen mechanischen Eigenschaften bestrahlter RDB-Stähle beruht grundsätzlich auf der Versetzungstheorie. Unter idealisierten Bedingungen sind dreidimensionale Simulationen der Entwicklung der Versetzungsanordnung möglich. Im Falle von bestrahlten RDB-Stählen (kubisch raumzentriertes Gitter, mehrere Defektarten) beruhen Versetzungsdynamik-Simulationen auf lokalen Wechselwirkungsgesetzen von Versetzungen mit Clustern, die durch molekulardynamische Berechnungen bereitgestellt werden [Osetsky 2003a]. Dies ist Gegenstand aktueller internationaler Bemühungen (EU-Projekt Perfect) [Adjanor 2010].

Eine vereinfachte Herangehensweise, die für die Voraussage der bestrahlungsinduzierten Verfestigung von RDB-Stählen genutzt wird [Jumel 2002], beruht auf der

Computersimulation der Behinderung des Versetzungsgleitens durch schneidbare Hindernisse, die in der Gleitebene der Versetzung zufällig verteilt sind [Foreman 1966]. Dieser Ansatz wurde auf das Vorliegen mehrerer Hindernisarten deutlich unterschiedlicher Wechselwirkungsstärken mit Versetzungen erweitert [Odette 1998a]. Eine noch stärkere Vereinfachung ist durch den Rückgriff auf die Skalierungsbeziehung nach Friedel oder auf das speziell für das System Fe-Cu ausgelegte Russell-Brown-Modell [Russel 1972] gegeben. Diese Modelle weisen indes ihre Vorteile auf, da sich analytische Beziehungen für die Abhängigkeit der Verfestigung von der Größe und dem Volumenanteil der Cluster ableiten lassen und da die Eingangsgrößen (mittlerer Clusterradius und Volumenanteil) direkt und vollständig durch ratentheoretische Modellierung und Kleinwinkelstreuexperimente zugänglich sind.

Die Verbindung von der Versetzungsdynamik zum Spröd-duktil-Übergang lässt sich durch Berücksichtigung von Rissen grundsätzlich herstellen [Hartmaier 1999], ist aber derzeit für bestrahlte RDB-Stähle noch nicht in allen Details ausführbar. Soneda und Mitarbeiter haben ein halbempirisches Voraussagemodell für die Übergangstemperaturverschiebung (CRIEPI-Modell) entwickelt und erfolgreich erprobt, das den Einfluss der Clustergröße vernachlässigt und sich auf die Abhängigkeit von der Wurzel des Volumenanteils beschränkt [Hiranuma 2004]. Diese Vergrößerung wird teilweise durch die Möglichkeit aufgewogen, mehrere Clustertypen (Defektcluster und Cu-reiche Mischcluster) einzubeziehen und den Einfluss des Cu- und Ni-Gehalts explizit zu berücksichtigen.

Unter den experimentellen Methoden zum Nachweis bestrahlungsinduzierter nm-skalierte Objekte, zu denen auch die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM), die Atomsondentomographie (APT) [Pareige 1997] und die Positronenannihilationspektroskopie (PAS) [Cumblidge 2003] gehören, zeichnet sich die Neutronenkleinwinkelstreuung dadurch aus, dass sie als einzige die Größenverteilung der bestrahlungsinduzierten Cluster zu bestimmen gestattet [Carter 2001]. Zusätzlich liefert die Kleinwinkelstreuung über das Verhältnis von magnetischem zu nuklearem Streuanteil auch Aussagen über die chemische Zusammensetzung der Cluster [Carter 2001]. Die radiale Verteilung einzelner Elemente kann aber erst durch Messungen mit der Atomsonde (APT) aufgeklärt werden [Pareige 1997].

In jüngster Zeit wurden im Rahmen der internationalen Kooperation Fortschritte auf dem Gebiet der Multiskalenmodellierung des mechanischen Werkstoffverhaltens unter Neutronenbestrahlung erzielt [Jumel 2007, Adjanor 2010]. Bemerkenswert ist der Fakt, dass es bisher nicht gelungen ist, den Einfluss von Ni bzw. anderen Stahlbestandteilen (außer Cu) in adäquater Weise in den Simulationsprogrammen zu berücksichtigen. Hierzu wurde ein Teilvorhaben im Rahmen des laufenden EU-Projektes PERFORM-60 eingerichtet. Darüber hinaus bestehen nach wie vor Einschränkungen hinsichtlich der numerischen Behandlung des Cu-Effektes. Es zeigte sich nämlich, dass mit den bisherigen Methoden die für einkomponentige Cu- oder Leerstellencluster mögliche Erhöhung der Rechengeschwindigkeit nicht auf gemischte Cu-Leerstellencluster übertragbar ist. Daraus resultiert eine Beschränkung der numerischen Anwendbarkeit des Ratentheorie-Moduls [Adjanor 2010] auf Cluster, die nicht wesentlich mehr als 10 Cu-Atome enthalten. Tatsächlich können Cu-reiche Cluster in neutronenbestrahlten RDB-Stählen jedoch eine bis zwei Größenordnungen mehr Cu-Atome enthalten.

Auf dem Gebiet der experimentellen Charakterisierung der Mikrostruktur und Validierung von Mikrostrukturmodellen wurden durch kombinierte Auswertung der Ergebnisse mehrerer Messverfahren neuartige Ergebnisse erzielt [Lambrecht 2010, Meslin 2010]. In diese Untersuchungen wurden neutronenbestrahlte Modelllegierungen ansteigender Komplexität und RDB-Stähle einbezogen. SANS leistete hierzu einen wichtigen Beitrag [Bergner 2010]. Letztere Ergebnisse erwiesen sich als wertvoll für die Modellvalidierung im vorliegenden Projekt.



## 2 Experimentelle Untersuchungen

### 2.1 Werkstoffe

#### 2.1.1 Chemische Zusammensetzung und Wärmebehandlung

Die im Rahmen des Vorhabens untersuchten Druckbehälterstähle wurden von der AREVA NP GmbH bereitgestellt. Für eine detaillierte Dokumentation wird auf den entsprechenden Arbeitsbericht [Hein 2006] verwiesen. Diese Werkstoffe waren aus der Sicht der mechanischen Eigenschaften bereits Gegenstand der Untersuchungen im Rahmen des Projekts CARISMA (Förderkennzeichen 1501284). Die für das Vorhaben ausgewählten Werkstoffe sind in Tab. 2.1 aufgeführt. Es handelt sich um RDB-Grundmaterial und RDB-Schweißgut, jeweils mit niedrigem bzw. erhöhtem Cu-Gehalt. Die chemischen Zusammensetzungen laut Analyse sind in Tab. 2.2 zusammengefasst, wobei die für die mechanischen Eigenschaften besonders wichtigen Legierungs- bzw. Verunreinigungselemente Mn, Ni, P und Cu hervorgehoben sind.

Tabelle 2.1 Im Vorhaben untersuchte Werkstoffe.

Code	Art	Werkstoff
P7 GW	Grundmaterial	22NiMoCr3-7 (0,12 % Cu)
P141 GW	Grundmaterial	20MnMoNi5-5 (0,05 % Cu)
P141 SG	Schweißgut	S3NiMo1/OP41TT (0,03 % Cu)
P370 SG	Schweißgut	NiCrMo1 UP(mod.)/ LW320, LW340 (0,22 % Cu)

Tabelle 2.2 Chemische Zusammensetzung (Masse-%).

Code	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	V	Cu	Al	Co	Ta
P7 GW	0,23	0,20	<b>0,70</b>	<b>0,015</b>	0,014	0,44	0,79	<b>0,98</b>	-	<b>0,12</b>	0,026	0,015	0,01
P141 GW	0,18	0,27	<b>1,40</b>	<b>0,007</b>	0,009	<0,10	0,49	<b>0,80</b>	0,012	<b>0,05</b>	0,018	0,015	<0,01
P141 SG	0,07	0,15	<b>1,06</b>	<b>0,017</b>	0,010	<0,10	0,62	<b>1,00</b>	0,011	<b>0,03</b>	0,014	0,010	<0,01
P370 SG	0,08	0,15	<b>1,10</b>	<b>0,015</b>	0,017	0,74	0,60	<b>1,11</b>	<0,001	<b>0,22</b>	0,013	-	-

Das RDB-Grundmaterial lag im vergüteten Zustand vor. Die Austenitisierungstemperatur betrug 870-940 °C, die Abkühlung erfolgte in Wasser und die nachfolgende Glüh Temperatur betrug 630-680 °C. Das Schweißgut wurde spannungsarmgeglüht. Für die Details der jeweils abschließenden mehrstufigen Wärmebehandlungen wird auf den Arbeitsbericht [Hein 2006] verwiesen.

#### 2.1.2 Gefüge

Die von der AREVA NP GmbH bereitgestellten unbestrahlten Proben wurden im FZD metallographisch charakterisiert. Diese Untersuchungen umfassen für das RDB-Grundmaterial die lichtmikroskopische Abbildung der ungeätzten und geätzten Schliffe in den drei verschiedenen Probenorientierungen, Korngrößenbestimmungen und Vickers-Härtemessungen. Für das Schweißgut wurden Überblicksaufnahmen angefertigt und Gefügedarstellungen in unterschiedlichen Bereichen der Schweißnahtproben vorgenommen. Ausgewählte Gefügaufnahmen sind in Bild 2.1

zusammengestellt. Eine Große Anzahl weiterer Gefügeaufnahmen sind in der Bilddatenbank des Metallographielabors enthalten. Beim Grundmaterial handelt es sich um bainitisches Gefüge (Bilder 2.1(a) und (b)). Das untersuchte Material erwies sich als homogen und isotrop. Für das Schweißgut wurde typisches Schweißnahtgefüge beobachtet (Überblicksaufnahmen in Bildern 2.1(c) und (d)). Die Ergebnisse der Korngrößenbestimmung und Vickers-Härtemessungen sind in Tab. 2.3 wiedergegeben.

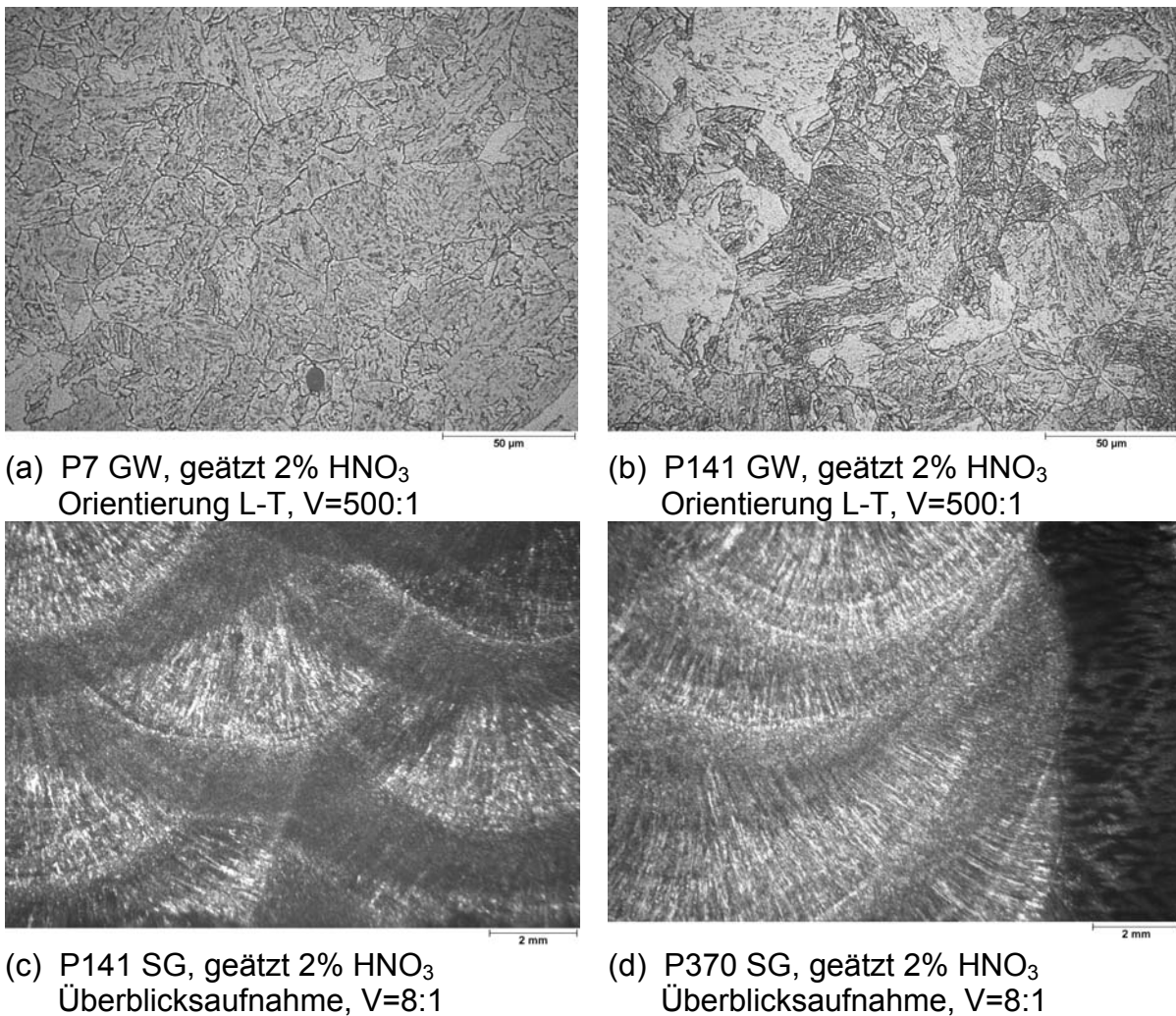


Bild 2.1 Gefügeaufnahmen des Grundwerkstoffs, (a) und (b), sowie Überblicksaufnahmen des Schweißguts, (c) und (d).

Tabelle 2.3 Ergebnisse der Korngrößenbestimmung und Vickers-Härtemessungen.

Material/Code	Korngröße (µm)	Vickers-Härte HV10 (gemessen)
P7 GW	28	183
P141 GW	29	186
P141 SG	-	204
P370 SG	-	227

### 2.1.3 Bestrahlungsbedingungen

Die bestrahlten Zustände der untersuchten RDB-Stähle wurden von der AREVA NP GmbH in Form von Scheiben der Abmessungen  $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$  angeliefert. Die Bestrahlungsbedingungen sind in Tab. 2.4 zusammengefasst. Die Bestrahlungstemperaturen stimmen nahezu überein und reflektieren die Verhältnisse in der RDB-Wand. Weitere Details können dem Arbeitsbericht [Hein 2006] entnommen werden. Für das Untersuchungsprogramm wurde gezielt ein Probenpaar des Cu-haltigen Schweißguts P370 SG ausgewählt, das bei Neutronenflüssen, die sich um den Faktor 35 unterscheiden, auf gleiche Neutronenfluenz bestrahlt worden ist. Daraus ergibt sich, dass dieses Probenpaar zur Untersuchung von eventuellen Flusseffekten besonders geeignet ist.

Tabelle 2.4 Bestrahlungsbedingungen der untersuchten RDB-Stähle.

Code	Temperatur (°C)	Bestrahlungszeit (*)	Neutronenfluss **) (n/cm <sup>2</sup> s)	Neutronenfluenz **) (n/cm <sup>2</sup> )
P7 GW	285	246,5 VLT	1,88E12	4,01E19
P141 GW	285	44,6 VLT	2,75E12	1,06E19
P141 SG	285	44,6 VLT	3,56E12	1,37E19
P370 SG	285	122 VLT	2,10E12	2,21E19
	288	11,6 VLJ	5,99E10	2,19E19

\*) VLT – Volllasttage, VLJ – Volllastjahre

\*\*) E > 1 MeV

### 2.1.4 Mechanische Eigenschaften

Die mechanischen Eigenschaften wurden mit Ausnahme der Vickers-Härte im Rahmen des Vorhabens CARISMA (Förderkennzeichen 1501284) bei der AREVA NP GmbH ermittelt. Die im vorliegenden Kontext wichtigsten Kennwerte des Zugversuchs und des Spröd-duktil-Übergangs sind in Tab. 2.5 zusammengefasst. Bei diesen Angaben ist zu beachten, dass die für die jeweilige Probe bzw. Probenserie relevanten individuellen Werte der Neutronenfluenz bzw. des Neutronenflusses angegeben sind. Daraus ergeben sich marginale Unterschiede für nominell gleichartig bestrahlte Zugproben, Serien von Biegeproben und Scheiben für SANS-Experimente. In der späteren Diskussion der Ergebnisse werden die Kennwerte des Zugversuchs, des Spröd-duktil-Übergangs und die SANS-Daten als einheitliche, den jeweils gleichen Bestrahlungszustand repräsentierende Datensätze aufgefasst.

### 2.1.5 Modelllegierungen

Zur Kalibrierung bzw. Validierung der rathentheoretischen Modelle ist es erforderlich, auf experimentelle Daten zuzugreifen, die an reinen Metallen sowie an binären, ternären oder quaternären Modelllegierungen gewonnen worden sind. Diese Experimente waren nicht Gegenstand des BMWi-Vorhabens. Ein solcher Zugriff wurde dennoch durch die Einbindung des FZD in die internationale Kooperation ermöglicht. Die Zusammensetzungen der Modelllegierungen, die Neutronenfluenzen sowie die gemessenen bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhungen sind in

Tab. 2.6 zusammengefasst. Die Bestrahlungstemperatur betrug einheitlich 300°C, der Neutronenfluss war mit  $95E12 \text{ n/cm}^2\text{s}$  ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) deutlich höher als bei den Bestrahlungen der RDB-Stähle des BMWi-Vorhabens. Für eine detaillierte Darstellung der Modelllegierungen, Bestrahlungsbedingungen und Messergebnisse wird auf die Literatur verwiesen [Lambrecht 2008, Bergner 2010].

Tabelle 2.5 Mechanisch-technologische Kennwerte der untersuchten RDB-Werkstoffe.

Code	Fluenz ( $\text{n/cm}^2$ )	Fluss ( $\text{n/cm}^2\text{s}$ )	$R_{peH}$ (MPa)	$R_m$ (MPa)	$A_5$ (%)	$RT_{NDT}$ (°C)	$T_{41}$ (°C)
P7 GW	0	-	450	610	22	-5	-7
	3,81E19	1,79E12	598	718	21	-	-
	4,11E19	1,93E12	-	-	-	27	25
P141 GW	0	-	434	583	27	-17	-18
	6,81E18	1,77E12	471	602	23	-	-
	1,05E19	2,72E12	-	-	-	-8	-9
P141 SG	0	-	516	604	23	-27	-7
	8,84E18	2,29E12	577	643	23	-	-
	1,35E19	3,50E12	-	-	-	-27	-7
P370 SG	0	-	604	696	20	-34	-12
	2,16E19	2,05E12	815	865	19	-	-
	2,25E19	2,13E12	-	-	-	85	107
	1,85E19	5,06E10	800	855	18	-	-
	2,22E19	6,07E10	-	-	-	77	99

Tabelle 2.6 Zusammensetzung der Modelllegierungen, Neutronenfluenz und bestrahlungsinduzierte Streckgrenzenerhöhung.

Material	Neutronenfluenz ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) ( $\text{n/cm}^2$ )	Neutronenfluenz (dpa)	$\Delta R_{p0.2}$ (MPa)
Reineisen	13E19	0,026	127
Fe-0,1Cu	1,7E19	0,026	132
	3,5E19	0,051	143
	6,9E19	0,10	205
	13E19	0,19	188
Fe-0,3Cu	1,7E19	0,026	210
	3,5E19	0,051	210
	6,9E19	0,10	254
	13E19	0,19	236
Fe-1,2Mn-0,7Ni	3,5E19	0,051	71
	6,9E19	0,10	125
	13E19	0,19	194
Fe-1,2Mn-0,7Ni-0.1Cu	3,5E19	0,051	167
	6,9E19	0,10	226
	13E19	0,19	300

## 2.2 Methoden

### 2.2.1 Neutronenkleinwinkelstreuung

Das Prinzip der Neutronenkleinwinkelstreuung (SANS) ist in Bild 2.2 schematisch dargestellt.

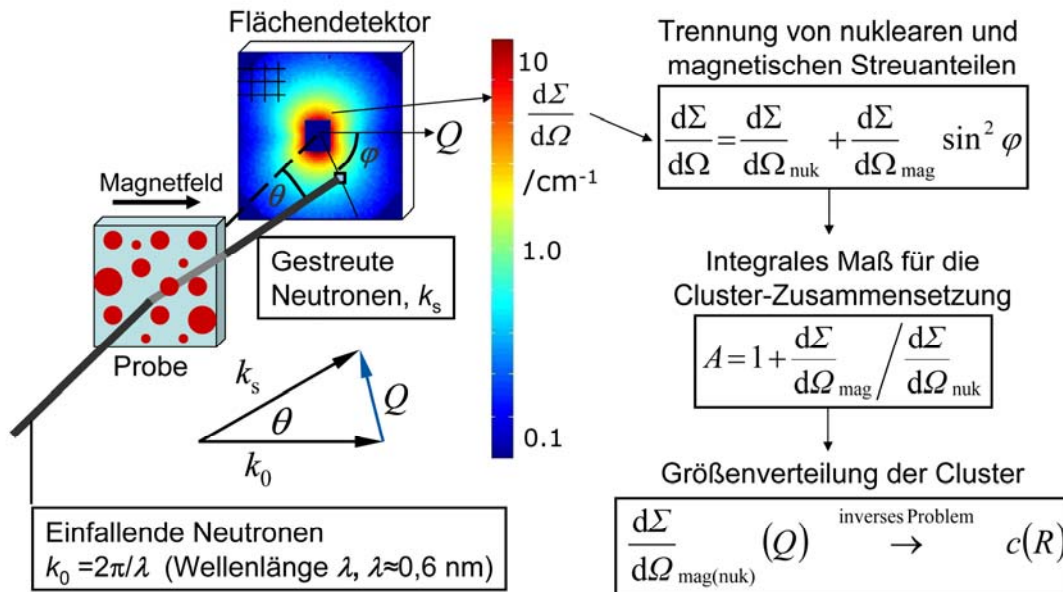


Bild 2.2 Schema zum Messprinzip der Neutronenkleinwinkelstreuung (SANS).

Diese Methode ist aus folgenden Gründen für die Charakterisierung der bestrahlungsinduzierten Bildung von Defekt-Fremdatom-Clustern (im folgenden kurz: Cluster) auf der nm-Skala besonders geeignet:

- Die Probenpräparation ist im Vergleich zu anderen Verfahren, z. B. TEM und APT, weniger aufwendig und unterliegt keinen speziellen Einschränkungen für radioaktives Material.
- Das Messverfahren selbst unterliegt im Unterschied zu anderen Methoden, z. B. PAS, keinen Einschränkungen durch die von der Probe ausgesendete Gammastrahlung.
- Das in einem SANS-Experiment erfasste Probenvolumen beträgt im vorliegenden Fall ungefähr  $50 \text{ mm}^3$ , d. h. es erfolgt eine Signalmittelung über ein makroskopisch großes Volumen und die Ergebnisse sind folglich für den Werkstoff weitgehend repräsentativ. Dagegen wird bei anderen Verfahren (z. B. TEM, APT) über Volumina kleiner als ein  $\mu\text{m}^3$  gemittelt, so dass die Repräsentativität der Ergebnisse ein Problem darstellt.
- SANS liefert Aussagen über Größe, Konzentration und Art der bestrahlungsinduzierten Cluster. Das bedeutet, dass mehrere der für die Strahlenhärtung bzw. Versprödung verantwortlichen Faktoren gleichzeitig erfasst werden.

Von diesen Stärken der Neutronenkleinwinkelstreuung wird im Vorhaben gezielt Gebrauch gemacht. Auf der anderen Seite hat auch SANS Grenzen, von denen die untere Nachweisgrenze von 0,5 nm hinsichtlich der Radien der bestrahlungsinduzierten Cluster und die Unempfindlichkeit für Versetzungsringe besonders zu erwähnen sind. Außerdem lässt sich nur eine integrale Aussage über die chemische

Zusammensetzung der Cluster gewinnen, während z. B. APT die Clusterzusammensetzung hinsichtlich aller chemischen Elemente zu rekonstruieren gestattet.

Die SANS-Experimente wurden an der SANS-Anlage V4 des Hahn-Meitner-Instituts Berlin durchgeführt [Keiderling 1995]. Hierzu waren wegen des großen Umfangs des Untersuchungsprogramms sowohl reguläre wissenschaftliche Experimentenvorschläge einzureichen und einer Begutachtungsprozedur zu unterziehen als auch Industriemesszeit zu beantragen. Die SANS-Messungen erfolgten an den bestrahlten Proben und entsprechenden unbestrahlten Referenzproben der Abmessungen  $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ . Diese Proben wurden einem Sättigungsmagnetfeld von 1,2 T ausgesetzt, welches rechtwinklig zur Richtung des Neutronenstrahls gerichtet war. Der Strahldurchmesser betrug einheitlich 7,5 mm bei einer Wellenlänge der Neutronen von 0,6 nm. Alle SANS-Messungen wurden für zwei Probe-Detektor-Abstände von 1,1 m und 4 m durchgeführt, um den erforderlichen Bereich der Streuvektoren  $Q$  von 0,2 bis  $3 \text{ nm}^{-1}$  abzudecken. Die zugehörigen Kollimationslängen des Neutronenstrahls betragen 2 bzw. 4 m.

Die Behandlung der Rohdaten umfasste Messungen der Transmission, des Strahlungsuntergrunds und der Detektorempfindlichkeitsverteilung [Strunz 2000]. Die Absoluteichung erfolgte mittels eines Wasserstandards. Zur Datenauswertung gehörten:

- die Trennung von magnetischer und nuklearer Streuung durch Ausnutzung der Richtungsabhängigkeit der Streuung relativ zur angelegten Magnetfeldrichtung [Keiderling 2002],
- die Berechnung des Verhältnisses von magnetischer und nuklearer Streuung gemäß der Definition des sogenannten A-Verhältnisses [Beaven 1986] als Maß für die mittlere Zusammensetzung der Streuer,
- die Separation des hier nicht interessierenden inkohärenten Streuanteils mit Hilfe sogenannter Porod-Darstellungen [Porod 1951, Porod 1952],
- sowie die Rekostruktion der Größenverteilungen der Streuer durch Lösung eines inversen Problems mit Hilfe des Glatter-Verfahrens [Glatter 1980].

Hinsichtlich der Genauigkeit der rekonstruierten Clustergrößenverteilungen erfolgten eigene Empfindlichkeitsstudien.

### 2.2.2 Vickers-Härte

Die Vickers-Härte HV10 ist ein technologischer Werkstoffkennwert. Sie wurde gemäß Norm DIN EN ISO 6507-1 ermittelt. Die Härtemessungen erfolgten unmittelbar an den bestrahlten SANS-Proben sowie an den entsprechenden unbestrahlten Referenzproben. Obwohl die Kennwerte des Zugversuchs bereits vorlagen, sind die Vickers-Härtemessungen wichtig, da sie am selben Probenvolumen gewonnen wurden wie die SANS-Daten, so dass jegliche mit eventuellen Materialinhomogenitäten oder marginalen Unterschieden in den Bestrahlungsbedingungen verbundenen Übertragbarkeitsprobleme entfallen.

Für die Bestimmung der Vickers-Härte wurden je 10 Einzelmessungen durchgeführt und die arithmetischen Mittelwerte und Standardabweichungen berechnet.

## 2.3 Experimentelle Ergebnisse

### 2.3.1 Neutronenkleinwinkelstreuung

Die gemessenen nuklearen und magnetischen SANS-Streuwirkungsquerschnitte der untersuchten RDB-Werkstoffe gemäß Tab. 2.1 und 2.4 sind in Bildern 2.3 bis 2.6 jeweils für die bestrahlten Zustände und die entsprechenden unbestrahlten Referenzzustände dargestellt. Je nach der chemischen Zusammensetzung, der Neutronenfluenz und dem Neutronenfluss sind unterschiedlich starke Zunahmen der Wirkungsquerschnitte zu beobachten. Aus den Messdaten können unmittelbar die sogenannten A-Verhältnisse gemäß Bild 2.2 berechnet werden. Für die weitere Auswertung wird angenommen, dass es sich bei den bestrahlten Werkstoffen um ein verdünntes System von homogenen kugelförmigen nichtmagnetischen Streuern in einer homogenen, durch die unbestrahlten Zustände repräsentierten Matrix handelt. Unter dieser Annahme können die Größenverteilungen der streuenden Teilchen sowie deren Anzahldichte und Volumenanteil berechnet werden. Die Ergebnisse sind in Tab. 2.7 zusammengefasst. Bilder 2.7 bis 2.10 geben die Größenverteilungen der bestrahlungsinduzierten streuenden Teilchen wieder.

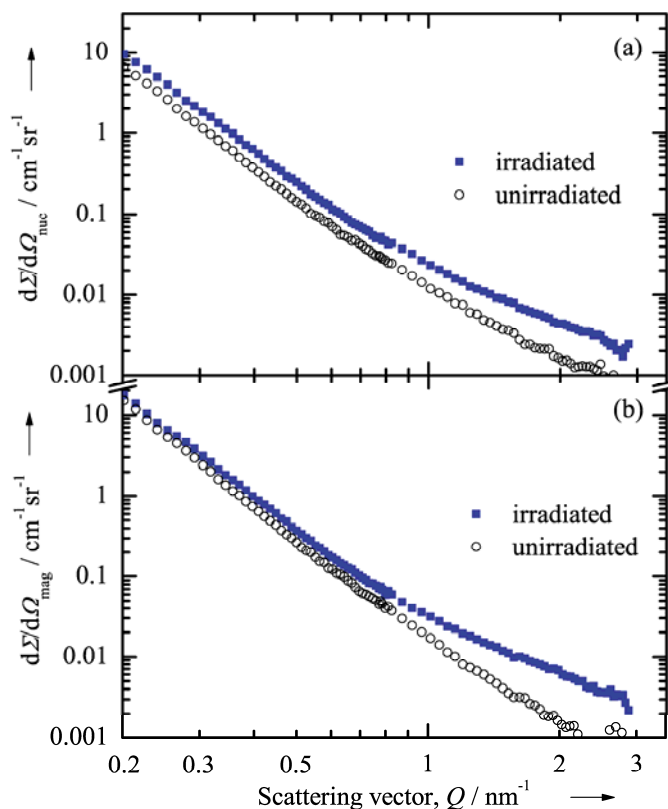


Bild 2.3

Gemessene SANS-Streuwirkungsquerschnitte für die unbestrahlten und bestrahlten Zustände des RDB-Grundwerkstoffs P7 GW.

(a) nuklearer Streuanteil

(b) magnetischer Streuanteil

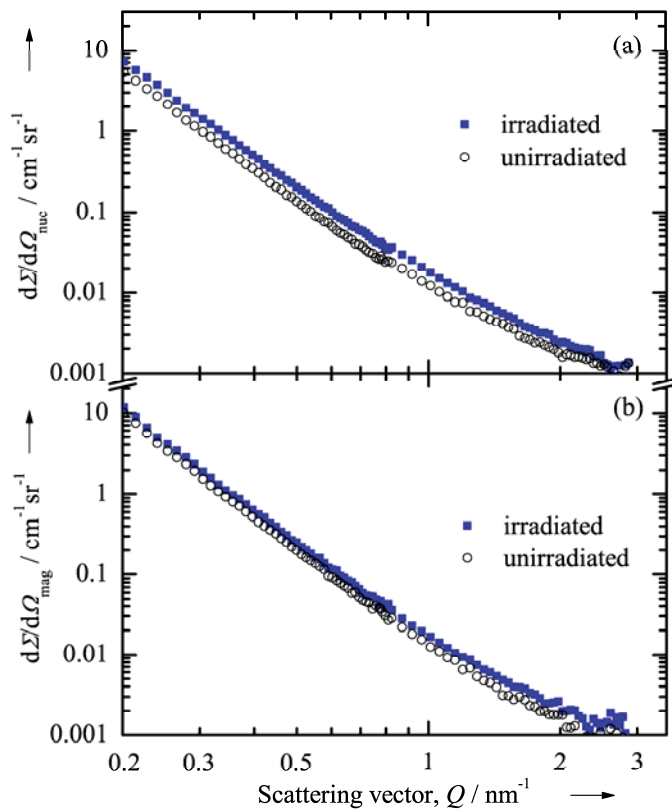


Bild 2.4

Gemessene SANS-Streuwirkungsquerschnitte für die unbestrahlten und bestrahlten Zustände des RDB-Grundwerkstoffs P141 GW.

(a) nuklearer Streuanteil

(b) magnetischer Streuanteil

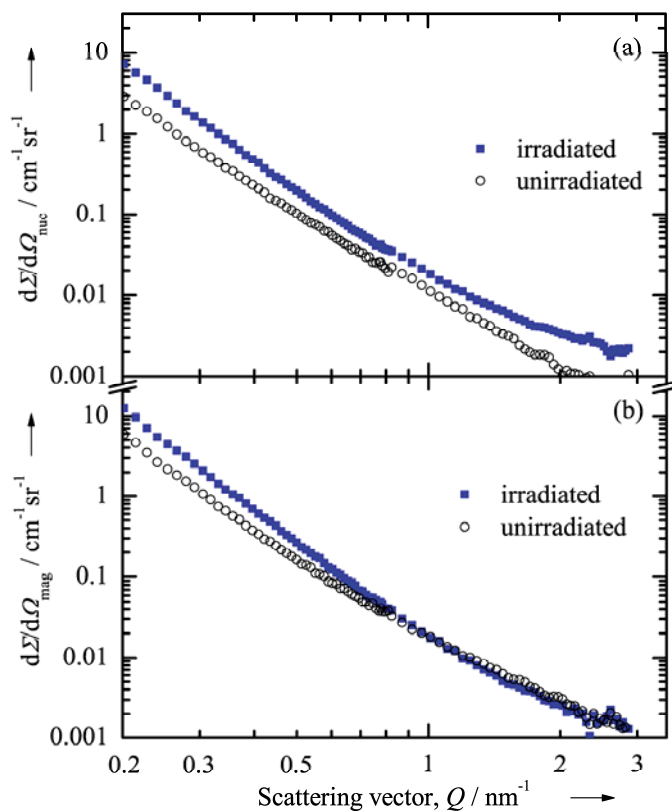


Bild 2.5

Gemessene SANS-Streuwirkungsquerschnitte für die unbestrahlten und bestrahlten Zustände des RDB-Schweißguts P141 SG.

(a) nuklearer Streuanteil

(b) magnetischer Streuanteil



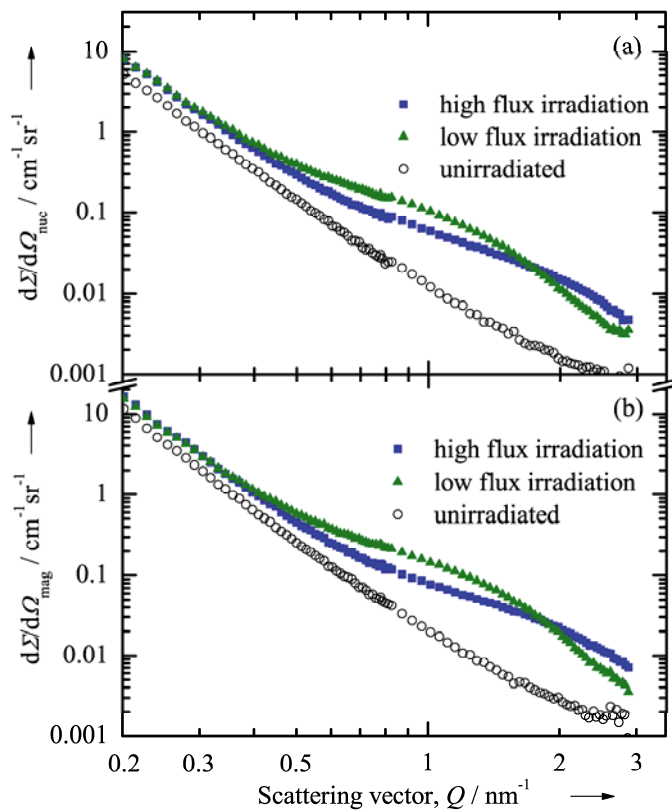


Bild 2.6

Gemessene SANS-Streu-  
wirkungsquerschnitte für die  
unbestrahlten und bestrahlten  
Zustände des RDB-Schweißguts  
P370 SG.

(a) nuklearer Streuanteil

(b) magnetischer Streuanteil

Tabelle 2.7 Ergebnisse der SANS-Messungen an RDB-Stählen.

Code	Fluss (n/cm <sup>2</sup> s)	Fluenz (n/cm <sup>2</sup> )	A- Verhältnis	Peakradius (nm)	Volumen- anteil (%)	Anzahldichte (10 <sup>16</sup> cm <sup>-3</sup> )
P7 GW	1,88E12	4,01E19	2,6	0,80	0,15	62
P141 GW	2,75E12	1,06E19	1,8	0,90	0,07	12
P141 SG	3,56E12	1,37E19	<1,4	~0,8	~0,005	~1
P370 SG	2,10E12	2,21E19	2,3	0,85	0,51	170
	5,99E10	2,19E19	2,5	1,60	0,53	50

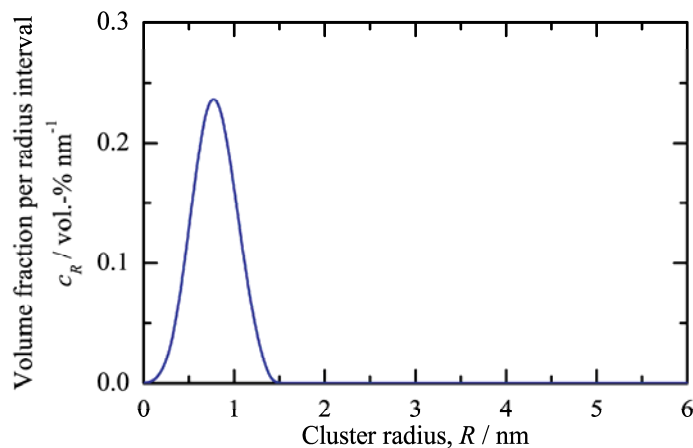


Bild 2.7

Berechnete Größenverteilung  
der bestrahlungsinduzierten  
streuenden Teilchen für den  
RDB-Grundwerkstoff P7 GW.

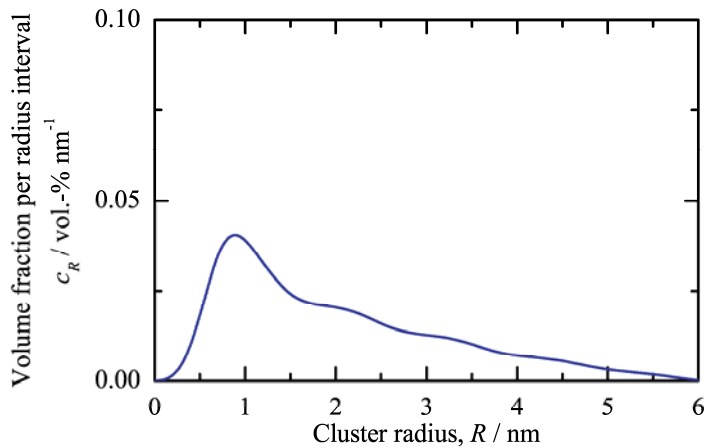


Bild 2.8

Berechnete Größenverteilung der bestrahlungsinduzierten streuenden Teilchen für den RDB-Grundwerkstoff P141 GW.

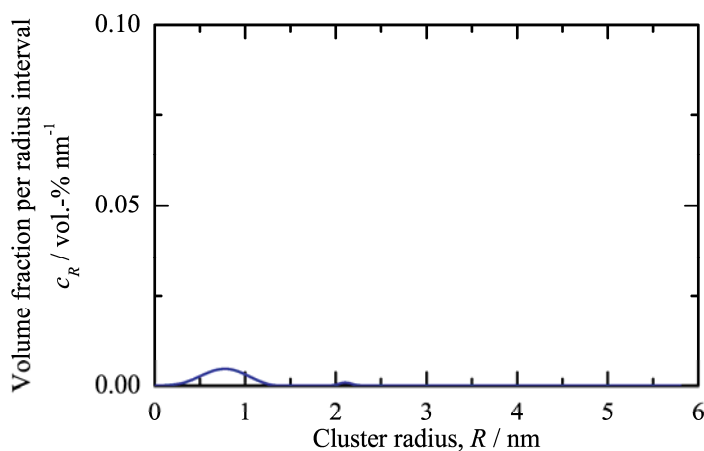


Bild 2.9

Berechnete Größenverteilung der bestrahlungsinduzierten streuenden Teilchen für das RDB-Schweißgut P141 SG.

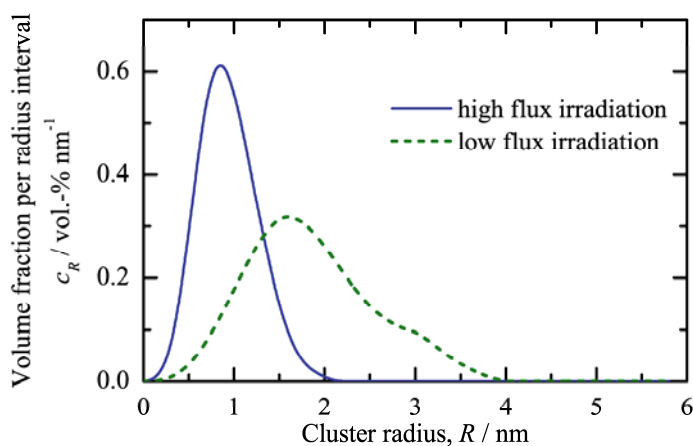


Bild 2.10

Berechnete Größenverteilungen der bestrahlungsinduzierten streuenden Teilchen für das RDB-Schweißgut P370 SG.

Die an den Modelllegierungen im Rahmen der internationalen Kooperation gewonnenen Ergebnisse der Neutronenkleinwinkelstreuemessungen liegen als Veröffentlichung in einer Fachzeitschrift vor [Bergner 2010]. Tab. 2.8 fasst die für den Zweck der Modellkalibrierung im vorliegenden Projekt relevanten Volumenanteile, Peakradien und A-Verhältnisse der bestrahlungsinduzierten Cu-Cluster für die binären Fe-Cu-Legierungen zusammen. Die Abhängigkeiten dieser Größen von der

Neutronenfluenz sind in Bildern 2.11 bis 2.13 dargestellt. Tab. 2.8 enthält auch die Ergebnisse für die Ni-haltigen Modelllegierungen, die für die Entwicklung raten-theoretischer Modellansätze zur Berücksichtigung des Ni-Effekts und von Cu-Ni-Synergismen bedeutsam sind.

Tabelle 2.8 SANS-Ergebnisse für die neutronenbestrahlten Modelllegierungen.

Material	Neutronenfluenz ( $E > 1 \text{ MeV}$ ) ( $\text{n}/\text{cm}^2$ )	Fluenz (dpa)	A-Verhältnis	Peak- radius (nm)	Volumenanteil (%)
Reineisen	13E19	0,026	1,4	0,95	0,014
Fe-0,1Cu	1,7E19	0,026	1,4	1,4	0,069
	3,5E19	0,051	>10	1,4	0,083
	6,9E19	0,10	4,6	1,6	0,083
	13E19	0,19	2,6	1,9	0,089
Fe-0,3Cu	1,7E19	0,026	2,5	2,0	0,229
	3,5E19	0,051	9,0	2,3	0,280
	6,9E19	0,10	7,0	2,1	0,237
	13E19	0,19	2,4	2,3	0,300
Fe-1,2Mn- 0,7Ni	3,5E19	0,051	1,1	0,9	0,003
	6,9E19	0,10	1,3	0,8	0,090
	13E19	0,19	1,6	1,4	0,130
Fe-1,2Mn- 0,7Ni-0.1Cu	3,5E19	0,051	1,2	1,0	0,046
	6,9E19	0,10	1,9	0,95	0,250
	13E19	0,19	2,0	1,05	0,410

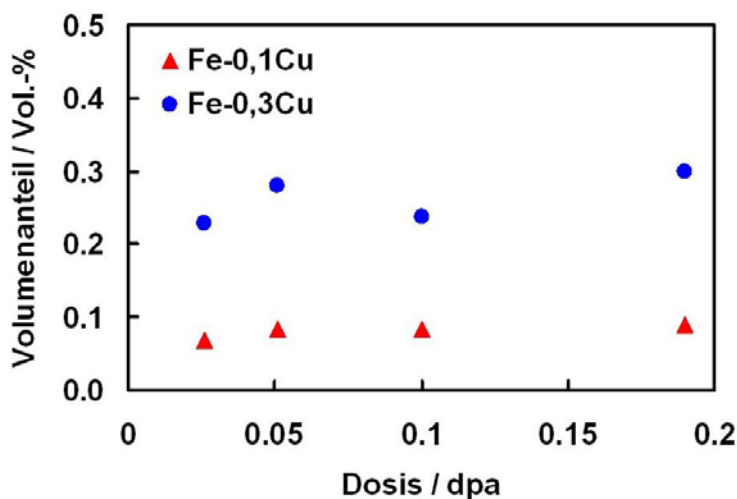


Bild 2.11

Volumenanteil der bestrahlungsinduzierten Cluster in Fe-0,1 Masse%Cu und Fe-0,3 Masse%Cu als Funktion der Neutronenbelastung.

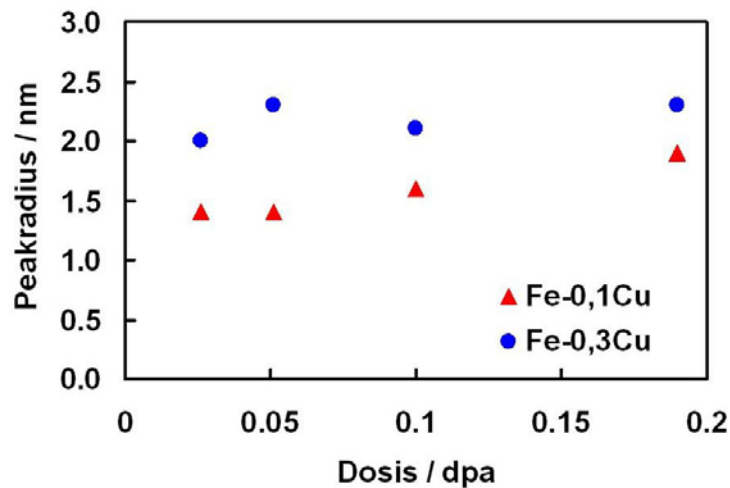


Bild 2.12

Peakradius der bestrahlungsinduzierten Cluster in Fe-0,1 Masse%Cu und Fe-0,3 Masse%Cu als Funktion der Neutronenbelastung.

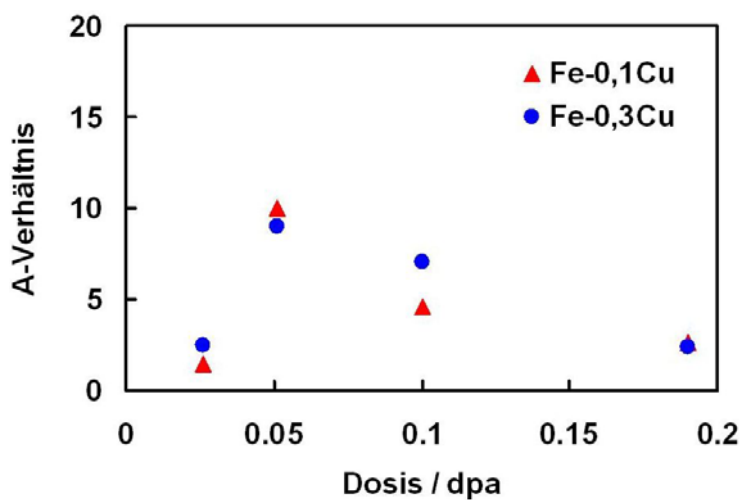


Bild 2.13

A-Verhältnis der bestrahlungsinduzierten Cluster in Fe-0,1 Masse%Cu und Fe-0,3 Masse%Cu als Funktion der Neutronenbelastung.

### 2.3.2 Vickers-Härte

Die Ergebnisse der Vickers-Härtemessungen sind in Tab. 2.9 zusammengefasst. Wie Bild 2.14 zeigt, sind die bestrahlungsinduzierten Anstiege der Vickers-Härte stark mit den entsprechenden Anstiegen der Streckgrenze, der Zugfestigkeit und der Übergangstemperaturverschiebung korreliert. Dies bestätigt grundsätzlich, dass die SANS-Proben, an denen auch die Messungen der Vickers-Härte vorgenommen worden sind, für den jeweiligen Werkstoff- bzw. Bestrahlungszustand repräsentativ sind.

Tabelle 2.9 Ergebnisse der Vickers-Härtemessungen sowie bestrahlungsinduzierte Änderungen der mechanischen Eigenschaften gemäß Tab. 2.5.

Werkstoff	HV10 (unbestrahlt)	HV10 (bestrahlt)	$\Delta$ HV10	$\Delta R_{peH}$ (MPa)	$\Delta R_m$ (MPa)	$\Delta T_{41}$ (K)
P7 GW	$189 \pm 5$	$243 \pm 7$	$55 \pm 9$	148	108	32
P141 GW	$201 \pm 5$	$212 \pm 9$	$11 \pm 10$	37	19	9
P141 SG	$217 \pm 10$	$211 \pm 8$	$-6 \pm 12$	61	39	0
P370 SG, hoher Fluss	$229 \pm 9$	$318 \pm 10$	$89 \pm 13$	211	169	119
P370 SG, niedr. Fluss	$229 \pm 9$	$300 \pm 10$	$71 \pm 13$	196	159	111

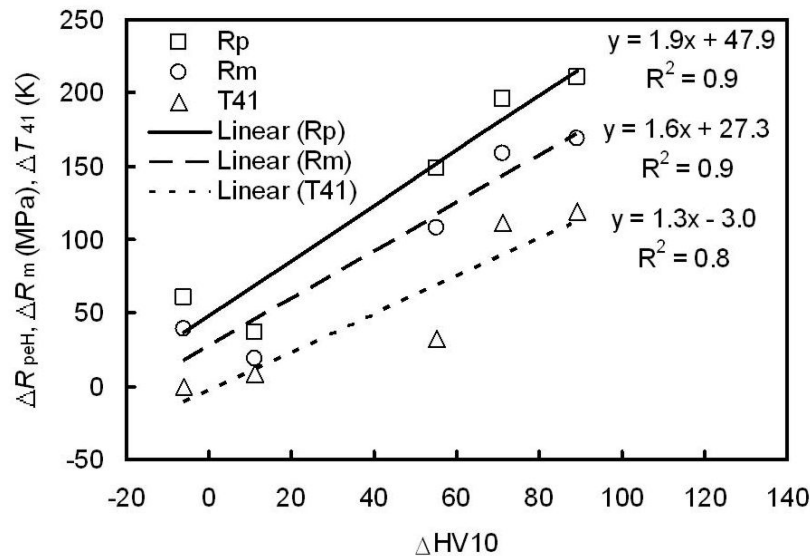


Bild 2.14 Korrelation des Vickers-Härteanstiegs mit Kennwerten des Zugversuchs und der Übergangstemperaturverschiebung.

## 2.4 Diskussion

### 2.4.1 Grundwerkstoffe P7 und P141 GW

Die beiden untersuchten RDB-Grundwerkstoffe sind nicht direkt miteinander vergleichbar, da sie sich sowohl in der chemischen Zusammensetzung, insbesondere hinsichtlich der Gehalte an Cu und Mn (siehe Tab. 2.2), als auch in der Neutronenfluenz (siehe Tab. 2.4) unterscheiden. Für P7 GW werden ein mehr als doppelt so hoher Cu-Gehalt und eine fast viermal größere akkumulierte Fluenz ausgewiesen als für P141 GW. Beide Faktoren wirken versprödungsfördernd. Demzufolge sind für P7 GW sowohl stärkere bestrahlungsinduzierte Änderungen der mechanischen Eigenschaften als auch ein größerer Volumenanteil der bestrahlungsinduzierten Defekt-Fremdatom-Cluster zu erwarten. Diese Erwartungen bestätigen sich, wie die ermittelten Werte in Tab. 2.7 und 2.9 zeigen.

Die Differenz der gemessenen A-Verhältnisse von  $A = 2,6$  für P7 GW zu  $A = 1,8$  für P141 GW impliziert Unterschiede der mittleren chemischen Zusammensetzung der bestrahlungsinduzierten Cluster. In der Tat weist P7 GW einen höheren Anteil an Cu auf, was eine Erhöhung des A-Verhältnisses bis auf  $A = 12$  für reine kohärente Cu-Ausscheidungen bewirkt. Gleichzeitig hat P7 GW einen niedrigeren Gehalt an Mn, was zu einer Absenkung bis auf  $A = 1,2$  für reine kohärente Mn-Cluster führen kann. Es ist zu beachten, dass Unterschiede in der chemischen Zusammensetzung der Cluster auch unterschiedliche Hindernisstärken für das Gleiten von Versetzungen und damit unterschiedliche Härtungseffekte nach sich ziehen.

Während die Clustergröße, die dem größten relativen Volumenanteil an bestrahlungsinduzierten Clustern entspricht (Peakradius in Tab. 2.7), für beide Grundwerkstoffe annähernd übereinstimmt, ist die Größenverteilung für P141 GW deutlich breiter. Das bedeutet, dass in P141 GW ein signifikanter Anteil ungewöhnlich großer bestrahlungsinduzierter Cluster auftritt. Die Ursachen hierfür konnten noch nicht

abschließend aufgeklärt werden. Die Clustergröße im fraglichen Bereich von 1 bis 5 nm hat aber erfahrungsgemäß keinen großen Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften.

Insgesamt ist davon auszugehen, dass die Unterschiede in den mechanischen Eigenschaftsänderungen (bei gleicher Basisfluenz) primär durch den Volumenanteil der Cluster und durch deren Hindernisstärke bestimmt werden.

#### 2.4.2 Schweißgut P141 SG

Das RDB-Schweißgut P141 SG weist die niedrigsten Werte der bestrahlungsinduzierten Härtezunahme, Übergangstemperaturverschiebung (beide Tab. 2.9) und des Volumenanteils bestrahlungsinduzierter Cluster auf. Letzterer liegt nahe an der unteren Auflösungsgrenze für SANS, so dass nur grobe Schätzwerte der SANS-Ergebnisse angegeben werden können. Diese in sich konsistenten Befunde sind zweifelsfrei auf den niedrigsten Cu-Gehalt aller im Untersuchungsprogramm enthaltenen RDB-Stähle bei moderaten Mn- und Ni-Gehalten und auf die vergleichsweise niedrige Neutronenfluenz zurückzuführen. Die ausgesprochen geringe Versprödungsneigung des Schweißguts ist ein Qualitätsmerkmal.

Interessant ist auch die Feststellung, dass P141 SG mit 0,017 Masse-% den höchsten aller analysierten P-Gehalte aufweist. Obwohl die versprödende Wirkung von P-Segregationen an Korngrenzen in der Literatur belegt ist, tritt dieser Effekt unter den vorliegenden Bedingungen offensichtlich nicht in Erscheinung.

#### 2.4.3 Schweißgut P370 SG

Dieses RDB-Schweißgut liegt in zwei unterschiedlichen Bestrahlungszuständen vor, die sich im Neutronenfluss (um den Faktor 35), aber nicht in der akkumulierten Neutronenfluenz unterscheiden. Die ermittelten Volumenanteile der bestrahlungsinduzierten Cluster sowie die A-Verhältnisse (und daher auch die mittlere Zusammensetzung bzw. die Hindernisstärke) stimmen trotz der extremen Flussunterschiede annähernd überein. Lediglich hinsichtlich der Clustergröße wurde ein signifikanter Unterschied festgestellt. Auch die durchaus deutlichen bestrahlungsinduzierten Änderungen der mechanischen Eigenschaften stimmen für beide Flüsse nahezu überein. Dies steht mit der bereits erwähnten Tatsache in Einklang, dass die mechanischen Eigenschaften durch Volumenanteil und Hindernisstärke der bestrahlungsinduzierten Cluster bestimmt werden und nur schwach von der Clustergröße abhängen. Es ist besonders zu betonen, dass der gefundene Flusseffekt hinsichtlich der Clustergröße nicht im Widerspruch zur Praxis der Bestrahlungsüberwachung gemäß [KTA 2001] steht, sondern im Gegenteil, die Konservativität der Vorgehensweise auch im vorliegenden Fall gewährleistet ist.

Für beide Bestrahlungszustände sind die gefundenen Werte der Volumenanteile der Cluster (0,51 bzw. 0,53%) sowie der bestrahlungsinduzierten Änderungen der mechanischen Eigenschaften die größten aller für die vorliegenden RDB-Stähle gemessenen Werte. Hierfür ist hauptsächlich der besonders hohe Cu-Gehalt von 0,22 Masse-% verantwortlich. Gleichzeitig ist festzustellen, dass der Volumenanteil der gebildeten Cluster größer ist als der aufgrund des Cu-Gehalts maximal mögliche

Volumenanteil von reinen Cu-Ausscheidungen. Hieraus ergibt sich zwingend, dass andere Legierungselemente, insbesondere Mn und Ni, an den bestrahlungsinduzierten Clustern beteiligt sein müssen.

#### 2.4.4 Flusseffekt

Der hier konkret beobachtete Flusseffekt hinsichtlich der Clustergröße bietet die Möglichkeit, einen Beitrag zum Verständnis der im internationalen Rahmen diskutierten möglichen Flusseffekte zu leisten. Dies ist Gegenstand einer entsprechenden Fachpublikation [Bergner 2008a], in der neben der Mitteilung des Messergebnisses auch ein Erklärungsansatz auf der Grundlage ratentheoretischer Argumente gegeben wird.

Hierzu wird zunächst die Leerstellenkonzentration in der Eisenmatrix unter Neutronenbestrahlung im stationären Zustand analytisch berechnet. Im stationären Zustand (Index s) sind die Zeitableitungen in den Bilanzgleichungen für die Leerstellenkonzentration  $C_v$  (Gl. 2.1) und die Zwischengitteratomkonzentration  $C_i$  (Gl. 2.2) gleich null zu setzen.

$$\frac{dC_v}{dt} = \eta\varphi - \frac{4\pi r(D_v + D_i)C_v C_i}{\Omega_a} - D_v S_v C_v \quad (2.1)$$

$$\frac{dC_i}{dt} = \eta\varphi - \frac{4\pi r(D_v + D_i)C_v C_i}{\Omega_a} - D_i S_i C_i \quad (2.2)$$

Gl. 2.3 beschreibt die resultierende Leerstellenkonzentration im stationären Zustand  $C_{vs}$  als Funktion des Neutronenflusses  $\varphi$ .

$$C_{vs}(\varphi) \sim \left( \sqrt{1 + \frac{\varphi}{\varphi_t}} - 1 \right) \sim \begin{cases} \varphi & \varphi \ll \varphi_t \\ \sqrt{\varphi} & \varphi \gg \varphi_t \end{cases} \quad (2.3)$$

Es ergeben sich zwei verschiedene Grenzfälle, je nachdem, ob der vorliegende Neutronenfluss kleiner oder größer als der Übergangfluss  $\varphi_t$  (Gl. 2.4) ist.

$$\varphi_t = \frac{\Omega_a D_v S_v^2}{16\pi r \eta} \approx 0,7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \quad (2.4)$$

Unter der Annahme, dass die Cu-Diffusion unter Bestrahlung proportional zur Leerstellenkonzentration im stationären Zustand ist, lässt sich die Zeitkonstante für die Bildung Cu-reicher Ausscheidungen berechnen. Die Auswertung der Gleichung zeigt, dass es zwei Flussbereiche gibt. Im Niedrigflussbereich ist die Clustergröße im Rahmen des Modells flussunabhängig. Im Hochflussbereich fällt die Clustergröße mit zunehmendem Neutronenfluss (aber gleicher Referenzfluenz) ab. Ein Ausdruck für den Übergangfluss zwischen beiden Bereichen konnte abgeleitet und größenmäßig abgeschätzt werden (Gl. 2.4). Dabei hat sich gezeigt, dass der Übergangfluss gerade zwischen den beiden Bestrahlungszuständen des RDB-Schweißguts P370 SG liegt (siehe Tab. 2.5). Das bedeutet, dass für die Hochflussbestrahlung (Voreilprobe) ein kleinerer mittlerer Clusterradius zu erwarten ist als für die Niedrigflussbestrahlung (die eher die Bedingungen in der RDB-Wand repräsentiert), wie der Befund qualitativ bestätigt. Es ist jedoch zu betonen, dass die verein-

fachenden Modellannahmen einen quantitativen Vergleich nicht zulassen. Für eine detaillierte Betrachtung wird auf spätere Kapitel verwiesen.

Auch der klare empirische Befund, dass die mechanischen Eigenschaftsänderungen trotz der unterschiedlichen mittleren Clustergrößen im wesentlichen übereinstimmen, trägt zum Detailverständnis der Neutronenversprödung bei.

#### 2.4.5 Modelllegierungen

Das Bestrahlungsverhalten der Modelllegierungen wurde aus der Sicht der Neutronenkleinwinkelstreuung in [Bergner 2010] im Detail diskutiert. Da die SANS-Methode allein nicht alle Aspekte der Bildung bestrahlungsinduzierter Cluster aufzuklären gestattet, ist der Verweis auf die Ergebnisse anderer Methoden bedeutsam [Lambrecht 2009, Hernandez-Mayoral 2010, Meslin 2010]. Nachfolgend werden die für die ratentheoretische Modellierung wichtigsten Erkenntnisse thesenartig zusammengestellt.

- Für die binären Fe-Cu-Legierungen sind die Volumenanteile der bestrahlungsinduzierten Cluster im erfassten Fluenzbereich unabhängig von der Fluenz. Die Volumenanteile korrelieren überraschend gut mit den Cu-Gehalten der beiden Fe-Cu-Legierungen (Bild 2.11).
- Für die binären Fe-Cu-Legierungen nehmen die Größen der bestrahlungsinduzierten Cluster mit steigender Fluenz leicht zu (Bild 2.12). Beides, die Konstanz des Volumenanteils und das langsame Wachstum, stehen mit dem Mechanismus der Ostwald-Reifung im Einklang. Für Fe-0,3%Cu ist der mittlere Radius der bestrahlungsinduzierten Cluster etwas größer als für Fe-0,1%Cu (Bild 2.12). Dies entspricht ungefähr gleichen Anzahldichten für beide Cu-Gehalte.
- Für die binären Fe-Cu-Legierungen hängt das A-Verhältnis von der Fluenz aber nicht vom Cu-Gehalt ab (Bild 2.13). Aus der Fluenzabhängigkeit lässt sich ablesen, dass es sich um gemischte Cu-Atom-Leerstellen-Cluster handelt und dass das mittlere Cu-Leerstellen-Verhältnis zunächst zunimmt, dann ein Maximum überschreitet und schließlich wieder abnimmt. Das Maximum steht mit dem vollständigen Aufbrauchen des verfügbaren Cu in den Clustern im Einklang.
- Für die Mn- und Ni-haltigen Modelllegierungen (Tab. 2.8) läuft die Clusterbildung langsamer ab und erreicht im untersuchten Fluenzbereich keine Sättigung. Die gemessenen A-Verhältnisse deuten darauf hin, dass Mn zuerst zur Cluster-Bildung beiträgt und dann zunehmend durch Ni ersetzt bzw. überflügelt wird. Es gibt einen Synergismus von Cu und Mn/Ni in dem Sinne, dass der gemessene Volumenanteil für FeMnNiCu größer ist als die Summe der Volumenanteile für FeMnNi und FeCu (bei jeweils gleichen Elementgehalten und gleichen Fluenzen).

Zusätzlich zeigen die komplementären Untersuchungen mittels TEM, PAS und APT,

- dass es bestrahlungsinduzierte Leerstellencluster im sub-nm-Bereich gibt, die aber nicht zur Strahlenhärtung und Übergangstemperaturverschiebung beitragen,
- dass es bestrahlungsinduzierte Versetzungsringe gibt, die zur Strahlenhärtung beitragen, die aber mit zunehmender Komplexität der Modelllegierungen bis



hin zu realen RDB-Stählen entweder schwerer nachweisbar oder in abnehmender Anzahldichte vorhanden sind,

- und dass in Mn- und Ni-haltigen Modelllegierungen bzw. RDB-Stählen die bestrahlungsinduzierten Cluster neben Cu in der Tat auch Mn und Ni (sowie gegebenenfalls P und Si) enthalten.

#### 2.4.6 Gefüge-Eigenschafts-Beziehungen

Ziel dieses Abschnitts ist es zu überprüfen, inwieweit sich die im Rahmen des Vorhabens untersuchten RDB-Stähle in aus der Fachliteratur bekannte Gefüge-Eigenschafts-Korrelationen einordnen, und Schätzwerte für die Hindernissträngen unterschiedlicher Arten bestrahlungsinduzierter Defekte abzuleiten.

Wie bereits in früheren Vorhaben und Fachpublikationen gezeigt wurde, ist der mittels SANS gemessene Volumenanteil der bestrahlungsinduzierten Cluster der dominante, die mechanischen Eigenschaften bestrahlter RDB-Stähle bestimmende Parameter. Die Korrelation der Streckgrenzenerhöhung mit der Wurzel aus dem Clustervolumenanteil ist in Bild 2.15 für Cu-haltige RDB-Stähle und Modelllegierungen dargestellt. Es wird eine ausgeprägte lineare Korrelation beobachtet. Die Geradengleichung der entsprechenden Regressionsgeraden ist im Bild angegeben. Der Cu-haltige RDB-Grundwerkstoff P7 und das Cu-haltige RDB-Schweißgut folgen dieser Korrelation nur grob, beide Streckgrenzenerhöhungen weichen nach unten vom Trend ab, d. h. die Strahlenhärtung ist im vorliegenden Falle geringer als der Trend erwarten ließe. Das bedeutet, dass für die im Vorhaben untersuchten RDB-Stähle, gemessen am Trend, Konservativität vorliegt.

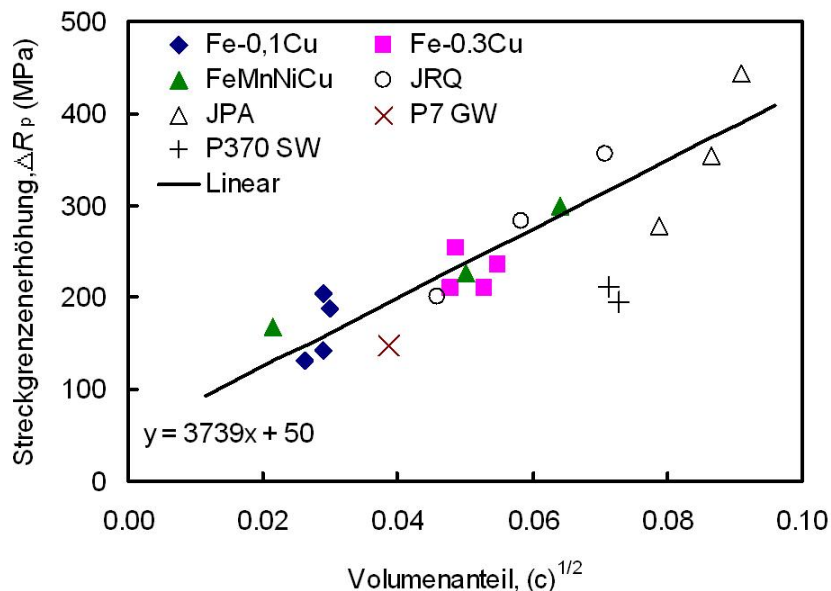


Bild 2.15 Korrelation der bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhung mit der Wurzel aus dem Clustervolumenanteil für Cu-haltige RDB-Stähle und Modelllegierungen.

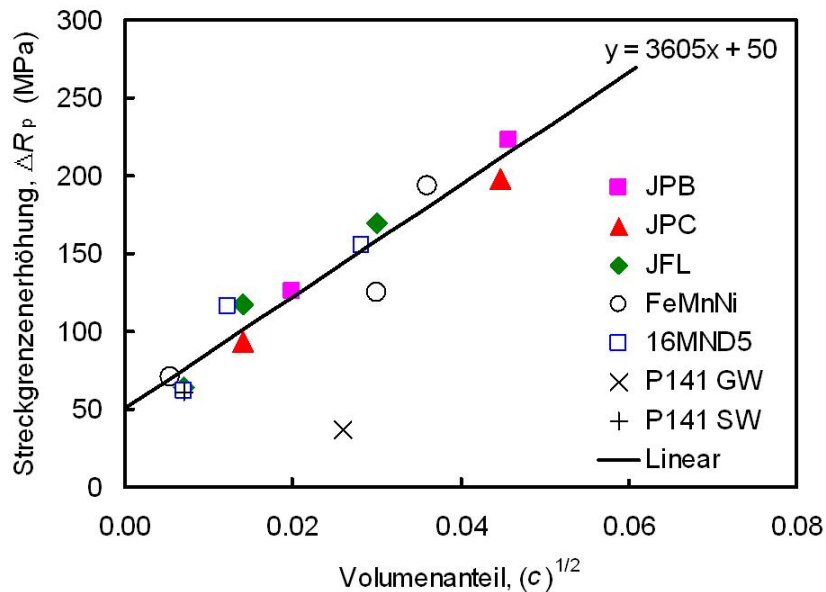


Bild 2.16 Korrelation der bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhung mit der Wurzel aus dem Clustervolumenanteil für Cu-arme RDB-Stähle und Modelllegierungen.

Bild 2.16 gibt eine entsprechende Darstellung für Cu-arme RDB-Stähle ( $\text{Cu} < 0,1$  Masse-%) und Modelllegierungen wieder. Hier ist ebenfalls ein linearer Trend zu beobachten. Wie im Falle der Cu-haltigen Stähle besteht für die Cu-armen RDB-Stähle des vorliegenden Vorhabens Konservativität hinsichtlich des Trends. Allerdings weicht der Grundwerkstoff P141 GW besonders stark vom Trend ab. Die Ursache für diese starke Abweichung ist bisher nicht bekannt. Sowohl für Cu-haltige als auch für Cu-arme RDB-Stähle wird ein Offset (Schnittpunkt mit der y-Achse) von übereinstimmend ( $50 \pm 10$ ) MPa beobachtet. Dieser Offset ist mit großer Wahrscheinlichkeit auf bestrahlungsinduzierte Defekte zurückzuführen, die nicht mit SANS nachweisbar sind. Hierzu gehören insbesondere Versetzungsringe [Bergner 2010, Hernandez-Mayoral 2010, Bergner 2008b] sowie eine Defektart, die als „Unstable Matrix Damage“ (UMD) bezeichnet wird [Odette 1998a] und deren Merkmale bisher nur ungenügend bekannt sind.

Die für das Vorhaben wesentliche Erkenntnis aus den Bildern 2.15 und 2.16 besteht darin, dass die ermittelten Geradenanstiege zur Abschätzung der Hindernisstärken für Cu-reiche und für Mn-Ni-reiche Ausscheidungen herangezogen werden können und dass diese Hindernisstärken nahezu übereinstimmen. Die Ermittlung der Hindernisstärke erfolgt in dem der Modellkalibrierung gewidmeten Abschnitt.

Ähnliche Korrelationen mit dem Clustervolumenanteil sind auch für den Anstieg der Vickers-Härte und der Übergangstemperaturverschiebung zu erwarten, wie schon Bild 2.14 vermuten lässt. Bild 2.17 zeigt eine solche Korrelation für die Übergangstemperaturverschiebung des in dieser Arbeit untersuchten Satzes von RDB-Stählen. Die zugrunde liegende Gesamtheit ist jedoch zu klein, um Aussagen über die funktionale Abhängigkeit zu machen.

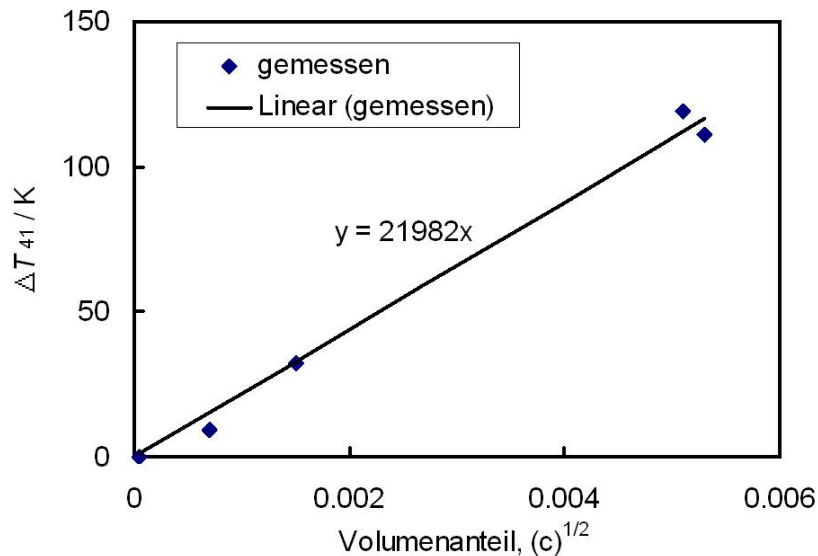


Bild 2.17 Korrelation der bestrahlungsinduzierten Übergangstemperaturverschiebung mit dem Clustervolumenanteil für die in diesem Vorhaben experimentell untersuchten RDB-Stähle.

## 2.5 Schlussfolgerungen für die Modellierung

Aus dem experimentellen Untersuchungsprogramm des Vorhabens können unter Einbeziehung von Ergebnissen an geeigneten Modelllegierungen die folgenden für die Modellierungsansätze relevanten Ergebnisse abgeleitet werden:

- a) In Cu-haltigen RDB-Stählen kommt es zur bestrahlungsinduzierten Bildung von Cu-reichen Clustern. Diese bewirken bei kleinen und mittleren Neutronenfluenzen den dominanten Beitrag zur Härtung und Übergangstemperaturverschiebung. Die wesentlichen Parameter sind hierbei der Clustervolumenanteil und die Hindernisstärke. Beide Größen sind der ratentheoretischen Modellierung grundsätzlich zugänglich und können mit SANS-Ergebnissen verglichen werden.
- b) In Mn- und Ni-haltigen Cu-armen RDB-Stählen kommt es zur bestrahlungsinduzierten Bildung von Mn-Ni-reichen Clustern. Diese bilden sich erst nach längeren Zeiten bzw. bei höheren Fluenzen als Cu-reiche Cluster und zeigen im Bereich der erfassten Fluenzen keine Sättigung. Sie erreichen, bezogen auf gleiche Volumenanteile, eine ähnliche härtende Wirkung wie Cu-Cluster. Es wird vorgeschlagen, im Rahmen eines ratentheoretischen Modellansatzes den Effekt von Ni (stellvertretend für Mn und Ni) separat zu betrachten.
- c) In einem Cu-haltigen RDB-Stahl wurde ein Flusseffekt auf die Clustergröße, nicht aber auf den Clustervolumenanteil und die mechanischen Eigenschaftsänderungen gefunden. Ratentheoretische Argumente liefern eine qualitative Erklärung für den Flusseffekt. Dies ist mit verfeinerten ratentheoretischen Modellen zu überprüfen.

### 3 Modelle

#### 3.1 Gesamtschema

Zur Veranschaulichung des Modellierungsansatzes ist in Bild 3.1 ein Ausschnitt aus Bild 1.1 in größerer Detailliertheit dargestellt. Das Modell besteht aus zwei Modulen, dem ratentheoretischen Modul (RT-Modul) und dem versetzungstheoretischen Modul (VT-Modul). Eingangsgrößen für den RT-Modul sind die chemische Zusammensetzung des Materials (Cu- und Ni-Gehalt) und die Bestrahlungsbedingungen (Neutronenfluss und Bestrahlungstemperatur). Der RT-Modul verfolgt die Größenverteilung und Zusammensetzung der bestrahlungsinduzierten Cluster als Funktion der Zeit bis hin zu RDB-relevanten Bestrahlungszeiten von Jahren. Aus Neutronenfluss und Bestrahlungszeit ergibt sich multiplikativ die Neutronenfluenz. Ausgabe-größen des RT-Moduls sind die Clustergrößenverteilung und als daraus abgeleitete Größen die Gesamtkonzentration, der Volumenanteil und der mittlere Radius sowie die mittlere Clusterzusammensetzung. Weiterhin lassen sich daraus das theoretische A-Verhältnis und die Hindernisstärke berechnen. Diese Größen können einerseits für die Validierung mit Hilfe von experimentellen Ergebnissen aus SANS-Experimenten herangezogen werden. Andererseits dienen sie als Eingabegrößen für den VT-Modul. In diesem Modul wird die bestrahlungsinduzierte Streckgrenzenerhöhung berechnet, die dann für die Validierung durch Vergleich mit gemessenen Streckgrenzenerhöhungen zur Verfügung steht. Die dem RT-Modul zugrunde liegenden Modelle werden im Abschnitt 3.2 beschrieben, Abschnitt 3.3 ist dem VT-Modul gewidmet. Codebeschreibung und Validierung sind Gegenstand des vierten Kapitels.

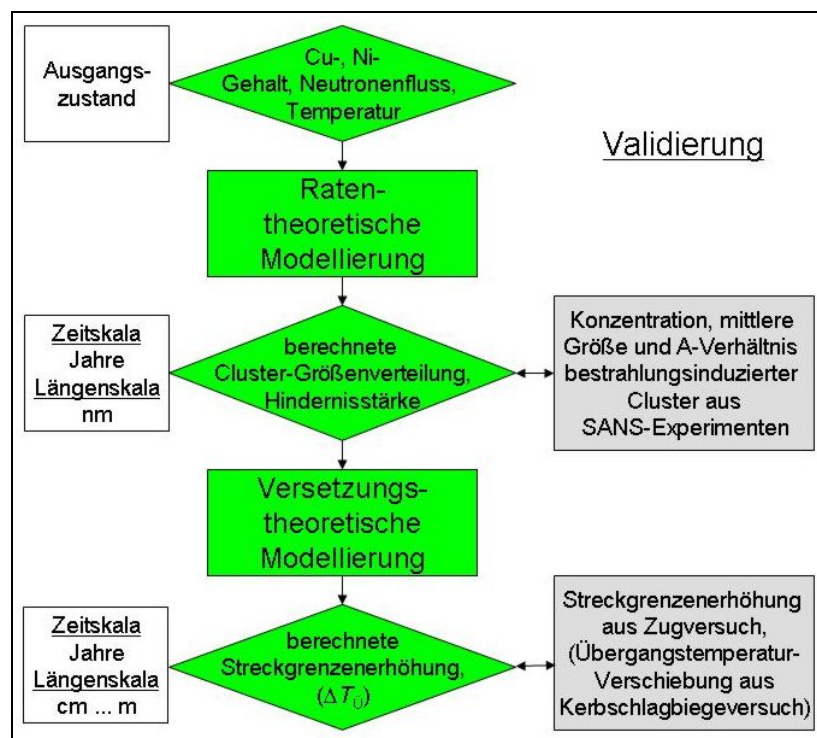


Bild 3.1 Gesamtschema zur Einordnung der Modellierungsaktivitäten in die Zielstellung des Vorhabens

## 3.2 Ratentheorie

### 3.2.1 Das CD-P-Modell

Das klassische Modell zur Beschreibung der bestrahlungsinduzierten Ausbildung von Fremdatomausscheidungen in eisenbasierten Werkstoffen wie RDB-Stählen besteht aus drei Teilen, dem Teilsystem der durch die Bestrahlung erzeugten Punktdefekte in der Eisenmatrix, Eisen-Leerstellen und Eisen-Zwischengitteratome also, dem Teilsystem der in der Eisenmatrix gelösten Fremdatome und der sich daraus im Laufe der Zeit entwickelnden Fremdatomcluster, den Ausscheidungen, und einer Kopplung zwischen den beiden Teilsystemen, wodurch der Prozess der Fremdatomausscheidung überhaupt erst sensitiv auf die Neutronenstrahlung wird. In Anlehnung an die in der Fachliteratur vorkommende Nomenklatur soll dieses Modell als CD-P-Modell (cluster dynamics for precipitates) bezeichnet werden [Mathon 1997, Christien 2004].

#### A) Punktdefektsystem

Die entscheidenden Prozesse im Teilsystem der Punktdefekte sind die Erzeugung von Leerstellen und Zwischengitteratomen durch die bestrahlungsverursachten Stoßkaskaden, die anschließende Diffusion dieser Defekte in der Eisenmatrix und die abschließende Vernichtung der Punktdefekte (Ausheilung der Matrix) durch paarweise Rekombination oder durch Absorption an geeigneten Senken. Als Senken kommen dabei primär Versetzungen in Frage, die in jedem Werkstoff in ausreichender Menge vorhanden sind. Alternativ können die Punktdefekte auch an Korngrenzen absorbiert werden.

Die zeitliche Entwicklung der Konzentrationen  $C_i$  und  $C_v$  (gemessen in Defekt pro Gitterplatz) der beiden Typen von Punktdefekten, Zwischengitteratom (i, interstitials) und Leerstellen (v, vacancies), wird durch folgende Gleichung beschrieben:

$$\frac{d}{dt}C_x = G_x - k_{vi}C_iC_v - k_xC_x \quad , \quad x = i, v \quad . \quad (3.1)$$

Dabei ist  $G_x$  die Produktionsrate der Punktdefekte  $x = i, v$  (gemessen in Defekt pro Gitterplatz und Sekunde) und  $k_x$  die Zerfallskonstante für die Absorption eines Punktdefekts  $x$  an den Senken. Die Rekombination eines Zwischengitteratoms mit einer Leerstelle ist eine Reaktion zweiter Ordnung und wird durch die Reaktionskonstante  $k_{vi}$  charakterisiert. Dieser Term macht das Differentialgleichungssystem 3.1 nicht-linear, und in dieser Nicht-Linearität liegt der bereits im vorangegangenen Kapitel in Abschnitt 2.4.4 diskutierte Flusseffekt begründet, der besagt, dass die strukturellen Veränderungen in der Materialmatrix bei gleicher Neutronenfluenz immer noch von der Flussdichte abhängen können.

Bei der Festlegung der Produktionsraten und Zerfallskonstanten kommt eine Reihe von empirischen Faktoren ins Spiel. Die Produktionsraten  $G_x$  sind durch

$$G_x = \eta \cdot (1 - f_{x,cl}) \cdot G_{dpa} \quad (3.2)$$

gegeben, wobei  $G_{dpa}$  die zur Berechnung der Neutronenfluenz in dpa (displacements per atom) nach Norgett, Robinson und Torrens (NRT) [Norgett 1975, ASTM 1994] verwendete Bestrahlungsrate ist. Der Effizienzfaktor  $\eta$  berücksichtigt, dass die tatsächliche Anzahl an erzeugten Punktdefekten in der Regel niedriger ist, als der

NRT-Standard. Er liegt im Bereich von 0,36 bis 0,4. Ferner ist zu berücksichtigen, dass bei Bestrahlung mit hochenergetischen Neutronen (oder Ionen) nicht nur Frenkel-Paare erzeugt werden, sondern ganze Stoßkaskaden ausgelöst werden, in deren Folge auch größere, mehratomare Defektstrukturen entstehen können, die im CD-P-Modell als immobil angenommen werden.  $f_{x,cl}$  gibt den Anteil an Punktdefekten vom Type  $x$  an, der in solchen Defektclustern verloren geht. Typischerweise liegen diese Faktoren bei 0,5 - 0,7. Im Detail hängen sie vom Neutronenspektrum ab.

Im Fall von Versetzungen als Senken wird die Zerfallskonstanten  $k_x$  über

$$k_x = z_x \cdot D_x \cdot \rho \quad \text{mit} \quad D_x = D_x^0 \exp\left(-\frac{E_{x,m}}{kT}\right) \quad (3.3)$$

angesetzt.  $D_x$  ist dabei die Diffusionskonstante des Punktdefektes  $x$  in der Eisenmatrix, welche ein typisches Arrhenius-Verhalten in der Temperaturabhängigkeit zeigt ( $T$ : Temperatur,  $k$ : Boltzmannkonstante,  $E_{x,m}$ : Migrationsenergie des Punktdefektes  $x$  gemessen in Joule / Defekt) und  $\rho$  ist die vorliegende Versetzungsdichte (gemessen in  $m/m^3$ ). Zusätzlich treten hier noch sogenannte Biasfaktoren  $z_x$  auf, die es erlauben, Unterschiede im Absorptionsverhalten von Zwischengitteratomen und Leerstellen zu berücksichtigen. Im CD-P-Modell haben sich die empirischen Werte  $z_v = 1,0$  und  $z_i = 1,2$  durchgesetzt, obwohl es auch weiter reichende Überlegungen zur adäquaten Festlegung der Biasfaktoren gibt, wie beispielsweise in [Duparc 2002, Brailsford 1981] dargestellt.

Die Reaktionskonstante  $k_{vi}$  lautet

$$k_{vi} = 4\pi r_{rec} \frac{D_i + D_v}{V_{Fe}} \approx 4\pi r_{rec} \frac{D_i}{V_{Fe}} \quad (3.4)$$

wobei  $V_{Fe}$  das Atomvolumen von Eisen in der ferritischen, kubisch raumzentrierten Eisenmatrix ist, und  $r_{rec}$  der Einfangradius für die Rekombination darstellt. 0,57 – 0,65 nm sind hier typische Werte. Da die Zwischengitteratome um viele Größenordnungen mobiler sind als die Leerstellen, kann man sich in Gl. 3.4 auf den Wert von  $D_i$  beschränken.

Nach hinreichend langer Bestrahlungszeit bei konstantem Neutronenfluss stellt sich im Punktdefektsystem ein Fließgleichgewicht mit charakteristischen Gleichgewichtskonzentrationen ein. Bei typischen Versetzungsdichten in der Größenordnung von  $10^{14} m/m^3$  benötigt man dafür Zeiten im Bereich von Minuten. Für diese Gleichgewichtskonzentrationen kann man analytische Ausdrücke angeben:

$$C_x^{sf} = C_x^{sat} \cdot f\left(\frac{G_x}{G_{tr}}, q_x\right) \quad \text{mit} \quad C_x^{sat} = \frac{G_x}{k_x} \quad \text{und} \quad q_i = \frac{G_i}{G_v} \quad \text{bzw.} \quad q_v = \frac{G_v}{G_i} \quad (3.5)$$

In Abhängigkeit vom Verhältnis der tatsächlichen Produktionsrate  $G_x$  zur Übergangsrate  $G_{tr}$  ist die im Fließgleichgewicht erreichte Konzentration  $C_x^{sf}$  um den Faktor  $f$  niedriger als die maximal erreichbare Sättigungskonzentration  $C_x^{sat}$ , die sich einstellt, wenn kein Rekombinationsterm in Gl. 3.1 vorhaben wäre. Der Reduktionsfaktor  $f(s,q)$  ist dabei durch

$$f(s, q) = \frac{1}{2} \left[ \left( 1 - \frac{1}{q} - \frac{1}{s} \right) + \sqrt{\left( 1 - \frac{1}{q} - \frac{1}{s} \right)^2 + \frac{4}{s}} \right] \quad (3.6)$$

gegeben und liegt stets zwischen 0 und 1. Im Fall gleicher Produktionsraten  $G_x$  für beide Typen von Punktdefekten ( $q_x = 1$ ) reduziert sich der Ausdruck (3.6) zu der Funktion (z. B. [Odette 2005])

$$g(4s) := f(s, q = 1) = \frac{\sqrt{1+4s} - 1}{2s} = 1 - s + O(s^2) \quad (3.7)$$

die auch der Diskussion im Abschnitt 2.2.4 zugrunde liegt (siehe Bild 3.2).

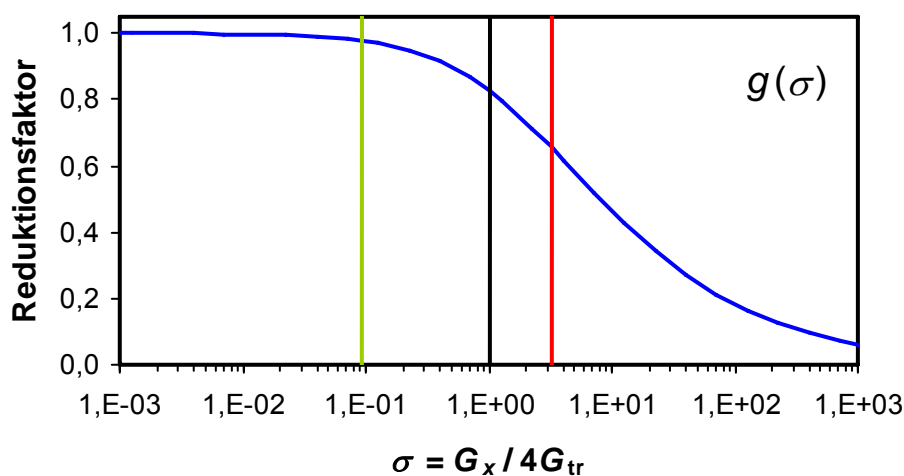


Bild 3.2 Reduktionsfaktor  $g(\sigma) = C_x^{\text{sf}} / C_x^{\text{sat}}$  der Punktdefektkonzentrationen im Fließgleichgewicht als Funktion des Verhältnisses  $\sigma = s/4 = G_x / 4G_{\text{tr}}$  für den Fall gleicher Punktdefektproduktionsraten  $G_i$  und  $G_v$  ( $q = 1$ ). Ebenfalls angezeigt ist die Lage der  $\sigma$ -Werte für den Niedrigflussfall (grün) und den Hochflussfall (rot) beim Schweißgut P370 SG.

Die Übergangsrate  $G_{\text{tr}}$  ist eine Materialkonstante, die nur von den Reaktionskonstanten in Gl (3.1) abhängt:

$$G_{\text{tr}} = \frac{k_i k_v}{k_{v_i}} = \frac{z_i z_v V_{\text{Fe}}}{4\pi r_{\text{rec}}} \frac{D_i D_v}{D_i + D_v} \rho^2 \approx \frac{z_i z_v V_{\text{Fe}}}{4\pi r_{\text{rec}}} D_v \rho^2 \quad (3.8)$$

Unter Verwendung der in der Veröffentlichung [Bergner 2008a] zum Flußeffect im Schweißgut P370 SG angegebenen Parameter findet man eine Übergangsrate  $G_{\text{tr}}$  von  $1,5 \times 10^{-9}$  def/Fe s. Die Produktionsraten  $G_x$  der Punktdefekte liegen im Hochflussbereich ( $2,1 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup> s bzw.  $3 \times 10^{-9}$  dpa/s) bei  $1,2 \times 10^{-9}$  def/Fe s und damit in der Nähe der Übergangsrate, was einen Reduktionsfaktor von 0,65 zur Folge hat. Wir befinden uns also beim Hochflussfall bereits im flussabhängigen Bereich, wo die Gleichgewichtskonzentrationen der Punktdefekte nicht mehr proportional zum Neutronenfluss und der daraus resultierenden Punktdefektproduktionsraten sind. Im Niedrigflussbereich ( $0,06 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup> s bzw.  $0,086 \times 10^{-9}$  dpa/s) hingegen findet man eine Produktionsrate von  $3,4 \times 10^{-11}$  def/Fe s, was

deutlich unterhalb der Übergangsrate liegt. Der Reduktionsfaktor erreicht nun mit 0,98 nahezu den Optimalwert von Eins, der einem perfekt flussunabhängigen Verhalten entspricht.

## B) Fremdatomsystem

Im Teilsystem der Fremdatome (Kupfer hier) gibt es aufgrund der Atomerhaltung keine Quell- und Senkenterme. Hier sind die wesentlichen Prozesse die Dimerisierung zweier Cu-Atome und die Absorption von Cu-Atomen durch polyatomare Cu-Cluster, sowie die entsprechenden Umkehrprozesse: Emission eines Cu-Atoms durch einen größeren Cu-Cluster und der Zerfall des Cu-Dimers.

Ähnlich wie im Teilsystem der Punktdefekte werden diese Ausscheidungs- und Auflösungsprozesse durch reaktionskinetische Gleichungen beschrieben. Dazu betrachtet man die Cu-Cluster einer bestimmten Anzahl  $n$  an Cu-Atomen als eine Spezies  $Cu_n$  und führt im Sinne einer "mean-field"-Näherung die Konzentrationen  $C_n$  aller  $n$ -atomaren Cluster (gemessen in Cluster pro Gitterplatz) ein:

$$\frac{d}{dt} C_n = J_{n-\frac{1}{2}} - J_{n+\frac{1}{2}} \quad \text{mit} \quad J_{n+\frac{1}{2}} = J_n^{\text{ab}} - J_{n+1}^{\text{em}} = k_n \cdot (C_{\text{Cu}} C_n - K_n(T) C_{n+1}) \quad (3.9)$$

Der Reaktionsstrom  $J_{n+\frac{1}{2}}$  für den Übergang von den  $n$ -atomaren zu den  $(n+1)$ -atomaren Clustern setzen sich dabei aus zwei Anteilen zusammen, einem Absorptionsstrom  $J_n^{\text{ab}}$  aus der Absorptionsreaktion



und einem Emissionsstrom  $J_{n+1}^{\text{em}}$  aus der Emissionsreaktion



Dabei sind  $\beta_n = k_n C_{\text{Cu}}$  und  $\alpha_n$  die Absorptions- und Emissionsrate eines einzelnen  $n$ -atomaren Fremdatomcluster und  $k_n$  ist die eigentliche von der Konzentration  $C_{\text{Cu}}$  der Monomere unabhängige Geschwindigkeitskonstante der Wachstumsreaktion. Die Mastergleichungen, Gl. 3.9, müssen für alle relevanten Clustergrößen  $n \geq 2$  gelöst werden. Für die Konzentration  $C_{\text{Cu}} \equiv C_1$  der in der Eisenmatrix gelösten Monomere (Atome) lässt sich ebenfalls eine Differentialgleichung aufstellen:

$$\frac{d}{dt} C_{\text{Cu}} = -2J_{\frac{1}{2}} - \sum_{n \geq 2} J_{n+\frac{1}{2}} \quad (3.12)$$

Sie ist strukturell etwas komplexer, da die Monomere an allen Reaktionen beteiligt sind. Alternative kann man die Monomerkonzentration auch direkt über

$$C_{\text{Cu}}(t) + \sum_{n \geq 2} n C_n(t) = C_{\text{Cu}}^0 \quad (3.13)$$

aus der Atomerhaltung und dem Gesamtatomanteil  $C_{\text{Cu}}^0$  an Fremdatomen im Material gewinnen, wie dies auch in unserer Implementierung der Fall ist.

Im diffusionsdominierten Grenzfall, der vorliegt, wenn die Absorptionsreaktionen, die an der Oberfläche der Fremdatomcluster stattfinden, wesentlich schneller ablaufen als die Diffusionsprozesse, die notwendig sind, um die benötigten in der Materialmatrix gelösten Fremdatome zum Cluster zu transportieren, werden die Absorptionskonstanten  $k_n$  durch das Diffusionsvermögen der Fremdatome bestimmt,



wobei man im einfachsten Fall kugelförmiger und hinreichend verdünnt vorliegender Cluster den Ausdruck

$$k_n = 4\pi R_n \frac{D_{\text{Cu}}^*}{V_{\text{Fe}}} \quad (3.14)$$

erhält.  $R_n$  ist dabei der Radius der  $n$ -atomaren  $\text{Cu}_n$ -Cluster und  $D_{\text{Cu}}^*$  die Diffusionskonstante der Fremdatome in der Eisenmatrix unter den gegebenen Bestrahlungsbedingungen (für Details siehe Teilabschnitt C). Zur Festlegung des Emissionskoeffizienten  $\alpha_n$  nutzt man üblicherweise das Prinzip des detaillierten Gleichgewichts, welches darauf basiert, dass das Emissionsverhalten eines Clusters eine clusterspezifische Eigenschaft ist, die (wenn überhaupt) nur wenig von der Konzentration der in der Materialmatrix gelösten Fremdatome in der Umgebung des Cluster abhängt. Man kann daher zur Berechnung der Emissionskoeffizienten  $\alpha_n$  auch die Konzentrationen im chemischen Gleichgewicht heranziehen, obwohl sich die im Werkstoff ausbildenden Fremdatomcluster in der Regel nicht im thermischen Gleichgewicht befinden. Im Ergebnis findet man

$$\frac{\alpha_{n+1}}{k_n} = K_n(T) = \frac{1}{K_{n \rightarrow n+1}^0(T)} \quad \text{wobei} \quad K_{n \rightarrow n+1}^0(T) = \exp\left(-\frac{\Delta_r G_{n \rightarrow n+1}^0}{kT}\right) \quad (3.15)$$

die Massenwirkungskonstante der Gleichgewichtsreaktion  $\text{Cu}_n + \text{Cu} \leftrightarrow \text{Cu}_{n+1}$  ist und  $\Delta_r G_{n \rightarrow n+1}^0$  die zugehörige freie Reaktionsenthalpie (pro Cluster). Sie hängt eng mit der Löslichkeitsgrenze  $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}$  der Fremdatome in der Eisenmatrix zusammen:

$$\Delta_r G_{n \rightarrow n+1}^0 = kT \ln(C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}) + \Delta G_{n+1}^{\text{int}} - \Delta G_n^{\text{int}} \quad (3.16)$$

Dabei ist  $\Delta G_n^{\text{int}}$  der Anteil der freien Bildungsenthalpie eines  $n$ -atomaren Fremdatomclusters aus den in der Eisenmatrix gelösten Fremdatomen, der aus dem Vorhandensein einer Grenzfläche zwischen Cluster und Eisenmatrix herrührt. Der führende Beitrag zu diesem Term ist proportional zur Oberfläche der als sphärisch angenommenen Fremdatomcluster, so dass sich schlussendlich die Gibbs-Thomson-artige Beziehung

$$K_n(T) = C_{\text{Cu}}^{\text{eq}} \cdot \exp\left(\frac{4\pi\gamma}{kT}(R_{n+1}^2 - R_n^2)\right) \approx C_{\text{Cu}}^{\text{eq}} \cdot \exp\left(\frac{2\gamma}{kT} \frac{V_{\text{Cu}}}{R_n}\right) \quad (3.17)$$

ergibt. Neben dem Atomvolumen  $V_{\text{Cu}}$  der Fremdatome in den Clustern geht in Gl. 3.17 im Wesentlichen noch die spezifische Grenzflächenenergie  $\gamma$  zwischen den Clustern und der Eisenmatrix ein. Diese ist experimentell nur schwer zugänglich und wird daher oft als Anpassungsparameter verwendet.

### C) Kopplung

Vordergründig führt die Neutronenbestrahlung eines Werkstoffs lediglich zur Ausbildung von Punktdefekten und ggf. noch polyatomaren Punktdefektclustern wie Hohlräumen und Versetzungsringen. Eine unmittelbare Kopplung an die Ausbildung von Fremdatomausscheidung besteht nicht. Allerdings geht die Beweglichkeit der gelösten Fremdatome (d.h. ihr Diffusionsvermögen) über Gl. 3.14 unmittelbar als globaler Zeitskalierungsfaktor in die Mastergleichungen 3.9 für die Fremdatome ein. Direkte Migration von Fremdatomen über Gitterzwischenplätze ist ein sehr ineffizienter Diffusionsmechanismus. Viel effektiver ist die Leerstellen-assistierte

Diffusion, bei der die Fremdatome eine benachbarte Leerstelle ausfüllen und dadurch selbst wieder eine Leerstelle im Atomgitter hinterlassen. Das resultierende Diffusionsvermögen ist proportional zur Anzahl der vorhandenen Leerstellen, unabhängig davon, ob dieser Diffusionsprozess nun ein rein stochastischer Effekt ist oder ob die Leerstelle an das Fremdatom gebunden wird und dieses Paar somit zusammen diffundiert. Deshalb setzt man

$$D_{\text{Cu}}^* = D_{\text{Cu}}^{\text{th}} \cdot \frac{C_v}{C_v^{\text{eq}}} \quad (3.18)$$

wobei  $D_{\text{Cu}}^{\text{th}}$  die thermische Diffusionskonstante der Fremdatome (Cu hier) im unbestrahlten Material ist und  $C_v^{\text{eq}}$  die thermische Gleichgewichtskonzentration der Eisenleerstellen. Da die tatsächlich vorliegende Konzentration  $C_v$  von der jeweiligen Bestrahlung abhängt, der das Material ausgesetzt wird, spricht man bei  $D_{\text{Cu}}^*$  i. a. auch von einer bestrahlungsinduzierten Diffusionskonstante.

Im Niedrigflussbereich ist die Leerstellenkonzentration und damit auch die Geschwindigkeit, mit der sich das Teilsystem der Fremdatomcluster zeitlich entwickelt, nach Erreichen des stationären Fließgleichgewichts im Punktdefektsystem proportional zum Bestrahlungsfluss. Dies ist die Grundlage für das Konzept der Voreilproben, welches darauf beruht, dass eine Bestrahlung bei erhöhter Flussdichte und entsprechend verkürzter Bestrahlungszeit die gleichen für die Materialversprödung maßgeblichen Prozesse im Material hervorruft wie der eigentlich interessierende Bestrahlungszustand. Im Hochflussbereich hingegen ist die Leerstellenkonzentration um den Faktor  $f$  reduziert (siehe Gl. 3.5) und die Versprödungsprozesse laufen entsprechend verlangsamt ab.

### 3.2.2 Grenzen des CD-P-Modells

Das CD-P-Modell wurde vor allem für Stähle mit einem vergleichsweise hohen Cu-Anteil (0,3% und mehr) entwickelt, wie er unter anderen in den Reaktordruckbehältern älterer VVER-440 Reaktoren zu finden ist. Ob dieses Modell auch bei deutlich Cu-ärmeren Stählen anwendbar bleibt, ist fraglich. Dazu sind folgende Überlegung angestellt worden.

Die Konstante  $K_n(T)$  aus Gl. 3.9, die das Verhältnis aus der Absorptionskonstante  $k_n$  und der Emissionskonstante  $\alpha_{n+1}$  der zugehörigen Rückreaktion angibt, ist ein rein thermodynamischer Materialparameter. Sie hängt weder vom Bestrahlungszustand des Materials noch von irgendwelchen Prozessen im Teilsystem der Punktdefekte ab. Dies hat weitreichende Konsequenzen.

Da die Löslichkeitsgrenze von Kupfer in Eisen bei den üblichen Betriebstemperaturen von Reaktordruckbehältern, 270 - 300°C, gerade mal in der Größenordnung von  $2-5 \times 10^{-3} \%$  liegt, neigt Kupfer in RDB-Stählen thermodynamisch zur Ausscheidung. Verfolgt man die zeitliche Entwicklung der Cu-Clusterverteilung, so stellt man fest, dass die Verteilungskurven alle unter einer gemeinsamen Einhüllenden liegen (siehe Bild 3.3). Im Stadium der Keimbildung und des deterministischen Wachstums, dem Zeitrahmen also, bei dem noch genügend Cu in der Matrix gelöst ist und die Ostwald-Reifung noch nicht begonnen hat, folgen die Clusterverteilungen  $C_n(t)$  der Einhüllenden perfekt, wobei sich die Kurven zu verschiedenen Zeiten lediglich in einer zu größeren Clustern hin verschiebenden

"Reaktionsfront" unterscheiden. Hinter dieser Front verharrt das System in einem stationären Fließgleichgewichtszustand. Ab einer Neutronenfluenz von 5,7  $\mu\text{dpa}$  findet der allmähliche Übergang in die Ostwald-Reifung statt, welcher bei ca. 23  $\mu\text{dpa}$  abgeschlossen ist. Ab da folgt die Verteilung dem aus der LSW-Theorie (Lifshitz-Slyozov-Wagner) bekannten, selbstähnlichen Verhalten (nicht gezeigt).

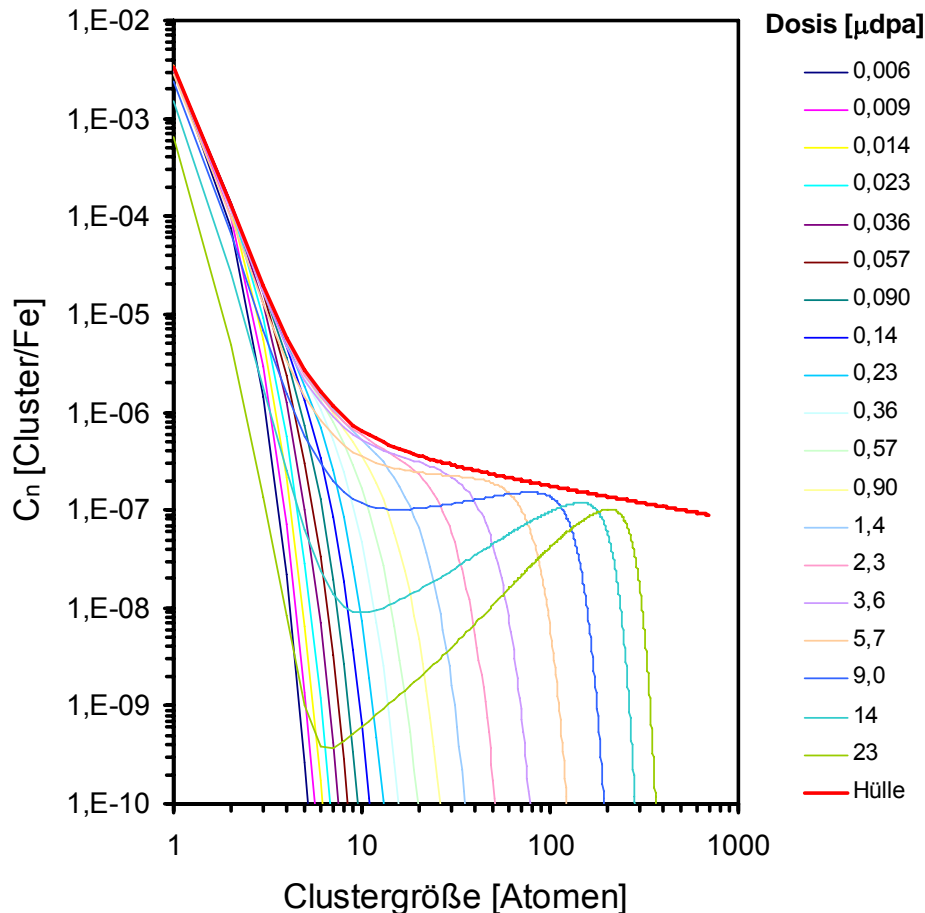


Bild 3.3 Zeitliche Entwicklung der Cu-Clusterkonzentrationen  $C_n(t)$  in einer mit  $3 \times 10^{-9}$  dpa/s (bei 270°C) bestrahlten Modelllegierung mit 0,37at% Cu. Die verschiedenen Bestrahlungszeiten werden durch die erreichten Fluenzen (Dosen) in  $\mu\text{dpa}$  angegeben. In rot ist die einhüllende Kurve gezeigt (mit  $C_{\text{Cu}} = 0,332\%$ ).

Unter Verwendung der Rand- und Stationaritätsbedingungen

$$C_{\text{Cu}}(t) = \text{const.} \quad , \quad \frac{d}{dt} C_n(t) = 0 \quad \text{für } n = 2, \dots, M \quad \text{und} \quad C_{M+1}(t) = 0 \quad (3.19)$$

mit  $M$  als der größte zu berücksichtigende Fremdatomcluster kann man die stationäre Fließgleichgewichtslösung, welche die Einhüllende definiert, in geschlossener Form angeben,

$$J_{n+\frac{1}{2}} = J \quad \text{und} \quad C_n = \frac{J}{\beta_1} \frac{X_M - X_{n-1}}{A_{n-1}} \quad \text{mit} \quad \frac{J}{\beta_1} = \frac{C_{\text{Cu}}}{X_M} \quad , \quad (3.20)$$

wobei die beiden Hilfsfolgen  $A_n$  und  $X_n$  wie folgt definiert sind:

$$\frac{X_n}{k_1} := \sum_{i=1}^n \frac{A_{i-1}}{k_i} \quad \text{und} \quad A_n := \prod_{i=1}^n \frac{K_i}{C_{\text{Cu}}} = \left( \frac{C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}}{C_{\text{Cu}}} \right)^n \exp\left( \frac{4\pi\gamma}{kT} (R_{n+1}^2 - R_1^2) \right) \quad (3.21)$$

Der Wert  $C_{\text{Cu}}$  der Monomerkonzentration ist so zu wählen, dass die Gesamtmenge an Fremdatomen pro Gitterplatz bis zur kritischen Clustergröße in etwa dem Gesamtatomanteil  $C_{\text{Cu}}^0$  an Fremdatomen im Material entspricht. Die kritische Clustergröße  $n_{\text{crit}}$  ist dabei die Maximumsstelle der Hilfsfolge  $A_n$ . Es gilt

$$n_{\text{crit}} = \frac{4\pi}{3} \frac{R_{n_{\text{crit}}}^3}{V_{\text{Cu}}} \quad \text{mit} \quad R_{n_{\text{crit}}} = \frac{2\gamma V_{\text{Cu}}}{kT \ln(C_{\text{Cu}} / C_{\text{Cu}}^{\text{eq}})} \quad (3.22)$$

Der entscheidende Punkt ist nun, dass bereits eine Reduktion des Cu-Anteils im Stahl um einen Faktor 2-3 dazu führen kann, dass die einhüllende Verteilungskurve um viele Größenordnungen absinkt. Dies ist insbesondere bei Cu-Anteilen im Bereich von 0,3-0,5% (oder weniger) der Fall, bei denen die kritische Clustergröße bereits den Wert 5 überschreitet. Die Ausscheidungsprozesse laufen auch bei reduziertem Cu-Anteil weiterhin ab, nur kann es leicht passieren, dass die Konzentrationen an Fremdatomclustern, die dabei erreicht werden, weit unterhalb jeder Nachweisbarkeitsgrenze bleiben. Dies entspricht nicht den experimentellen Befunden. Die in Cu-armen RDB-Stählen (und FeCu-Modelllegierungen) mit einem Cu-Anteil unter 0,2% beobachteten Defekte können daher keine reinen Cu-Ausscheidungen sein.

Modifikationen am Teilsystem der Punktdefekte, wie sie beispielsweise im CD-P-VIC-Modell [Christien 2004] propagiert werden, ändern daran nichts. Sicherlich werden die Prozesse, die im Punktdefektsystem ablaufen, in diesem erweiterten Modell realistischer beschrieben. Die Behandlung des Teilsystems der Fremdatomcluster bleibt aber dieselbe wie im CD-P-Modell, weshalb auch im erweiterten CD-P-VIC Modell für Cu-arme Werkstoffe keine Ausscheidungscluster in nachweisbaren Mengen ausgebildet werden.

### 3.2.3 Das V3C-Modell

Die Diskussion über die Natur der experimentell auch in Cu-armen Stählen und Modelllegierungen beobachteten Defektcluster hat inzwischen auch Eingang in die Fachliteratur gefunden. Zum einen weisen APT-Messungen [Pareige 2005] darauf hin, dass die Cu-reichen Ausscheidungen doch einen erheblichen Anteil an Eisen (oder anderen nicht-Cu-artigen Bestandteilen) aufweisen, wobei noch nicht abschließend geklärt ist, in welchem Umfang diese Beobachtungen lediglich Artefakte der APT-Auswertung sein könnten [Morley 2009]. Darüber hinaus wurde in der Literatur das Konzept der heterogenen Keimbildung in Cu-armen Werkstoffen vorgeschlagen [Radiguet 2007, Radiguet 2009], das darauf beruht, dass sich zunächst im Punktdefektsystem Nanohohlräume bilden, die dann als Keime für die Bildung von Cu-haltigen Ausscheidungen dienen.

Die Möglichkeit der Bildung derartiger Cu-beschichteter Hohlräume wird durch mehrere MD-Simulationen bestätigt, bei denen zunächst unter Verwendung von Gitter-Monte-Carlo- (LMC)-Techniken eine Vorauswahl der möglichen atomaren Konfigurationen von Ausscheidungsclustern mit vorgegebener Anzahl an Cu-Atomen und Fe-Leerstellen getroffen wird und anschließend über die "simulated annealing"-

Methode die optimale Struktur der Cluster bestimmt wird. Drei solche Studien existieren inzwischen, Takahashi et al. [Takahashi 2003], Kulikov et al. [Kulikov 2006] und Al-Asqalani et al. [Alasqalani 2010], die sich im Wesentlichen nur durch das Fe-Cu-Potential unterscheiden, welches den jeweiligen LMC- und MD-Rechnungen zugrunde gelegt wurde. Sie alle bestätigen, dass sowohl Cu-Atome als auch Leerstellen energetisch zur Aufnahme durch Kupfer-Leerstellen-Cluster neigen, und dass diese gemischten Kupfer-Leerstellen-Cluster gegenüber reinen Cu-Clustern und reinen Höhlräumen energetisch bevorzugt sind.

#### A) Erweiterte Kopplung

Das im Rahmen des Vorhabens entwickelte V3C-Modell zur Beschreibung von Defektclustern in Cu-haltigen eisenbasierten Werkstoffen mit niedrigem Cu-Gehalt greift diese Idee auf, indem es erlaubt, dass die sich bildenden Cluster neben den gelösten Fremdatomen auch noch Fe-Leerstellen aufnehmen können. Dazu wurde das in Abschnitt 3.2.1 beschriebene CD-P-Modell in zwei Punkten erweitert [Birkenheuer 2010].

Die Aufnahme von Leerstellen durch die sich bildenden Defektcluster stellt eine zusätzliche Leerstellensenke für das Teilsystem der Punktdefekte dar. Anstelle des zeitlich konstanten, und im vorliegenden Fall auf den Versetzungen im Werkstoff basierenden Senkenterms (siehe Gl. 3.1 und 3.3).

$$S_v^0 = k_v C_v \quad \text{mit} \quad k_v = z_v \cdot D_v \cdot \rho \quad (3.23)$$

wird deshalb im V3C-Modell der von der Verteilung  $C_n(t)$ ,  $n \geq 2$  der Fremdatomcluster abhängende und damit zeitabhängige Senkenterm

$$S_v(t) = S_v^0 + \Delta k_v(t) C_v \quad \text{mit} \quad \Delta k_v(t) = \frac{4\pi D_v}{V_{Fe}} \sum_{n \geq 2} R_n C_n(t) \quad (3.24)$$

verwendet. Dadurch werden das Teilsystem der Punktdefekte und das der Fremdatome auf zweifache Weise miteinander gekoppelt. Zum einen durch die bestrahlungsinduzierte Erhöhung des Diffusionsvermögens der Fremdatome (siehe Gl. 3.18) und zum anderen durch den neuen, zeitabhängigen Senkenterm  $S_v(t)$ , woher auch der Name des Modells herrührt: V3C für Vacancy-Coupled Copper Clustering [Birkenheuer 2010].

Der zusätzliche Senkenterm für Leerstellen reduziert die Konzentrationen der Punktdefekte gegenüber dem CD-P-Modell. Dadurch verringert sich der Einfluss des quadratischen Rekombinationsterms in Gl. 3.1, was schlussendlich zu einem erst bei höheren Neutronenflüssen einsetzenden Flusseffekt in den Simulationsrechnungen mit dem V3C-Modell führt.

Das V3C-Modell erlaubt es u. a., auf einfache Weise den Gesamtanteil

$$L_v(t) = \int_0^t \Delta k_v(t') C_v(t') dt' \quad (3.25)$$

an Leerstellen zu bestimmen, der dem Punktdefektsystem durch Absorption an Fremdatomclustern entzogen und stattdessen in die Defektcluster eingebaut wurde. Dieser kann mit dem Gesamtanteil

$$L_{\text{Cu}}(t) = \int_0^t 2J_{1\frac{1}{2}}(t') + \sum_{n \geq 2} J_{n+\frac{1}{2}}(t') dt' = C_{\text{Cu}}^0 - C_{\text{Cu}}(t) = \sum_{n \geq 2} n C_n(t) \quad (3.26)$$

an gelösten Fremdatomen verglichen werden, der der Eisenmatrix entzogen wurde. Dadurch lässt sich eine mittlerer chemische Zusammensetzung  $\langle x_{\text{Cu}} \rangle$  der gebildeten Defektcluster ermitteln,

$$\langle x_{\text{Cu}} \rangle = \frac{L_{\text{Cu}}}{L_{\text{Cu}} + L_{\text{v}}} \quad , \quad (3.27)$$

die der aus SANS-Messungen durch Auswertung des sogenannten A-Verhältnisses  $A^{\text{SANS}}$  ermittelten Zusammensetzung

$$x_{\text{Cu}} = \frac{1}{7,7} \left( 9,5 - \frac{6}{\sqrt{A^{\text{SANS}} - 1}} \right) \quad (3.28)$$

der Streuzentren gegenüber gestellt werden kann. Der Ausdruck in Gl. 3.28 basiert dabei auf der Beziehung [Bergner 2008c]

$$A^{\text{SANS}} = \left( \frac{6}{7,7x_{\text{Cu}} - 9,5} \right)^2 + 1 \quad (3.29)$$

zwischen dem Atomanteil  $x_{\text{Cu}}$  von Kupfer in den Streuzentren und dem gemessenen Verhältnis  $A^{\text{SANS}}$  aus dem Gesamtstreuquerschnitt und dem nuklearen Streuquerschnitt.

## B) Modifizierte Grenzflächenenergie

Wie in Abschnitt 3.2.2. bereits dargelegt, bedarf es auch einer Änderung im Teilsystem der Fremdatome, um zu befriedigenden Ergebnissen bei der ratentheoretischen Simulation der gebildeten Cu-haltigen Defektcluster zu gelangen. Auch hier spielt der Mischcharakter der Defekte eine wesentliche Rolle.

Die spezifische Grenzflächenenergie von kohärenten Cu-Clustern in bcc-Eisen liegt bei  $T = 300^\circ\text{C}$  im Bereich von  $0,4 \text{ J/m}^2$ . Im Fall des V3C-Modells wird sie mit Hilfe der von Mathon et al. [Mathon 1997] vorgeschlagenen Entropie-Erweiterung

$$\gamma_{\text{CH}} = 1.08k \left[ \frac{1}{2}\Omega - T \left( 1 + \frac{1}{2k} \Delta S_{\text{Cu}} \right) \right] / a_{\text{Cu}}^2 \quad (3.30)$$

der Cahn-Hilliard-Beziehung [Cahn 1958] berechnet. Dabei sind  $\Delta S_{\text{Cu}}$  und  $\Omega$  die Substitutionsentropie von Cu in Fe ohne den Konfigurationsbeitrag und die Entmischungstemperatur von Cu in Fe, die auch zur Berechnung der thermischen Gleichgewichtskonzentration  $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}$  der gelösten Cu-Atome in der Eisenmatrix verwendet werden:

$$C_{\text{Cu}}^{\text{eq}} = \exp \left( \frac{T\Delta S_{\text{Cu}} - k\Omega}{kT} \right) \quad . \quad (3.31)$$

Ferner ist  $a_{\text{Cu}}$  die Gitterkonstante des kohärent, in bcc-Struktur gewachsenen Cu-Clusters. Die spezifische Grenzflächenenergie von Hohlräumen in bcc-Eisen ist mit  $1\text{-}2 \text{ J/m}^2$  wesentlich größer. Es ist also anzunehmen, dass die Aufnahme von Leerstellen in die Defektcluster spürbaren Einfluss auf die Grenzflächenenergie haben wird.

Um den zu erwartenden Effekt abschätzen zu können, müssen die Beziehungen für die Absorptions- und Emissionsvorgänge im Fremdatomsystem auf gemischte  $\text{Cu}_n\text{V}_m$ -Cluster erweitert werden. Im Einzelnen sind dies die elementaren reaktionskinetischen Gleichungen

$$\text{Cu}_n\text{V}_m + \text{Cu} \rightarrow \text{Cu}_{n+1}\text{V}_m : J_{n,m}^{\text{ab,Cu}} = \beta_{n,m}^{\text{Cu}}(C_{\text{Cu}})C_{n,m} = k_{n,m}^{\text{Cu}} C_{\text{Cu}} C_{n,m} \quad \text{und} \quad (3.32)$$

$$\text{Cu}_n\text{V}_m \rightarrow \text{Cu}_{n-1}\text{V}_m + \text{Cu} : J_{n,m}^{\text{em,Cu}} = \alpha_{n,m}^{\text{Cu}} C_{n,m} \quad (3.33)$$

und die entsprechende Gleichgewichtsbedingung

$$K_{n,m}^{\text{Cu}}(T) := \frac{\alpha_{n+1,m}^{\text{Cu}}}{k_{n,m}^{\text{Cu}}} = \frac{1}{K_{n \rightarrow n+1,m}^0(T)} = \exp\left(\frac{\Delta_r G_{n \rightarrow n+1,m}^0}{kT}\right) \quad (3.34)$$

mit

$$\Delta_r G_{n \rightarrow n+1,m}^0 = kT \ln(C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x)) + \Delta G_{n+1,m}^{\text{int}} - \Delta G_{n,m}^{\text{int}} \quad (3.35)$$

$C_{n,m}$  sind jetzt die Konzentrationen der einzelnen Mischcluster  $\text{Cu}_n\text{V}_m$ . Alle Raten und Koeffizienten hängen nun sowohl von der Zahl  $n$  der Cu-Atome als auch von der Anzahl  $m$  der Leerstellen ab. Darüber hinaus muss zwischen Austausch von Cu-Atomen (Gl. 3.32-35) und Austausch von Leerstellen unterschieden werden, weshalb dort, wo es notwendig ist, noch ein weiterer Index "Cu" den jeweiligen Symbolen beigefügt wurde. Die Bedeutung der verschiedenen Symbole ist völlig analog zu denen in Abschnitt 3.2.1. Die in Gl. 3.35 auftretende thermische Gleichgewichtskonzentration  $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x)$  ist nun diejenige im Kontakt mit einer makroskopischen Ausscheidung mit einer Zusammensetzung

$$x = \frac{n}{n+m} \quad , \quad (3.36)$$

die derjenigen des betrachteten  $\text{Cu}_n\text{V}_m$ -Clusters entspricht. Im Ergebnis erhält man für den Austausch von Cu-Atomen die Beziehung

$$\begin{aligned} K_{n,m}^{\text{Cu}}(T) &= C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x) \exp\left(\frac{4\pi}{kT} (\gamma(\text{Cu}_{n+1}\text{V}_m)R_{n+1,m}^2 - 4\pi \gamma(\text{Cu}_n\text{V}_m)R_{n,m}^2)\right) \\ &\approx C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x) \exp\left(\frac{4\pi}{kT} \frac{\partial}{\partial n} [\gamma(\text{Cu}_n\text{V}_m)R_{n,m}^2]\right) \end{aligned} \quad (3.37)$$

und eine ganz analog aufgebaute Beziehung für den Austausch von Leerstellen, die hier aber nicht weiter diskutiert werden soll. Auch Gl. 3.37 kann formal in Gibbs-Thomson-Form geschrieben werden:

$$K_{n,m}^{\text{Cu}}(T) \approx C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x) \exp\left(\frac{2\mu_{\text{Cu}}(x) V_{\text{cls}}(x)}{kT R_{n,m}}\right) \quad (3.38)$$

Der wesentliche Unterschied zu Gl. 3.17 - neben der Tatsache, dass das Atomvolumen  $V_{\text{cls}}(x)$  im Cluster und die thermische Gleichgewichtskonzentration  $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}(x)$  der ausgetauschten Atome nun von der chemischen Zusammensetzung  $x$  des Clusters abhängen - ist, dass anstelle der spezifischen Grenzflächenenergie  $\gamma(\text{Cu}_n\text{V}_m)$  der Mischcluster nun eine Art chemisches Grenzflächenpotential auftritt,

welches über folgenden, eine partielle Ableitung nach der Anzahl  $n$  der Cu-Atome bei festgehaltener Anzahl  $m$  an Leerstellen enthaltenden Ausdruck definiert ist:

$$\frac{4\pi}{kT} \frac{\partial}{\partial n} \left[ \gamma(\text{Cu}_n \text{V}_m) R_{n,m}^2 \right] = \frac{2\mu_{\text{Cu}}(x) V_{\text{cls}}(x)}{kT R_{n,m}} \quad (3.39)$$

Das erstaunliche an dem hier eingeführten chemischen Grenzflächenpotential für Cu, welches als die tatsächlich wirksame Grenzflächenenergie für den Austausch von Cu-Atomen angesehen werden kann, ist, dass es eine ganz andere Abhängigkeit von der chemischen Zusammensetzung  $x$  aufweisen kann, als die spezifische Grenzflächenenergie selbst. Als Beispiel soll die quadratische Interpolation

$$\gamma(\text{Cu}_n \text{V}_m) = \gamma(x) = x \cdot \gamma_{\text{Cu}} + (1-x) \cdot \gamma_{\text{vd}} + x(1-x) \cdot Q \quad \text{mit} \quad x = \frac{n}{n+m} \quad (3.40)$$

zwischen den beiden bekannten Grenzfällen, der Grenzflächenenergie  $\gamma_{\text{vd}}$  für reine Hohlräumen ( $x = 0$ ) und der Grenzflächenenergie  $\gamma_{\text{Cu}}$  für reine Cu-Cluster ( $x = 1$ ) dienen.  $Q$  ist dabei ein frei wählbarer Modellparameter, der die Krümmung der Interpolationskurve bestimmt. Nimmt man weiter an, dass die Cluster kohärent wachsen, dass also

$$V_{n,m} = \frac{4\pi}{3} R_{n,m}^3 = (n+m) \cdot V_{\text{Fe}} \quad (3.41)$$

gilt, so findet man für das zugehörige chemische Grenzflächenpotential von Cu

$$\mu_{\text{Cu}}(x) = \left(\frac{3}{2} - \frac{1}{2}x\right) \cdot \gamma_{\text{Cu}} - \frac{1}{2}(1-x) \cdot \gamma_{\text{vd}} + \left(\frac{3}{2} - 2x\right)(1-x) \cdot Q \neq \gamma(x) \quad (3.42)$$

Dieser Ausdruck ist signifikant verschieden von demjenigen für  $\gamma(x)$ , was auch in Bild 3.4 deutlich wird, wo der Verlauf der Kurven  $\mu_{\text{Cu}}(x)$  und  $\gamma(x)$  für zwei Fälle des Krümmungsparameters  $Q$  exemplarisch gegenüber gestellt werden.

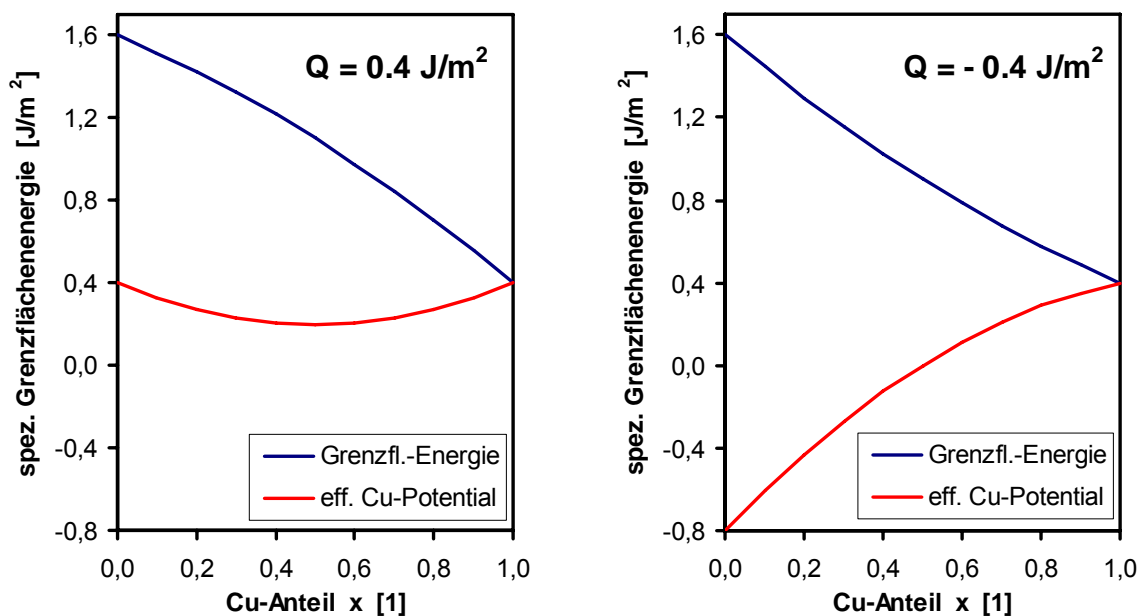


Bild 3.4 Vergleich der Abhängigkeit der spezifischen Grenzflächenenergie  $\gamma(x)$  mit der daraus resultierenden effektiven Grenzflächenenergie  $\mu_{\text{Cu}}(x)$  für Cu-Austausch im Fall der Interpolation  $\gamma(x) = x \cdot \gamma_{\text{Cu}} + (1-x) \cdot \gamma_{\text{vd}} + x(1-x) \cdot Q$  für zwei Werte des Krümmungsparameters  $Q$ . ( $\gamma_{\text{Cu}} = 0,4 \text{ J/m}^2$ ,  $\gamma_{\text{vd}} = 1,6 \text{ J/m}^2$ ).



In einem Ratentheoriemodell, welches mächtig genug wäre, die Konzentrationen jedes einzelnen Mischclusters  $\text{Cu}_n\text{V}_m$  separat zu erfassen, könnte man direkt die in Gl. 3.38 angegebene Beziehung benutzen. Im Fall des V3C-Modells ist dies nicht der Fall. Der Versuch, stattdessen eine für alle Clustergrößen gleichermaßen gültige mittlere chemische Zusammensetzung gemäß Gl. 3.27 zu verwenden, ist gescheitert, da sich herausstellte, dass sich die Zusammensetzung der Ausscheidungskeime doch erheblich von der Zusammensetzung der größeren Cluster unterscheiden muss, um ein thermodynamisch sinnvolles Verhalten zu erreichen. Im V3C-Modell ist daher ein eher empirischer Ansatz verfolgt worden.

Bei gleichen Bestrahlungsbedingungen ist zu erwarten, dass in den sich bildenden, Cu-haltigen Defektclustern eines Cu-ärmeren Werkstoffs prozentual mehr Leerstellen enthalten sind, als bei einem Cu-reicheren Werkstoff, einfach weil bei gleichem Angebot an bestrahlungsinduzierten Leerstellen weniger gelöste Kupferatome zur Verfügung stehen. Da, wie Bild 3.4 deutlich zeigt, eine Abnahme des Cu-Gehalts der Mischcluster tendenziell eher mit einer Absenkung des chemischen Grenzflächenpotentials für Kupfer einher geht, welches bei Mischclustern die Rolle einer effektiven Grenzflächenenergie für den Cu-Austausch übernimmt, ist es naheliegend, davon auszugehen, dass die effektiv wirksame Grenzflächenenergie von Cu-haltigen Ausscheidungen mit abnehmendem Cu-Gehalt des Werkstoffs ebenfalls abnimmt. Ein einfacher linearer Zusammenhang

$$\gamma^{w\%}(T) = \gamma_{\text{CH}}(T)(a + b \cdot w) \quad \text{für} \quad w_{\text{min}} \leq w \leq w_{\text{max}} \quad (3.43)$$

mit dem Cu-Anteil  $w$  im Werkstoff (gemessen in Masseprozent), bei dem die Temperaturabhängigkeit aus der erweiterten Cahn-Hilliard-Beziehung (Gl. 3.30) übernommen wird, sollte für diese empirische Kalibrierung ausreichen.

Da die Grenzflächenenergie exponentiell in die die einhüllende Grenzkurve bestimmenden Gleichgewichtskonstanten  $K_r(T)$  eingeht, kann die in Abschnitt 3.2.2 diskutierte drastische Absenkung der Grenzkurve bei Verminderung des Cu-Gehalts im Werkstoff zu einem erheblichen Teil durch die Reduktion der effektiven Grenzflächenenergie  $\gamma^{w\%}(T)$  kompensiert werden. Im Ergebnis findet man in der ratentheoretischen Simulation dann auch für Cu-ärmere Werkstoffe noch Cu-haltige Ausscheidungscluster, deren Konzentrationen im experimentell nachweisbaren Bereich bleiben.

### 3.2.4 Der Einfluss von Nickel

Die mit SANS ermittelten Volumenanteile der bestrahlungsinduzierten Defektcluster im Schweißgut P370 SG liegen mit 0,51-0,53 vol% deutlich höher als der nominelle Kupfergehalt (von 0,193%) des Schweißguts. In Anbetracht der chemischen Zusammensetzung des Schweißguts (siehe Tab. 2.2) und insbesondere des hohen Ni-Anteils von 1,1 Masseprozent ist zu vermuten, dass sich entweder neben den Cu-reichen Ausscheidungen noch weitere Ni-haltige Defektcluster bilden, oder dass vorhandene Cu-reiche Cluster zusätzlich Nickel aufnehmen. Der Einfachheit halber soll im Folgenden von Ni-haltigen Clustern die Rede sein, auch wenn es durchaus möglich ist, dass diese Aggregate auch Mangan enthalten.

Ein vollständiges ratentheoretisches Modell, welches auf ternären Cu-Ni-Leerstellenclustern basiert, würde weit über den derzeitigen Stand der Wissenschaft auf dem

Gebiet der ratentheoretischen Simulation zur Ausbildung bestrahlungsinduzierter Defekte in eisenbasierten Werkstoffen hinaus gehen. Deshalb wurde im Rahmen des Vorhabens angestrebt, ein vereinfachtes, empirisch geprägtes Modell zu entwickeln.

Auch wenn andere Defekte in irgendeiner Form an der Bildung von Nickel enthaltenden Defektclustern in Nickel- (und Mangan-)haltigen Stählen beteiligt sein müssen, allein schon der hohen Löslichkeit von Nickel in Eisen wegen, geht man derzeit davon aus, dass die Keimbildungs- und Ausscheidungsprozesse in diesen Stählen – genau wie bei den Cu-reichen Ausscheidungen – bereits mit Einsetzen der Bestrahlung anlaufen, jedoch auf einer wesentlich langsameren Zeitskala als bei Kupfer, so dass erst deutlich später Konzentrationen erreicht werden, die messtechnisch erfassbar sind und nennenswerten Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften des Werkstoffs nehmen können. Ansonsten ist anzunehmen, dass die Bildung von Ni-haltigen Defektclustern phänomenologisch der von Cu-haltigen Defektclustern recht ähnlich ist. Die einzigen Unterschiede sind die verschiedenen Zeitskalen, auf denen die Prozesse ablaufen, und die unterschiedlichen Konzentrationen der zur Verfügung stehenden gelösten Fremdatome. Im hier untersuchten Schweißgut P370 SG ist der Ni-Gehalt mit 1,1 Masse-% fünfmal höher als der Cu-Gehalt (0,22 Masse-%), wodurch Sättigungseffekte wie die Ostwald-Reifung beispielsweise bei Nickel ebenfalls erst deutlich später einsetzen.

Um diese beiden Effekte zu berücksichtigen, ist der Versuch unternommen worden, die aus den Simulationsrechnungen für das Schweißgut P370 SG gewonnene Abhängigkeit des Volumenanteils  $c$  der Defektcluster von der Bestrahlungsfluenz  $\Phi$  durch eine einfache analytische Funktion wiederzugeben. Dabei hat sich herausgestellt, dass Funktion mit drei Parametern ausreichend ist, um den Verlauf des Volumenanteils ab dem Einsetzen der Ausbildung von Clustern mit mehr als 0,3 nm Radius (was in etwa die kritische Keimgröße der Kupferausscheidungen ist und grob der experimentellen Nachweisgrenze bei SANS-Messungen entspricht) richtig wieder geben zu können,

$$c(\Phi) = c^{\text{sat}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Phi - \Phi_{\text{off}}}{\Phi_0}\right) \right] \quad \text{für } \Phi \geq \Phi_{\text{off}} \quad . \quad (3.44)$$

$c^{\text{sat}}$  ist dabei der Sättigungswert des Volumenanteils der mehratomaren Defektcluster, der etwas geringer als der anfänglich im Werkstoff gelöste Anteil an Fremdatomen ist, weil ein gewisser Anteil an Fremdatomen in der Eisenmatrix gelöst bleibt. Im Fall des Schweißguts P370 SG beispielsweise, welches einen Masseanteil an Kupfer von 0,22% aufweist, was einem Atom- bzw. Volumenanteil von 0,193% entspricht, findet man als Sättigungswert für den Volumenanteil der Cu-Cluster 0,185%. Der Parameter  $\Phi_0$ , der die Dimension einer Fluenz hat, bestimmt die Geschwindigkeit des Ausscheidungsprozesses und damit u. a. auch den Zeitpunkt (bzw. die damit verbundene Fluenz), zu dem das Defektatomsystem in das Stadium der Ostwald-Reifung übergeht.

Da, wie in Bild 3.5 deutlich zu erkennen ist, der charakteristische, nahezu lineare Anstieg des Volumenanteils mit der Fluenz erst mit einer gewissen Verzögerung einsetzt, ist als weiterer Parameter die Einstiegsfluenz  $\Phi_{\text{off}}$  notwendig. Für Fluenzen unterhalb dieser Einstiegsfluenz findet man einen eher quadratischen Verlauf des Volumenanteils, was damit begründet werden kann, dass sich bei konstantem

Nukleationsstrom  $J$  (siehe Gl. 3.20) die in Bild 3.3 zu erkennende "Reaktionsfront"  $n_r(t)$  gleichmäßig zu größeren Clustern hin verschiebt und der Kupferanteil

$$L_{\text{Cu}}(t) = \sum_{n \geq 2} n C_n(t) \approx \sum_{n=2}^{n_{\text{crit}}} n C_n + \sum_{n=n_{\text{crit}}+1}^{n_r(t)} n \cdot \frac{J}{\beta_1 n^{1/3}} \approx L_{\text{Cu}}^0(t) + \frac{J}{\beta_1} n_r(t)^{5/3} \quad (3.45)$$

damit mehr als linear anwächst.

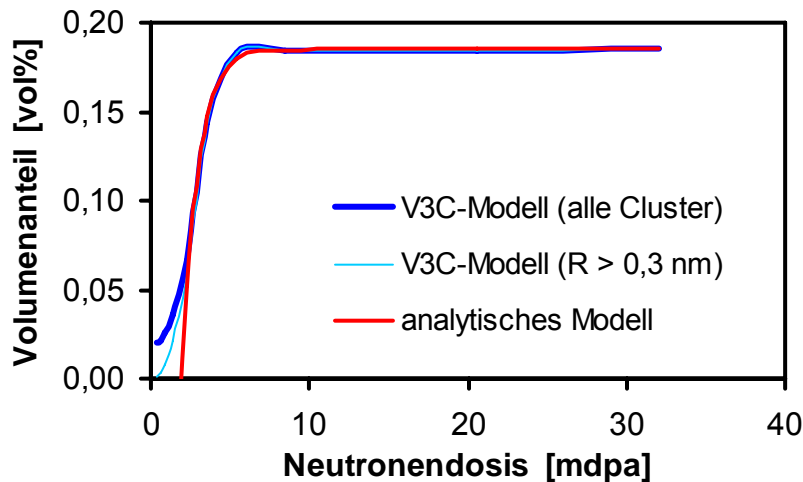


Bild 3.5 Mit dem V3C-Modell berechnete Abhängigkeit des Volumenanteils  $c$  der Cu-haltigen Defektcluster von der Fluenz  $\Phi$  im Vergleich zu der 3-parametrischen Fit-Funktion  $c(\Phi)$  (in rot) für den für das Schweißgut P370 SG entwickelten Parametersatz, in dunkelblau der Anteil aller mehratomaren Cluster und in hellblau der Anteil der mit SANS detektierbaren Cluster mit Radien oberhalb von 0,3 nm.

Für die zeitliche Entwicklung der Ni-haltigen Defektcluster wird das gleiche Verhalten wie bei Kupfer angenommen und die beiden Defektclusterpopulationen werden überlagert. Die Sättigungskonzentration  $c^{\text{sat}}$  für Nickel wird dabei mit 1% abgeschätzt (leicht unterhalb des nominellen Volumenanteils an gelöstem Ni im Schweißgut P370 SG) und der Zeit-Parameter  $\Phi_0$  wird angepasst (bei festgehaltener Einstiegsfluenz  $\Phi_{\text{off}}$  von 1.9 mdpa wie bei Kupfer).

### 3.3 Härtung und Versprödung

#### 3.3.1 Überblick

RDB-Stähle weisen bereits im unbestrahlten Zustand einen Spröd-duktil-Übergang sowie eine hohe Grundhärte bzw. -festigkeit auf. Die Grundhärte ist Ausdruck der Mikrostruktur und ergibt sich im wesentlichen als Resultat der Überlagerung von vier Härtungsmechanismen: Mischkristallhärtung infolge gelöster Fremdatome wie Mn und Si (nulldimensionale Gitterbaufehler), Versetzungshärtung infolge der thermisch-mechanischen Behandlung und der Ausbildung eines Versetzungsnetzwerks (eindimensionale Gitterbaufehler), Korngrenzenhärtung infolge der Unterteilung des Materials in unterschiedlich orientierte Kristallite (zweidimensionale Gitterbaufehler)

sowie Ausscheidungshärtung durch die Bildung von Fremdphasenteilchen, hauptsächlich Karbiden (dreidimensionale Gitterbaufehler). Die Härte ist gleichzeitig einer der bestimmenden Faktoren für die Lage des Spröd-duktil-Übergangs. Durch die Bestrahlung mit schnellen Neutronen werden zu den bereits vorhandenen null- bis dreidimensionalen Gitterbaufehlern neue, bestrahlungsinduzierte Gitterbaufehler erzeugt. Diese führen dann zu der beobachteten Härte- bzw. Festigkeitszunahme und der Übergangstemperaturverschiebung. Bei den bestrahlungsinduzierten Gitterbaufehlern handelt es sich grundsätzlich um

a) Einzeldefekte

- Leerstellen oder Vakanzen
- Zwischengitteratome

b) Defektcluster

- dreidimensionale Leerstellencluster oder Nanovoids
- zweidimensionale Zwischengitteratomcluster oder Versetzungsringe

c) Defekt-Fremdatom-Cluster und Ausscheidungen

- Cu-reiche Ausscheidungen in Cu-haltigen RDB-Stählen
- Mn-Ni-reiche Ausscheidungen in Cu-armen RDB-Stählen
- Mischformen, die auch Leerstellen enthalten können.

Generell wird davon ausgegangen, dass die im unbestrahlten Zustand von vorn herein wirksamen Härtungsmechanismen bei Bestrahlung erhalten bleiben, so dass sich z. B. die Karbidstruktur- und Verteilung nicht wesentlich ändert. Die Art der Überlagerung der bereits existierenden mit den bestrahlungsinduzierten Gitterbaufehlern ist eine aktuelle Fragestellung. Diese steht jedoch nicht im Zentrum des vorliegenden Vorhabens, so dass eine Beschränkung auf die Spezialfälle linearer und quadratischer Superposition geboten ist. Es ist wichtig darauf hinzuweisen, dass bereits in der Angabe der bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhung bzw. Übergangstemperaturverschiebung (siehe z. B. Tab. 2.9 und 2.10, Bilder 2.14 bis 2.16) die Annahme linearer Superposition implizit enthalten ist.

Außerdem wird davon ausgegangen, dass unter der Vielzahl der grundsätzlich auftretenden Arten von bestrahlungsinduzierten Gitterbaufehlern im vorliegenden Fall die Cu-reichen Cluster (in Cu-haltigen RDB-Stählen) und die Mn-Ni-reichen Cluster (in Cu-armen Stählen) dominant sind. Bei Cu-reichen Clustern ist die Möglichkeit des Beitrages von Leerstellen und Ni-Atomen zu berücksichtigen. Der Art bzw. inneren Struktur der Cluster wird durch die sogenannte Hindernisstärke Rechnung getragen. Der mittlere Hindernisabstand ergibt sich dagegen aus der Clusterkonzentration. Die Härtung vollzieht sich durch die Behinderung des Gleitens von Versetzungen, den Trägern der plastischen Verformung, in sogenannten Gleitebenen des Kristallgitters. In den folgenden beiden Abschnitten werden vereinfachte analytische und numerische Ansätze zur Abschätzung der Härtung bewertet und für den Einbau in die Berechnungsprogramme aufbereitet. Für beide Gruppen von Modellen soll ausschließlich auf zweidimensionale Ansätze zurückgegriffen werden, was der Betrachtung einer Versetzung in einem einkristallinen Bereich in ihrer jeweiligen Gleitebene entspricht. Der Übergang zum Polykristall erfolgt durch die Einführung des Taylor-Faktors.

### 3.3.2 Analytische Modelle

Der Widerstand, den eine planare Anordnung von Hindernissen dem Gleiten einer einzelnen Stufenversetzung entgegengesetzt, wurde zuerst von Orowan betrachtet [Orowan 1948]. Diesem Ansatz liegen drei Annahmen zugrunde:

- (1) Die Annahme eines isolierten Paares von Hindernissen ignoriert die Zufälligkeit realer Anordnungen von Hindernissen.
- (2) Die zweite Annahme bezieht sich auf die Wechselwirkung eines Einzelhindernisses mit einer Versetzung und setzt Kugelform und Nichtschneidbarkeit des behindernden Teilchens voraus.
- (3) Der Orowan-Ansatz basiert auf dem Konzept der Linienspannung einer Versetzung, d. h. die Versetzung wird als elastische „Saite“ behandelt und Selbstwechselwirkung wird vernachlässigt.

Unter diesen vereinfachenden Annahmen kann die kritische Schubspannung berechnet werden. Dabei handelt es sich um die sogenannte Orowan-Spannung, die erforderlich ist, um die Hindernisse zu überwinden.

$$\tau_o = Gb/L \quad (3.46)$$

$G$  ist der Schubmodul des Eisengitters,  $b$  der Burgers-Vektor und  $L$  der Hindernisabstand. Wenn der Hindernisabstand viel größer ist als die Hindernisgröße, dann ist die inverse Proportionalität in Gl. 3.46 äquivalent mit einer direkten Proportionalität mit der Wurzel aus der Hinderniskonzentration.

#### Abweichungen von Annahme (1):

Foreman and Makin [Makin 1966] betrachteten zufällige Anordnungen punktförmiger Hindernisse mit Hilfe von Computersimulationen und zeigten, dass die funktionale Abhängigkeit der Gl. 3.46 erhalten bleibt, jedoch ein numerischer Vorfaktor einzuführen ist.

$$\tau_{FM} = 0,81Gb/L \quad (3.47)$$

Im Rahmen des Foreman-Ansatzes spielt die kritische Bedingung für das Losreißen der Versetzung von einem Hindernis eine Rolle. Als solche kommen in Frage:

- die Überschreitung eines kritischen Wertes für den durch die beiden Versetzungsarme eingeschlossenen Winkel,
- die Überschreitung eines kritischen Wertes der Festhaltekraft durch die Resultierende aus den Linienkräften der beiden Versetzungsarme.

#### Abweichungen von Annahme (2):

Das entgegengesetzte Extrem der Annahme (2), d. h. schneidbare Versetzungen, wurde von Friedel [Friedel 1964] und Russell und Brown [Russel 1972] behandelt. Dabei wird das Hindernis als kohärentes Teilchen betrachtet, in welchem sich die Gleitebene der Versetzung fortsetzt. Der Russel-Brown-Ansatz wurde auf das System Fe-Cu und auf RDB-Stähle angewendet. Er führt zu dem folgenden Ausdruck für die kritische Schubspannung:

$$\begin{aligned} \tau_{RB} &= 0.8 \frac{Gb}{L} (1 - E_{12}^2)^{1/2} \quad \text{für } \arcsin E_{12} \leq 50^\circ \\ \tau_{RB} &= \frac{Gb}{L} (1 - E_{12}^2)^{3/4} \quad \text{für } \arcsin E_{12} > 50^\circ \end{aligned} \quad (3.48)$$

wobei  $E_{12} = E_{12\infty} \frac{\log(r/r_0)}{\log(R/r_0)} + \frac{\log(R/r)}{\log(R/r_0)}$ ,  $E_{12\infty} = 0.6$  für Fe-Cu und  $R = 10^3 r_0$ . Der

Radius des Versetzungskerns,  $r_0$ , kann als  $2,5b$  angesetzt werden. Die Abhängigkeit von der Hindernisgröße  $r$  ist implizit im mittleren Hindernisabstand enthalten. Sie kann ausgedrückt werden als

$$L^{-1} = c^{1/2} / 1,77r, \quad (3.49)$$

wobei  $c$  den Volumenanteil der Streuer bezeichnet.

#### Abweichungen von Annahme (3):

Bacon et al. [Bacon 1973] führten die Selbstwechselwirkung zwischen den einzelnen Versetzungssegmenten in den Orowan-Ansatz ein. Das führt auf folgende Modifikation des Orowan-Ansatzes, die sogenannte Orowan-Bacon-Spannung:

$$\tau_{\text{OB}} = \left( \frac{\ln 2r}{\ln L} \right)^{3/2} \left( \frac{\ln L}{2\pi} \right) \frac{Gb}{L} \quad (3.50)$$

Die erste Klammer spiegelt die Wechselwirkung zwischen unterschiedlichen Versetzungsarmen sowie die Zufälligkeit der Hindernisanordnung wieder, während die zweite Klammer die Selbstwechselwirkung innerhalb jedes Versetzungsbogens beschreibt.

Allen bisher besprochenen Modellen ist die Proportionalität der kritischen Schubspannung zu  $Gb/L$  gemein. Sie unterscheiden sich lediglich in den Vorfaktoren. Diese können im Rahmen der Modellkalibrierung auf empirischem Wege bestimmt werden.

### 3.3.3 Versetzungssimulation

Zur Bestimmung des Widerstands, den eine Anordnung von Hindernissen einer Versetzungslinie entgegensetzt, können neben analytischen Modellen auch Versetzungssimulationen verwendet werden. Wir beschränken uns dabei auf planare Anordnungen der Hindernisse und eine einzelne Versetzungslinie.

Dabei wird angenommen, dass die (ausgebauchte) Versetzungslinie in einer Kristallebene liegt und auch die Peach-Köhler-Kräfte

$$d\vec{K} = \underline{\underline{\sigma}} \vec{b} \times d\vec{l} \quad (3.51)$$

auf die einzelnen Linienelemente  $d\vec{l}$  stets in dieser Ebene wirken. Dazu muss der  $\sigma\beta$ -Wert senkrecht auf der Simulationsebene stehen.  $b$  ist hier der Burgers-Vektor der Versetzungslinie und  $\sigma$  der Tensor der vorliegenden mechanischen Spannung im Material. Konzeptionell am einfachsten ist es, sich hier eine reine Stufenversetzung vorzustellen, mit einem Burgers-Vektor  $b$  senkrecht zur Simulationsebene, und als angelegte Last von einer Zugspannung auszugehen. Die dadurch verursachten Bewegungen der Versetzungslinie sind dann allerdings reine Kletterprozesse, die nur bei sehr hohen Temperaturen ablaufen können, da dazu Atomtransport von bzw. zur Versetzungslinie notwendig ist. Realistischer ist es daher, einen Burgers-Vektor in der Simulationsebene anzunehmen, so dass die vorliegende Versetzungslinie sowohl Anteile an Stufenversetzungen als auch an Schraubenversetzungen enthält,

die unter der gegebenen Last ableiten können, auch wenn dadurch die Linienenergie (Energie pro Längeneinheit)

$$E_L = \frac{Gb^2}{4\pi} \frac{1-\nu \cos^2 \beta}{1-\nu} \ln\left(\frac{R_1}{R_0}\right) \quad \text{mit } R_0 \approx |b| \quad \text{und } R_1 \approx \frac{1}{\sqrt{\rho}} \quad (3.52)$$

eines Versetzungsliniensegments vom Winkel  $\beta$  zwischen dem Burgers-Vektor  $b$  und dem Liniensegment abhängig wird.  $G$  ist dabei der Schubmodul des Materials und  $\nu$  seine Querkontraktionszahl (Poisson-Konstante). Als Maß für den Kernradius  $R_0$  der Versetzung nimmt man üblicherweise den Betrag des Burgers-Vektor und der Aussenradius  $R_1$  wird mit der Reichweite bis zur nächsten Versetzungslinie assoziiert, die von der mittleren Versetzungsdichte  $\rho$  abhängt. Da der  $\sigma\beta$ -Wert weiterhin senkrecht auf der Simulationsebene stehen soll, muss als äußere Last nun eine Schubspannung  $\tau$  angelegt werden. Typische Werte für die beiden Radien  $R_0$  und  $R_1$  annehmend und auch die schwache Abhängigkeit der Linienenergie von der Natur der Versetzungslinie (gegeben durch den Winkel  $\beta$  mit  $\beta = 0^\circ$  für Schrauben- und  $\beta = 90^\circ$  für Stufenversetzungen) vernachlässigend ( $\nu = 0,29$  für Eisen), kann man die Linienenergie auch in der einfachen Form

$$E_L = aGb^2 \quad (3.53)$$

ansetzen, wobei  $a$  ein empirischer Faktor zwischen 0,5 und 1 ist [Hull 2001].

Sobald eine durch die Peach-Köhler-Kräfte einer äußeren Last vorangetriebene gestreckte Versetzungslinie auf Hindernisse stößt, baucht sie sich aus. In Abhängigkeit der Krümmung  $\kappa$  (bzw. des damit verbundenen Krümmungsradius  $R$ ) eines Linienelements  $dl$  entsteht eine Rückstellkraft

$$d\vec{K}_k = \vec{n} \kappa E_L dl = \vec{n} \frac{E_L}{R} dl \quad (3.54)$$

in Richtung der Kurvennormalen  $n$ , welche der Peach-Köhler-Kraft entgegen wirkt. Im Gleichgewicht entsteht für eine Stufenversetzung ein Kreisbogen mit dem Radius

$$R = \frac{E_L}{\tau b} = a \frac{Gb}{\tau} \quad , \quad (3.55)$$

der mit zunehmender Last immer kleiner wird (siehe Bild 3.6). Sobald die durch die Linienenergie (und die damit einhergehende Linienspannung) verursachte Kraft

$$F = 2E_L \cos\left(\frac{\varphi}{2}\right) \quad (3.56)$$

auf ein Hindernis die für das jeweilige Hindernis charakteristische kritische Kraft  $F_H$  überschreitet, reißt die fixierte Versetzungslinie ab. Dabei ist  $\varphi$  der Winkel zwischen den beiden Armen der festgehaltenen Versetzungslinie. Welcher Mechanismus diesem Abrissprozess im Einzelnen zugrunde liegt, Schneiden, Klettern oder Umschließen, ist für die eigentliche Simulation unerheblich. Entscheidend ist, dass man die Abrissbedingung  $F(\varphi) > F_H$  auch in der geometrisch einfacher zu handhabenden Form

$$\varphi < \varphi_H := 2 \arccos\left(\frac{F_H}{E_L}\right) = 2 \arccos\left(\frac{F_H}{aGb^2}\right) \in [0, \pi] \quad (3.57)$$

schreiben kann.

Die Gleichungen 3.55 und 3.57 sind die Kernpunkte der Foreman-Makin-artigen 2D-Versetzungssimulation. Sie machen die Simulation im Wesentlichen zu einem rein geometrischen Problem. Mit kleiner Last und nahezu gestreckter Versetzungslinie beginnend, wird die angelegte Schubspannung  $\tau$  stückweise erhöht. Sobald dabei der Festhaltwinkel  $\varphi$  an einem Hindernis den kritischen Winkel  $\varphi_H$  unterschreitet, reißt die Versetzungslinie ab und es muss eine neue Gleichgewichtsgeometrie für die Versetzungslinie gefunden werden. Da der Übergang in die neue Gleichgewichtsgeometrie physikalisch betrachtet eigentlich ein kinetischer Prozess ist, der nicht ausschließlich auf den Gleichgewichtseigenschaften der Versetzungslinien beruht, ist man hier auf heuristische Überlegungen angewiesen, in die solche Konzepte wie elliptisch abgeflachte Liniensegmente und überkritische Kreisbögen eingehen. Ab einer bestimmten Last wird es nicht mehr möglich sein, eine neue stabile Gleichgewichtsgeometrie zu finden, die Versetzungslinie wird also die Hindernisse zwar noch spürend aber ansonsten ungebremst durch das vorliegende Feld von Punkthindernissen laufen. Im Ergebnis erhält man für jede Anordnung von zufällig verteilten Punkthindernissen mit beliebigen, individuellen Hindernisstärken eine kritische Schubspannung  $\tau_{\text{crit}}$ , bei der die Versetzungslinie die Hindernisse überwinden kann.

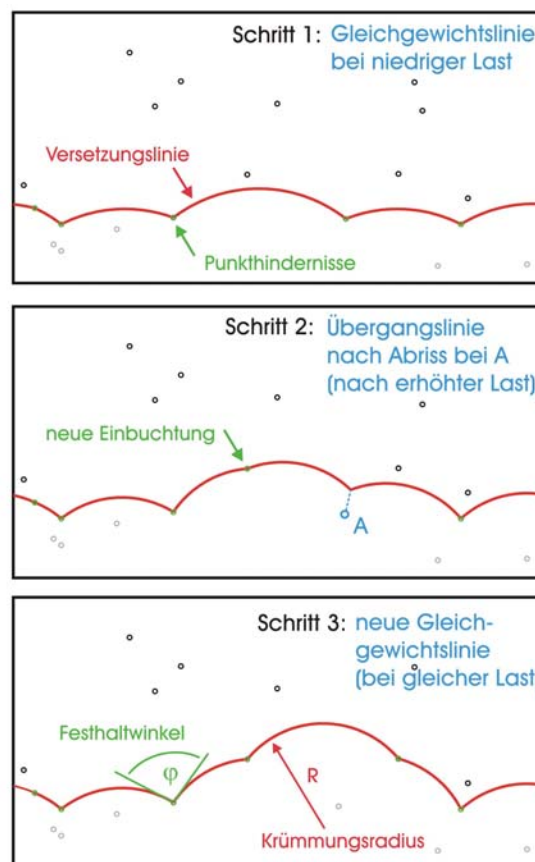


Bild 3.6 Schnappschüsse der Bewegung einer Versetzungslinie durch eine zufällige Verteilung von Punkthindernissen.



### 3.3.4 Streckgrenzenerhöhung

Die Abschätzung der Streckgrenzenerhöhung aus der kritischen Schubspannung erfordert den Übergang vom Einkristall zum Polykristall. Dazu ist die kritische Schubspannung auf die dominanten Gleitsysteme zu projizieren (Schmid-Faktor) und anschließend über alle Kristallorientierungen zu mitteln (Taylor-Faktor  $M$ ). Für den Fall einer einzigen Hindernisart und linearer Superposition mit den von vorn herein existierenden Versetzungshindernissen ergibt sich der folgende Ausdruck für die Streckgrenzenerhöhung (siehe auch Gl. 3.46-3.48 und 3.50):

$$\Delta R_{p0.2} = \alpha M \tau_{krit} = \alpha M G b \frac{1}{L} \quad (3.58)$$

Dabei bezeichnet  $\alpha$  die dimensionslose Hindernisstärke, die für ein gegebenes Material von der Hindernisart abhängig ist. Der Taylor-Faktor  $M$  kann Werte zwischen 2,2 und 3,1 annehmen [Russell 1972]. In der Berechnungssoftware RPV-1 wird  $M = 3$  verwendet [Jumel 2005]. Kürzlich wurde ein modifizierter Wert von 2,32 gefunden [Diard 2005]. Für den Zusammenhang zwischen Hindernisabstand und Konzentration werden unterschiedliche Ausdrücke angegeben [Russell 1972, Hull 2001, Lambrecht 2010] (siehe auch Gl. 3.49).

$$\Delta R_{p0.2} = \alpha M G b \sqrt{2rN} \quad (3.59a)$$

$$\Delta R_{p0.2} = \alpha M G \frac{0,69b}{r} \sqrt{c} \quad (3.59b)$$

$$\Delta R_{p0.2} = \alpha M G b \sqrt[3]{N} \approx \alpha M G \frac{0,62b}{r} \sqrt[3]{c} \quad (3.59c)$$

Für den Fall zweier Hindernisarten (Indizes 1 und 2) ist hinsichtlich der Überlagerung der beiden Hindernisarten zwischen linearer

$$\Delta R_{p0.2} = M G b \left( \frac{\alpha_1}{L_1} + \frac{\alpha_2}{L_2} \right) \quad (3.60a)$$

und quadratischer Superposition

$$\Delta R_{p0.2} = M G b \sqrt{\frac{\alpha_1^2}{L_1^2} + \frac{\alpha_2^2}{L_2^2}} \quad (3.60b)$$

zu unterscheiden. Bei zwei Hindernisarten ähnlicher Hindernisstärke finden sich in der Literatur Argumente für die quadratische Superposition [Hiratani 2004].

Die Auswahl der anzuwendenden Berechnungsgleichung und die Ermittlung der entsprechenden Hindernisstärken ist Gegenstand der Kalibrierung des versetzungstheoretischen Programmmoduls. Die Größen  $M$ ,  $G$  und  $b$  werden als konstant betrachtet.  $N$  und  $r$  bzw.  $c$  und  $r$  werden entweder aus dem Ratentheorie-Modul oder aus SANS-Experimenten an den Härtingsmodul übergeben. Die Hindernisstärke für die dominante Hindernisart kann einerseits als empirischer Zahlenwert, d. h. als Fitparameter, betrachtet werden. Andererseits können vorhandene Informationen über die Clusterzusammensetzung (Leerstellenanteil oder A-Verhältnis gemischter

Cu-Leerstellen-Cluster) benutzt werden, um physikalisch begründete Werte für die Hindernisstärke abzuleiten.

### 3.3.5 Übergangstemperaturverschiebung

Die modellmäßige Beschreibung des Spröd-duktil-Übergangs und die Voraussage der Übergangstemperaturverschiebung sind nicht Gegenstand des Vorhabens. Es ist aber wichtig anzumerken, dass ausgeprägte Korrelationen zwischen der bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhung bzw. Härtezunahme und der Übergangstemperaturverschiebung bestehen (siehe Bild 2.14 und [Ulbricht 2006]). Das Vorliegen solcher Korrelationen kann im Rahmen des Ludwik-Davidenkov-Modells qualitativ begründet werden [Ulbricht 2006]. Gleichzeitig verdeutlichen diese Korrelationen, dass die bestrahlungsinduzierte Bildung härtesteigernder Defekt-Fremdatom-Cluster auf der nm-Skala der dominante Versprödungsmechanismus ist. Dies bestätigt die Richtigkeit des diesem Vorhaben zugrunde liegenden Modellierungsansatzes, begründet gleichzeitig aber auch das Erfordernis weiterer Untersuchungen, die über das Vorhaben hinaus gehen und die Brücke zum Bruchverhalten bzw. zu bruchmechanischen Parametern schlagen.

## 4 Codes und Validierung

### 4.1 Der ratentheoretische Modul

#### 4.1.1 Implementierung des Programms CD-trans

Das im Teilabschnitt 3.2.3 beschriebene ratentheoretische V3C-Modell wurde als FORTRAN90-Programm implementiert, wobei auf die modernen, im FORTRAN90 Standard zur Verfügung stehenden Programmierkonzepte zurück gegriffen wurde. Die Entwicklung erfolgte in einer Linux-Umgebung. Dennoch sollte das Programm auch unter anderen Betriebssystemen einsetzbar sein. Eine ausführliche Dokumentation des Programms CD-trans ist dem Text als Anlage A1 beigelegt.

Das den ratentheoretischen Modul abdeckende Programm-Paket "CD-trans" dient (u. a.) zur Durchführung von ratentheoretischen Simulationen nach dem V3C-Modell und beinhaltet die Methode der Fokker-Planck-Transformation zur beschleunigten Behandlung des zu lösenden gewöhnlichen Differentialgleichungssystems (siehe Abschnitt 4.1.2). Ferner enthält es einen Modul zur Auswertung der berechneten Clusterverteilungen  $C_n(t)$ .

Das Programm CD-trans besteht aus zwei Teilen, einem Hauptmodul, mit dem die eigentliche ratentheoretische (RT) Simulationsrechnung durchgeführt wird, und einem Analysemodul, mit dem man nach abgeschlossener RT-Simulation unterschiedliche Auswerteroutinen aufrufen kann. Diese beiden Teile kommunizieren über eine binäre Datei, in die alle relevanten Informationen aus der RT-Simulation am Ende der Rechnung abgelegt werden. Die zum Teil recht zeitintensiven RT-Simulationen müssen also nicht wiederholt werden, wenn im Laufe der Zeit weitere Analysen der RT-Daten vorgenommen werden sollen.

Beide Programmblöcke werden über Eingabedateien (in einfachem ASCII-Format) mit den notwendigen Parametern für die RT-Simulation bzw. die Datenanalyse versorgt. Dies hat den Vorteil, dass sich das Programm sehr leicht auf andere Plattformen portieren lässt. Diese Eingabewerte sind vor allem die notwendigen Materialparameter, die Parameter, welche die bestrahlte Probe charakterisieren, und die Parameter der Bestrahlungsbedingungen. Für die Materialparameter werden in der Eingabebeschreibung Standardwerte empfohlen, so dass man als Benutzer in der Regel nur die Proben- und Bestrahlungsparameter spezifizieren muss. Das Programm ist mit dynamischer Speicherallokierung realisiert, was bedeutet, dass es keine fest einprogrammierten Obergrenzen für die Prozessparameter, wie maximale Größe der sich bildenden Defektcluster gibt. Die notwendigen Speicherressourcen werden vom Programm in möglichst optimaler Form selbst angefordert, so dass sich kleinere Simulationsrechnungen auch auf leistungsschwächeren Rechnern durchführen lassen.

Der Analyseblock umfasst neben Modulen zur integralen Charakterisierung der erhaltenen Clusterverteilungen  $C_n(t)$ , wie beispielsweise der Volumenanteil aller Defektcluster mit Radien oberhalb eines benutzerspezifizierten Abschneideradius, auch eine Reihe von Optionen zur graphischen Auswertung. Um eine einfache Portierbarkeit zu gewährleisten, ist zu diesem Zweck kein spezielles Graphikpaket in das Programm CD-trans eingebunden worden. Stattdessen werden die darzustellenden graphischen Informationen als robuste x-y-Werte-Tabellen (in einfachem

ASCII-Format) ausgegeben, welche von vielen Standardgraphikpaketen ohne große Mühe eingelesen werden können.

Ratentheoretische Simulationen erfordern das Lösen großer, gewöhnlicher Differentialgleichungssysteme. Da diese in der Regel recht steif werden können, ist von der Implementierung eigener Routinen zum Lösen der Differentialgleichungen Abstand gehalten worden. Vielmehr wird auf die als "public domain"-Software leicht zugängliche Programm-Bibliothek ODE-Pack von Hindmarsh [Hindmarsh 1983, Hindmarsh 2010] zurückgegriffen. Im speziellen wird die Unterroutine LSODA zur automatischen Lösung von steifen und nicht-steifen Differentialgleichungssystemen zurückgegriffen.

#### 4.1.2 Fokker-Planck-Transformation

Der zeitbestimmende Teil des für eine ratentheoretische Simulation zu lösenden Differentialgleichungssystems sind die Mastergleichungen, Gl. 3.9, die hier nochmals in leicht abgewandelter Form notiert werden sollen.

$$\frac{d}{dt} C_n = J_{n-1}^{\text{ab}} - J_n^{\text{em}} - J_n^{\text{ab}} - J_{n+1}^{\text{em}} \quad \text{mit} \quad J_n^{\text{ab}} = \beta_n C_n \quad \text{und} \quad J_n^{\text{em}} = \alpha_n C_n \quad (4.1)$$

$$= \beta_{n-1} C_{n-1} - (\alpha_n + \beta_n) C_n + \alpha_{n+1} C_{n+1} \quad (4.2)$$

Diese müssen für alle relevanten Clustergrößen  $n \geq 2$  bis zu einem Maximalwert  $M$  gelöst werden, der leicht Werte von über 10 000 Atomen erreichen kann (für Clusterverteilungen, die erst bei Clusterradien oberhalb von 3 nm auf Null abklingen).

Die Rechenzeit zum Lösen der ratentheoretischen Gleichungen kann dadurch ohne weiteres in Bereiche von 10 Stunden und mehr ansteigen. Um den Umgang mit dem ratentheoretischen Programm CD-trans zu erleichtern, ist auf die Methode der Fokker-Planck-Transformation zurückgegriffen worden. Sie basiert darauf, obige Mastergleichungen in eine partielle Differentialgleichung zu überführen, indem man die Konzentrationen  $C_n$  der Fremdatomcluster sowie die Absorptions- und Emissionskoeffizienten  $\beta_n$  und  $\alpha_n$  als kontinuierliche Funktionen der Clustergröße  $n$  betrachtet und die Absorptions- und Emissionsströme  $J_{n-1}^{\text{ab}}$  und  $J_{n+1}^{\text{em}}$  in Taylor-Reihen bis zur 2. Ordnung um den Punkt  $n$  entwickelt. Im Ergebnis findet man die partielle Differentialgleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} C_n = -\frac{\partial}{\partial n} \left[ f_n C_n - \frac{\partial}{\partial n} (g_n C_n) \right] \quad \text{mit} \quad f_n = \beta_n - \alpha_n \quad \text{und} \quad g_n = \frac{\beta_n + \alpha_n}{2} \quad , \quad (4.3)$$

welche die Form einer Fokker-Planck-Gleichung hat. Alternativ könnte man auch zu einer Diffusionsgleichung übergehen, wozu man allerdings die Ableitungen der Absorptions- und Emissionskoeffizienten nach  $n$  bräuchte.

Durch Einführung geeigneter Variablensubstitutionen  $n = n(s)$  und anschließender nichtäquidistanter Diskretisierung der transformierten partiellen Differentialgleichung lässt sich die Feinheit, mit der die Clustergrößen  $n$  abgerastert werden, stufenlos einstellen. Setzt man dazu

$$C(s) = C_{n(s)} \cdot n'(s) \quad , \quad (4.4)$$

so behält die transformierte Fokker-Planck-Gleichung ihre Gestalt, wobei

$$f(s) = f_{n(s)} s'(n(s)) + g_{n(s)} s''(n(s)) \quad \text{und} \quad g(s) = g_{n(s)} s'(n(s))^2 \quad (4.5)$$

zu setzen ist. Dadurch gelangt man in Anwendung der Umkehrung von Gl. 4.3,

$$\tilde{\alpha}_i = g(s_i) - \frac{1}{2} f(s_i) \quad \text{und} \quad \tilde{\beta}_i = g(s_i) + \frac{1}{2} f(s_i) \quad , \quad (4.6)$$

zu einem Satz neuer Mastergleichungen, die genau die gleiche Gestalt haben wie die Ausgangsgleichungen, Gl. 4.2:

$$\frac{d}{dt} C(s_i) = \tilde{\beta}_{i-1} C(s_{i-1}) - (\tilde{\alpha}_i + \tilde{\beta}_i) C(s_i) + \tilde{\alpha}_{i+1} C(s_{i+1}) \quad , \quad i = 2, 3, \dots \quad (4.7)$$

Im Gegensatz zu der in der Fachliteratur häufig verwendeten geometrischen Progression [Ghoniem 1980]

$$n(s) = s \quad \text{für} \quad s \leq n_0 \quad , \quad n(s) = n_0 + \frac{h^{s-n_0} - 1}{h - 1} \quad \text{für} \quad s \geq n_0 \quad (h > 1) \quad (4.8)$$

bevorzugen wir eine kubische Substitution,

$$n(s) = s \quad \text{für} \quad s \leq n_0 \quad , \quad n(s) = s + \Delta \cdot (s - n_0)^3 \quad \text{für} \quad s \geq n_0 \quad (\Delta > 0) \quad , \quad (4.9)$$

weil sie der Zielgröße, der radiusabhängigen Größenverteilungsfunktion, am ehesten gerecht wird, indem sie (asymptotisch) äquidistante Radiusstützpunkte liefert, und auch am Übergangspunkt  $n_0$  bis zur zweiten Ableitung stetig ist.

Um numerische Artefakte bei der Lösung der diskretisierten transformierten Fokker-Planck-Gleichungen auszuschließen, sollte der Inkrementfaktor  $\Delta$  so gewählt werden, dass die Maxima in den Größenverteilungsfunktionen (siehe beispielsweise Bild 4.3 und 4.4) durch mindestens eine Stützstelle  $s_i$  abgedeckt werden. In unseren Simulationsrechnungen hat sich ein Wert von 0,008 nm bewährt, auf jeden Fall sollte  $\Delta$  aber kleiner als 0,02 nm bleiben (siehe Bild 4.1).

Der Übergangspunkt  $n_0$  sollte so gewählt werden, dass die Fremdatomcluster unterhalb der kritischen Keimgröße  $n_{\text{crit}}$  (Gl. 3.22) weiterhin in nicht-transformierter Form beschrieben werden. Werte zwischen 10 und 100 haben sich als ausreichend herausgestellt, wobei sowohl die erzielten Rechengenauigkeiten als auch die Zeitersparnisse recht unsensitiv auf die Wahl von  $n_0$  sind.

Rechnungen die ohne Fokker-Planck-Transformation Rechenzeit in der Größenordnung von 6h benötigten, brauchen mit Transformation weniger als 15 Sekunden. Die Zeitersparnis ist also immens und erlaubt es, nun Dinge zu untersuchen, die vorher nicht möglich waren. So konnte beispielweise der Ostwald-Reifungsprozess verfolgt werden, bei dem Clustergrößen bis zu 150 000 Atomen (Radius bis 7,5 nm) zum Einsatz kommen (siehe Bild 4.2)

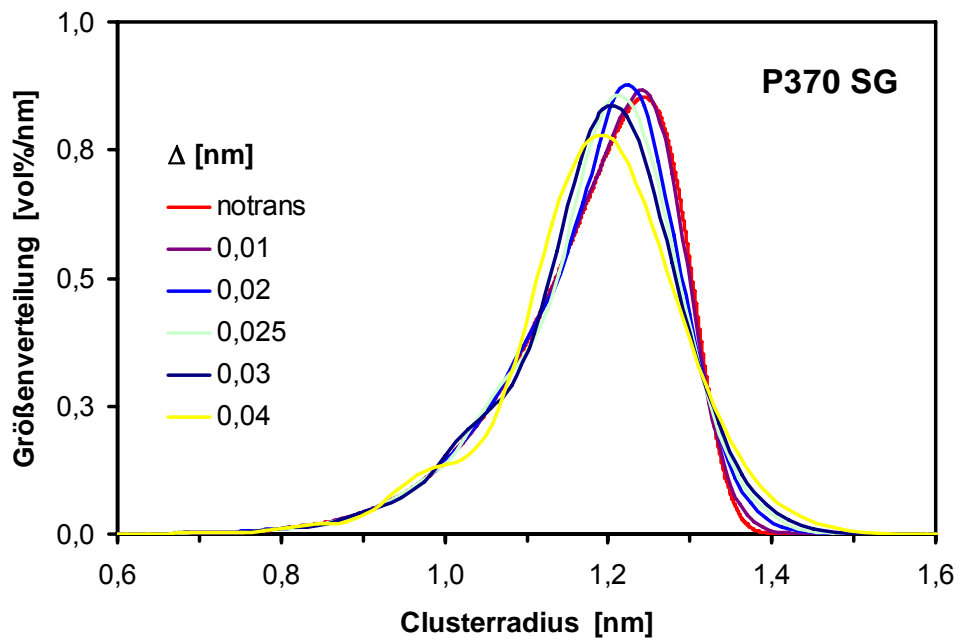


Bild 4.1 Einfluss des Inkrementfaktors  $\Delta$  der kubischen Variablensubstitution für die Fokker-Planck-Transformation im V3C-Modell auf die Größenverteilungsfunktion am Beispiel des Schweißguts P370 SG (Bestrahlungsrate: 0,087 ndpa/s, Fluenz: 5,4 mdpa). In rot ist als Referenz die ohne Fokker-Planck-Transformation berechnete Verteilungsfunktion gezeigt.

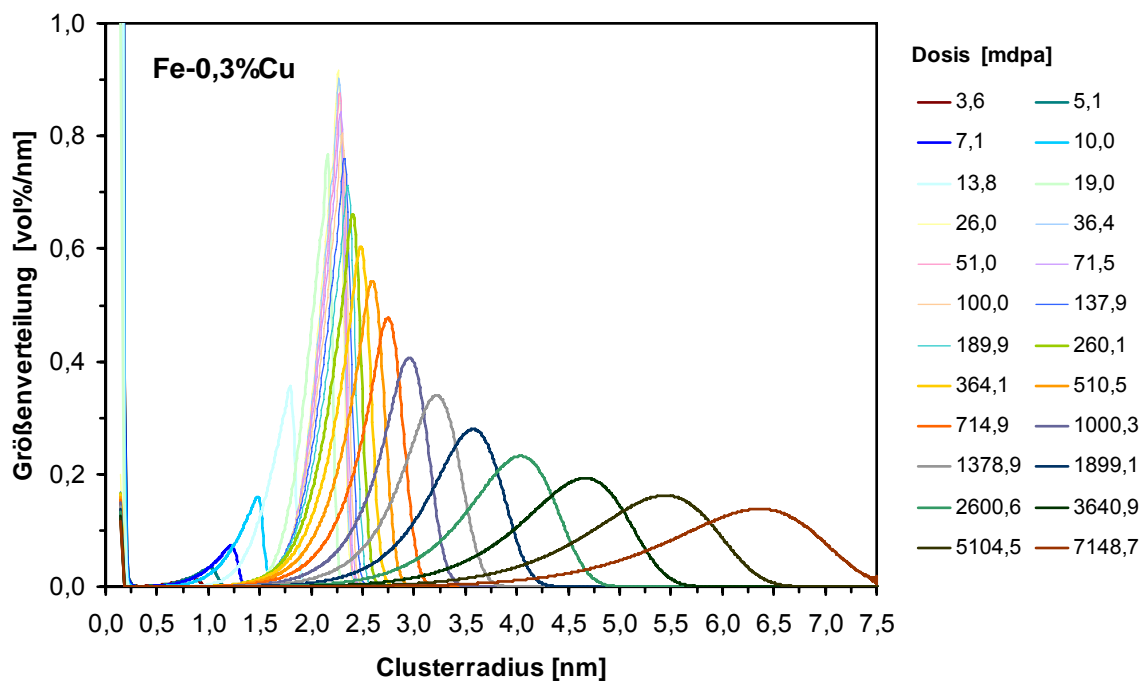


Bild 4.2 Die mit dem V3C-Modell unter Verwendung der Fokker-Planck-Transformation ermittelte zeitliche Entwicklung der Defektclusterverteilung in der Modelllegierung Fe-0,3%Cu als Funktion der Fluenz bis über 7 dpa.

### 4.1.3 Kalibrierung

Neben den Prozessparametern wie Bestrahlungsrate, Bestrahlungszeit und Temperatur während der Bestrahlung sowie den Probenparametern wie Zusammensetzung des bestrahlten Materials und dessen Versetzungsdichte geht in das V3C-Modell eine Reihe von festen Materialparametern ein.

Tabelle 4.1 Materialparameter für das hier verwendete V3C-Modell.  
( $T$ : Temperatur in K,  $k$ : Boltzmann-Konstante, ZGA: Zwischengitteratome, ELS: Eisenleerstellen, gCu gelöste Cu-Atome in der Fe-Matrix)

Parameter	Wert	Referenz
Gitterkonstante $a_{\text{Fe}}$ von bcc Eisen	2,8665 Å	[Ackland 1997]
Gitterkonstante $a_{\text{Cu}}$ von bcc Kupfer	2,9607 Å	[Ackland 1997]
Migrationsenergie $E_{\text{m,i}}$ der ZGA	0,4 eV	[Odette 1998b]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,i}$ für die ZGA	$0,05 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$	[Odette 1998b]
Diffusionskoeffizient $D_i$ der ZGA bei 300 °C	$1,52 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_i = D_{0,i} \exp(-E_{\text{m,i}}/kT)$
Migrationsenergie $E_{\text{m,v}}$ der ELS	1,3 eV	[Odette 1998b]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,v}$ für die ELS	$0,5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$	[Odette 1998b]
Diffusionskoeffizient $D_v$ der ELS bei 300 °C	$1,85 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_v = D_{0,v} \exp(-E_{\text{m,v}}/kT)$
Migrationsenergie $E_{\text{m,Cu}}$ der gCu	2,29 eV	[Christien 2004]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,\text{Cu}}$ für die gCu	$7,2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	siehe Text
Diffusionskoeffizient $D_{\text{Cu}}$ der gCu bei 300 °C	$5,26 \times 10^{-26} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_{\text{Cu}} = D_{0,\text{Cu}} \exp(-E_{\text{m,Cu}}/kT)$
Bildungsenergie $E_{\text{f,v}}$ der ELS	1,64 eV	<sup>a</sup>
Nicht konfig. Bildungsentropie $\Delta S_v$ der ELS	3 $k$	<sup>a</sup>
Therm. ELS-Konzentration $C_v^{\text{eq}}$ bei 300 °C	$7,62 \times 10^{-14}$	$C_v^{\text{eq}} = \exp(\Delta S_v/k - E_{\text{f,v}}/kT)$
Entmischungstemperatur $\Omega$ der gCu	6255 K	[Christien 2004]
Nicht konfig. Bildungsentropie $\Delta S_{\text{Cu}}$ der gCu	0,866 $k$	[Christien 2004]
Löslichkeitsgr. $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}$ von Cu in Fe bei 300 °C	$4,33 \times 10^{-5}$	$C_{\text{Cu}}^{\text{eq}} = \exp(\Delta S_{\text{Cu}}/k - \Omega/T)$
Cahn-Hillard Grenzfl.-Energie $\gamma_{\text{CH}}$ bei 300 °C	0,392 J/m <sup>2</sup>	Gl. 3.30
Rekombinationsradius $r_{\text{rec}}$ der ZGA und ELS	5,74 Å	[Odette 1998b]
Rekombinationskonstante $k_{\text{vi}}$ bei 300 °C	$9,31 \times 10^{11} / \text{s}$	$k_{\text{vi}} = 4\pi r_{\text{rec}}(D_v + D_i)/V_{\text{Fe}}$
Bias-Faktor $z_i$ für die ZGA-Senken	1,2	[Christien 2004]
Bias-Faktor $z_v$ für die ELS-Senken	1,0	[Christien 2004]
Effizientfaktor $\eta$ für die Punktdef.-Erzeugung	0,366	[Broeders 2004]
Anteil $f_{\text{cl,x}}$ der Punktdef. In Kaskadenclust.	0,5	[Stoller 2000, Calder 1993]

<sup>a</sup> Für Temperaturen im Bereich von 270-300°C sind die angegebenen Parameter im Wesentlichen gleichwertig mit dem Parameterpaar  $E_{\text{f,v}} = 1,6 \text{ eV}$  [Christien 2004] und  $\Delta S_v = 2,2 \text{ k}$  [Burton 1972].

Die meisten davon haben sich im Laufe der Zeit als "Standard"-Parameter für Cu-haltige eisenbasierte Werkstoffe etabliert, auch wenn in der Literatur immer wieder leicht unterschiedliche Werte auftreten. Die Materialparameter, die hier verwendet werden, stammen größtenteils aus eigenen früheren Studien zu Cu-reicheren Modellwerkstoffen (0,42%Cu) [Gokhman 2003, Gokhman 2008] oder sind der Fachliteratur entnommen. Sie sind in Tab. 4.1 zusammengefasst. Der Vollständigkeit halber sind in Tab. 4.1 auch die resultierenden, temperaturabhängigen Materialparameter für 300°C mit angegeben.

Der von Christien et al. empfohlene pre-exponentielle Faktor von  $6,3 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$  für die Diffusion der gelösten Cu-Atome in der Eisenmatrix [Christien 2004] ist nach unserer Erfahrung allerdings deutlich zu hoch. Durch Anpassung an die in Bild 2.11 und 2.12 gezeigten Kennwerte der mit SANS gemessenen Clusterverteilungen der beiden zur Kalibrierung ausgesuchten Modelllegierungen Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu finden wir einen Wert von  $7,2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$  [Birkenheuer 2010], was um den Faktor 8,75 geringer ist. Dass dieser reduzierte Wert sinnvoller ist, zeigt auch der Vergleich mit den Diffusionskonstanten, die in anderen ratentheoretischen Simulationsrechnungen verwendet werden bzw. die aus molekulardynamischen Rechnungen oder durch Extrapolation von Messdaten auf 300°C erhalten werden (siehe Tab. 4.2). Der Wert von Christien et al. liegt weit außerhalb, während der angepasste Wert in der gleichen Größenordnung wie der aus den anderen Simulationsrechnungen rangiert. Allen diesen Werten gemeinsam ist, dass sie spürbar über den mittels der jeweiligen Arrhenius-Kenndaten auf 300°C herunter extrapolierten Messdaten liegen, was nicht unbedingt ein Defizit der in den Simulationsrechnungen auftretenden Diffusionskonstanten sein muss, sondern auch an der begrenzten Gültigkeit derartiger Extrapolationen liegen kann.

Tabelle 4.2 Diffusionskonstante von Cu-Atomen in  $\alpha$ -Eisen (auf 300°C herunter extrapoliert im Vergleich mit den Diffusionskonstanten aus anderen Simulationsrechnungen.  
(RT: Ratentheorie, MD: Molekulardynamik)

Method	$E_{m,Cu}$ [eV]	$D_{0,Cu}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	$D_{Cu}^{300^\circ\text{C}}$ [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]	Referenz
RT-Simulation	2,29	$0,63 \times 10^{-4}$	$46,0 \times 10^{-26}$	[Christien 2004]
RT-Simulation	2,29	$0,072 \times 10^{-4}$	$5,26 \times 10^{-26}$	diese Studie
RT-Simulation	2,53	$7,08 \times 10^{-4}$	$4,01 \times 10^{-26}$	[Golubov 2000]
MD-Simulation	2,31	$0,052 \times 10^{-4}$	$2,54 \times 10^{-26}$	[Marian 2004]
Exp., $\alpha$ -Fe	2,56	$3,9 \times 10^{-4}$	$1,20 \times 10^{-26}$	[Lazarev 1970]
Exp., $\alpha$ -Fe(ferro)	2,53	$0,47 \times 10^{-4}$	$0,26 \times 10^{-26}$	[Anand 1966]
Exp., $\alpha$ -Fe(para)	2,94	$300 \times 10^{-4}$	$0,04 \times 10^{-26}$	[Salje 1977] <sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Kein Arrhenius-artiges Verhalten konnte für  $\alpha$ -Fe(ferro) beobachtet werden.

<sup>b</sup> Die in [Rothman 1968] angegebenen Datenpunkte liegen sehr nah an der von Salje et al. [Salje 1977] bestimmten Arrhenius-Kurve für  $\gamma$ -Fe and  $\alpha$ -Fe(para).

Dem Vorschlag von Mathon et al. [Mathon 1997] folgend, kann die Grenzflächenenergie zwischen den Cu-reichen Ausscheidungsclustern und der Eisenmatrix direkt aus den Materialparametern für die Löslichkeitsgrenze von Cu in Eisen berechnet



werden (siehe Gl. 3.30 und 3.31). Sie ist demnach kein unabhängiger Materialparameter. Auch wenn mit diesem Ansatz für Cu-reiche Materialien gute Erfolge erzielt werden konnten, führen - wie im Abschnitt 3.2.2 bereits ausführlich diskutiert - Grenzflächenenergien dieser Größe bei Cu-ärmeren Werkstoffen zu völlig abwegigen Ergebnissen.

Deshalb wurden im Rahmen dieses Vorhabens zwei binäre Modelllegierungen mit einem Masseanteil von 0,3% bzw. 0,1% Cu ausgewählt, Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu, um durch Vergleich von simulierten und gemessenen Clusterverteilungskurven eine vom Cu-Gehalt  $w$  des Werkstoffs gemäß Gl. 3.43 abhängige Grenzflächenenergie  $\gamma^{w\%}(T)$  zu bestimmen. Die Probenparameter für die beiden Modelllegierungen Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu sind in Tab. 4.3 aufgelistet, zusammen mit den sich aus der gemessenen Versetzungsdichte bei 300°C ergebenden Zerfallskonstanten  $k_x$  der Punktdefekte. Die Parameter der Bestrahlungsbedingungen folgen in Tab. 4.4. Sie sind dieselben für beide Modelllegierungen.

Tabelle 4.3 Probenparameter für die ratentheoretischen Simulationsrechnungen an den zur Kalibrierung verwendeten Modelllegierungen Fe- $w\%$ Cu. (Abkürzungen wie in Tab. 4.1)

Parameter	Wert	Referenz
Versetzungsdichte $\rho$	$0,9 \times 10^{14} / \text{m}^2$	[Bergner 2010]
Zerfallskonstante $k_i$ der ZGA bei 300°C	$1,64 \times 10^5 / \text{s}$	$k_i = z_i D_i \rho$
Zerfallskonstante $k_v$ der ELS bei 300 °C	$1,67 \times 10^{-2} / \text{s}$	$k_v = z_v D_v \rho$
<b>Fe-0,3%Cu</b>		
Masseanteil $w$ an Kupfer	0,3%	[Bergner 2010]
Atomanteil $C_{\text{Cu},0}$ an Cu in der Fe-Matrix	0,0026375	$u_{\text{Fe}} = 55,847 \text{ g/mol}$ $u_{\text{Cu}} = 63,546 \text{ g/mol}$
<b>Fe-0,1%Cu</b>		
Masseanteil $w$ an Kupfer	0,1%	[Bergner 2010]
Atomanteil $C_{\text{Cu},0}$ an Cu in der Fe-Matrix	0,00087895	$u_{\text{Fe}} = 55,847 \text{ g/mol}$ $u_{\text{Cu}} = 63,546 \text{ g/mol}$

Zur Kalibrierung der vom Cu-Gehalt  $w$  der Werkstoffs abhängigen Grenzflächenenergie  $\gamma^{w\%}(T)$  wurde die Grenzflächenenergie der Fe-0,3%Cu-Legierung als Vertreter der Cu-reicheren Werkstoffe festgehalten während diejenige des Cu-ärmeren Materials Fe-0,1%Cu angepasst wurde. Im Ergebnis konnte folgender Zusammenhang

$$\gamma^{w\%}(T) = \gamma_{\text{CH}}(T) \left( 1 - 0,27 \cdot \frac{0,3 - w}{0,2} \right) = \gamma_{\text{CH}}(T) (1,35w + 0,595) \quad \text{für } 0,1 \leq w \leq 0,3 \quad (4.10)$$

gefunden werden [Birkenheuer 2010], der für die Cu-ärmere Modelllegierung Fe-0,1%Cu eine Reduktion der Grenzflächenenergie auf 73% des Cahn-Hilliard-Wertes  $\gamma_{\text{CH}}(T)$  liefert. Die mit diesem Parametersatz ermittelten Größenverteilungskurven für die vier verschiedenen Neutronenfluenzen sind in Bild 4.3 und Bild 4.4 dargestellt. Um die zeitliche Entwicklung der Verteilungskurven besser einschätzen

Tabelle 4.4 Bestrahlungsparameter für die ratentheoretischen Simulationen an den zur Kalibrierung verwendeten Modelllegierungen Fe- $w\%$ Cu.

Parameter	Wert	Referenz
Temperatur $T$	300 °C	[Bergner 2010]
Bestrahlungsrate $G_{\text{dpa}}$	$140 \times 10^{-9}$ dpa / s	[Bergner 2010]
Punktdefekterzeugungsrate $G_x$	$2,56 \times 10^{-8}$ Def./Platz s	$G_x = \eta \cdot (1 - f_{x,\text{cl}}) \cdot G_{\text{dpa}}$
Bestrahlungsdosen $\varphi$	Bestrahlungszeiten	[Bergner 2010], Tab. 2.8
0,026 dpa	2.1 Tage	
0,051 dpa	4.2 Tage	
0,10 dpa	8,3 Tage	
0,19 dpa	15,7 Tage	

zu können, sind diese Abbildungen um weitere (geringere) Fluenzen erweitert worden. Der Wert der Größenverteilung  $F$  zu einem Clusterradius  $R$  gibt dabei an, welchen Volumenanteil die Gesamtheit aller Cluster mit Radius  $R$  pro Radiuseinheit belegen. Die Fläche unter den Kurven gibt also direkt den Gesamtvolumenanteil aller gebildeten Defektcluster an.

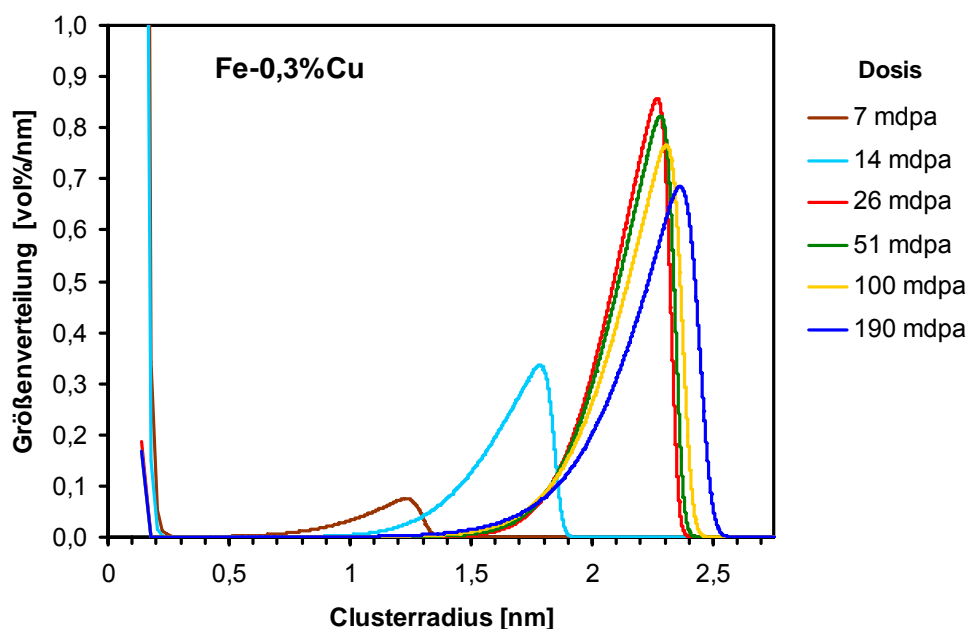


Bild 4.3 Mit dem V3C-Modell ermittelte zeitliche Entwicklung der Defektclusterverteilung in der Cu-reichen Modelllegierung Fe-0,3%Cu als Funktion der Fluenzen. Die letzten vier Fluenzen, 26, 51, 100 und 190 mdpa entsprechen den Bestrahlungsbedingungen der experimentell untersuchten Proben.

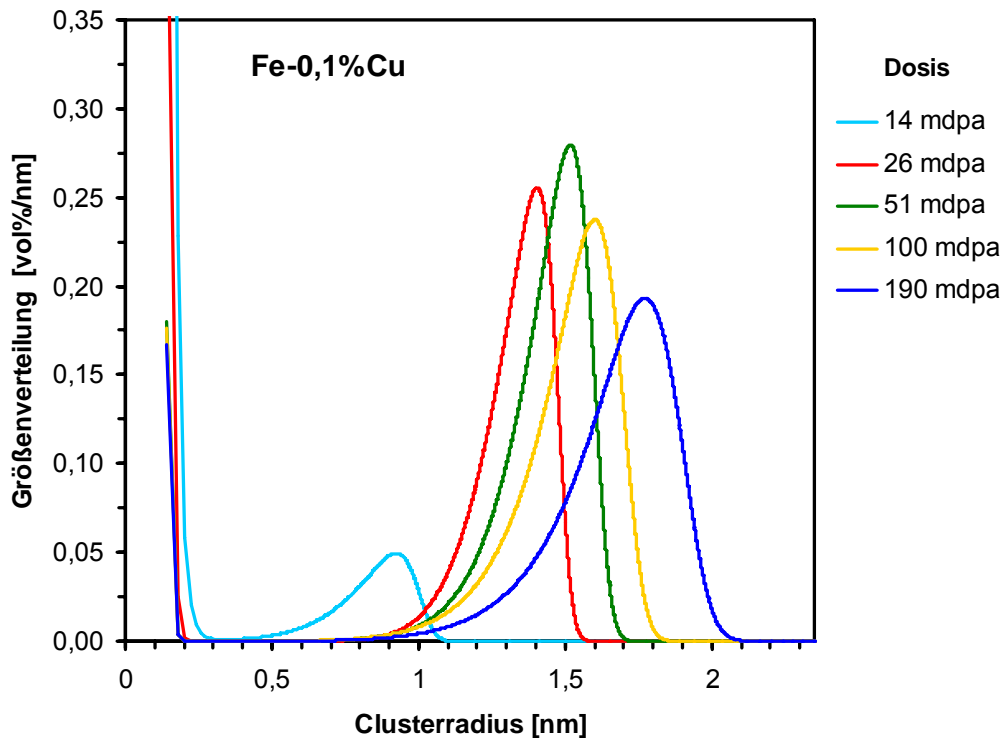


Bild 4.4 Die mit dem V3C-Modell ermittelte zeitliche Entwicklung der Defektclusterverteilung in der Cu-ärmeren Modelllegierung Fe-0,1%Cu als Funktion der Bestrahlungsdosis. Die letzten vier Dosen, 26, 51, 100 und 190 mdpa (Milli dpa) entsprechen den Bestrahlungsbedingungen der experimentell untersuchten Proben.

Es ist deutlich zu erkennen, dass für beide Modelllegierungen ab einer Fluenz von 50 mdpa die Ostwald-Reifung der sich ausbildenden Defektcluster eingesetzt hat. Bei der Cu-reicheren Legierung ist dies auch für die Fluenz von 26 mdpa der Fall, wo hingegen sich die Defektcluster im Cu-ärmeren Material bei dieser Fluenz noch in der Wachstumsphase befinden.

Als Kenngrößen für die einzelnen Größenverteilungsfunktionen soll der Gesamtvolumenanteil der mit SANS detektierbaren Defektcluster und der Radius an der Stelle des Maximum der Verteilungsfunktion, der sogenannte Peakradius, herangezogen werden. Als SANS-Nachweisgrenze für Defektcluster wurde dabei ein Wert von 0,3 nm angenommen. (Für eine Nachweisgrenze von 0,5 nm ergeben sich nahezu identische Volumenanteile.) Die Abhängigkeit dieser Kenngrößen für die mit dem ratentheoretischen V3C-Modell berechneten Größenverteilungsfunktionen sind in Bild 4.5 und 4.6 dargestellt, wo so auch mit den entsprechenden Kenngrößen der aus den SANS-Kurven extrahierten Größenverteilungsfunktionen verglichen werden.

Beide Kenngrößen zeigen den typischen Verlauf: einen recht raschen Anstieg während der Wachstumsphase und einen sehr viel moderateren Verlauf während der Ostwald-Reifung. Der Volumenanteil der Defektcluster (Bild 4.5) kommt mit dem Einsetzen der Ostwald-Reifung in die Sättigung mit Sättigungswerten von 0,256 at% für Fe-0,3%Cu and 0,0799 at% für Fe-0,1%Cu, was jeweils etwas unter der Gesamtmenge an Cu-Atomen im Werkstoff bleibt (0,264 at% und 0,0879 at%, siehe Tab. 4.3) wegen des Anteils an Cu, der entweder in der Eisenmatrix gelöst bleibt

oder sich in den kleinen, mit SANS nicht detektierbaren Clustern mit Radien unterhalb von 0,3 nm (das entspricht etwa einer Größe von 10 Atomen) ansammelt.

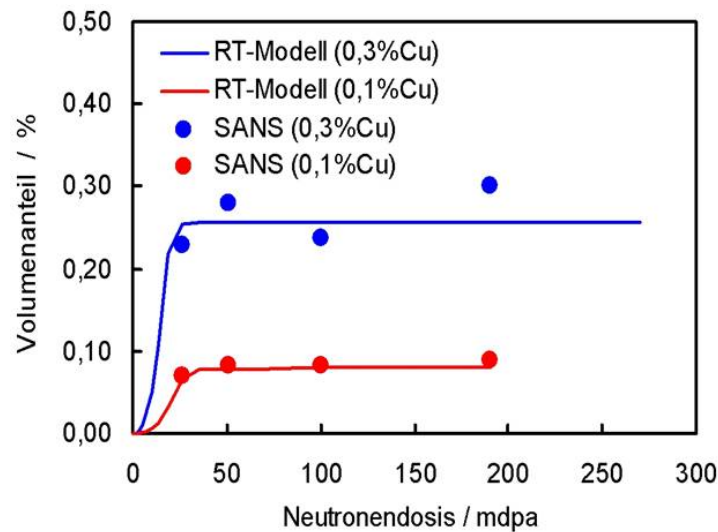


Bild 4.5 Mit dem V3C-Modell ermittelte zeitliche Entwicklung des Volumenanteils der Defektcluster in den beiden Modelllegierungen Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu als Funktion der Fluenz im Vergleich zu den Volumenanteilen aus den mit SANS gemessenen Clusterverteilungen.

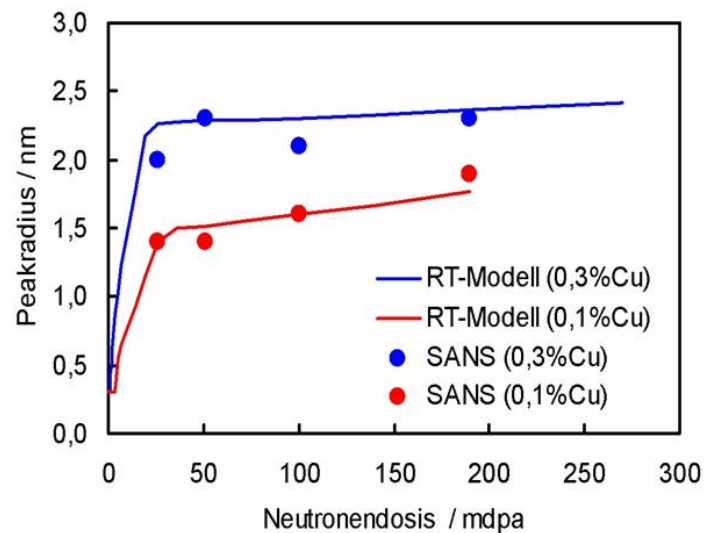


Bild 4.6 Mit dem V3C-Modell ermittelte zeitliche Entwicklung des Peakradius der Defektclusterverteilung in den beiden Modelllegierungen Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu als Funktion der Fluenz im Vergleich zu den Peakradien der mit SANS gemessenen Clusterverteilungen.

Die Peakradien nehmen auch nach Einsetzen der Ostwald-Reifung weiterhin zu, stärker ausgeprägt beim Cu-ärmeren Material, weniger deutlich bei der Cu-reichen Legierung. Auch ist deutlich zu erkennen, dass die Ostwald-Reifung bei Fe-0,1%Cu später einsetzt als bei Fe-0,3%Cu.

Der wesentliche Punkt im Zusammenhang mit der Kalibrierung des V3C-Modells ist aber, dass der experimentelle Verlauf beider Kenngrößen, des Volumenanteils und des Peakradius, für beide Modelllegierungen und alle Bestrahlungszustände durch das Modell richtig wiedergegeben wird. Dass dazu lediglich zwei Parameter (bei insgesamt 16 Messpunkten) angepasst wurden, nämlich der gemeinsame pre-exponentielle Faktor der Diffusionskonstanten des gelösten Kupfers und der Grad der Reduktion der Grenzflächenenergie  $\gamma^{w\%}$  beim Übergang von einem Masseanteil von 0,3% Cu zu einem Anteil von 0,1% Cu, bestätigt die Tragfähigkeit unseres Modells.

#### 4.1.4 Validierung

##### A) Zusammensetzung der Defektcluster (in den Modelllegierungen Fe-w%Cu)

Wie bereits in Teilabschnitt 3.2.3 dargestellt, geht das V3C-Modell über das klassische CD-P-Modell in dem Punkt hinaus, dass es die Möglichkeit der Aufnahme von Eisenleerstellen durch die Cu-reichen Ausscheidungen berücksichtigt. Durch diese Aufnahme von Leerstellen werden im Laufe der Bestrahlung in zunehmendem Maße gemischte Kupfer-Leerstellen-Cluster entstehen. Es ist anzunehmen, dass mit steigender Menge die anfänglich eher stochastisch in den Cu-Clustern verteilten Leerstellen zur Ausbildung von Leerstelleninseln innerhalb der Ausscheidungscluster neigen, bis die gemischten Aggregate bei sehr hohem Leerstellenanteil schlussendlich in kupferüberzogene Hohlräume übergehen. Derartige Konfigurationen werden auch in molekulardynamischen Studien zu gemischten Kupfer-Leerstellen-Clustern als die energetisch günstigsten gefunden [Takahashi 2003, Kulikov 2006, Alasqalani 2010]. In welchem Umfang sich in den unter realen Bestrahlungsbedingungen ausbildenden Mischclustern auch Eisen befindet ist in der Fachliteratur noch nicht abschließend geklärt.

Mit der Kleinwinkelstreuung steht eine experimentelle Methode zur Verfügung, welche es gestattet, (über das A-Verhältnis, siehe Gl. 3.28) gemittelte Aussagen über die Zusammensetzung der Streuzentren zu machen. Im V3C-Modell gibt es ein ähnliches Werkzeug, die Abschätzung der mittleren chemischen Zusammensetzung  $\langle x_{Cu} \rangle$  der gebildeten Defektcluster mit Hilfe der akkumulierten Kupfer- und Leerstellenanteile  $L_{Cu}$  und  $L_v$  in den polyatomaren Clustern (Gl. 3.27).

Diese beiden Größen können direkt miteinander verglichen werden, wie dies in Bild 4.7 getan wurde [Birkenheuer 2010]. Die Abhängigkeit des Kupferanteils  $x_{Cu}$  in den Defekten, anfänglich ein recht hoher Anteil an Leerstellen, dann ein Maximum im Kupferanteil bei Fluenzen zwischen 25 und 50 mdpa gefolgt von einer allmählichen Zunahme des Leerstellenanteils mit fortschreitender Bestrahlung, wird durch die ratentheoretische Simulation qualitativ richtig wiedergegeben. Das Erreichen des maximalen Kupfergehalts fällt dabei mit dem Einsetzen der Ostwald-Reifung zusammen, dem Zeitpunkt also, bei dem alle in der Eisenmatrix im Überschuss vorhandenen Kupferatome verbraucht sind, während die Leerstellen durch die Bestrahlung fortlaufend nachproduziert werden.

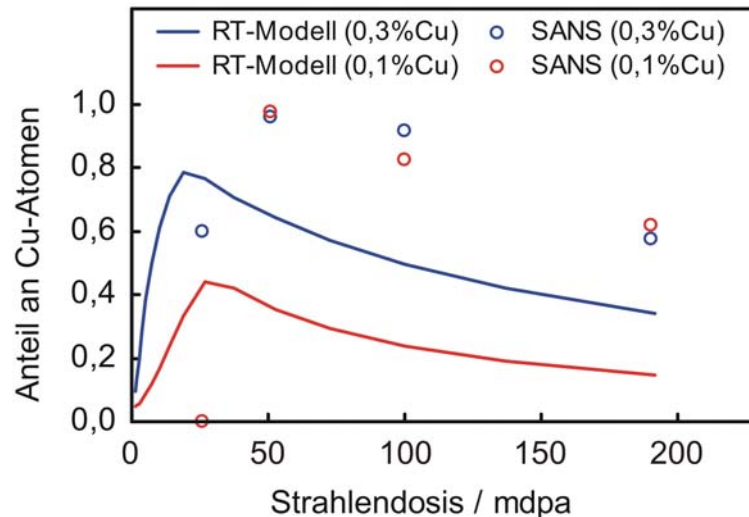


Bild 4.7 Mit dem ratentheoretischen V3C-Modell (RT) abgeschätzte Zusammensetzung der Ausscheidungscluster in den binären Fe-0,1%Cu- und Fe-0,3%Cu-Legierungen als Funktion der Neutronenfluenz im Vergleich zu den aus dem A-Verhältnis der gemessenen SANS-Spektren abgeleiteten Zusammensetzung der Streuzentren.

Es ist wichtig festzuhalten, dass die Informationen über die mittlere chemische Zusammensetzung der Defektcluster nicht in die Kalibrierung des V3C-Modells eingeflossen sind. In diesem Sinne ist die hier gefundene qualitative Übereinstimmung der Ergebnisse aus den Simulationsrechnungen mit den Messdaten eine erste positive Validierung unseres V3C-Modells.

#### B) Das Schweißgut P370 SG

Eines der Hauptanliegen des Vorhabens war es, Aussagen über das Verhalten des von AREVA zur Verfügung gestellten Schweißguts unter Neutronenbestrahlung zu machen. Deshalb wurde das an den Modelllegierungen kalibrierte V3C-Modell konkret auf das Schweißgut P370 SG angewandt. Die in Tab. 4.1 aufgelisteten Materialparameter der Kalibrierung werden dabei unverändert übernommen. Lediglich die empirischen Parameter  $z_i$ ,  $\eta$  und  $f_{x,cl}$  wurden aus Konsistenzgründen denjenigen in der Veröffentlichung [Bergner 2008a] zum Flusseffekt im Schweißgut P370 SG verwendeten angepasst. Da auch die Bestrahlungstemperatur beim Schweißgut mit 285°C (im Hochflussbereich) etwas niedriger ist als bei den zur Kalibrierung verwendeten binären Modelllegierungen, sollen die Materialparameter hier nochmals aufgelistet werden (siehe Tab. 4.5).

Die Probenparameter des Schweißguts P370 SG sind in Tab. 4.6 zusammengestellt, wobei hier für die Versetzungsdichte, zu denen uns kein experimenteller Wert vorlag, als typische Größenordnung ein Wert von  $10^{14} / m^2$  angenommen wurde.

Tabelle 4.5 Materialparameter für das V3C-Modell in Anwendung auf das bei 285°C bestrahlte Schweißgut P370 SG.  
( $T$ : Temperatur in K,  $k$ : Boltzmann-Konstante, ZGA: Zwischengitteratome, ELS: Eisenleerstellen, gCu gelöste Cu-Atome in der Fe-Matrix)

Parameter	Wert	Referenz
Gitterkonstante $a_{\text{Fe}}$ von bcc Eisen	2,8665 Å	[Ackland 1997]
Gitterkonstante $a_{\text{Cu}}$ von bcc Kupfer	2,9607 Å	[Ackland 1997]
Migrationsenergie $E_{\text{m,i}}$ der ZGA	0,4 eV	[Odette 1998b]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,i}$ für die ZGA	$0,05 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$	[Odette 1998b]
Diffusionskoeffizient $D_i$ der ZGA bei 285 °C	$1,22 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_i = D_{0,i} \exp(-E_{\text{m,i}}/kT)$
Migrationsenergie $E_{\text{m,v}}$ der ELS	1,3 eV	[Odette 1998b]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,v}$ für die ELS	$0,5 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$	[Odette 1998b]
Diffusionskoeffizient $D_v$ der ELS bei 285 °C	$0,91 \times 10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_v = D_{0,v} \exp(-E_{\text{m,v}}/kT)$
Migrationsenergie $E_{\text{m,Cu}}$ der gCu	2,29 eV	[Christien 2004]
Pre-exponentieller Faktor $D_{0,\text{Cu}}$ für die gCu	$7,2 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	siehe Tab. 4.2
Diffusionskoeffizient $D_{\text{Cu}}$ der gCu bei 285 °C	$1,51 \times 10^{-26} \text{ m}^2/\text{s}$	$D_{\text{Cu}} = D_{0,\text{Cu}} \exp(-E_{\text{m,Cu}}/kT)$
Bildungsenergie $E_{\text{f,v}}$ der ELS	1,64 eV	<sup>a</sup>
Nicht konfig. Bildungsentropie $\Delta S_v$ der ELS	3 $k$	<sup>a</sup>
Therm. ELS-Konzentration $C_v^{\text{eq}}$ bei 285 °C	$3,12 \times 10^{-14}$	$C_v^{\text{eq}} = \exp(\Delta S_v/k - E_{\text{f,v}}/kT)$
Entmischungstemperatur $\Omega$ der gCu	6255 K	[Christien 2004]
Nicht konfig. Bildungsentropie $\Delta S_{\text{Cu}}$ der gCu	0,866 $k$	[Christien 2004]
Löslichkeitsgr. $C_{\text{Cu}}^{\text{eq}}$ von Cu in Fe bei 285 °C	$3,23 \times 10^{-5}$	$C_{\text{Cu}}^{\text{eq}} = \exp(\Delta S_{\text{Cu}}/k - \Omega/T)$
Cahn-Hilliard Grenzfl.-Energie $\gamma_{\text{CH}}$ bei 285 °C	0,396 J/m <sup>2</sup>	Gl. 3.30
Rekombinationsradius $r_{\text{rec}}$ der ZGA und ELS	5,74 Å	[Odette 1998b]
Rekombinationskonstante $k_{\text{vi}}$ bei 285 °C	$7,49 \times 10^{11} / \text{s}$	$k_{\text{vi}} = 4\pi r_{\text{rec}}(D_v + D_i)/V_{\text{Fe}}$
Bias-Faktor $z_i$ für die ZGA-Senken	1,0	[Bergner 2008a]
Bias-Faktor $z_v$ für die ELS-Senken	1,0	[Bergner 2008a]
Effizientfaktor $\eta$ für die Punktdef.-Erzeugung	0,400	[Bergner 2008a]
Anteil $f_{\text{cl},x}$ der Punktdef. In Kaskadenclust.	0,0	[Bergner 2008a]

<sup>a</sup> Für Temperaturen im Bereich von 270-300°C sind die angegebenen Parameter im Wesentlichen gleichwertig mit dem Parameterpaar  $E_{\text{f,v}} = 1,6 \text{ eV}$  [Christien 2004] und  $\Delta S_v = 2,2 \text{ k}$  [Burton 1972].

Gemäß der Kalibrierungsvorschrift in Gl. 4.10 wird für das Schweißgut P370 SG, welches einen Masseanteil von 0,22% Cu aufweist, die Grenzflächenenergie zwischen den gemischten Kupfer-Leerstellen-Clustern und der Eisenmatrix auf 89,2% des Cahn-Hilliard-Wertes bei 285°C reduziert, was zu einer spezifischen Grenzflächenenergie von 0,353 J/m<sup>2</sup> führt.

Tabelle 4.6 Probenparameter für die ratentheoretischen Simulationsrechnungen an dem bestrahlten Schweißgut P370 SG. (Abkürzungen wie in Tab. 4.5)

Parameter	Wert	Referenz
Versetzungsdichte $\rho$	$10^{14} / \text{m}^2$	[Bergner 2008a]
Zerfallskonstante $k_i$ der ZGA bei 285°C	$1,22 \times 10^5 / \text{s}$	$k_i = z_i D_i \rho$
Zerfallskonstante $k_v$ der ELS bei 285 °C	$0,91 \times 10^{-2} / \text{s}$	$k_v = z_v D_v \rho$
Masseprozent $w$ an Kupfer	0,22%	Tab. 2.2
Atomanteil $C_{\text{Cu},0}$ an Cu in der Fe-Matrix	0,019340	$u_{\text{Fe}} = 55,847 \text{ g/mol}$ $u_{\text{Cu}} = 63,546 \text{ g/mol}$
Reduktionsfakt. $f^{w\%}$ der Grenzflächenenergie	0,892	Gl. 4.10
Grenzflächenenergie $\gamma^{w\%}$ bei 285°C	0,353 J/m <sup>2</sup>	$\gamma^{w\%}(T) = \gamma_{\text{CH}}(T) \cdot f^{w\%}$

Der NRT-Standard [Norgett 1975] gestattet die Umrechnung der Neutronenfluenz  $\Phi$  gemessen in  $\text{n/cm}^2$  in ein entsprechendes Schädigungsmaß  $\Phi_{\text{dpa}}$  gemessen in dpa (displacements per atom). Für die Angabe der Neutronenfluenz für Energien  $E_n > 1 \text{ MeV}$  beträgt der Umrechnungsfaktor ( $\text{n/cm}^2 \rightarrow \text{dpa}$ )  $1,45 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ . Dieselben Umrechnungsfaktoren gelten natürlich auch zwischen Neutronenflüssen  $\varphi$  und Bestrahlungsraten  $G_{\text{dpa}}$ .

Die sich aus den hier und in Tab. 4.5 aufgelisteten empirischen Faktoren ergebenden Bestrahlungsparameter für eine ratentheoretische Simulation der Clusterentwicklung sind in Tab. 4.7 zusammengestellt. Alles, was schlussendlich in die Simulation mit dem V3C-Modell eingeht, sind die Bestrahlungszeiten  $t_{\text{irr}}$  und Punktdefekt-erzeugungsraten  $G_x$ . Diese unterscheiden sich bei den beiden für das Schweißgut P370 SG vorliegenden Bestrahlungszuständen um den Faktor 35.

Die zeitliche Entwicklung der Größenverteilungskurven, die das V3C-Modell in der vorliegenden Kalibrierung für das das Schweißgut P370 SG liefert, ist denjenigen der binären Kalibrierungslegierungen recht ähnlich (Bild 4.3 und 4.4), weshalb hier exemplarisch nur der Verlauf der Clusterverteilung für den Niedrigflussfall (mit  $G_{\text{dpa}} = 0,087 \text{ ndpa/s}$ ) vorgestellt werden soll. In Bild 4.8 ist eine Serie von Größenverteilungsfunktionen bis hin zur endgültigen, experimentell vorliegenden Fluenz von 32 mdpa gezeigt.



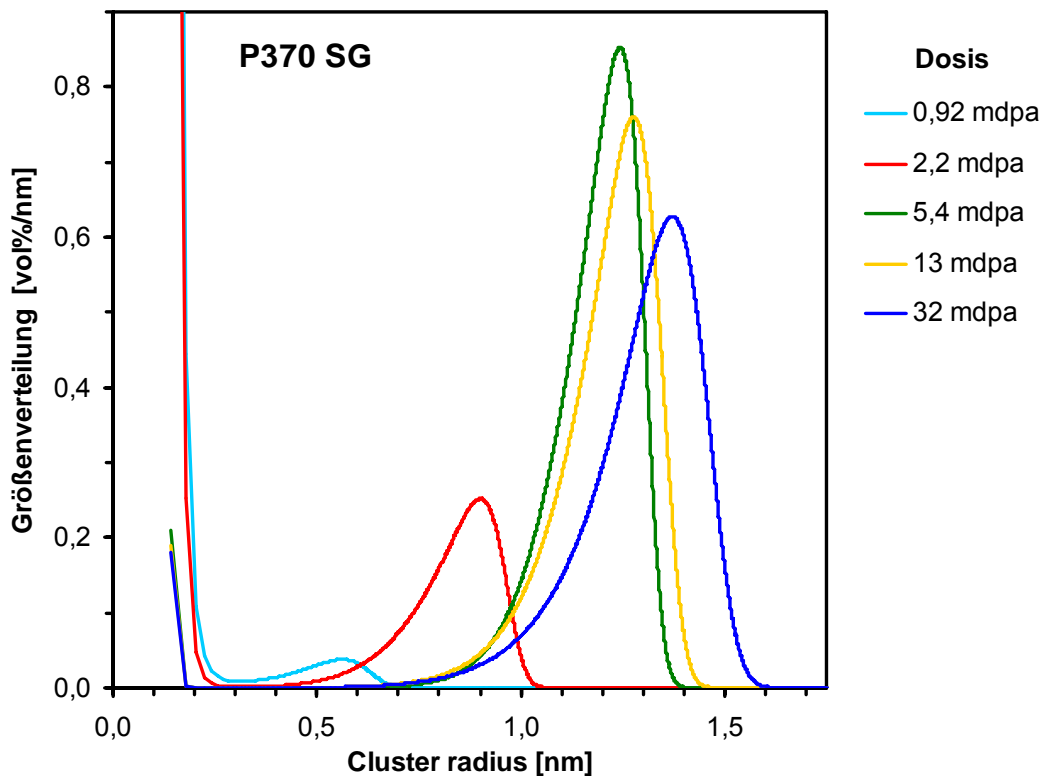


Bild 4.8 Die mit dem V3C-Modell ermittelte zeitliche Entwicklung der Defektclusterverteilung im Schweißgut P370 SG für den Fall niedrigen Neutronenflusses (0,087 ndpa/s). Die zuletzt erreichte Fluenz von 32 mdpa entspricht der experimentellen Bestrahlungsbedingung der Probe.

Bei einer Fluenz von ca. 5 mdpa erreicht das Schweißgut das Stadium der Ostwald-Reifung, bei der die Menge der von den Defektclustern aufgenommenen Kupferatome in die Sättigung kommt. Die entsprechende Abbildung ist bereits im Teilabschnitt 3.2.4 gezeigt und diskutiert worden (siehe Bild 3.5), wo es um die Anpassung eines analytischen Ausdrucks an die gefundene Abhängigkeit des Volumenanteils der Defektcluster von der Fluenz  $\Phi_{\text{dpa}}$  ging. Deshalb soll hier nur auf die zeitliche Entwicklung des Peakradius der Größenverteilungskurve eingegangen werden (Bild 4.9).

Nach einem raschen Anstieg des Peakradius bis zu einer Fluenz von ca. 2,5 mdpa flacht die Fluenzabhängigkeit des Peakradius rasch ab und geht ab etwa 5 mdpa in den für die Ostwald-Reifung typischen, langsam zunehmenden Verlauf über. Bei der endgültigen, experimentell vorliegenden Fluenz von 32 mdpa wird in der Simulation ein Peakradius von 1,37 nm erreicht. Dieser Wert ist etwas kleiner, als der im Experiment (für den Niedrigflussfall) beobachtete Wert von 1,6 nm.

Tabelle 4.7 Bestrahlungsparameter für die ratentheoretischen Simulationen an dem bestrahlten Schweißgut P370 SG.

Parameter	Wert	Referenz
Wirkungsquerschnitt $\sigma$ ( $E_n > 1$ MeV)	$1,45 \times 10^{21} \text{ cm}^2$	siehe Text
<b>Hochflussbedingungen</b>		
Temperatur $T$	285 °C	Tab. 2.4
Neutronenfluss $\varphi$ (für $E_n > 1$ MeV)	$2,10 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$	Tab. 2.4
Neutronenfluenz $\Phi$ (für $E_n > 1$ MeV)	$2,21 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$	Tab. 2.4
Bestrahlungszeit $t_{\text{irr}}$	122 Tage	$t_{\text{irr}} = \Phi_{>1\text{MeV}} / \varphi_{>1\text{MeV}}$
Bestrahlungsrate $G_{\text{dpa}}$	$3,05 \times 10^{-9} \text{ dpa / s}$	$G_{\text{dpa}} = \sigma_{>1\text{MeV}} \cdot \varphi_{>1\text{MeV}}$
Bestrahlungsfluenz $\Phi_{\text{dpa}}$	0,0320 dpa	$\Phi_{\text{dpa}} = G_{\text{dpa}} \cdot t_{\text{irr}}$
Punktdefekterzeugungsrate $G_x$	$1,22 \times 10^{-9} \text{ Def./Platz s}$	$G_x = \eta \cdot (1 - f_{x,\text{cl}}) \cdot G_{\text{dpa}}$
<b>Niedrigflussbedingungen</b>		
Temperatur $T$	288 °C	Tab. 2.4
Neutronenfluss $\varphi$ (für $E_n > 1$ MeV)	$5,99 \times 10^{10} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$	Tab. 2.4
Neutronenfluenz $\Phi$ (für $E_n > 1$ MeV)	$2,19 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$	Tab. 2.4
Bestrahlungszeit $t_{\text{irr}}$	11,6 Jahre	$t_{\text{irr}} = \Phi_{>1\text{MeV}} / \varphi_{>1\text{MeV}}$
Bestrahlungsrate $G_{\text{dpa}}$	$0,0869 \times 10^{-9} \text{ dpa / s}$	$G_{\text{dpa}} = \sigma_{>1\text{MeV}} \cdot \varphi_{>1\text{MeV}}$
Bestrahlungsfluenz $\Phi_{\text{dpa}}$	0,0318 dpa	$\Phi_{\text{dpa}} = G_{\text{dpa}} \cdot t_{\text{irr}}$
Punktdefekterzeugungsrate $G_x$	$3,47 \times 10^{-11} \text{ Def./Platz s}$	$G_x = \eta \cdot (1 - f_{x,\text{cl}}) \cdot G_{\text{dpa}}$

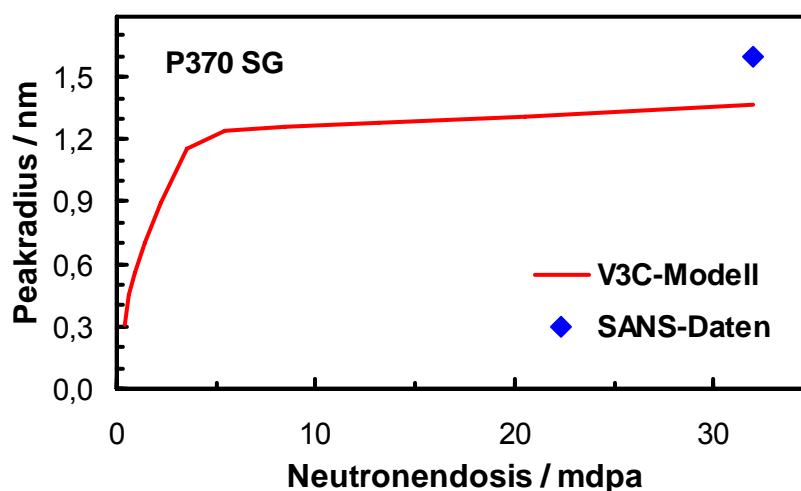


Bild 4.9 Die mit dem V3C-Modell berechnete Abhängigkeit des Peakradius der Defektclusterverteilung des Schweißguts P370 SG (siehe Bild 4.8) von der Fluenz für den Fall niedrigen Neutronenflusses (0,087 ndpa/s). Ebenfalls eingetragen ist der aus den SANS-Messungen für diesen Bestrahlungszustand gefundene Peakradius (siehe Tab. 2.7)

Auch im Fall des Schweißguts P370 SG kann die ratentheoretische Simulation mit dem V3C-Modell dazu verwendet werden, die mittlere Zusammensetzung der sich ausbildenden Kupfer-Leerstellen-Cluster abzuschätzen. Im Ergebnis findet man den in Bild 4.10 dargestellten Verlauf des Cu-Anteils in den Mischclustern. Wie bei den Kalibrierungsrechnungen findet man wieder anfänglich leerstellenreiche Mischcluster, anschließend ein Maximum im Cu-Anteil (hier bei ~5 mdpa), das in etwa mit dem Einsetzen der Ostwald-Reifung zusammenfällt, und danach eine allmähliche Zunahme des Leerstellenanteils aufgrund der durch die Bestrahlung ständig nachproduzierten Eisenleerstellen. Die aus dem gemessenen A-Verhältnis (Tab. 2.7) abgeleitete Zusammensetzung liegt mit 0,55-0,60 etwas höher, als vom V3C-Modell vorhergesagt, so wie das auch schon bei den zur Kalibrierung verwendeten Modelllegierungen beobachtet wurde (siehe Bild 4.7).

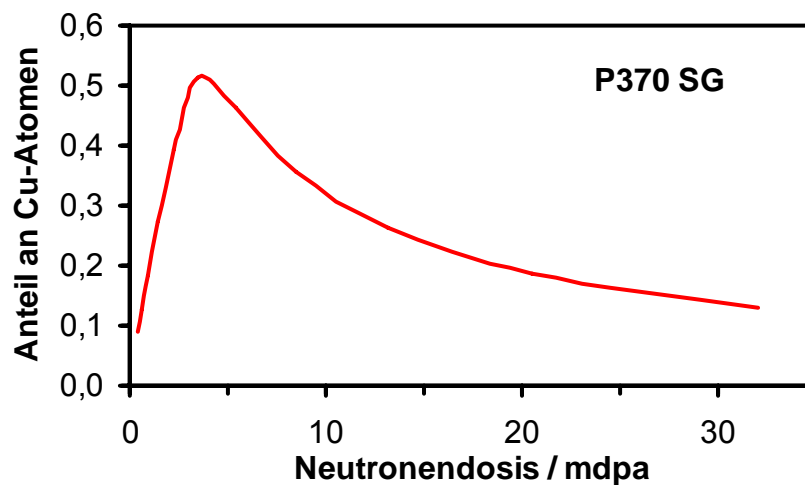


Bild 4.10 Mit dem ratentheoretischen V3C-Modell abgeschätzte mittlere Zusammensetzung der Cu-haltigen Ausscheidungen in Schweißgut P370 SG für den Fall niedrigen Neutronenflusses (0,087 ndpa/s).

#### 4.1.5 Der Einfluss von Nickel

Für den Einfluss des Nickels wurde ein eigenständiger ratentheoretischer Modul implementiert. Dieser setzt auf dem FORTRAN90-Programm für die ratentheoretische Simulation der Cu-Leerstellen-Cluster auf und besteht in einer Excel-Tabellenkalkulation zur anschließenden Behandlung des eigentlichen Ni-Effektes. Es wurde jedoch entschieden, den Ni-Modul im Rahmen des Vorhabens nicht als festen Modul in das Gesamtprogramm einzugliedern sondern als separaten Baustein zu betrachten.

Den Überlegungen in Teilabschnitt 3.2.4 folgend ist der Einfluss des Nickels auf den Volumenanteil der bestrahlungsinduzierten Defektcluster durch Anpassung der Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils und Übertragung des erhaltenen analytischen Ausdrucks auf die Ni-haltigen Ausscheidungen berücksichtigt worden.

$$c(\Phi) = c_{\text{Cu}}^{\text{sat}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Phi - \Phi_{\text{off}}}{\Phi_{0,\text{Cu}}}\right) \right] + c_{\text{Ni}}^{\text{sat}} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Phi - \Phi_{\text{off}}}{\Phi_{0,\text{Ni}}}\right) \right] \quad \text{für } \Phi \geq \Phi_{\text{off}} \quad (4.11)$$

Die durch Anpassung gewonnenen Parameter dieses Ausdrucks sind in Tab. 4.8 zusammengefasst (auf Fluenzen gemessen in dpa bezogen).

Tabelle 4.8 Parameter für das analytische Modell zur Beschreibung des Volumenanteils der bestrahlungsinduzierten Defektcluster im Schweißgut P370 SG unter Einbeziehung von Cu und Ni.

Parameter	Wert
Einstiegsfluenz $\Phi_{\text{off}}$ für das Einsetzen der Clusterbildung	1,9 mdpa
Sättigungswert $c_{\text{Cu}}^{\text{sat}}$ des Volumenanteils von Cu	0,185 %
Sättigungswert $c_{\text{Ni}}^{\text{sat}}$ des Volumenanteils von Ni	1 %
Zeitparameter $\Phi_{0,\text{Cu}}$ für die Bildung von Cu-haltigen Clustern	1 mdpa
Zeitparameter $\Phi_{0,\text{Ni}}$ für die Bildung von Ni-haltigen Clustern	70 mdpa

Wie zu erwarten, ist der Zeitparameter für die Bildung der Ni-haltigen Defektcluster wesentlich größer als der für die Cu-haltigen Cluster, was mit dem Konzept der sich auf einer deutlich längeren Zeitskala entwickelnden "Late Blooming"-Phasen in Ni (und Mn)-haltigen RDB-Stählen bei erhöhter Bestrahlungszeit in Einklang steht.

Die resultierende Abhängigkeit des Volumenanteils von der Fluenz ist in Bild 4.11 dargestellt.

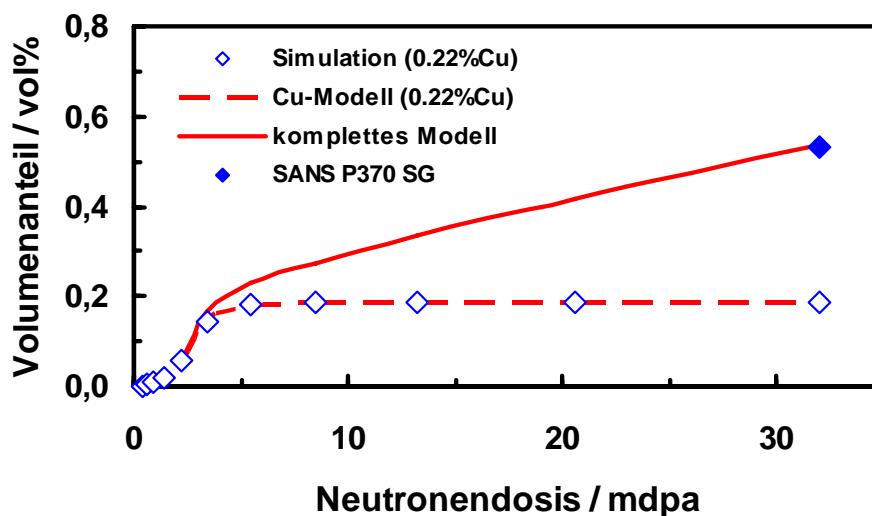


Bild 4.11 Volumenanteil der sich durch Neutronenbestrahlung ausbildenden Defektcluster, simuliert für Werkstoffe mit einem Cu-Masseanteil von 0,22% (Simulation) sowie nach den analytischen Modellen für 0,22% Cu (Cu-Modell) bzw. 0,22%Cu+1,1%Ni (komplettes Modell) im Vergleich zu dem mit SANS gemessenen Volumenanteil im Schweißgut P370 SG.

Nach Erreichen der Einstiegsfluenz wächst der Volumenanteil zunächst bis zu einer Fluenz von ca. 2,5 mdpa nahezu linear an, wobei in diesem Bereich der Zuwachs des Volumenanteils hauptsächlich durch die Cu-haltigen Defektcluster getragen wird. Danach setzt für die Cu-haltigen Ausscheidungen die Ostwald-Reifung ein, was zu einer raschen Sättigung des Volumenanteils der Cu-haltigen Defektcluster führt, während der nahezu lineare Anstieg des Volumenanteils der Ni-haltigen Cluster

weiter geht. Eine Sättigung würde hier erst bei deutlich höheren Neutronenfluenzen (und Volumenanteilen) einsetzen.

Obwohl im Rahmen des ratentheoretischen Modells formal die Bildung von Cu-reichen Clustern und die Bildung von Ni-reichen Clustern separat betrachtet werden, wird bei der Ergebnisinterpretation auch die Anlagerung von Ni-Atomen an bereits zuvor vorhandene Cu-Leerstellen-Cluster mit einbezogen. Dieser Prozess wird auch als heterogene Keimbildung bezeichnet.

## 4.2 Der versetzungstheoretische Modul

### 4.2.1 Auswahl des Modells

Die der Berechnung der bestrahlungsinduzierten Streckgrenzenerhöhung zugrunde liegenden Modelle wurden in den Gliederungspunkten 3.3.2 (Analytische Modelle), 3.3.3 (Versetzungssimulation) und 3.3.4 (Streckgrenzenerhöhung) diskutiert. Zur Umsetzung dieser Modelle wurden entsprechende Computercodes generiert und erprobt. Für die Realisierung des versetzungstheoretischen Moduls (VT-Modul) ist es erforderlich, eine aus der Sicht des Gesamtvorhabens geeignete Modellgruppe auszuwählen. Diese Auswahl beruht auf der Grundlage der folgenden Ergebnisse und Erkenntnisse:

- (1) Die Versetzungssimulationen für den Fall einer zufälligen Verteilung gleichartiger Hindernisse der Hindernisstärke  $\alpha$  zeigen unter den vorliegenden Annahmen, dass die resultierende Härtung bzw. Erhöhung der kritischen Schubspannung durch eine analytische Beziehung vom Typ der Orowan-Spannung mit einem modifizierten Vorfaktor beschrieben werden kann (Gl. 3.47). Dies gilt sowohl ohne als auch mit Berücksichtigung der Selbstwechselwirkung (Gl. 3.50).
- (2) Demzufolge besteht eine Veranlassung zum Einbau der Versetzungssimulationen in den VT-Modul erst, wenn mehrere Defektarten mit unterschiedlichen Hindernisstärken zu berücksichtigen sind. Die experimentellen Ergebnisse dieses Vorhabens zeigen jedoch, dass die abgeschätzten Hindernisstärken im Extremfall nur innerhalb eines Faktors von weniger als 2 variieren. Deshalb ist es von vornherein möglich, die Defektarten zu einer Gesamtheit mit einer mittleren Hindernisstärke zusammenzufassen und ebenfalls analytisch zu behandeln.

Folgerichtig wird der entwickelte und dokumentierte Code zur Durchführung von Versetzungssimulationen für eventuelle spätere Weiterentwicklungen bewahrt, aber nicht als fester Bestandteil in den VT-Modul integriert. Der VT-Modul umfasst analytische Modelle mit unterschiedlichen Optionen, insbesondere mit Auswahlmöglichkeiten zwischen einer oder zwei Hindernisarten mit linearer oder quadratischer Superposition sowie mit fester Vorgabe oder Anpassung der Hindernisstärke.

### 4.2.2 Implementierung

Der VT-Modul liegt einerseits als Stand-alone-Variante vor. Andererseits wurde er in den Gesamtcode (Fortran) integriert, wobei die Integration direkt in den Auswerteteil

des RT-Moduls vorgenommen wurde. Die Stand-alone-Variante eignet sich besonders für die separate Kalibrierung und Validierung des VT-Moduls, aber auch im Falle der Gewinnung der Eingabeparameter aus SANS-Experimenten ohne Rückgriff auf den RT-Modul. Sie wurde aus Gründen der Nachvollziehbarkeit der Rechnungen an anderen Institutionen als Excel-Tabellenkalkulation realisiert.

#### 4.2.3 Kalibrierung

Der gegenwärtige Kenntnisstand hinsichtlich der dominanten Mechanismen der bestrahlungsinduzierten Schädigung legt es nahe, für die Kalibrierung des VT-Moduls drei Materialgruppen zu unterscheiden:

- die Cu-haltigen RDB-Stähle, für die Cu-reiche Defekt-Fremdatom-Cluster die dominante härtesteigernde Schädigungsart sind;
- die Cu-armen RDB-Stähle, für die zumindest bei hohen Neutronenfluenzen Mn-Ni-reiche Cluster dominant zu sein scheinen;
- binäre Fe-Cu-Legierungen, die zwar keine Rolle als RDB-Material spielen, die aber als Zwischenschritt für die Weiterentwicklung gegenwärtiger Modellierungsansätze bedeutsam sind.

Der Kalibrierungsvorgang besteht aus zwei Schritten:

- A) Erster Schritt ist die Auswahl einer oder weniger Modellvarianten, wobei bereits eine Vorauswahl zugunsten analytischer Modelle vom Orowan-Typ getroffen wurde.
- B) Zweiter Schritt ist die empirische bzw. physikalisch begründete Bestimmung der für die dominante Defektart charakteristischen Hindernisstärke.

##### A) Auswahl der Modellvarianten

Ausgangspunkt sind Gl. 3.58-3.60 in Abschnitt 3.3.4 (Streckgrenzenerhöhung) sowie Bilder 2.15 und 2.16 im Abschnitt 2.4.6 (Gefüge-Eigenschafts-Beziehungen). In einer Excel-Tabellenkalkulation wurden die sich daraus ergebenden Modellvarianten durchgerechnet. Die entsprechenden Arbeitsblätter sind getrennt nach Cu-armen und Cu-haltigen RDB-Stählen in Anlage A2 zusammengestellt. Auf der Grundlage der Höhe des linearen Korrelationskoeffizienten und unter Einbeziehung von physikalischen Dimensionsargumenten wurden drei Berechnungsgleichungen ausgewählt:

$$\text{Option 1: } \Delta R_{p0.2} = 50 \text{ MPa} + \alpha_1 M G \frac{0,69b}{r} \sqrt{c} = 50 \text{ MPa} + \alpha_1 G \frac{4,14b}{d} \sqrt{c} \quad (4.12)$$

$$\text{Option 2: } \Delta R_{p0.2} = 50 \text{ MPa} + 0,171 \alpha_2 M G \sqrt{c} = 50 \text{ MPa} + \alpha_2 \frac{G}{1,95} \sqrt{c} \quad (4.13)$$

$$\text{Option 3: } \Delta R_{p0.2} = \alpha_3 \frac{G}{2,17} \sqrt[3]{c} \quad (4.14)$$

In Gl. 4.12-4.14 bezeichnen  $\alpha$ ,  $M$ ,  $G$  und  $b$  die Hindernisstärke der betrachteten Defektart, den Taylor-Faktor ( $M \approx 3,0$ ), den Schubmodul ( $G = 82 \text{ GPa}$ ) und den Burgers-Vektor ( $b = 0,248 \text{ nm}$ ).  $r$  und  $d$  bezeichnen den mittleren Radius bzw. mittleren Durchmesser der Hindernisse. Option 1 (Gl. 4.12) entspricht exakt der oben hergeleiteten Gl. 3.59b, berücksichtigt aber zusätzlich einen zweiten Härtungsmechanismus in linearer Superposition. Hierbei wurde der für Cu-haltige und Cu-arme RDB-Stähle übereinstimmende Offset von 50 MPa aus Bildern 2.15 und 2.16

zugrunde gelegt. Bei Option 2 (Gl. 4.13) wurde dem Befund Rechnung getragen, dass die Modelle mit festem Hindernisradius zu höheren Korrelationen führen als die Modelle mit variablen, gemessenen Radien (siehe Arbeitsblätter in Anlage A2). Die Hindernisradien wurden hier übereinstimmend mit den Mittelwerten aus einer Vielzahl von SANS-Experimenten gleich 1 nm gesetzt. Option 3 (Gl. 4.14) beruht auf der Tatsache, dass der Abstand zufällig verteilter Hindernisse im dreidimensionalen Raum wie  $1/N^{1/3}$  skaliert. Da aus SANS-Ergebnissen Volumenanteile  $c$  von Clustern wesentlich genauer abgeleitet werden können als Anzahldichten  $N$ , erfolgte eine Umrechnung von  $N$  auf  $c$  unter der Annahme kugelförmiger Cluster mit konstantem Radius von ebenfalls 1 nm. Der sich für Option 3 ergebende Offset weicht nicht signifikant von 0 ab (Anlage A2), so dass der Offset vernachlässigt werden kann.

In Gl. 4.12-4.14 werden die Unsicherheiten hinsichtlich der numerischen Vorfaktoren und der exakten Werte der eingehenden Konstanten in die Hindernisstärken  $\alpha$  verlagert. Dies ist möglich, da die Bestimmung der Hindernisstärken ohnehin auf empirischem Wege erfolgt.

### B) Abschätzung der Hindernisstärke

Jede der drei Optionen 1 bis 3 kann grundsätzlich auf jede der drei Materialgruppen angewendet werden. Zur Bestimmung der Hindernisstärken werden die Anstiege in Gl. 4.12 bis 4.14 den für die jeweilige Materialgruppe empirisch ermittelten Anstiegen in den Darstellungen  $\Delta R_{p0.2} = f(c^{1/2})$  bzw.  $f(c^{1/3})$  gleichgesetzt und die sich ergebenden Beziehungen nach der Hindernisstärke umgestellt. Die Ergebnisse sind in Tab. 4.9 bis 4.11 zusammengefasst. Für die binären Fe-Cu-Legierungen können einerseits die für Cu-haltige Stähle ermittelten mittleren Hindernisstärken übernommen werden. Andererseits ist ein verbesserter Ansatz auf der Grundlage der mittleren Zusammensetzung der gemischten Cu-Leerstellen-Cluster möglich. Dazu werden die Hindernisstärken für reine Leerstellencluster (aus verfügbaren Messungen an reinem Fe) und für nahezu reine Cu-Cluster (aus den Ergebnissen für Fe-0.1Cu/0,051 dpa gemäß Tab. 2.8) abgeschätzt und daraus die mittlere Hindernisstärke für gemischte Cluster durch lineare Interpolation gemäß der tatsächlichen Clusterzusammensetzung errechnet (Gl. 4.15). Grundsätzlich kann die Clusterzusammensetzung sowohl aus SANS-Experimenten als auch aus den entwickelten RT-Modellen abgeleitet werden.

$$\alpha = x_v \alpha_v + x_{Cu} \alpha_{Cu} \quad \text{mit} \quad x_v + x_{Cu} = 1 \quad (4.15)$$

Tabelle 4.9 Hindernisstärke unterschiedlicher Defektarten gemäß Option 1.

Material / Clustertyp	$\Delta R_{p0.2}$ (MPa)	$c$ (Vol.-%)	$\Delta R_{p0.2}/\sqrt{c}$ (MPa)	$d$ (nm)	$\alpha_1$
Fe / Leerstellencluster	127-50=77	0,014	6500	1,9	0,14
Fe-0.1Cu / Cu-Cluster	143-50=93	0,083	3200	2,8	0,10
Cu-reiche RDB-Stähle / Cu-Cluster	-	-	3740	2,8	0,12
Cu-arme RDB-Stähle / Mn-Ni-reiche Cluster	-	-	3600	2,0	0,084
Alle RDB-Stähle / Versetzungsringe	50	-	-	-	-

Tabelle 4.10 Hindernisstärke unterschiedlicher Defektarten mit  $d = 2$  nm gemäß Option 2.

Material / Clustertyp	$\Delta R_{p0.2}$ (MPa)	$c$ (Vol.-%)	$\Delta R_{p0.2}/\sqrt{c}$ (MPa)	$d$ (nm)	$\alpha_2$
Fe / Leerstellencluster	127-50=77	0,014	6500	2	0,154
Fe-0.1Cu / Cu-Cluster	143-50=93	0,083	3200	2	0,076
Cu-reiche RDB-Stähle / Cu-Cluster	-	-	3740	2	0,089
Cu-arme RDB-Stähle / Mn-Ni-reiche Cluster	-	-	3600	2	0,086
Alle RDB-Stähle / Versetzungsringe	50	-	-	-	-

Tabelle 4.11 Hindernisstärke unterschiedlicher Defektarten mit  $d = 2$  nm gemäß Option 3.

Material / Clustertyp	$\Delta R_{p0.2}$ (MPa)	$c$ (Vol.-%)	$\Delta R_{p0.2}/\sqrt[3]{c}$ (MPa)	$d$ (nm)	$\alpha_3$
Fe / Leerstellencluster	127	0,014	2450	2	0,065
Fe-0.1Cu / Cu-Cluster	143	0,083	1520	2	0,040
Cu-reiche RDB-Stähle / Cu-Cluster	-	-	1810	2	0,048
Cu-arme RDB-Stähle / Mn-Ni-reiche Cluster	-	-	1690	2	0,045
Alle RDB-Stähle / Versetzungsringe	0	-	-	-	-

Die abgeschätzten Hindernisstärken sind konsistent und bestätigen insbesondere, dass Leerstellencluster dem Versetzungsgleiten einen höheren Widerstand entgegensetzen als Cu-reiche [Osetsky 2003b] oder Mn-Ni-reiche Cluster. Die statistischen Analysen belegen, dass der Cluster-Volumenanteil der wesentliche Schädigungsparameter ist, während der Cluster-Radius unter den vorliegenden Bedingungen keine oder nur marginale Bedeutung hat. Der Offset gemäß Optionen 1 und 2 kann, wie bereits im experimentellen Teil erwähnt, als eine Folge von Versetzungsringen und/oder instabilen Objekten (UMD) interpretiert werden. Wegen der schweren Nachweisbarkeit dieser Defekte befindet sich die Forschung hier noch im Anfangsstadium.

#### 4.2.4 Validierung

Die Validierung des VT-Moduls beruht auf dem Vergleich von errechneten und gemessenen Streckgrenzenerhöhungen. Das entsprechende Arbeitsblatt und die Ergebnisdarstellungen sind in Anlage A2 dokumentiert. In den Diagrammen sind die RDB-Stähle dieses Vorhabens individuell herausgestellt. Die Identität von Rechnung und Messung wurde jeweils durch 45°-Geraden kenntlich gemacht. Beispielhaft ist in



Bild 4.12 das Validierungsergebnis gemäß Option 2 für alle in das Vorhaben einbezogenen Cu-haltigen und Cu-armen RDB-Stähle und Modelllegierungen dargestellt. Hierbei wurden die SANS-Ergebnisse als Eingabedaten des VT-Moduls verwendet.

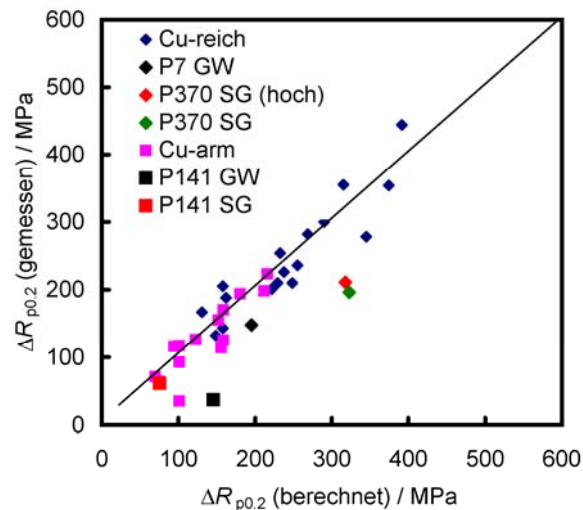


Bild 4.12 Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen.

Es wird insbesondere deutlich, dass die Anwendung der Option 1 trotz des durch die Clustergröße gegebenen zusätzlichen Eingabeparameters für alle Werkstoffgruppen die größten Streuungen nach sich zieht. Aus diesem Grunde wird Option 1 endgültig verworfen. Optionen 2 und 3 sind hinsichtlich der „Voraussage“-Genauigkeit der gemessenen Streckgrenzenerhöhungen und der Höhe der Korrelationskoeffizienten vergleichbar. Deshalb können keine Schlussfolgerungen über die Richtigkeit der den Modellen zugrunde liegenden Gesetzmäßigkeiten gezogen werden. Dennoch sprechen einige Argumente für Option 2. Es sind das:

- die leicht (wenn auch nicht signifikant) erhöhten Wert des Korrelationskoeffizienten (siehe Anlage A2),
- der Erfahrungsschatz zugunsten einer Proportionalität zu  $c^{1/2}$  anstatt  $c^{1/3}$ ,
- das für alle einbezogenen Modelllegierungen nachgewiesene Auftreten von Versetzungsringen [Hernandez-Mayoral 2010] und deren härtende Wirkung, die nur in Option 2 durch den Offset von 50 MPa berücksichtigt sind.

Ein wichtiges Validierungskriterium ist die „Voraussage“-Genauigkeit bzw. Konservativität der Berechnungsgleichungen für die im Vorhaben betrachteten RDB-Stähle aus deutscher Produktion. Es ist festzustellen, dass für jeden dieser RDB-Stähle hinsichtlich jeder der berücksichtigten Modell-Optionen ausnahmslos Konservativität besteht, d. h. die gemessene Streckgrenzenerhöhung ist stets kleiner als der entsprechende errechnete Wert. Im Falle des RDB-Stahles P141 GW ist das Ausmaß der Konservativität besonders groß, d. h. der errechnete Wert weicht vom gemessenen Wert besonders weit nach oben ab (siehe z. B. Bild 4.12).

Wie im zweiten Kapitel bereits festgestellt wurde, konnten die Ursachen hierfür nicht restlos aufgeklärt werden. Es ist jedoch in Betracht zu ziehen, dass die im SANS-Experiment untersuchten Proben aus den Hälften von Kerbschlagproben hergestellt wurden und jene auf Grund von unterschiedlichen Positionen im Bestrahlungs-

experiment auf eine etwas höhere Fluenz bestrahlt worden sind als die Zugproben (siehe Tab. 2.5). Die erhöhte Fluenz lässt einen erhöhten Volumenanteil  $c$  von bestrahlungsinduzierten Clustern und damit einen größeren berechneten Härtungseffekt erwarten. Falls es sich bei den bestrahlungsinduzierten Clustern um sogenannte Late-Blooming-Phasen handelt, kann die Fluenzabhängigkeit des Volumenanteils überproportional stark ausgeprägt sein, was die große Abweichung erklären würde. Zu diesem Sachverhalt sind über den Rahmen des Vorhabens hinausgehende Untersuchungen im Gange.

Die bisherigen Untersuchungen zur Modellvalidierung beruhten auf einheitlichen, im Zuge der Modellkalibrierung ermittelten Hindernisstärken einerseits für Cu-arme RDB-Stähle und Modelllegierungen und andererseits für Cu-haltige RDB-Stähle und Modelllegierungen. Für die binären Fe-Cu-Legierungen besteht aber die weiterführende Möglichkeit, die Hindernisstärken für jeden Bestrahlungszustand unter Verwendung von Gl. 4.15 individuell vorauszusagen. Die dazu erforderlichen Leerstellen- bzw. Cu-Anteile ( $x_V$  bzw.  $x_{Cu}$ ) der gemischten Cu-Leerstellen-Cluster können sowohl auf ratentheoretischem Wege gemäß Gl. 3.27 als auch aus den Ergebnissen von SANS-Experimenten gemäß Gl. 3.28 bestimmt werden. Die so errechneten individuellen Hindernisstärken sind in Tab. 4.12 zusammengestellt.

Tabelle 4.12 Hindernisstärken in Abhängigkeit von der Clusterzusammensetzung.

Material	Fluenz in dpa	$x_{Cu}$	Hindernisstärke $\alpha$		
			Option 1	Option 2	Option 3
Berechnet aus SANS-A-Verhältnis (Gl. 3.28 und 4.15)					
Fe-0,1Cu	0,026	0,00	0,140	0,154	0,065
	0,051	1,00	0,100	0,076	0,040
	0,10	0,82	0,107	0,090	0,045
	0,19	0,62	0,115	0,106	0,050
Fe-0,3Cu	0,026	0,60	0,116	0,107	0,050
	0,051	1,00	0,100	0,076	0,040
	0,10	0,92	0,103	0,082	0,042
	0,19	0,58	0,117	0,109	0,051
Berechnet aus RT-Modell (Gl. 3.27 und 4.15)					
Fe-0,1Cu	0,026	0,44	0,122	0,120	0,054
	0,051	0,35	0,126	0,126	0,056
	0,10	0,24	0,130	0,135	0,059
	0,19	0,15	0,134	0,142	0,061
Fe-0,3Cu	0,026	0,76	0,109	0,094	0,046
	0,051	0,64	0,114	0,104	0,049
	0,10	0,49	0,120	0,115	0,053
	0,19	0,34	0,126	0,127	0,056

Die Vergleiche errechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen der binären Fe-Cu-Legierungen sind in Anlage A2 für die Fälle einheitlicher und individueller Hindernisstärken dokumentiert. Folgende Schlussfolgerungen können abgeleitet werden:

- Die Berechnungen auf der Grundlage der SANS-Ergebnisse mit einheitlichen Hindernisstärken liefern ähnlich gute Treffgenauigkeiten wie die Berech-

nungen auf der Grundlage des RT-Modells. Dieser Sachverhalt ist nicht überraschend, da die SANS-Ergebnisse zur Kalibrierung des RT-Modells benutzt wurden. Die etwas größeren Streuungen im Falle von SANS sind auf Messunsicherheiten zurückzuführen, die im RT-Modell naturgemäß nicht auftreten.

- Im Falle der Berechnungen auf der Grundlage des RT-Modells führt die Verwendung individueller, aus dem RT-Modell extrahierter Hindernisstärken zu einer signifikanten Verbesserung der Korrelationen. Dies ist eine Folge des mit der Fluenz zunehmenden Leerstellenanteils der Cu-Leerstellen-Cluster und der daraus resultierenden Zunahme der Hindernisstärke bei konstantem Volumenanteil.
- Im Falle der Berechnungen auf der Grundlage der SANS-Ergebnisse führt die Verwendung individueller, aus dem A-Verhältnis extrahierter Hindernisstärken zu einer Abnahme des Korrelationskoeffizienten, was auf Messunsicherheiten des A-Verhältnisses und die daraus resultierenden Streuungen des Leerstellenanteils bzw. der Hindernisstärke zurückzuführen ist.

### 4.3 Gesamtvalidierung und Folgerungen

Das Gesamtschema, so wie es in Abschnitt 3.1 dargestellt wurde, hat zum Ziel, ausgehend von den Angaben über die Materialeigenschaften der zu untersuchenden Probe und die Bestrahlungsbedingungen Aussagen über die zu erwartenden Streckgrenzenerhöhungen zu machen.

Im Fall der Cu-reichen Defektcluster in RDB-Stählen sind dabei folgende Eingabewerte zu spezifizieren:

- a) der Masseanteil Kupfer im Werkstoff
- b) die Versetzungsdichte im Werkstoff
- c) die Temperatur der Probe während der Bestrahlung
- d) der Neutronenfluss in  $n/cm^2$  s oder in dpa/s
- e) die Bestrahlungszeiten oder die daraus resultierenden Fluenzen.

Alle weiteren Materialparameter und empirischen Faktoren können als fest angesehen werden. Zwei davon, die thermische Diffusionskonstante von gelöstem Kupfer in  $\alpha$ -Eisen,  $D_{Cu}$ , und die Abnahme der Grenzflächenenergie  $\gamma$  zwischen den Cu-haltigen Defektclustern und der Fe-Matrix pro Masseanteil  $w$  an Kupfer sind dabei an den vorliegenden Satz von SANS-Daten zu den beiden binären Modelllegierungen Fe-0,3%Cu und Fe-0,1%Cu angepasst worden (siehe Tab. 4.2 für die Diffusionskonstante und Gl. 4.10 für die Absenkung der Grenzflächenenergie). Die aus dieser Kalibrierung hervorgegangenen Werte der Parameter  $D_{Cu}$  und  $\gamma$  haben sich in Anwendung auf das Schweißgut P370 SG mit einem Cu-Gehalt von 0,22% bewährt.

Als Ausgabewerte erhält man aus dem RT-Modul neben den detaillierten Defektclusterverteilungen vor allem

- a) den Volumenanteil  $c$  der Defektcluster mit Radien oberhalb der Nachweisgrenze von SANS (ca. 0,5 nm),
- b) den Peakradius der Größenverteilungsfunktion als Maß für die mittlere Größe  $r = d/2$  der Defektcluster,
- c) die Anzahldichte  $N$  der Defektcluster mit Radien oberhalb 0.5 nm,

d) den mittleren Anteil  $x_{\text{Cu}}$  an Cu-Atomen in den Defektclustern.

Exemplarisch sind in Tab. 4.13 einige dieser Übergabesätze aufgelistet. Die vollständigen Datensätze können der Anlage A2 entnommen werden.

Tabelle 4.13 Übergabeparameter zwischen dem ratentheoretischen Modul und dem versetzungstheoretischen Modul für einige ausgewählte Werkstoffe und Bestrahlungsbedingungen.

Fluss [ndpa/s]	Fluenz [mdpa]	$r$ [nm]	$c$ [vol%]	$N$ [1/cm <sup>3</sup> ]	$x_{\text{Cu}}$ [1]
<b>Fe-0,3%Cu</b>					
140	7	1,23	0,024	$5,77 \times 10^{22}$	0,498
	14	1,78	0,108	$6,46 \times 10^{22}$	0,709
	26	2,27	0,255	$6,45 \times 10^{22}$	0,763
	51	2,28	0,256	$6,45 \times 10^{22}$	0,640
	100	2,31	0,256	$6,43 \times 10^{22}$	0,494
	190	2,36	0,256	$6,22 \times 10^{22}$	0,343
<b>Fe-0,1%Cu</b>					
140	14	0,92	0,0137	$7,27 \times 10^{22}$	0,237
	26	1,40	0,0654	$7,14 \times 10^{22}$	0,441
	51	1,52	0,0793	$7,01 \times 10^{22}$	0,355
	100	1,60	0,0795	$6,21 \times 10^{22}$	0,238
	190	1,77	0,0799	$4,67 \times 10^{22}$	0,148
<b>P370 SG</b>					
3	2,2	0,90	0,008	$2,83 \times 10^{23}$	0,393
	5,4	1,24	0,057	$2,82 \times 10^{23}$	0,465
	13	1,28	0,184	$2,73 \times 10^{23}$	0,266
	32	1,37	0,185	$2,28 \times 10^{23}$	0,131

Der sich anschließende VT-Modul nimmt diese Parameter auf und ermöglicht mit deren Hilfe die Berechnung der Streckgrenzenerhöhung in der vorliegenden Probe unter den gegebenen Bestrahlungsbedingungen. Als zusätzliche Eingabewerte sind dazu lediglich die Art des analytischen Modells zu spezifizieren, welches zu diesem Zweck verwendet werden soll, und die Materialgruppe, zu der die vorliegende Probe gehört: Cu-haltige RDB-Stähle, Cu-arme RDB-Stähle oder binäre Fe-Cu-Modelllegierungen. Durch diese Spezifizierung wird der zu verwendende Wert der Hindernisstärke festgelegt. Die im Vorhaben ermittelten Hindernisstärken  $\alpha$  sind das Ergebnis einer physikalisch begründeten Kalibrierungsprozedur (siehe Tab. 4.9 bis 4.11).

Zusammenfassend enthält der Berechnungsansatz für die bestrahlungsinduzierte Streckgrenzenerhöhung ohne besondere Berücksichtigung des Ni-Effekts neben der Spezifikation des Werkstoffs und der Bestrahlungsbedingungen und neben der Eingabe fester Materialparameter insgesamt nur drei Größen, die Ergebnis einer Kalibrierung sind:  $D_{Cu}$ ,  $\gamma$  und  $\alpha$ .

Die Ergebnisse der Berechnungen unter Verwendung des den RT-Modul und den VT-Modul (Option 2, festes  $\alpha = 0,089$ ) umfassenden Gesamtprogramms sind in Bild 4.13 dargestellt. Sowohl die absolute Größe als auch die werkstoffbedingten Unterschiede der Streckgrenzenerhöhung werden grundsätzlich korrekt wiedergegeben. Diese positive Validierungsaussage trifft insbesondere auch auf das untersuchte RDB-Schweißgut P370 SG zu, das an keiner Stelle Bestandteil der Kalibrierungsprozedur war.

Hinsichtlich des Einflusses der Bestrahlungsbedingungen können aus Bild 4.13 folgende Befunde abgelesen werden:

- Der nicht vorhandene Flusseffekt auf die bestrahlungsinduzierte Streckgrenzenerhöhung für das Schweißgut P370 SG wird bestätigt.
- Der beobachtete Einfluss der Fluenz auf die Streckgrenzenerhöhung in den binären Fe-Cu-Legierungen wird zunächst nicht richtig wiedergegeben. Da die gemessenen Clustervolumenanteile übereinstimmen, kann dies nur eine Folge unterschiedlicher Hindernisstärken sein.

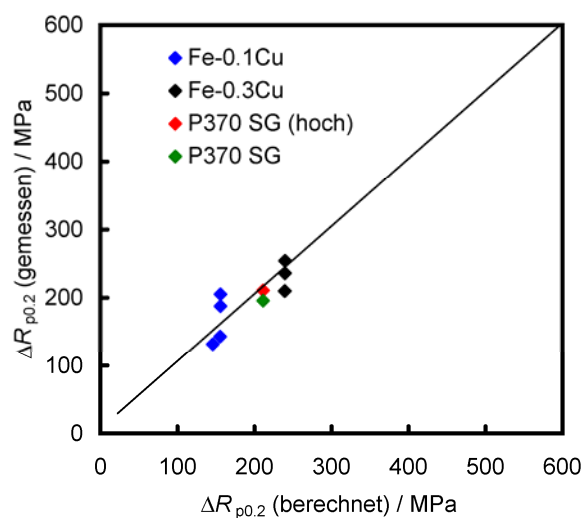


Bild 4.13 Gegenüberstellung gemessener und berechneter Streckgrenzenerhöhungen.

Der Vergleich gemessener und berechneter Streckgrenzenerhöhungen ist in Bild 4.14 für feste Hindernisstärke gemäß Option 2 in Tab. 4.10 und in Bild 4.15 für variable Hindernisstärke gemäß Option 2 in Tab. 4.12 nochmals dargestellt. Dieser Vergleich ist nur für binäre Fe-Cu-Legierungen durchführbar, da die Cluster in RDB-Stählen keine gemischten Cu-Leerstellen-Cluster sind. Es zeigt sich, dass der Fluenzeinfluss durch Berücksichtigung der variablen Hindernisstärken besser wiedergegeben wird, ausgedrückt durch den höheren Korrelationskoeffizienten.

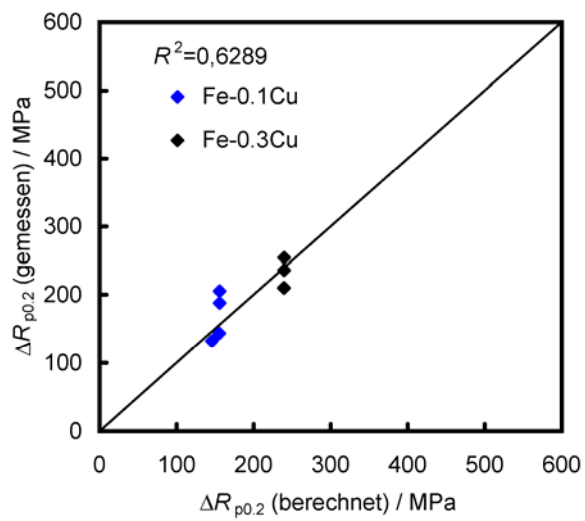


Bild 4.14 Berechnete Streckgrenzerhöhungen bei fester Hindernisstärke (siehe Text).

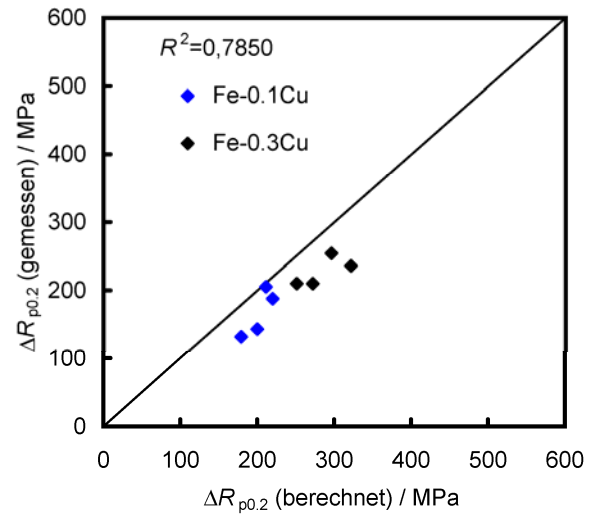


Bild 4.15 Berechnete Streckgrenzerhöhungen bei variabler Hindernisstärke (siehe Text).

## 5 Schlussfolgerungen

Die vorgestellten Untersuchungen dienten der Validierung von Software-Komponenten zur „Voraussage“ der strahleninduzierten Schädigung von RDB-Stahl. Dazu wurde ein numerisches Werkzeug geschaffen, mit dessen Hilfe die durch Neutronenbestrahlung verursachte Streckgrenzenerhöhung in RDB-Stählen abgeschätzt werden kann. Die Berechnungs-Software, die im Rahmen des Vorhabens wesentlich weiterentwickelt wurde, besteht aus zwei Hauptkomponenten: einem ratentheoretischen Modul und einem versetzungstheoretischen Modul. Zwei weitere Komponenten, ein Modul zur Durchführung von zweidimensionalen Versetzungssimulationen und ein „Nickel“-Modul, sind kein fester Bestandteil des Programmsystems. Die Validierung der Software-Komponenten erfolgte durch Gegenüberstellung der Berechnungsergebnisse mit experimentellen Daten. Diese Datenbasis beruht auf Resultaten von Neutronenkleinwinkelstreuungsmessungen und mechanisch-technologischen Tests, die im Rahmen des Vorhabens bzw. eines an AREVA NP GmbH erteilten Unterauftrags gewonnen worden sind. Ergebnisse an vorhabensfremden RDB-Stählen und Modelllegierungen wurden ebenfalls einbezogen.

Die Untersuchungen haben zu folgenden Ergebnissen und Erkenntnissen geführt.

- Das im Rahmen des Projekts entwickelte ratentheoretische V3C-Modell erlaubt erstmals die Behandlung gemischter Kupfer-Leerstellen-Cluster beliebiger Größe, und geht damit merklich über den derzeit erreichten Stand der Technik auf diesem Gebiet hinaus.
- Erstmals konnte die Änderung der Clusterzusammensetzung im Verlauf der Bestrahlung ratentheoretisch verfolgt werden. Hierbei wurde qualitative Übereinstimmung mit experimentellen Ergebnissen erzielt, ohne dass dies zuvor indirekt in die Modellkalibrierung eingeflossen wäre.
- Eine neuartige Kopplung von ratentheoretischer Beschreibung der Clusterentwicklung und Härtungsmodellierung konnte erreicht werden, indem neben dem mittleren Hindernisabstand auch die Hindernisstärke der Cluster aus dem RT-Modul bezogen wird.
- Der Einfluss von Nickel wurde sowohl ratentheoretisch als auch bei der Bestimmung der Hindernisstärken berücksichtigt. Interessanterweise weichen die empirisch ermittelten Hindernisstärken Ni-reicher Cluster nur unwesentlich von denen Cu-reicher Cluster ab.
- Der am Schweißmaterial P370 SG experimentell beobachtete Flusseffekt in den Peakradien der Clusterverteilung konnte mit klassischen RT-Modellen erklärt werden. In Anwendung des V3C-Modells erscheint dieser Effekt jedoch deutlich abgeschwächt. Die experimentell beobachtete Flussunabhängigkeit des Volumenanteils der Defektcluster und der Streckgrenzenerhöhung wird allerdings richtig vorhergesagt.
- Insgesamt führt die Anwendung des Programmsystems zu einer zutreffenden oder konservativen Voraussage der Streckgrenzenerhöhung aller im Vorhaben untersuchten RDB-Stähle. Wegen der Korrelation von Streckgrenzenerhöhung und Übergangstemperaturverschiebung sollte diese Aussage auch für die strahleninduzierte Versprödung gelten.

Eine Nachnutzung der entwickelten Software, etwa im Rahmen von Fallstudien, Empfindlichkeitsanalysen oder für Schulungszwecke, ist für fachkundige Wissenschaftler möglich. Das Programmsystem baut auf Standardsoftware (FORTRAN90/Excel) auf und ist grundsätzlich portabel. Eine ausführliche Dokumentation liegt vor

(siehe Anlage A1). Durch die Umsetzung der Fokker-Planck-Technologie konnte die Rechenzeit auf dem Rechner-Cluster des FZD auf Sekunden bzw. Minuten reduziert werden.

Die Entwicklung und Anwendung des beschriebenen Programmsystems hat deutlich zum Verständnis der für die Versprödung von RDB-Stählen maßgeblich verantwortlichen mikroskopischen Schädigungsprozesse beigetragen. Unter dem Aspekt der zunehmenden Alterung der RDB-Stähle in Betrieb befindlicher Kernkraftwerke wird grundsätzlich empfohlen, diesen Ansatz langfristig weiterzuverfolgen. Die Einbeziehung der Voraussagewerkzeuge in die Prozedur des Sicherheitsnachweises vor Ort ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt jedoch noch nicht sinnvoll. Hierzu sind aus Sicht des abgeschlossenen Vorhabens folgende Voraussetzungen zu schaffen:

- Erweiterung der experimentellen Basis unter Einbeziehung höherer Fluenzen,
- realistischere Abbildung der Effekte der Elemente Ni, Mn und Si im Rahmen der Rattentheorie und der atomistischen Modellierung,
- Ergänzung des Programmsystems durch Komponenten von der  $\mu\text{m}$ -Skala (Vielkristallplastizität) bis zur mm-Skala (Bruchmechanik, FEM).

Entsprechende Arbeiten wurden inzwischen im Rahmen nationaler und internationaler Vorhaben in Angriff genommen (EU-FP7-Projekte PERFORM-60 und LONGLIFE), beantragt (BMW-Vorhaben „Langzeitspezifische Alterungseffekte in RDB-Stahl“) oder befinden sich in Vorbereitung.



## 6 Literatur

### 6.1 Referenzen

- [Ackland 1997] G. J. Ackland, D. J. Bacon, A. F. Calder, T. Harry, Computer simulation of point defect properties in dilute Fe-Cu alloy using a many-body interatomic potential, *Philos. Mag. A* **75** (1997) 713-732.
- [Adjanor 2010] G. Adjanor, S. Bugat, C. Domain, A. Barbu, Overview of the RPV-2 and INTERN-1 packages: From primary damage to microplasticity, *J. Nucl. Mater.* (2010) im Druck.
- [Anand 1966] M. S. Anand, R. P. Agarwala, Diffusion of copper in iron, *J. Appl. Phys.* **37** (1966) 4248-4251.
- [ASTM 1994] ASTM Standard E693-94, Standard practice for characterising neutron exposure in iron and low alloy steels in terms of displacements per atom (dpa), 1994.
- [Bacon 1973] D.J. Bacon, U.F. Kocks, R.O. Scattergood, The effect of dislocation self-interaction on the Orowan stress, *Phil. Mag.* **28** (1973) 1241-1263.
- [Bacon 2003] D. J. Bacon, Yu. N. Osetsky, R. Stoller, R. E. Voskoboinikov, MD description of damage production in displacement cascades in copper and a-iron, *J. Nucl. Mat.* **323** (2003) 152-162.
- [Bacon 2004] D. J. Bacon, Yu. N. Osetsky, Modelling of dislocation-obstacle interactions in metals exposed to an irradiation environment, *Mater. Sci. Engng. A* **400-401** (2004) 353-361.
- [Beaven 1986] P.A. Beaven, F. Frisius, R. Kampmann and R. Wagner, Analysis of defect microstructures in irradiated ferritic alloys, in *Atomic Transport and Defects in Metals by Neutron Scattering*, C. Janot, W. Petry, D. Richter, T. Springer, eds., Springer Proceedings in Physics, Vol. 10, Springer-Verlag, Berlin, 1986, S. 228.
- [Binkele 2003] P. Binkele, S. Schmauder, An atomistic Monte Carlo simulation of precipitation in a binary system, *Z. Metallkd.* **94** (2003) 858-863.
- [Brailsford 1981] A. D. Brailsford, R. Bullough, The theory of sink strengths, *Phil. Transact. Roy. Soc. London, Ser. A*, **302** (1981) 87-137.
- [Broeders 2004] C. H. M. Broeders, A. Yu. Konobeyev, Defect production efficiency in metals under neutron irradiation, *J. Nucl. Mater.* **328** (2004) 197-214.
- [Burton 1972] J. J. Burton, Vacancy-formation entropy in cubic metals, *Phys. Rev. B* **5** (1972) 2948-2957.
- [Cahn 1958] J. W. Cahn, J. E. Hilliard, Free energy of a nonuniform system. I. Interfacial free energy, *J. Chem. Phys.* **28** (1958) 258-267.
- [Calder 1993] A. F. Calder, D. J. Bacon, A molecular-dynamics study of displacement cascades in alpha-iron, *J. Nucl. Mater.* **207** (1993) 25-45.
- [Christien 2004] F. Christien, A. Barbu, Modelling of copper precipitation during thermal aging and irradiation, *J. Nucl. Mat.* **324** (2004) 90-96.
- [Cumblidge 2003] S. E. Cumblidge, A. T. Motta, G. L. Catchen, G. Brauer, J. Böhmert, Evidence for neutron irradiation-induced metallic precipitates in model alloys and pressure-vessel weld steel, *J. Nucl. Mat.* **320** (2003) 245-257.
- [Diard 2005] O. Diard, A multi-scale approach for prediction of irradiation effect on RPV steel toughness, *Proceedings of 2005 ASME Pressure Vessels and Piping conference*, Denver, Colorado, USA, July 17-21, 2005, paper 71710, pp. 1-6.
- [Domain 2004] C. Domain, C. S. Becquart, L. Malerba, Simulation of radiation damage in Fe alloys: an object kinetic Monte Carlo approach, *J. Nucl. Mat.* **335** (2004) 121-145.

- [Duparc 2002] A. Hardouin Duparc, C. Moingeon, N. Smetniansky-de-Grande, A. Barbu, Microstructure modelling of ferritic alloys under high flux 1 MeV electron irradiations, *J. Nucl. Mater.* **302** (2002) 143-55.
- [Foreman 1966] A.J.E. Foreman, M.J. Makin, Dislocation movement through random arrays of obstacles, *Phil. Mag.* **14** (1966) 911-924.
- [Friedel 1964] J. Friedel, *Dislocations*, Oxford: Pergamon, 1964.
- [Ghoniem 1980] N. M. Ghoniem, S. Sharafat, A numerical solution to the Fokker-Planck equation describing the evolution of interstitial loop microstructure during irradiation, *J. Nucl. Mater.* **92** (1980) 121-135.
- [Ghoniem 2002] N. M. Ghoniem, S. H. Tong, J. Huang, B. N. Singh, M. Wen, Mechanisms of dislocation-defect interactions in irradiated metals investigated by computer simulation, *J. Nucl. Mat.* **307-311** (2002) 843-851.
- [Glatter 1980] 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) 7-11.
- [Gokhman 2003] A. Gokhman, J. Boehmert, A. Ulbricht, Kinetic study of copper precipitates under VVER-type reactor conditions, *Radiat. Eff. Def. Solids* **158** (2003) 783-792.
- [Golubov 2000] S. I. Golubov, A. Serra, Yu. N. Osetsky, A. V. Barashev, On the validity of the cluster model to describe the evolution of Cu precipitates in Fe-Cu alloys, *J. Nucl. Mater.* **277** (2000) 113-115.
- [Hein 2006] H. Hein, T. Seibert, H. Schnabel, Arbeitsbericht NTM-G/2006/de/0242, AREVA NP GmbH, Erlangen 2006.
- [Hernandez-Mayoral 2010] M. Hernández-Mayoral, D. Gómez-Briceño, Transmission electron microscopy study on neutron irradiated pure iron and RPV model alloys, *J. Nucl. Mater.* **399** (2010) 146-153.
- [Hindmarsh 1983] A. C. Hindmarsh, "ODEPACK, A Systematized Collection of ODE Solvers," in *Scientific Computing*, R. S. Stepleman et al. (eds.), North-Holland, Amsterdam, 1983 (vol. 1 of IMACS Transactions on Scientific Computation), pp. 55-64.
- [Hindmarsh 2010] Alan C. Hindmarsh, *Serial Fortran Solvers for ODE Initial Value Problems*, Center for Applied Scientific Computing, Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA 94551, U.S.A,  
URL: [http://computation.llnl.gov/casc/odepack/odepack\\_home.html](http://computation.llnl.gov/casc/odepack/odepack_home.html)
- [Hiranuma 2004] N. Hiranuma, N. Soneda, K. Dohi, S. Ishino, N. Dohi, H. Ohata, Mechanistic Modelling of transition temperature shift of Japanese RPV materials, *Proceedings of the 30th MPA-Seminar in conjunction with 9th German-Japanese Seminar 'Safety and Reliability in Energy Technology'*, MPA Stuttgart, 2004, Vol. 1, S. 3.1-3.20.
- [Hiratani 2004] M. Hiratani, V. V. Bulatov, Solid-solution hardening by point-like obstacles of different kinds, *Phil. Mag. Letters* **84** (2004) 461-470.
- [Hull 2001] D. Hull and D. J. Bacon, *Introduction to Dislocations*, 4<sup>th</sup> Ed., Butterworth-Heinemann, Oxford, 2001.
- [Jumel 2002] S. Jumel et al., Simulation of irradiation effects in reactor pressure vessel steels: the reactor for virtual experiments (REVE) project, *J. Test. Eval.* **30** (2002) 37-46.
- [Jumel 2005] S. Jumel, J.C. Van Duysen, RPV-1: A Virtual Test Reactor to simulate irradiation effects in light water reactor pressure vessel steels, *J. Nucl. Mater.* **340** (2005) 125-148.

- [Jumel 2007] S. Jumel, J.-C. Van Duysen, Simulation of irradiation effects in light water reactor vessel steels – experimental validation of RPV-1, *J. Nucl. Mater.* **366** (2007) 256–265.
- [Keiderling 1995] U. Keiderling, A. Wiedenmann, New SANS Instrument at the BER II Reactor in Berlin, Germany *Physica B* **213&214** (1995) 895-897.
- [Keiderling 2002] U. Keiderling, The new 'BerSANS-PC' software for reduction and treatment of small angle neutron scattering data, *Appl. Phys. A* **74** (2002) S1455-S1457.
- [KTA 2001] Sicherheitstechnische Regel des KTA, Überwachung der Strahlungsverstrahlung von Werkstoffen des Reaktordruckbehälters von Leichtwasserreaktoren, KTA 3203, Fassung 06/01.
- [Kulikov 2006] D. Kulikov, L. Malerba, M. Hou, On the binding energies and configurations of vacancy and copper–vacancy clusters in bcc Fe–Cu: a computational study, *Philos. Mag.* **86** (2006) 141-172.
- [Lambrecht 2008] M. Lambrecht, L. Malerba, A. Almazouzi, Influence of different chemical elements on irradiation-induced hardening embrittlement of RPV steels, *J. Nucl. Mater.* **378** (2008) 282-290.
- [Lambrecht 2009] M. Lambrecht, A. Almazouzi, Positron annihilation study of neutron irradiated model alloys and of a reactor pressure vessel steel, *J. Nucl. Mater.* **385** (2009) 334-338.
- [Lambrecht 2010] M. Lambrecht, E. Meslin, L. Malerba, M. Hernández-Mayoral, F. Bergner, A. P. Pareige, B. Radiguet, A. Almazouzi, On the correlation between irradiation-induced microstructural features and the hardening of reactor pressure vessel steels, *J. Nucl. Mater.* (2010) in press.
- [Lazarev 1970] V. A. Lazarev, V. M. Golikov, Diffusion of copper in iron and its alloys, *Physics of Metals and Metallography-USSR* **29** (1970) 154.
- [Marian 2004] J. Marian, B. D. Wirth, G. R. Odette, J. M. Perlado, Cu diffusion in alpha-Fe: determination of solute diffusivities using atomic-scale simulations, *Comput. Mater. Sci.* **31** (2004) 347-367.
- [Mathon 1997] M.H. Mathon, A. Barbu, F. Dunstetter, 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) 224-237.
- [Meslin 2010a] E. Meslin, B. Radiguet, P. Pareige, A. Barbu, Kinetic of solute clustering in neutron irradiated ferritic model alloys and a French pressure vessel steel investigated by atom probe tomography, *J. Nucl. Mater.* **399** (2010) 137-145.
- [Meslin 2010b] E. Meslin, M. Hernández-Mayoral, F. Bergner, M. Lambrecht, A. Almazouzi, P. Pareige, B. Radiguet, A. Barbu, D. Gómez-Briceño, A. Ulbricht, Characterization of neutron-irradiated ferritic model alloys and a RPV steel from combined APT, SANS, TEM and PAS analyses, *J. Nucl. Mater.* (2010) in press.
- [Morley 2009] A. Morley, G. Sha, S. Hirose, A. Cerezo, G. D. W. Smith, Determining the composition of small features in atom probe: bcc Cu-rich precipitates in an Fe-rich matrix, *Ultramicroscopy* **109** (2009) 535-540.
- [Nedelcu 1999] S. Nedelcu, P. Kizler, S. Schmauder, Modellierung der Versetzungsbewegung im  $\alpha$ -Fe-Cu System auf atomarer Längenskala, Technischer Fachbericht, MPA Universität Stuttgart, 1999.
- [Norgett 1975] M. J. Norgett, M. T. Robinson, and I. M. Torrens, A proposed method of calculating displacement dose rates, *Nucl. Engr. and Design* **33** (1975) 50-54.
- [Odette 1998a] G. R. Odette, G. E. Lucas, Recent progress in understanding reactor pressure vessel steel embrittlement, *Radiation Defects & Effects in Solids* **144** (1998) 189-231.

- [Odette 1998b] G. R. Odette, Modeling irradiation embrittlement in reactor pressure vessel steels Neutron Irradiation Effect in Reactor Pressure Vessel Steels and Weldments ed Davies M (International Atomic Energy Agency, Vienna, 1998) IAEA IWG-LMNPP-98/3, p 438.
- [Odette 2001] G. R. Odette et al., Multiscale-multiphysics modeling of radiation-damaged materials: embrittlement of pressure vessel steels, MRS Bulletin, March 2001.
- [Odette 2005] G. R. Odette, T. Yamamoto, D. Klingensmith, On the effect of dose rate on irradiation hardening in RPV steels, Phil. Mag. **85** (2005) 779-797.
- [Osetsky 2003a] Yu. N. Osetsky, D. J. Bacon, Void and precipitate strengthening in  $\alpha$ -iron: what can we learn from atomic-level modelling? J. Nucl. Mat. **323** (2003) 268-280.
- [Orowan 1948] E. Orowan, Proceedings of Symposium on Internal Stresses in Metals and Alloys, London: The Institute of Metals, 1948, p. 451.
- [Osetsky 2003b] Yu. N. Osetsky, D. J. Bacon, V. Mohles, Atomic modelling of strengthening mechanisms due to voids and copper precipitates in  $\alpha$ -iron, Phil. Mag. **83** (2003) 3623-3641.
- [Pareige 1997] P. Pareige, R. E. Stoller, K. F. Russell and M. K. Miller, Atom probe characterization of the microstructure of nuclear pressure vessel surveillance materials after neutron irradiation and after annealing treatment, J. Nucl. Mater. **249** (1997) 165-174.
- [Pareige 2005] P. Pareige, B. Radiguet, R. Krummeich-Brangier, A Barbu, O. Zabusov, M. Kozodaev, Atomic level observation with three-dimensional atom probe of the solute behaviour in neutron-, ion- or electron-irradiated ferritic alloys, Phil. Mag. **85** (2005) 429-441.
- [Porod 1951] G. Porod, Die Röntgenkleinwinkelstreuung von dichtgepackten kolloiden Systemen I. Teil, Kolloidzeitschrift und Zeitschrift für Polymere **124** (1951) 83-114.
- [Porod 1952] G. Porod, Die Röntgenkleinwinkelstreuung von dichtgepackten kolloiden Systemen II. Teil, Kolloidzeitschrift und Zeitschrift für Polymere **125** (1952) 108-122.
- [Raabe 1998] D. Raabe, Computational Materials Science, Wiley-VCH, Weinheim, 1998.
- [Radiguet 2007] B. Radiguet, A. Barbu, P. Pareige, Understanding of copper precipitation under electron or ion irradiations in FeCu0.1 wt% ferritic alloy by combination of experiments and modelling, J. Nucl. Mater. **360** (2007) 104-117.
- [Radiguet 2009] B. Radiguet, P. Pareige, A. Barbu, Irradiation induced clustering in low copper or copper free ferritic model alloys, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B **267** (2009) 1496-1499.
- [Rothman 1968] S. J. Rothman, N. L. Peterson, C. M. Walter, L. J. Nowicki, Diffusion of copper in iron, J. Appl. Phys. **39** (1968) 5041-5044.
- [Russell 1972] K. C. Russell, L. M. Brown, A dispersion strengthening model based on differing elastic moduli applied to the iron-copper system, Acta. Met. **20** (1972) 969-974.
- [Salje 1977] G. Salje. M. Feller-Kniepmeier, Diffusion and solubility of copper in iron, J. Appl. Phys. **48** (1977) 1833-1839.
- [Schmauder 2002] S. Schmauder, P. Kizler, D. Uhlmann, G. Zies, M. Ludwig, Entwicklung von Softwarebausteinen zur Modellierung von Schädigungsvorgängen mit besonderer Berücksichtigung der Nanosimulation, BMWA-Vorhaben 1501029, Abschlussbericht und Fachberichte, MPA Universität Stuttgart, 2002.

- [Schmauder 2004] S. Schmauder, P. Kizler, P. Binkele, C. Kohler, Anwendungsorientierte Entwicklung der nanomechanisch basierten Simulation von Änderungen des Werkstoffverhaltens von Stählen aufgrund von Ausscheidungen, BMWA-Vorhaben 1501228, Abschlussbericht, MPA Universität Stuttgart, 2004.
- [Schmelzer 1999] J. Schmelzer, G. Röpke, R. Mahnke, Aggregation Phenomena in Complex Systems. Wiley-VCH, Weinheim, 1999.
- [Server 2001] W. Server, C. English, D. Naiman, S. Rosinski, Charpy embrittlement correlations – status of combined mechanistic and statistic bases for U. S. RPV steels (MRP-45), PWR Materials Reliability Program, Final Report, Palo Alto, CA, 2001.
- [Stoller 2000] R. E. Stoller, The role of cascade energy and temperature in primary defect formation in iron, *J. Nucl. Mater.* **276** (2000) 22-32.
- [Strunz 2000] P. Strunz, J. Saroun, U. Keiderling, A. Wiedenmann, R. Przenioslo, General formula for determination of cross-section from measured SANS intensities, *J. Appl. Cryst.* **33** (2000) 829-833.
- [Takahashi 2003] A. Takahashi, N. Soneda, S. Ishino, G. Yagawa, Structures and energies of vacancy-Cu clusters in  $\alpha$ -Fe, *Phys. Rev. B* **67** (2003) #024104.

## 6.2 Relevante Arbeiten mit eigener Beteiligung

- [Alasqalani 2010] A. T. Al-Asqalani, M. Posselt, F. Bergner, U. Birkenheuer, Atomic-level computer simulations of copper-vacancy clusters in alpha-Fe, in Vorbereitung.
- [Bergner 2008a] F. Bergner, A. Ulbricht, H. Hein, M. Kammel, Flux dependence of cluster formation in neutron-irradiated weld material, *J. Phys. Condens. Matter* **20** (2008) 104262.
- [Bergner 2008b] F. Bergner, A. Ulbricht, M. Hernandez-Mayoral, P.K. Pranzas, Small-angle neutron scattering study of neutron-irradiated iron and an iron–nickel alloy, *J. Nucl. Mater.* **374** (2008) 334-337.
- [Bergner 2008c] F. Bergner, A. Ulbricht, A. Gokhman, D. Erak, Nature of defect clusters in neutron-irradiated iron-based alloys deduced from small-angle neutron scattering, *J. Nucl. Mater.* **373** (2008) 199-205.
- [Bergner 2010] F. Bergner, M. Lambrecht, A. Ulbricht, A. Almazouzi, Comparative small-angle neutron scattering study of neutron-irradiated Fe, Fe-based alloys and a pressure vessel steel, *J. Nucl. Mater.* **399** (2010) 129-136.
- [Birkenheuer 2010] U. Birkenheuer, A. Ulbricht, F. Bergner, A. Gokhman, On the formation of mixed vacancy-copper clusters in neutron-irradiated Fe-Cu alloys, *J. Phys. Conf. Ser.*, eingereicht.
- [Gokhman 2008] A. Gokhman, F. Bergner, A. Ulbricht, U. Birkenheuer, Cluster dynamics simulation of reactor pressure vessel steels under irradiation *Def. and Diff. Forum* **277** (2008) 75-80.
- [Ulbricht 2006] A. Ulbricht, Untersuchungen an neutronenbestrahlten Reaktordruckbehälterstählen mit Neutronen-Kleinwinkelstreuung, Dissertation, TU Bergakademie Freiberg, 2006.

## **Anlage A1**

### **Programmdokumentation von CD-trans (englisch)**

## CD-trans (Version 3.2)

Program package for Cluster-Dynamics  
based on transformed Fokker-Planck equations

(by Dr. Uwe Birkenheuer, Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, 2010)

### Program Documentation

#### 1. Installation Instructions

The CD-trans 3.2 program is written in FORTRAN90 and is delivered as a set of FORTRAN90 source files together with a Makefile suitable for any standard UNIX environment. It contains the public domain program package LSODA (an automatic solver of stiff and non-stiff ordinary differential equation systems) as a single FORTRAN-77 source file. All required BLAS and LINPACK routines are provided as well (in `blas0.f`, `blas1.f` and `linpack.f`). For details see comments in the Makefile.

On default, the `Makefile` is configured such that no additional math libraries are required to compile the code. For better performance it is recommended to use optimized math libraries (where available). For details of the required routines see `blas1.f` and `linpack.f`.

If the `Makefile` is not used to compile the code, make sure that the individual source files are compiled in the following order:

- `blas0.f`, `blas1.f`, `linpack.f` (where necessary)
- `constants.f90`, `functions.f90`, `ode_solver.f90`, `lsoda.f`,  
`point_defects.f90`
- `parameters.f90`, `fokkerplanck.f90`,
- `simulation.f90`, `vicn_model.f90`, `vicnx_model.f90`
- `lsoda_cnfg.f90`, `extract.f90`
- `run_vicn.f90`, `run_vicnx.f90`
- `cd_trans.f90`

As a result of the compilation two executables, `cd_trans` and `extract` are generated which are hard linked to `<root>/cd_trans_<vers>` and `<root>/extract_<vers>`. Here, `<root>` and `<vers>` are parameters to be defined in the `Makefile`. On default they are set to `../exec` and `3.2`, respectively.

## 2. How to run CD-trans 3.2 ?

CD-trans 3.2 consists of two executables, one to solve the rate equations and one to extract the information from the binary data file produced. The former executable (`cd_trans`) is the time-consuming core part of the CD-trans 3.2 program, the latter one (`extract`) usually only takes a few seconds and allows the user to extract various kinds of information from the data file once the rate equations have been solved.

The core program reads its input from standard input and writes its output to standard output. In addition, a binary file named `clus.evol` is generated which accumulates the cluster distributions for each time step specified in the input. It also contains the complete parameter set of the rate equations. A suitable calling sequence in a UNIX environment would be

```
cd_trans_3.2 < name.inp > name.out
mv clus.evol name.dat (optional) .
```

The final cluster distribution is also written to standard output. For more detailed data or subsequent data analysis the second part of the CD-trans 3.2 program can be used. It reads its control parameter from standard input and writes the resulting tables in ASCII format to standard output. The name of the binary file to be analysed is given in the input. `extract` can be called directly from the command line, e.g. by

```
extract_3.2 < name.sel > name.tbl .
```

Since the input file of `extract` contains nothing but a couple of data selection switches a UNIX shell script (named `Extract`) is provided as well which allows to specify the data selection switches directly on the command line, for instance

```
Extract name[.ext] type=SDF Rmin=0.3 .
```

This script assumes the binary file to be called `name.dat` and writes the ASCII table to `name.ext`. If no extension `ext` is provided, `tbl` is used as extension. No input file is required for the script.



### 3. The master input file

The master input file, i.e. the input file of the core program `CD-trans`, consists of a list of input records in *fixed* order. These records either comprise a single value (in FORTRAN *\*-format*) followed by an optional comment up to the end of input line, or a list of input values (in *\*-format*) written in one or more lines and followed by an optional end-of-line comment in the *last* input line of the list, e.g.

```

298.15    irradiation temperature      Tk / K
-6        number of time steps         nout
  0.26    0.51    0.73
  2.60    5.10    7.30                tout / days
.FALSE.   use of the steady flux approximation
.TRUE.    include integrated vacancy losses

```

For the *exact* order of the input records please refer to the provided sample inputs. In the following the various input parameters are described including the units assumed and suitable defaults (where available). Note, that the order the parameters are described here is *n o t* the order they occur in the input !

#### 3.1. The rate theory model

`modelID`      identifier of the RT model to be used (up to 8 characters)

Available RT models:

```

VICuN      Vacancy-Interstitial-CuN-cluster dynamics
VICuNX     Vacancy-Interstitial-CuN(X)-cluster dynamics

```

In case of the mixed V-I-Cu<sub>N</sub>(X) cluster model an input record of the form

`xCu`              mole fraction of Cu in the defect clusters

has to follow the RT model identifier. If  $x_{Cu} \geq 0$  (i.e.,  $x_{Cu} \in [0, 1]$ ) the chemical composition of the defect clusters is assumed to be fixed. Time-dependent defect cluster composition can be enabled by providing an arbitrary negative (unused) value for `xCu` instead.

#### 3.2. Structural parameters

```

a0_Fe     bcc lattice constant of the Fe matrix      [nm]      (0.28665)
a0_Cu     bcc lattice constant of the Cu precipitates [nm]      (0.29607)

```

### 3.3. Equilibrium concentrations

The temperature dependence of the thermal equilibrium concentrations of the vacancies in the iron matrix and of the Cu atoms in contact with a planar copper precipitates (the so-called solubility limit), both measured in species per iron lattice site, are described by a regular solution-type of behavior

$$C_{J,\text{eq}} = \exp\left(-\frac{(E_{J,\text{f}} - T\Delta S_J)}{k_B T}\right), \quad J = \text{v, Cu} \quad \text{where} \quad E_{\text{Cu,f}} =: k_B \Omega$$

Here  $k_B$  is the Boltzmann constant and  $T$  the temperature of the irradiated material.

E <sub>v</sub> f	vacancy formation energy	[eV]	(1.64 )
omega	demixing temperature of Cu in iron	[K]	(6255 )
dS <sub>v</sub>	non-config. entropy of vacancy formation	[k <sub>B</sub> ]	(3.0 )
dSC <sub>u</sub>	non-config. entropy of Cu atom absorption	[k <sub>B</sub> ]	(0.866)

### 3.4. Diffusion parameters

The temperature dependence of the diffusion coefficients for the various diffusing species is described by an Arrhenius-type of behaviour

$$D_J = D_{0,J} \exp(-E_{J,m} / k_B T), \quad J = \text{i, v, Cu}$$

where  $k_B$  is the Boltzmann constant and  $T$  the temperature of the irradiated material.

E <sub>i</sub> m	migration energy of self-interstitial atoms	[eV]	(0.4 )
E <sub>v</sub> m	migration energy of vacancies	[eV]	(1.3 )
E <sub>Cu</sub> m	migration energy of Cu atoms	[eV]	(2.29)
D <sub>0</sub> i	pre-exp. factor for self-interstitial diffusion	[cm <sup>2</sup> /s]	(0.05)
D <sub>0</sub> v	pre-exp. factor for vacancy diffusion	[cm <sup>2</sup> /s]	(0.5 )
D <sub>0</sub> Cu	pre-exp. factor for Cu atom diffusion	[cm <sup>2</sup> /s]	(0.63)

The irradiation enhancement of the copper mobility is modeled by

$$D_{\text{Cu}}^{\text{irr}} = D_{\text{Cu}} \cdot C_{\text{v}} / C_{\text{v,eq}}$$

where  $C_{\text{v}}$  is the actual concentration of the vacancies in the iron matrix, expressed in defect per iron lattice, and  $D_{\text{Cu}}^{\text{irr}}$  the irradiation-enhanced diffusion coefficient of Cu.

### 3.5. Cluster/iron interface energy

The specific interface energies between the pure precipitate phases and the bcc Fe matrix is computed according to the Cahn-Hilliard theory

$$\gamma_J = 1.08 k_B (T_{\text{c},J} - T) / a_{0,J}^2 \quad \text{with} \quad T_{\text{c},J} = (E_{\text{f},J} - T \cdot \Delta S_J) / 2k_B = -\ln(C_{J,\text{eq}}) \cdot T / 2, \quad J = \text{v, Cu}$$

No additional input parameters are required here.

### 3.6. Point defect formation rates

The production rate for the mono-atomic point defects is calculated as

$$G_J = (1 - f_{J,cl}) \cdot \eta \cdot G_{\text{dpa}} \quad , \quad J = i, v \quad \text{where} \quad \Phi = G_{\text{dpa}} \cdot t_{\text{irr}} \quad .$$

Here,  $G_{\text{dpa}}$  is the irradiation induced displacement rate according to Norgett, Robinson, and Torrens which is commonly used to compute the total irradiation damage  $\Phi$  in dpa (displacements per atom),  $t_{\text{irr}}$  is the irradiation time and  $\eta$  is an efficiency factor to relate  $G_{\text{dpa}}$  to the true atomistic point defect production rate. The factor  $f_{J,cl}$ , finally, is the fraction of the point defects of each type  $J$  which form poly-atomic clusters during the cascade stage.

$G_{\text{dpa}}$	Irr. induced displacement rate after NRT	$[10^{-9} \text{ dpa/s}]$	
$\eta$	efficiency factor of point defect generation	[1]	(0.366)
$f_{i,cl}$	interstitial clustering factor in cascade stage	[1]	(0.5)
$f_{v,cl}$	vacancy clustering factor in cascade stage	[1]	(0.5)

### 3.7. Sink terms for point defects

The vacancies and self-interstitial atoms can either recombine or be absorbed by dislocations, each. The corresponding decay rates are give by

$$G_{\text{rec}} = 4\pi R_{\text{rec}} (D_i + D_v) \cdot C_i C_v / V_{0,\text{Fe}} \quad \text{and} \quad G_{J,\text{dis}} = z_J D_J \rho \cdot C_J \quad , \quad J = i, v$$

where  $D_i$  and  $D_v$  are the diffusion coefficients of the vacancies and interstitials,  $V_{0,\text{Fe}}$  is the atomic volume of the iron matrix, and  $C_i$  and  $C_v$  are the concentrations of the vacancies and interstitials in the iron matrix, expressed in defect per iron lattice site. The dislocation sink strengths  $D_J \rho$ , finally, can be biased by individual sink strength bias factors  $z_J$  for each type of point defect.

$r_{\text{rec}}$	vacancy/interstitial recombination radius	[nm]	(0.574)
$\rho$	dislocation density	$[10^{14} / \text{m}^2]$	
$z_i$	dislocation sink strength bias for interstitials	[1]	(1.2)
$z_v$	dislocation sink strength bias for vacancy	[1]	(1.0)

In addition, the defect clusters can act as additional vacancy sinks and/or vacancy sources. The decay rate  $G_{\text{clus}}$  due to these processes is given by

$$G_{\text{clus}} = 4\pi D_v \sum_n R_n [C_n C_v - C_{n+1} C_{v,\text{eq}}(R_{n+1})] / V_{0,\text{Fe}} \quad (\text{plus "edge corrections"})$$

where  $R_n$  is the radius of the  $n$ -atomic defect clusters and  $C_n$  their concentration, expressed in cluster per lattice site.  $C_{v,\text{eq}}(R_n) = C_{v,\text{eq}} + R_{\text{GT}} / R_n$ , finally, is the equilibrium vacancy concentration of the Fe matrix in contact with a finite, spherical void of radius  $R_n$  according to the Gibbs-Thomson relation.

### 3.8. Adjustment factors

The specific interface energies and the diffusion coefficients of the cluster forming species are the four most sensitive parameters in the above rate theory models. For special applications it is possible to adjust these parameters by proper scaling factors:

$$D_{0,J} \rightarrow D_{0,J} / D_{\text{adj},J} \quad \text{and} \quad \gamma_J \rightarrow \gamma_J \cdot \gamma_{\text{adj},J}, \quad J = v, \text{Cu}.$$

adjust_gamCu	enhancement factor for the Cu interface energy	[1]	(1.0)
adjust_gamVd	enhancement fact. for the void interface energy	[1]	(1.0)
adjust_DCu0	reduction factor for the Cu diffusion coefficient	[1]	(1.0)
adjust_Dv0	reduction factor for the vacancy diff. coefficient	[1]	(1.0)

### 3.9. Process parameters

Tk	irradiation temperature	[K]
tirr	total simulation time	[days]
CCu0	initial amount of Cu in the iron matrix	[Cu/site]

### 3.10. Treatment of large clusters

The computational cost of a CD-trans 3.2 calculation is essentially determined by the number of individual cluster equations, i.e. the maximum size of the defect clusters. To reduce the computational cost, it is possible to switch to Fokker-Planck-like partial differential equations for large cluster sizes. This feature is controlled by:

transID	type of transformation to be applied	(up to 10 characters)
substID	type of variable substitution to be used	(up to 10 characters)
ndis	max. number of atoms in non-transformed clusters (= $n_0$ )	
ncon	max. number of atoms in the transformed clusters	
h,DR,DR00	parameter for the chosen variable substitution	(see eqns. below)

Available transformations of the master equations:

Cndn->Csds	$C(s) := C(n(s)) \cdot n'(s)$ which leads to Fokker-Planck equations
Cn->Cs	$C(s) := C(n(s))$ which leads to <i>weighted</i> Fokker-Planck eqns.
none	no transformation to Fokker-Planck-like equations

Available variable substitutions:

geometric	$n(s) := n_0 + (h^s - 1)/(h - 1) = n_0 + 1 + \dots + h^{s-1}$ , $s = 0, \dots, s_{\text{max}}$
radius	$n(s) := R(s)^3 / R_{0,\text{Fe}}^3$ with $R(s) := \sqrt[3]{n_0} \cdot R_{0,\text{Fe}} + \Delta R \cdot s$ , $s = 0, \dots, s_{\text{max}}$
cubic	$n(s) := n_0 + s + \Delta R_{\infty}^3 \cdot s^3 / R_{0,\text{Fe}}^3$ , $s = 0, \dots, s_{\text{max}}$

If "none" is specified as transID the four subsequent input records for substID, ndis, ncon and h,DR,DR00 have to be replaced by a single input record of the form

nmax	max. number of atoms in the defect clusters
------	---

### 3.11. Simulation parameters

nout	number of snap shots (time slots)	[1]	(1)
ndec	number of time slots per decade	[1]	
rtol	relative error tolerance for the ODE solver	[1]	(1.0E-4)

The intermediate snap shots of the cluster distribution, which are dumped to the binary file at the end of each time slot, are essentially for free in the sense what it does not enlarge the computational cost of the integration of the rate equations.

The time slots can be specified in three different ways: either in a geometrical progression ( $n_{out} > 0$ ,  $n_{dec} > 0$ ), or with a fixed step size ( $n_{out} > 0$ ,  $n_{dec} < 0$ ), or as a user-specified list of snap shot times ( $n_{out} < 0$ ). In the latter case, a list of increasing snap shot times  $t_{out}(1:|n_{out}|)$  has to be provided *instead of* the  $n_{dec}$  input record and  $t_{irr}$  is adjusted accordingly (to the time of the last snap shot). An example of such an input is shown in the sample input at the beginning of chapter 3. In case of a geometrical progression, the time steps are chosen according to

$$t_i = t_{irr} \cdot 10^{(i-n_{out})/n_{dec}}, \quad i = 1, \dots, n_{out}$$

while the time steps of the linear progression are simply given by

$$t_i = t_{irr} \cdot i/n_{out}, \quad i = 1, \dots, n_{out}$$

with  $t_0 = 0$  in each of the three cases.

### 3.12 Boolean control flags

The list of available control flags depends on the chosen rate theory model

a) the V-I-Cu\_N model (including the V3C precipitation model)

steady_flux	steady flux approximation for interstitials	(.FALSE.)
equilibrium	equilibrium concentrations for point defects	(.FALSE.)
open_system	use an open system with $\text{Cu} + \text{Cu}_{n_{max}} \rightarrow \text{env.}$	(.TRUE.)
Cu_as_sinks	use Cu clusters as additional vacancy sinks	(.TRUE.)
intg_losses	add on-the-fly integration of vac./int. losses	(.FALSE.)
szilard_BCs	apply Szilard's boundary conditions	(.FALSE.)
use_nmean13	(for compatibility with older versions only)	(.FALSE.)
gokhman_Dmu	(for compatibility with older versions only)	(.FALSE.)
refer_to_Cu	(for compatibility with older versions only)	(.FALSE.)

b) the V-I-Cu\_N(X) model (mixed vacancy-Cu clusters of given composition)

no_coabsorb	suppression of multi-species absorption	(.FALSE.)
steady_flux	steady flux approximation for interstitials	(.FALSE.)
equilibrium	equilibrium concentrations for point defects	(.FALSE.)
open_system	use an open system with $@ + @_{n_{max}} \rightarrow \text{env.}$	(.TRUE.)
rational_xs	restrict compositions to rational mole fractions	(.FALSE.)
appr_sigmix	approx. mixing contribution to interface energy	(.TRUE.)
cls_as_sink	half-coupling with vacancy absorption	(.FALSE.)
cls_as_src	half-coupling with vacancy emission	(.FALSE.)

<code>intg_losses</code>	add on-the-fly integration of vac./int. losses	<code>(.FALSE.)</code>
<code>szilard_BCs</code>	apply Szilard's boundary conditions	<code>(.FALSE.)</code>
<code>useR3mean13</code>	(for compatibility with older versions only)	<code>(.FALSE.)</code>
<code>gokhman_Dmu</code>	(for compatibility with older versions only)	<code>(.FALSE.)</code>
<code>refer_to_Vp</code>	(for compatibility with older versions only)	<code>(.FALSE.)</code>

The defaults for the VICuNX model shown here are designed for calculations with time-dependent, mixed cluster compositions.

If `steady_flux` is invoked, the interstitials are assumed to be in permanent steady-flux equilibrium with the actual vacancy concentration  $C_v(t)$  whose evolution is still described by the corresponding rate equation. If `equilibrium` is invoked, both, interstitials *and* vacancies, are assumed to be in permanent steady-flux equilibrium with the actual Cu cluster distribution  $C_n(t)$ . The latter switch is only available for bare Cu cluster dynamics (and for the half-coupled models such as V3C).

If `open_system` is invoked, also the largest defect cluster (e.g.,  $Cu_n$  with  $n = n_{max}$ ) is allowed to absorb monomers, and thus to leave the system as an  $(n_{max}+1)$ -atomic cluster. This behavior can be suppressed by `open_system = .FALSE.` Emission of monomers from  $@_{n_{max}+1}$  clusters, on the other hand, is never allowed. In fact, the amount of monomers is *always* conserved in the sense, that the constituting atoms of a defect cluster lost to the environment are complete put back into the iron matrix as solved monomers, even in the case of an open system (the recommended choice).

Applying Szilard's boundary conditions, finally, means to enforce  $C_{Cu}(t) = const.$  by assuming the existence of a background source/sink for solute Cu monomers.

Half-coupling (absorption only) is switched on the V-I-CuN model by letting `Cu_as_sinks = .TRUE.` The corresponding switch in the V-I-CuN(X) model is `cls_as_sink`. In this model vacancy emission can also be switched on for half-coupling using `cls_as_src`. In both models simplified "edge" corrections are used for  $G_{clus}$  in case of half-coupling.

There are two ways in the V-I-CuN(X) model to avoid problems with emission of individual atoms for vanishing amount of the specific atoms in the mixed clusters. Either the mole fractions of  $n$ -atomic clusters are restricted to multiples of  $1/n$  and the rate coefficients are determined by averaging over nearby cluster compositions (`rational_xs = .TRUE.`), or fractional atoms are allowed to be emitted when the corresponding mole fractions tend to zero (`rational_xs = .FALSE.`). For small clusters, the derivatives of the mixing contribution to the interface energy may tend to  $+\infty$  in the limiting case of pure Cu clusters or voids. An approximate mixing contribution can be used (`appr_sigmix = .TRUE.`) to avoid this unphysical behavior.

The last three flags (`use_nmean13/useR3mean13`, `gokhman_Dmu`, and `refer_to_Cu/refer_to_Vp`) are only present for compatibility with older versions of the CD-trans 3.2 program and should *always* be set to `.FALSE.`

#### 4. The binary output file

The binary data file which is generated by the core program `cd_trans` consists of four header records including the chosen rate theory model and all data necessary for a basic data analysis, followed by the body of the file with two records per time slot, and a list of trailing records holding the complete parameter set of the underlying rate equations (and Fokker-Planck parameters). For more information on the precise structure of this binary file, please refer to the detailed file description in the header of the FORTRAN source file `extract.f90`.

#### 5. Output data

The standard output file from the core program `cd_trans` shows the resulting concentrations of the self-interstitial atoms ( $C_i$ ), the vacancies ( $C_v$ ), the Cu atoms ( $C_{Cu}$ ) and the defect clusters ( $C_n$ ,  $n=2, \dots, n_{max}$ ) at the end of the simulation time (in species/m<sup>3</sup>). In addition, the values of the so-called 'size distribution function'  $f(R_n) := n C_n dn/dR_n$  and the coherent radii  $R_n$  associated with each  $n$ -atomic Cu cluster are given. Here,  $f(R) dR$  gives the volume fraction occupied by all Cu clusters with radii in the range between  $R$  and  $R+dR$ .

Also shown in the output is the amount of monomers accumulated in the polyatomic defect clusters at the end of each time slot. No further integral statistics is performed by the core program `cd_trans`, because, in general, such a statistic requires to specify a minimal radius (of experimentally visible clusters) which is not known a priori. Such statistics can easily be performed with the data analysis program `extract` which is also able to produce various tables for the visualization of the cluster distributions  $C_i(t)$ ,  $C_v(t)$ ,  $C_{Cu}(t)$ , and  $C_n(t)$ .

#### 6. The data selection input file

The structure of the input file for the data selection program `extract` is as follows

```

data = <name of the binary dump file>
slot = <time slot or 0 for "all time slots">
clus = <kind of defect or 0 for "all defects">
type = <type of the distribution to deliver>
eval = <additional evaluation of currents and losses or "none">
Rmin = <Rmin for integral statistics or 0.0 for "no statistics">
dots = <". " for US-format of floats or ", " for German format of floats>

```

The order of the input records must be as shown above, the selection values must start in the 8-th column of the input file (after the blank following the = sign) and no end-of-line comments are allowed in this input. (See also `Extract` in Chap. 7.)

Data analysis can either be performed on all time slots or on the data from a specific snap shot at time  $t_i$  (`slot = i` or `-1` for "last slot"). Likewise, the analysis can be carried out for the entire cluster distribution including the monomer concentrations or for a specific defect, either an  $n$ -atomic cluster (`clus = n`) or a monomer (`clus = -1` for self-interstitial atoms, `-2` for vacancies, and `-3` for integrated losses

The cluster distribution functions can be delivered in various different forms, either as  $C(n)$  distributions where  $C$  is the cluster concentration (in defect per iron lattice site) and  $n$  is the number of atoms in the cluster, or as  $C(R)$  distributions where  $R$  is the radius of the clusters. Also available (if Fokker-Planck-like equations have been used) is the  $C(s)$  distribution where  $s$  is the size parameter of the chosen variable transformation. All three types of distribution functions integrate to the total number  $N_p$  of defect clusters per iron lattice site

$$N_p = \int_{n_{\min}}^{n_{\max}} C(n) dn = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} C(R) dR = \int_{s_{\min}}^{s_{\max}} C(n(s)) n'(s) ds \quad .$$

In addition, each of these distribution functions can be multiplied by  $n$  to integrate to the volume fraction occupied by the clusters rather than to the total cluster density  $N_p$ . The corresponding type-values are 'C(n)', 'n\*C(n)', 'C(R)', 'n\*C(R)', 'C(s)', and 'n\*C(s)'.

If "all defects" is selected for the data analyses, the program `extract` also perform an integral analysis of the data where only the data between a user-specified minimal radius  $R_{\min} > 0$  and the largest cluster radius present in the data is considered. To suppress this statistic let `Rmin = 0`, to generate this statistic *without* printing the entire cluster distribution, let `Rmin = - Rmin < 0`.

The `eval`-parameter, finally, allows to monitor the various decay channels of the point defects (`eval = J_pdf`), or the different contributions to the cluster current  $J(n,t)$  from the master equation

$$\frac{d}{dt} C_n(t) = J(n - \frac{1}{2}, t) - J(n + \frac{1}{2}, t) \quad \text{with} \quad J(n, t) \sim v(n, t) C_n(t) - D(n, t) \frac{d}{dn} C_n(t)$$

of the Cu clusters (`eval = J_cls`), or both (`eval = J`). No distribution functions are printed in that case. The itemization of the cluster current  $J(n,t)$  is currently only available for the V-I-Cu(N) model.

## 7. The hardness module of `Extract`

In case, the `Cu_as_sinks` is used as option for the rate theory model, such that the defect clusters act as additional vacancy sinks, it is possible to estimate of the yield stress increase due to the presence of these mixed copper vacancy clusters. To this end, the option `intg_losses` must have been switched on during the integration of the rate theory equations in order to have access to the average chemical composition of the defect clusters. To invoke this option let `eval = hardness`.



## 8. The shell script `Extract`

The UNIX shell script `Extract` has the same functionality as the data selection input file. The correspondence between the selection parameters and the shell script flags is listed below.

Selection parameter	Shell script flag
<code>data = name</code>	<b>Name</b>
<code>slot = <i>i</i></code>	<code>slot=<i>i</i></code>
<code>slot = -1</code>	<code>slot=last</code>
<code>slot = 0</code>	—
<code>clus = <i>n</i></code>	<code>clus=<i>n</i></code>
<code>clus = 0</code>	—
<code>clus = -1</code>	<code>clus=i</code>
<code>clus = -2</code>	<code>clus=v</code>
<code>clus = -3</code>	<code>clus=l</code>
<code>type = C(<i>n</i>)</code>	—
<code>type = C(R)</code>	<code>type=CR</code>
<code>type = C(<i>s</i>)</code>	<code>type=C<i>s</i></code>
<code>type = n*C(<i>n</i>)</code>	<code>type=Cvol (or CCu)</code>
<code>type = n*C(R)</code>	<code>type=SDF</code>
<code>type = n*C(<i>s</i>)</code>	<code>type=Csvol</code>
<code>eval = J_clus</code>	<code>eval=Jcls (or JCu)</code>
<code>eval = J_pdf</code>	<code>eval=Jpdf (or Jdef)</code>
<code>eval = J</code>	<code>eval=J</code>
<code>eval = hardness</code>	<code>eval=hard</code>
<code>eval = none</code>	—
<code>Rmin = <math>R_{min}</math></code>	<code>Rmin=<math>R_{min}</math></code>
<code>Rmin = 0.0</code>	—
<code>dots = .</code>	<code>dots=.</code>
<code>dots = ,</code>	—

Before the first use, the UNIX shell script must be configured by specifying the directory where the executable `extract_3.2` is located in:

```
set root = <directory of extract_3.2> .
```

On default, `root` is set to `../../exec`.

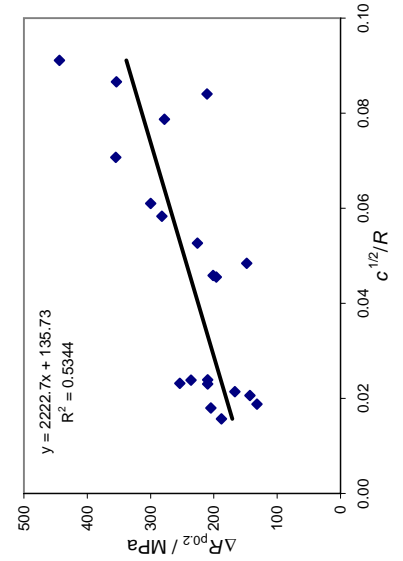
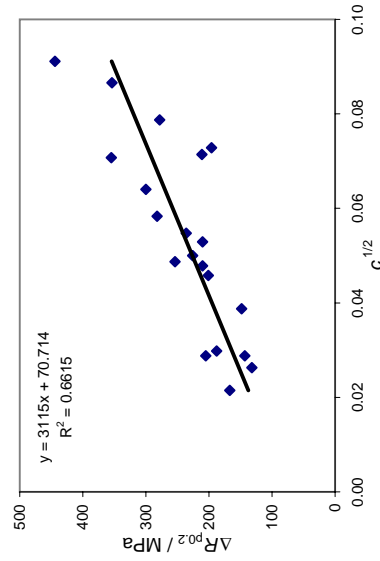
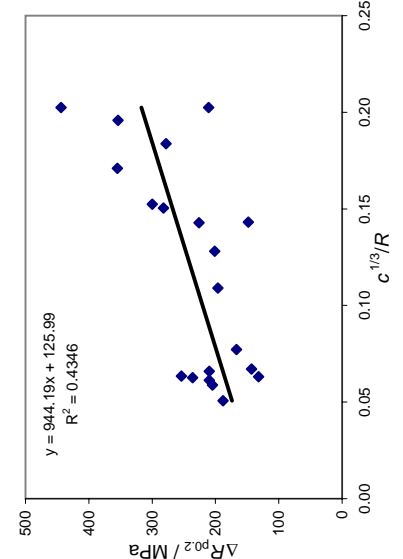
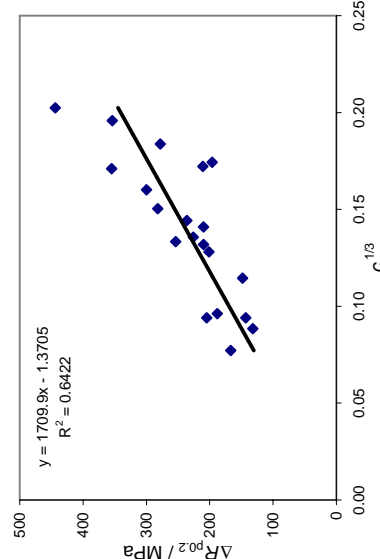
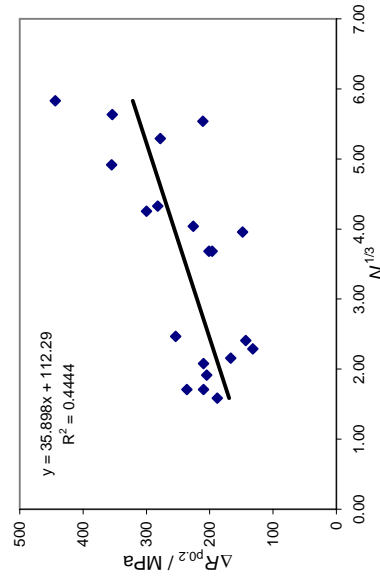
## **Anlage A2**

### **Excel-Arbeitsblätter Validierung**

- A2.1 Korrelationsanalyse der Streckgrenzenerhöhung mit modellspezifischen Mikrostrukturparametern für Cu-haltige Stähle**
- A2.2 Korrelationsanalyse der Streckgrenzenerhöhung mit modellspezifischen Mikrostrukturparametern für Cu-arme Stähle**
- A2.3 Bestimmung der Hindernisstärke für zwei ausgewählte Härtungsmodelle für Cu-haltige Stähle**
- A2.4 Bestimmung der Hindernisstärke für zwei ausgewählte Härtungsmodelle für Cu-arme Stähle**
- A2.5 Arbeitsblatt zur Voraussage der Streckgrenzenerhöhung für alle ausgewählten Modellvarianten und alle relevanten Werkstoffe**
- A2.6 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von SANS-Daten und RT-Daten mit fester Hindernisstärke**
- A2.7 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von SANS-Daten mit fester und variabler Hindernisstärke**
- A2.8 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von RT-Daten mit fester und variabler Hindernisstärke**

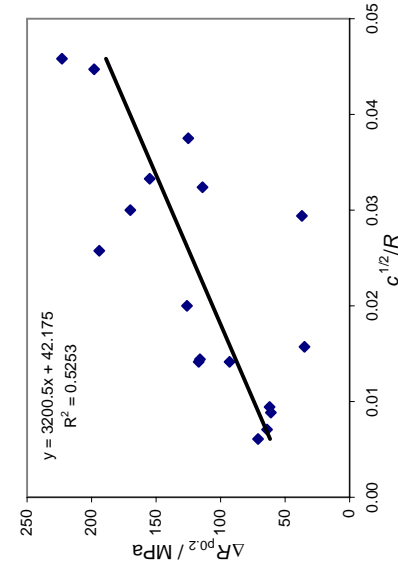
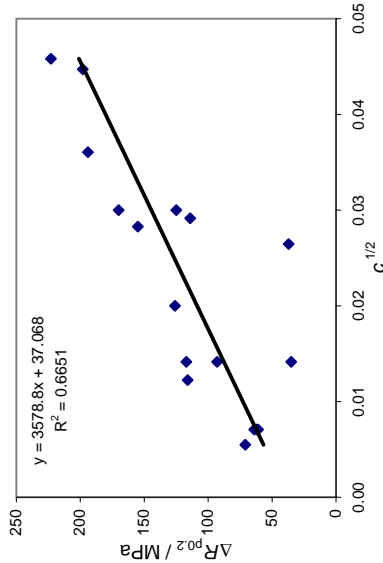
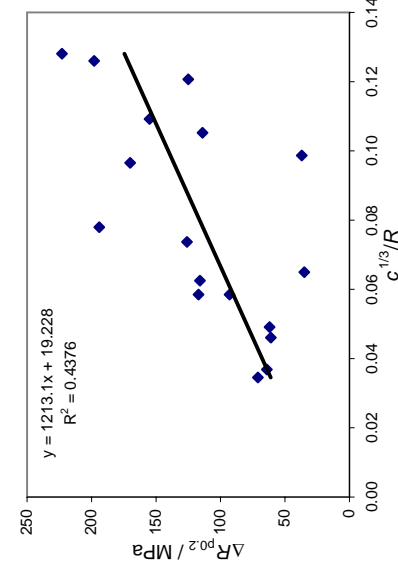
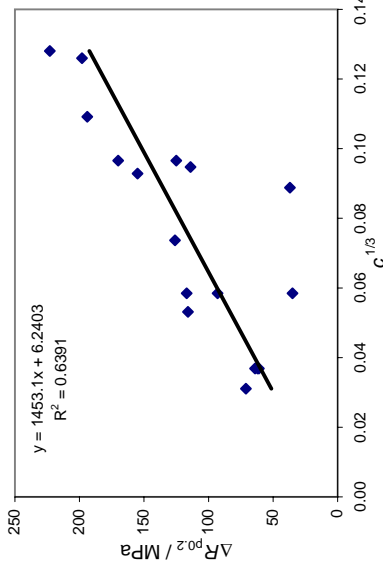
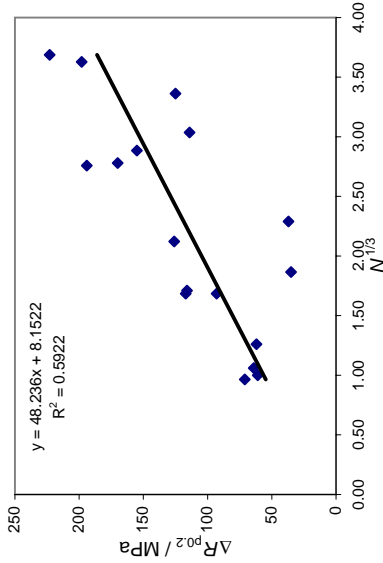
A2.1 Korrelationsanalyse der Streckgrenzenerhöhung mit modellspezifischen Mikrostrukturparametern für Cu-haltige Stähle

Cu-reich	Material	Fluenz dpa	$\Delta R_{p0.2}$ MPa	c	$c^{1/2}$	$c^{1/3}$	R nm	$c^{1/2}/R$	$c^{1/3}/R$	N $10^{16} \text{ cm}^{-3}$	$N^{1/3}$
	REVE Fe0.1Cu	0.026 0.051 0.100 0.190	132 143 205 188	0.00069 0.00083 0.00083 0.00089	0.026 0.029 0.029 0.030	0.088 0.094 0.094 0.096	1.40 1.40 1.60 1.90	0.0188 0.0206 0.0180 0.0157	0.0631 0.0671 0.0587 0.0506	12 14 7 4	2.29 2.41 1.91 1.59
	REVE Fe0.3Cu	0.026 0.051 0.100 0.190	210 210 254 236	0.00229 0.00280 0.00237 0.00300	0.048 0.053 0.049 0.055	0.132 0.141 0.133 0.144	2.00 2.30 2.10 2.30	0.0239 0.0230 0.0232 0.0238	0.0659 0.0613 0.0635 0.0627	9 5 15 5	2.08 1.71 2.47 1.71
	REVE FeMnCu	0.051 0.100 0.190	167 226 300	0.00046 0.00250 0.00410	0.021 0.050 0.064	0.077 0.136 0.160	1.00 0.95 1.05	0.0214 0.0526 0.0610	0.0772 0.1429 0.1524	10 66 77	2.15 4.04 4.25
	JRQ	0.010 0.077 0.139	201 282 355	0.00210 0.00340 0.00500	0.046 0.058 0.071	0.128 0.150 0.171	1.00 1.00 1.00	0.0458 0.0583 0.0707	0.1281 0.1504 0.1710	50 81 119	3.68 4.33 4.92
	JPA	0.010 0.080 0.143	278 354 444	0.00620 0.00750 0.00830	0.079 0.087 0.091	0.184 0.196 0.202	1.00 1.00 1.00	0.0787 0.0866 0.0911	0.1837 0.1957 0.2025	148 179 198	5.29 5.64 5.83
	P7 GW	0.055	148	0.00150	0.039	0.114	0.80	0.0484	0.1431	62	3.96
	P370 SW	0.031 0.027	211 196	0.00510 0.00530	0.071 0.073	0.172 0.174	0.85 1.60	0.0840 0.0455	0.2025 0.1090	170 50	5.54 3.68



A2.2 Korrelationsanalyse der Streckgrenzenerhöhung mit modellspezifischen Mikrostrukturparametern für Cu-arme Stähle

Material	Fluenz dpa	$\Delta R_{p0.2}$ MPa	c	$c^{1/2}$	$c^{1/3}$	R nm	$c^{1/2}/R$	$c^{1/3}/R$	N $10^{16} \text{ cm}^{-3}$	$N^{1/3}$
REVE FeMnNi	0.051 0.100 0.190	71 125 194	0.00003 0.00090 0.00130	0.005 0.030 0.036	0.031 0.097 0.109	0.90 0.80 1.40	0.0061 0.0375 0.0258	0.0345 0.1207 0.0780	0.9 38 21	0.97 3.36 2.76
REVE 16MND5	0.051 0.100 0.190	62 116 155	0.00005 0.00015 0.00080	0.007 0.012 0.028	0.037 0.053 0.093	0.75 0.85 0.85	0.0094 0.0144 0.0333	0.0491 0.0625 0.1092	2 5 24	1.26 1.71 2.88
A533B cl.1 JPB	0.080 0.140	126 223	0.00040 0.00210	0.020 0.046	0.074 0.128	1.00 1.00	0.0200 0.0458	0.0737 0.1281	10 50	2.12 3.69
A533B cl.1 JPC	0.080 0.140	93 198	0.00020 0.00200	0.014 0.045	0.058 0.126	1.00 1.00	0.0141 0.0447	0.0585 0.1260	5 48	1.68 3.63
A508 cl.3 JFL	0.010 0.080 0.133	64 117 170	0.00005 0.00020 0.00090	0.007 0.014 0.030	0.037 0.058 0.097	1.00 1.00 1.00	0.0071 0.0141 0.0300	0.0368 0.0585 0.0965	1 5 21	1.06 1.68 2.78
15Kh2MNA	0.029 0.097	35 114	0.00020 0.00085	0.014 0.029	0.058 0.095	0.90 0.90	0.0157 0.0324	0.0650 0.1053	6.5 28	1.87 3.04
P141 GW	0.010	37	0.00070	0.026	0.089	0.90	0.0294	0.0987	12	2.29
P141 SG	0.013	61	0.00005	0.007	0.037	0.80	0.0088	0.0461	1	1.00

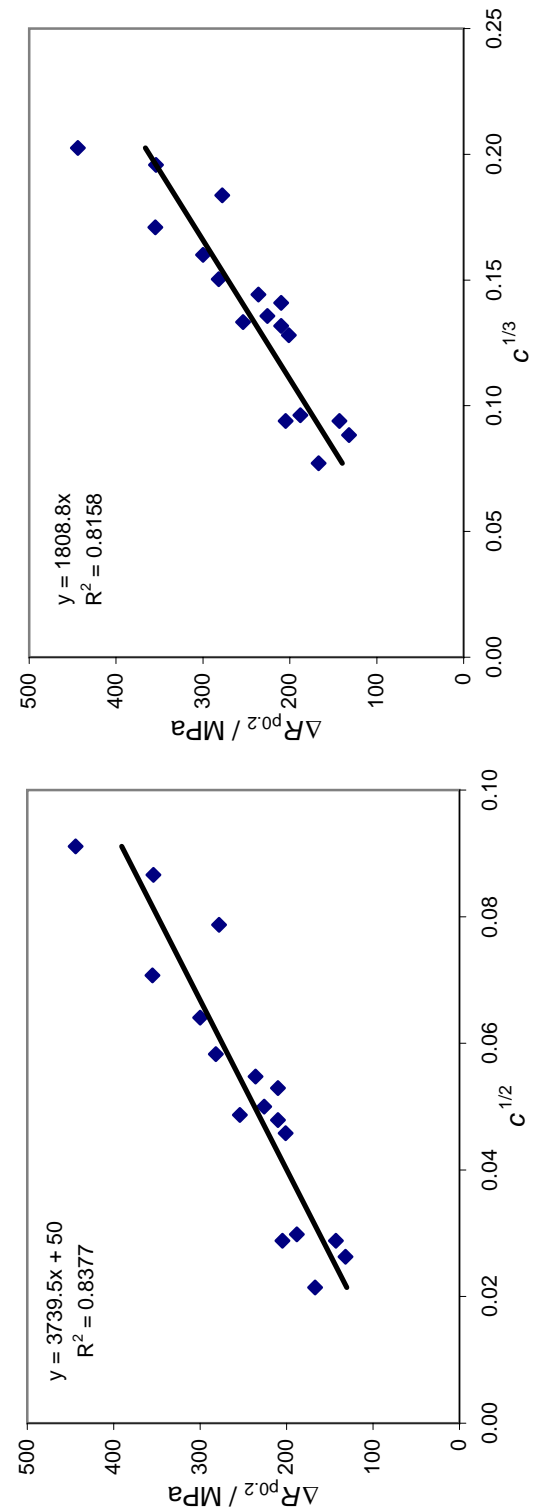


Cu-arm

A2.3 Bestimmung der Hindernisstärke für zwei ausgewählte Härtungsmodelle  
für Cu-haltige Stähle

Material	Fluenz dpa	$\Delta R_{p0.2}$ MPa	C	$C^{1/2}$	$C^{1/3}$
REVE Fe0.1Cu	0.026	132	0.00069	0.026	0.088
	0.051	143	0.00083	0.029	0.094
	0.100	205	0.00083	0.029	0.094
REVE Fe0.3Cu	0.190	188	0.00089	0.030	0.096
	0.026	210	0.00229	0.048	0.132
	0.051	210	0.00280	0.053	0.141
REVE FeMnNiCu	0.100	254	0.00237	0.049	0.133
	0.190	236	0.00300	0.055	0.144
	0.051	167	0.00046	0.021	0.077
JRQ	0.100	226	0.00250	0.050	0.136
	0.190	300	0.00410	0.064	0.160
	0.010	201	0.00210	0.046	0.128
JPA	0.077	282	0.00340	0.058	0.150
	0.139	355	0.00500	0.071	0.171
	0.010	278	0.00620	0.079	0.184
	0.080	354	0.00750	0.087	0.196
	0.143	444	0.00830	0.091	0.202

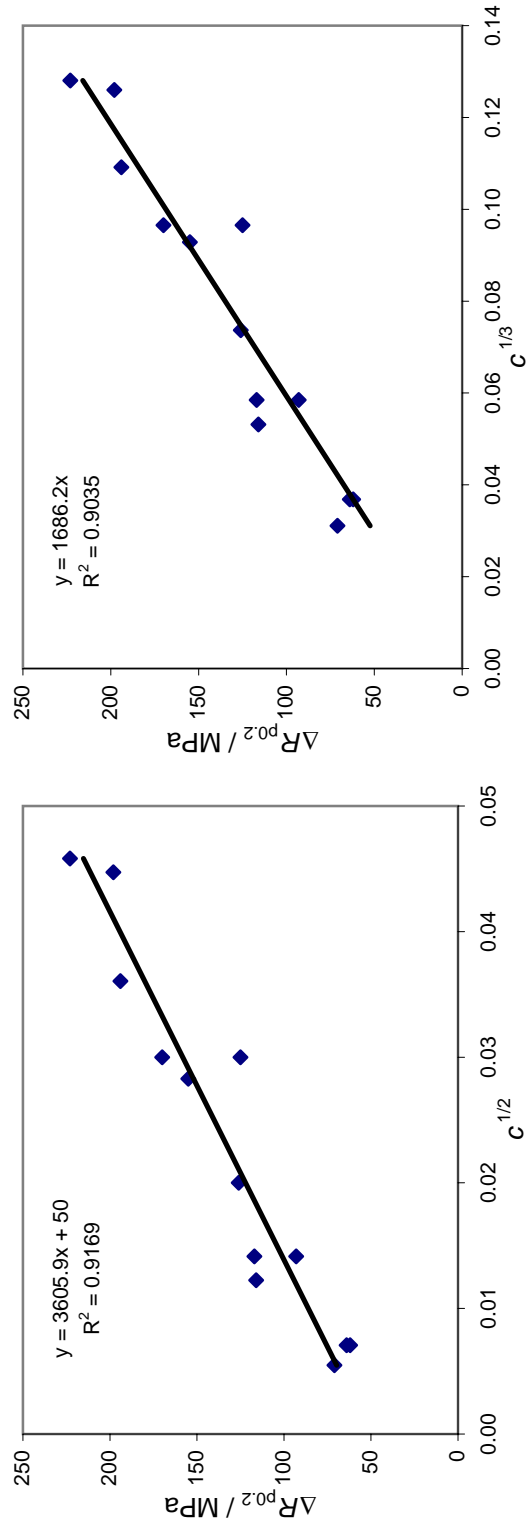
Cu-reich



A2.4 Bestimmung der Hindernisstärke für zwei ausgewählte Härtungsmodelle für Cu-arme Stähle

Material	Fluenz dpa	$\Delta R_{p0.2}$ MPa	c	$c^{1/2}$	$c^{1/3}$
REVE FeMnNi	0.051	71	0.00003	0.005	0.031
	0.100	125	0.00090	0.030	0.097
	0.190	194	0.00130	0.036	0.109
REVE 16MND5	0.051	62	0.00005	0.007	0.037
	0.100	116	0.00015	0.012	0.053
	0.190	155	0.00080	0.028	0.093
A533B cl.1 JPB	0.080	126	0.00040	0.020	0.074
	0.140	223	0.00210	0.046	0.128
A533B cl.1 JPC	0.080	93	0.00020	0.014	0.058
	0.140	198	0.00200	0.045	0.126
A508 cl.3 JFL	0.010	64	0.00005	0.007	0.037
	0.080	117	0.00020	0.014	0.058
	0.133	170	0.00090	0.030	0.097

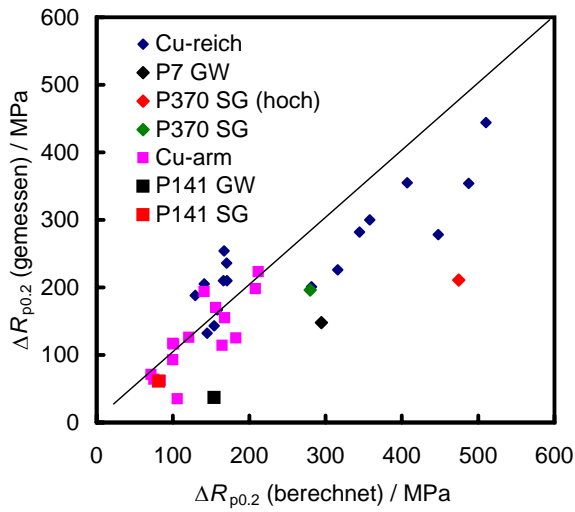
Cu-arm



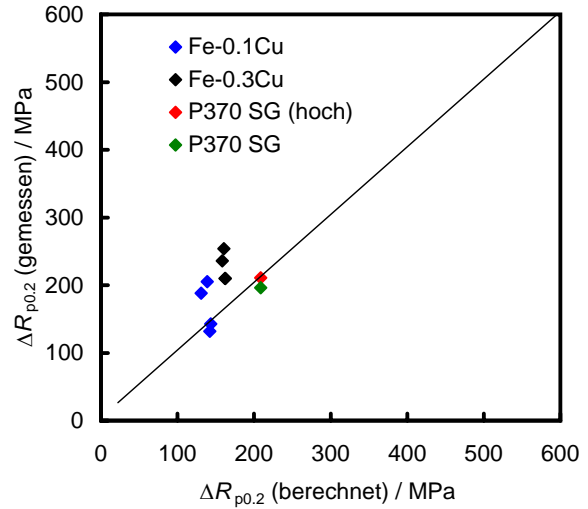
A2.5 Arbeitsblatt zur Voraussage der Streckgrenzenerhöhung für alle ausgewählten Modellvarianten und alle relevanten Werkstoffe

feste Parameter der Modelle:															
Taylor-Faktor, $M$ <b>3.0</b>															
Schubmodul, $G$ <b>82 GPa</b>															
Burgers-Vektor, $b$ <b>0.248 nm</b>															
Defektdurchmesser, $d$ <b>2 nm</b> (fester Parameter in Modell B und C)															
Offset $\Delta R_{p0.2}$ <b>50 MPa</b> (fester Parameter in Modell A und B)															
Material	Fluenz dpa	gem. $\Delta R_{p0.2}$ in MPa	SANS-Daten		RT-Daten		Modell A			Modell B			Modell C		
			$d$ nm	$c$ absolut	$d$ nm	$c$ absolut	$\alpha$	ber. $\Delta R_{p0.2}$ SANS RT MPa MPa	$\alpha$	ber. $\Delta R_{p0.2}$ SANS RT MPa MPa	$\alpha$	ber. $\Delta R_{p0.2}$ SANS RT MPa MPa			
<b>Cu-reich</b>															
REVE Fe0.1Cu	0.026	132	2.8	0.00069	2.8	0.00065	0.12	145	142	0.089	148	146	0.048	160	157
	0.051	143	2.8	0.00083	3.04	0.00079	0.12	154	144	0.089	158	156	0.048	170	168
	0.100	205	3.2	0.00083	3.2	0.00080	0.12	141	139	0.089	158	156	0.048	170	168
	0.190	188	3.8	0.00089	3.54	0.00080	0.12	129	131	0.089	162	156	0.048	174	168
REVE Fe0.3Cu	0.026	210	4	0.00229	4.54	0.00255	0.12	171	162	0.089	229	239	0.048	239	248
	0.051	210	4.6	0.00280	4.56	0.00256	0.12	166	162	0.089	248	240	0.048	256	248
	0.100	254	4.2	0.00237	4.62	0.00256	0.12	167	161	0.089	232	240	0.048	242	248
	0.190	236	4.6	0.00300	4.72	0.00256	0.12	170	158	0.089	255	240	0.048	262	248
REVE FeMnNiCu	0.051	167	2	0.00046			0.12	158		0.089	130		0.048	140	
	0.100	226	1.9	0.00250			0.12	316		0.089	237		0.048	246	
	0.190	300	2.1	0.00410			0.12	358		0.089	290		0.048	290	
JRQ	0.010	201	2	0.00210			0.12	281		0.089	222		0.048	232	
	0.077	282	2	0.00340			0.12	345		0.089	268		0.048	273	
	0.139	355	2	0.00500			0.12	407		0.089	315		0.048	310	
JPA	0.010	278	2	0.00620			0.12	448		0.089	345		0.048	333	
	0.080	354	2	0.00750			0.12	487		0.089	374		0.048	355	
	0.143	444	2	0.00830			0.12	510		0.089	391		0.048	367	
P7 GW	0.055	148	1.6	0.00150			0.12	295		0.089	195		0.048	208	
P370 SG	0.031	211	1.7	0.00510	2.74	0.00185	0.12	474	209	0.089	318	211	0.048	312	223
	0.027	196	3.2	0.00530	2.74	0.00185	0.12	280	209	0.089	323	211	0.048	316	223
<b>Cu-arm</b>															
REVE FeMnNi	0.051	71	1.8	0.00003			0.084	72		0.086	70		0.045	53	
	0.100	125	1.6	0.00090			0.084	183		0.086	159		0.045	164	
	0.190	194	2.8	0.00130			0.084	141		0.086	181		0.045	186	
REVE 16MND5	0.051	62	1.5	0.00005			0.084	83		0.086	76		0.045	63	
	0.100	116	1.7	0.00015			0.084	101		0.086	94		0.045	90	
	0.190	155	1.7	0.00080			0.084	168		0.086	152		0.045	158	
A533B cl.1 JPB	0.080	126	2	0.00040			0.084	121		0.086	122		0.045	125	
	0.140	223	2	0.00210			0.084	212		0.086	216		0.045	218	
A533B cl.1 JPC	0.080	93	2	0.00020			0.084	100		0.086	101		0.045	99	
	0.140	198	2	0.00200			0.084	208		0.086	212		0.045	214	
A508 cl.3 JFL	0.010	64	2	0.00005			0.084	75		0.086	76		0.045	63	
	0.080	117	2	0.00020			0.084	100		0.086	101		0.045	99	
	0.133	170	2	0.00090			0.084	156		0.086	159		0.045	164	
15Kh2MNA	0.029	35	1.8	0.00020			0.084	106		0.086	101		0.045	99	
	0.097	114	1.8	0.00085			0.084	165		0.086	156		0.045	161	
P141 GW	0.010	37	1.8	0.00070			0.084	154		0.086	146		0.045	151	
P141 SG	0.013	61	1.6	0.00005			0.084	81		0.086	76		0.045	63	

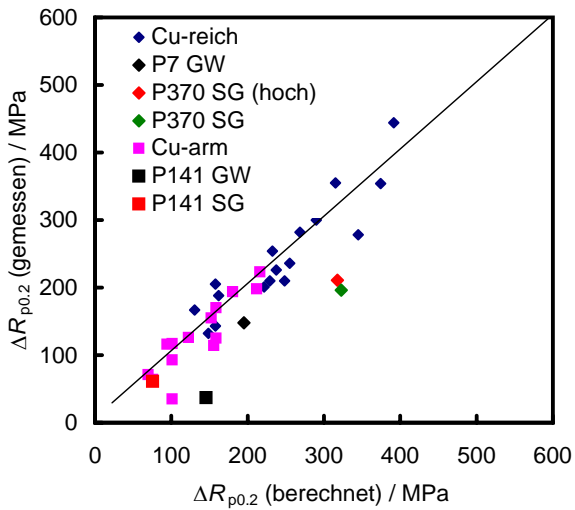
Modell A (SANS)



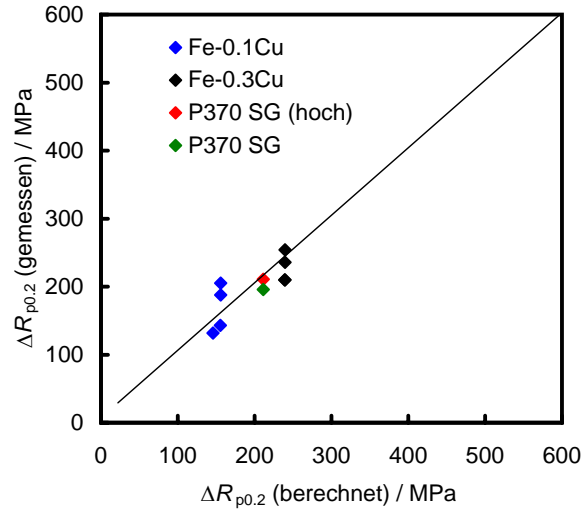
Modell A (RT)



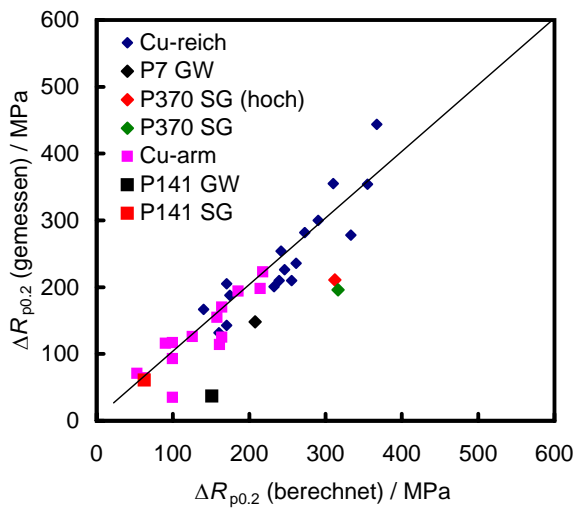
Modell B (SANS)



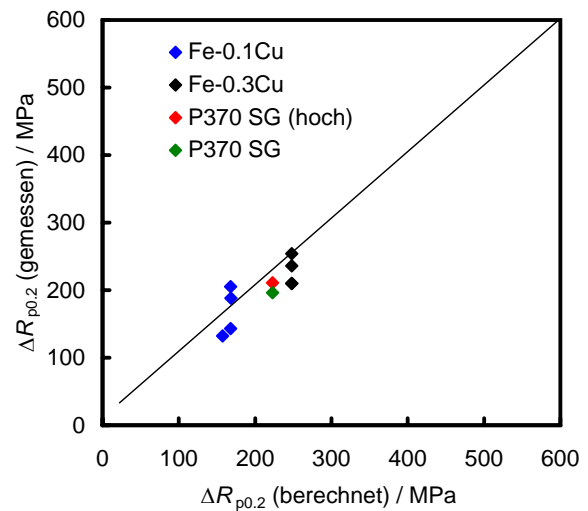
Modell B (RT)



Modell C (SANS)



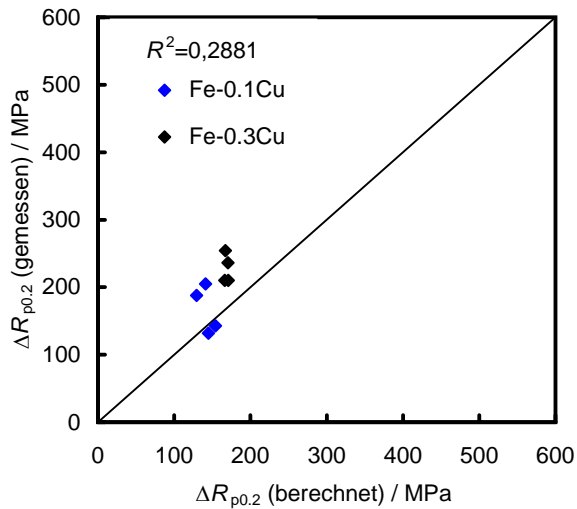
Modell C (RT)



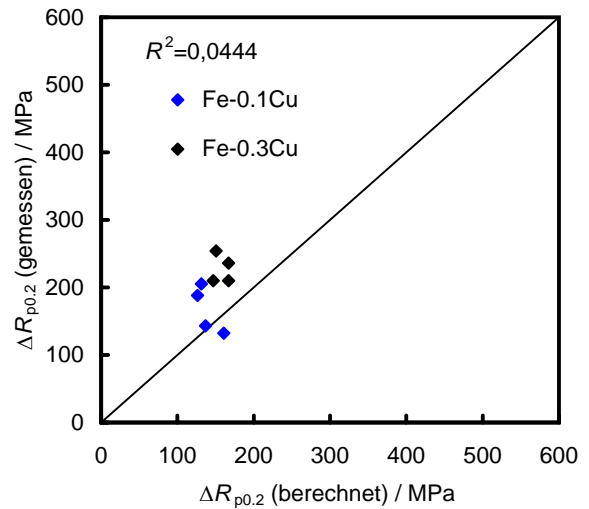
A2.6 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von SANS-Daten und RT-Daten mit fester Hindernisstärke



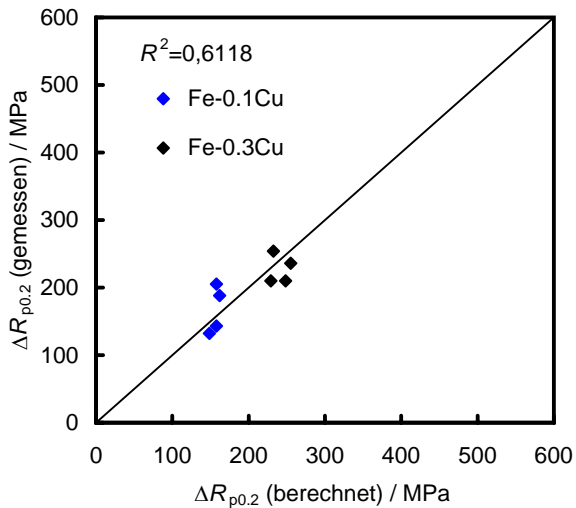
Modell A (SANS fest)



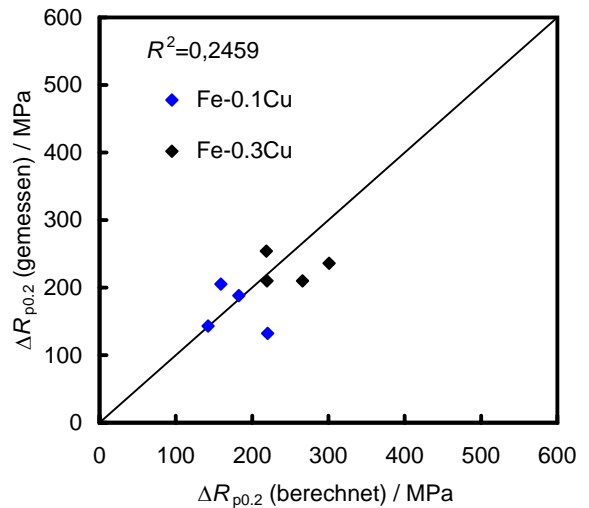
Modell A (SANS variabel)



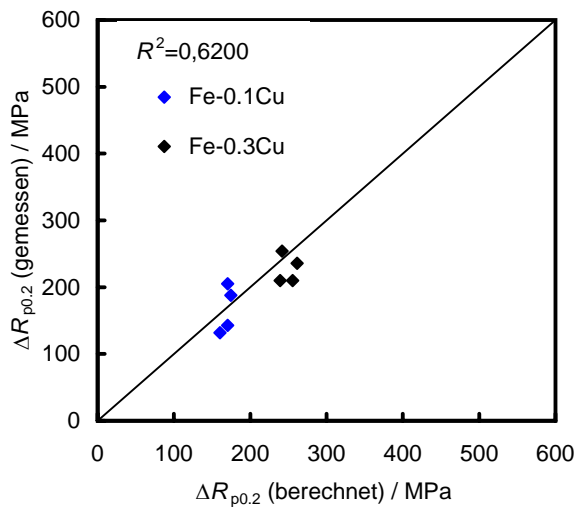
Modell B (SANS fest)



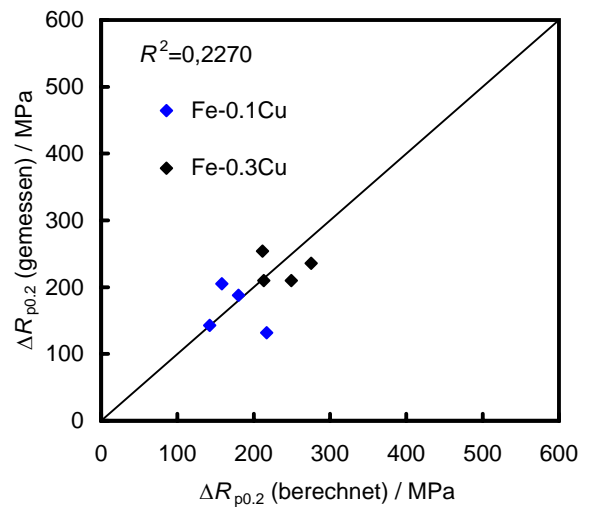
Modell B (SANS variabel)



Modell C (SANS fest)

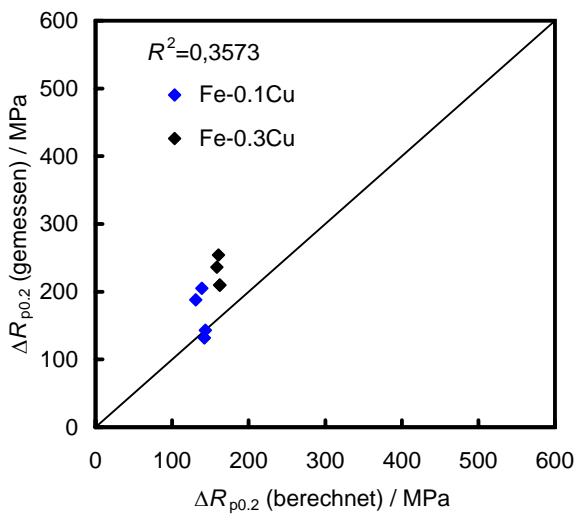


Modell C (SANS variabel)

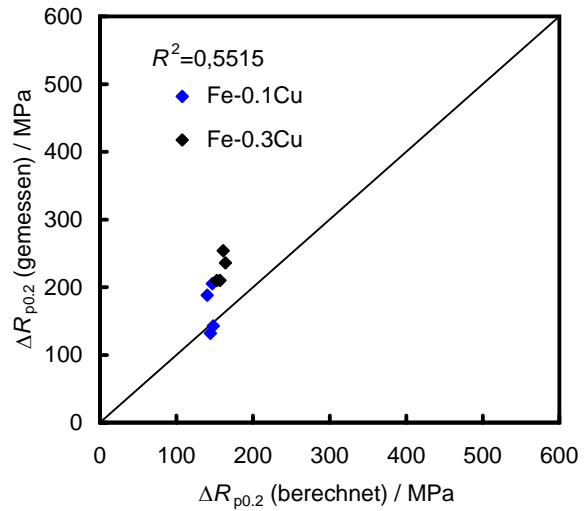


A2.7 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von SANS-Daten mit fester und variabler Hindernisstärke

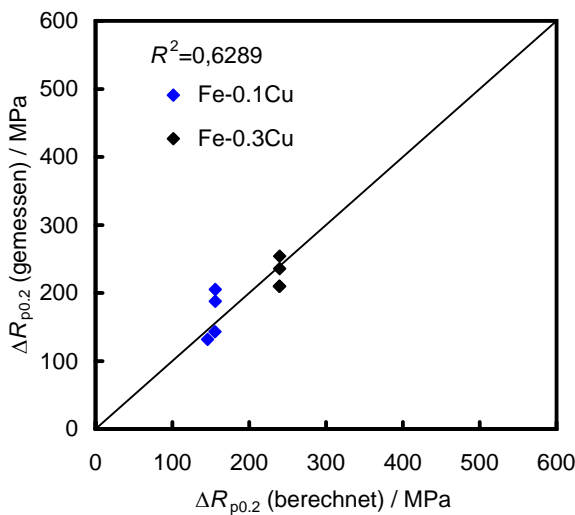
Modell A (RT fest)



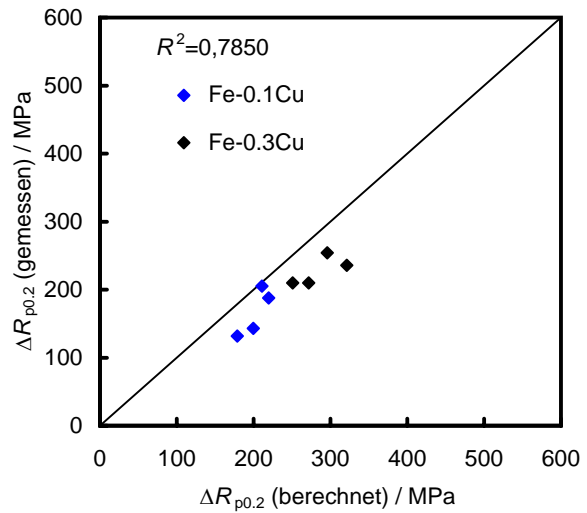
Modell A (RT variabel)



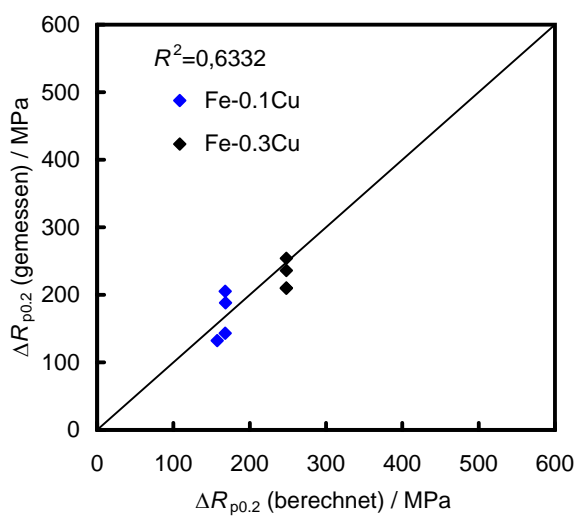
Modell B (RT fest)



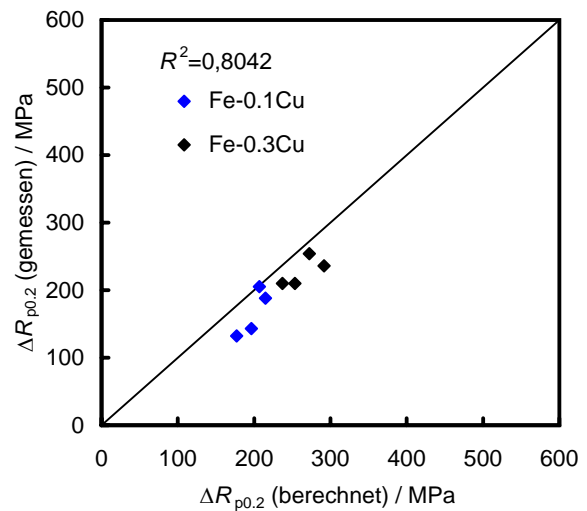
Modell B (RT variabel)



Modell C (RT fest)



Modell C (RT variabel)



A2.8 Diagramme zum Vergleich berechneter und gemessener Streckgrenzenerhöhungen (Validierung), Berechnungen auf der Basis von RT-Daten mit fester und variabler Hindernisstärke