Abschlussbericht

Final Report

Reaktorsicherheitsforschung – Vorhaben-Nr.: 1501605

Reactor Safety Research – Project No.: 1501605

Titel des Vorhabens: Untersuchungen zum Ausheilverhalten von Reaktordruckbehälterstählen bei niedrigen Temperaturen

Project title: Investigations of thermal recovery of reactor pressure vessel steels at low temperatures

Akronym: WetAnnealing

Autoren / Authors: J.-E. Brandenburg, E. Altstadt, F. Bergner, M. Houska

Dienststelle des Autors / Performing Organization: TU Dresden, Lehrstuhl für Radiochemie in Kooperation mit dem Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e.V.

Berichtsdatum / Publication Date: 31.08.2025

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz (BMUV) unter dem Förderkennzeichen 1501605 gefördert

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, nukleare Sicherheit und Verbraucherschutz

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis 1

Zusammenfassung 2

Abstract 3

1 Einführung 4

2 Zielsetzung und Durchführung des Projekts 4

3 Stand der Forschung 6

4 Experimentelle Methoden und Untersuchungen 7

4.1 Materialien 7

4.1.1 Grundwerkstoff GW-8 8

4.1.2 Schweißnahtmaterial SG-4 13

4.2 Herstellung der Proben 15

4.3 Wärmebehandlung 17

4.4 Messung der Vickershärte 18

4.5 Small-punch Test 20

4.6 Referenztemperatur entsprechend dem Master Curve-Konzept 21

4.7 Kleinwinkel-Neutronenstreuung (SANS) 22

4.8 Testmatrix 22

5 Ergebnisse 23

5.1 Vickershärte 23

5.2 Small-Punch Test 26

5.3 Bruchmechanik (Master Curve) 27

5.4 Kleinwinkel-Neutronenstreuung 30

5.5 Grad der Erholung 34

6 Diskussion 34

7 Zusammenfassung 39

Literaturverzeichnis: 40

Anhang I

Ergebnisse der Small-Punch Tests I

Individuelle Bruchmechanik der geprüften Mini-CT Proben XII

Zusammenfassung

Während des laufenden Betriebs sind Reaktornahe Komponenten eines Kernkraftwerks hoher Neutronenstrahlung ausgesetzt, was unter anderem zu einer Versprödung des Materials führt. Insbesondere für den Reaktordruckbehälter (RDB) erhöht dies mit fortlaufender Betriebsdauer das Risiko einer Schädigung bis hin zum kompletten Materialversagen und stellt einen limitierenden Faktor für den sicheren Langfristbetrieb eines Kernkraftwerks dar. Eine Wärmebehandlung kann die Versprödung zumindest teilweise rückgängig machen und bietet somit die Möglichkeit, den Zeitraum für einen sicheren Betrieb des Reaktors zu verlängern. Bei der sogenannten Nassausheilung (engl. *wet annealing*) wird eine Wärmebehandlung des RDB über die Erhitzung des Wassers im primären Kühlkreislauf realisiert. Dies hat den Vorteil, dass kein gesondertes Heizsystem eingebaut werden muss und vorhandene andere Komponenten des Reaktors während der Wärmebehandlung weitgehend eingebaut bleiben können. Durch die auf maximal $T = 343\ °C$ limitierte Ausheiltemperatur verringert sich allerdings die Effektivität der Wärmebehandlung, was möglicherweise durch eine längere Behandlungszeit kompensiert werden kann. Um diesen Aspekt näher zu beleuchten wurden im vorliegenden Projekt Proben aus neutronenbestrahltem Material vom RDB des ehemaligen Kernkraftwerks Greifswald für bis zu 2000 Stunden bei $T = 343°C$ wärmebehandelt und hinsichtlich ausgewählter für die Versprödung charakteristischer Materialeigenschaften (Vickershärte, Duktil-Spröd-Übergangstemperatur und Referenztemperatur entsprechend dem Master-Curve-Konzept) sowie der strahlungsinduzierten Änderung der Mikrostruktur (nachgewiesen durch Kleinwinkel-Neutronenstreuung) mit unbestrahlten Proben desselben Materials verglichen. Dabei konnte schon nach relativ kurzen Glühzeiten von 100h bzw. 300h ein signifikanter Rückgang der strahlungsinduzierten Effekte beobachtet werden. Der Grad der Erholung steigt mit zunehmender Glühdauer weiter an und erreicht bis zu 77% bezüglich der Vickershärte und um die 40% bezüglich der anderen Parameter. Damit konnte gezeigt werden, dass auch eine Wärmebehandlung bei relativ niedrigen Temperaturen zu einem Rückgang der durch Neutronenstrahlung induzierten Versprödung führt und somit die Nassausheilung ein Werkzeug für die Verlängerung der sicheren Betriebsdauer von Kernkraftwerken sein kann.

Abstract

Components near the core of a nuclear power plant are subject to strong neutron irradiation during operation, which among other effects leads to irradiation-induced embrittlement. Especially for the reactor pressure vessel (RPV), this over time increases the risk of material failure and therefore constitutes a limiting factor for the safe long-term operation of the power plant. By annealing at temperatures higher than the irradiation temperature/operation temperature of the power plant, irradiation-induced embrittlement can be at least partially recovered, thus offering an opportunity to prolong the timeframe of safe reactor operation. During so-called wet annealing, the RPV is heated via the primary coolant (e.g. water). This has the advantage that no extra heating system has to be installed and therefore other components can remain inside the reactor during the annealing process. The restricted temperature range of the cooling circle (max. $T = 343\ °C$ for most NPPs) unfortunately limits the effectiveness of the annealing process. This might, however, be compensated by longer annealing times. The present project aims to investigate this aspect by annealing samples of neutron-irradiated base and weld material, which have been taken from the RPV of former nuclear power plant Greifswald, for up to 2000 hours at 343 °C and characterize the recovery of the irradiation-induced embrittlement and changes to the microstructure. Employed experimental methods include hardness-measurement according to Vickers, small-punch tests, master-curve testing and small angle neutron scattering. Comparison with unirradiated reference samples of the same material showed a significant recovery of the irradiation-induced changes after comparatively short annealing times of 100h respectively 300h. The degree of recovery increased with rising annealing time up to 77% with respect to the Vickers hardness and around 40% regarding the other investigated parameters. The project thereby proves that annealing at comparatively low temperatures induces recovery of the embrittlement caused by neutron-irradiation and therefore wet annealing can be used to prolong the window for safe long-term operation of nuclear power plants.

1 Einführung

Angesichts des Klimawandels erfährt seit einigen Jahren auch die Nutzung der Kernenergie als potenziell emissionsarme Energiequelle wieder zunehmendes Interesse, insbesondere im europäischen und außereuropäischen Ausland. Ein oft in diesem Zusammenhang diskutierter Punkt ist dabei die längere Nutzung bestehender Kraftwerke, um so zumindest den Übergangszeitraum zum Aufbau anderer alternativer Energiequellen abzudecken. Um einen sicheren Betrieb über die ursprünglich geplante Lebensdauer hinaus sicherzustellen müssen jedoch einige Aspekte beachtet werden, die zurzeit noch nicht abschließend erforscht sind [1]. Dazu gehört die während des Betriebs zunehmende Versprödung von reaktornahen Komponenten aufgrund der hohen Neutronenstrahlung, die im schlimmsten Fall zu einem vollständigen Materialsagen führen kann und damit einen limitierenden Faktor für die sichere Betriebsdauer darstellt.

Der Reaktordruckbehälter (RDB) umschließt den Reaktorkern und die Brennstäbe in einem Kernkraftwerk und stellt somit eine wichtige sicherheitskritische Komponente dar. Insbesondere bei Druckwasser-Reaktoren, dem weltweit mit Abstand am weitesten verbreiteten Reaktortyp, ist der RDB während des laufenden Betriebs einer konstant hohen Neutronenstrahlung ausgesetzt die zu einer Versprödung des Materials führt und im Laufe der Zeit das Risiko eines Materialversagens erhöht. Das ein kompletter Austausch des RDB in den meisten Fällen nicht ökonomisch ist bedingt die zunehmende Versprödung eine zeitliche Obergrenze für den sicheren Betrieb des Reaktors und schränkt die Gesamtnutzungsdauer des Kernkraftwerks ein [2]. Eine Möglichkeit diese Versprödung zumindest teilweise rückgängig zu machen, und somit den sicheren Betriebszeitraum zu verlängern, ist eine Wärmebehandlung des RDB bei Temperaturen über der ursprünglichen Bestrahlungstemperatur, die im Wesentlichen der Betriebstemperatur entspricht. Unterschieden wird dabei je nach Temperatur und technischer Umsetzung zwischen Trocken- und Nassausheilung (engl. dry bzw. wet annealing) [3, 4].

2 Zielsetzung und Durchführung des Projekts

Obwohl eine Wärmebehandlung entsprechend der Nassausheilung in der Vergangenheit schon (in sehr wenigen Fällen) praktisch eingesetzt wurde, um die strahlungsinduzierte

Versprödung von Reaktordruckbehältern zurückzubilden, sind weiterhin viele Fragen bezüglich der Anwendung und Wirksamkeit des Verfahrens offen. Deshalb wurden in diesem Projekt neutronenbestrahlte Proben aus dem ehemaligen Kernkraftwerk Greifswald langfristig bei der üblicherweise für die Nassausheilung verwendeten Temperatur von 343 °C geglüht und mithilfe unterschiedlicher Methoden hinsichtlich einer Rückbildung der strahlungsinduzierten Änderungen der Mikrostruktur bzw. der dadurch verursachten Versprödung des Materials untersucht.

Konkret wurden dabei die folgenden wissenschaftlichen Fragestellungen untersucht:

- Führt die Wärmebehandlung bei 343 °C zu einem signifikanten Ausheileffekt und wie entwickelt er sich mit fortschreitender Dauer der Ausheilung?
- Wie variiert der Ausheileffekt bezüglich der verschiedenen untersuchten Materialeigenschaften (Mikrostruktur, Härte, Übergangstemperatur)?
- Unterscheiden sich Grundmaterial und Schweißnahtmaterial hinsichtlich der Ausheilung?
- Wie kann effizient mit der begrenzten Menge an neutronenbestrahltem Probenmaterial, das vorhanden ist, umgegangen werden?

In der ursprünglichen Projektplanung wurden die durchzuführenden Arbeiten zwischen der Technischen Universität Dresden (TUD) bzw. dem Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR) und dem russischen Partner Scientific and Engineering Center for Nuclear and Radiation Safety (SEC-NRS) aufgeteilt, wobei der Beitrag des SEC-NRS hauptsächlich im Bereich der Literaturrecherche sowie der Bereitstellung und Analyse von Daten liegen sollte, während die Ausheilversuche und alle experimentellen Untersuchungen am HZDR geplant waren. Wegen der unglücklichen Verkettung einer Reihe von durch die Corona-Pandemie bedingten Verzögerungen des Projektbeginns und der ab Februar 2022 erfolgten Beendigung jeglicher Zusammenarbeit mit russischen Institutionen aufgrund der politischen Situation wurde vom SEC-RES jedoch kein Beitrag zum Projekt geleistet. Der hier vorliegende Abschlussbericht stellt deshalb nur die Ergebnisse der am HZDR durchgeführten Arbeiten dar, deren Fokus auf der Durchführung der Wärmebehandlung und der experimentellen Untersuchung der Proben lag.

3 Stand der Forschung

Bei der Trockenausheilung werden die Brennstäbe und andere Komponenten aus und um den Reaktordruckbehälter entfernt sowie das Kühlwasser abgelassen (daher der Name) damit externe Heizelemente für die Wärmebehandlung eingebaut werden können. Der Vorteil dieser Technik ist, dass sich auch höhere Glühtemperaturen realisieren lassen bei denen z.B. die Duktil-Spröd-Übergangstemperatur (DBTT) des Materials schon nach relativ kurzer Glühzeit wieder nahezu dem unbestrahlten Ausgangszustand entspricht [5]. Nachteilig ist neben dem hohen Aufwand für die Entfernung der Reaktorkomponenten und den Einbau der Heizelemente auch das Risiko zu hoher Eigenspannungen im RDB während und nach der thermischen Behandlung. Trotzdem wurde das Verfahren der Trockenausheilung schon mehrfach erfolgreich umgesetzt, insbesondere bei Reaktoren des Typs VVER-440 [6]. Die Wirksamkeit einer bei 475°C durchgeführten Trockenausheilung am RDB von Block 1 des KKW Greifswald wurde beispielsweise zunächst durch die Auswertung sogenannter „boat samples" aus der Innenwand des RDB festgestellt [7] und später bei der Untersuchung von Bohrkernen, die dem RDB nach der Außerdienststellung des Reaktors entnommen wurden, erneut bestätigt [8].

Bei der Nassausheilung [9] wird statt der Verwendung externer Heizelemente das Wasser des primären Kühlkreislaufs über die sonst übliche Betriebstemperatur hinaus erhitzt und für die Wärmebehandlung genutzt. Dies setzt der erreichbaren Glühtemperatur enge Grenzen, da mit der Temperatur auch der Druck im primären Kühlkreislauf ansteigt welcher designbedingt bewusst limitiert ist. Üblicherweise lassen sich deshalb höchstens Temperaturen von 343 °C erreichen. Vorteilhaft ist dafür, dass der Aufwand für den Ausbau der Brennelemente und die Installation der externen Heizung entfällt und die Wärmebehandlung zudem innerhalb der vom Design her vorgesehenen Parameter des Reaktors abläuft wodurch Schädigungen des RDB vermieden werden. Wegen der niedrigen Temperatur ist die Effektivität der Wärmebehandlung bzw. der zu erwartende Erholungsgrad jedoch geringer, so dass bisher nur wenige Nassausheilungen in der Praxis umgesetzt wurden. Zur Verlängerung der Lebensdauer des SM-1A Reaktors der US Army wurde beispielsweise das Wasser des Kühlkreislaufs durch die Wärme der Brennstäbe für 143 Stunden auf 300 °C erhitzt (gegenüber einer Betriebstemperatur von ca. 220 °C) und dadurch eine Erholung der DBTT um ca. 70% erreicht

[10]. Eine Nassausheilung des Belgischen Reaktors BR-3 für 168 Stunden bei 343 °C (Betriebstemperatur 260 °C) erzielte jedoch nur einen Erholungsgrad um die 50% [11]. In Laborversuchen zur geplanten, aber letztlich nicht durchgeführten, Nassausheilung des Reaktors der Yankee Rowe Nuclear Power Station (selbe Ausheil- sowie Betriebstemperatur wie BR-3) wurden vergleichbare Erholungsgrade im Bereich 45-50% erzielt [12].

Laut [13] ist kein signifikanter Ausheileffekt zu erwarten, wenn die Temperatur der Wärmebehandlung nicht mindestens 70K über der Temperatur während der Bestrahlung liegt. Die typische Betriebs- und damit Bestrahlungstemperatur für den Druckbehälter eines Reaktors des Typs VVER-440 liegt bei 270 °C und damit in etwa 70K unter der während der Nassausheilung maximal erreichbaren Temperatur von 343 °C. Aufgrund des als geringfügig erwarteten Effekts wurde die Nassausheilung deshalb lange Zeit als nicht zweckdienlich für eine Verlängerung der Betriebsdauer solcher Reaktoren eingeschätzt [9, 14]. Bei genauerer Betrachtung zeigte sich allerdings schon in den älteren Studien eine Erholung der DBTT von durchschnittlich 20% [14]. Für RDB-Stähle mit geringem CU-Anteil, wie z.B. den in diesem Projekt untersuchten Materialien, wurden sogar tendenziell höhere Ausheilraten beobachtet [15]. Eine genauere Untersuchung des Ausheilverhaltens solcher Werkstoffe während der Nassausheilung ist also sinnvoll, um möglicherweise neue Optionen für die Verlängerung der Betriebsdauer von VVER-440-Reaktoren zu erschließen.

4 Experimentelle Methoden und Untersuchungen

4.1 Materialien

Bei den untersuchten Materialien handelt es sich um Reaktordruckbehälterstähle der ersten bzw. zweiten VVER-440 Generation aus dem ehemaligen Kernkraftwerk Greifswald. Der Grundwerkstoff GW-8 stammt aus Block 8 des Kraftwerks, der letztlich nicht mehr in Betrieb genommen wurde, und lag deshalb ursprünglich nur im unbestrahlten Zustand vor. Teile des Ausgangsmaterials wurden nachträglich im Zuge des NAP-2(C) Experiments im Forschungsreaktor des EK-CER (Budapest, Ungarn) bestrahlt [16]. Das Schweißnahtmaterial SG-4 wiederum wurde im Zuge der Stilllegung dem RDB des, zwischen 1979 und 1990 für insgesamt 3208 Tage in Betrieb befindlichen, Kraftwerkblocks 4 entnommen und war zu Beginn des vorliegenden Projekts nicht mehr im unbestrahlten Zustand verfügbar. Um Referenzproben zur Bestimmung des Erholungsgrades für dieses Material zu erhalten wurde

deshalb ein Teil des Materials längerfristig bei einer Temperatur deutlich oberhalb der Betriebs-/ bzw. Bestrahlungstemperatur geglüht, wodurch ein Ausheilgrad von nahezu 100% sichergestellt werden kann [17].

4.1.1 Grundwerkstoff GW-8

Der ursprünglich für Greifswald Block 8 vorgesehene Reaktordruckbehälter wurde von den Skoda Stahlwerken (Tschechische Republik) auf Grundlage geschmiedeter Ringe hergestellt und entspricht einem VVER-404/V213 Design der zweiten Generation. Da Block 8 jedoch bis zur Außerdienststellung des Kraftwerks nicht mehr in Betrieb ging wurde der RDB zur Entsorgung des nicht-strahlenden Materials in Segmente zerteilt von denen einige für wissenschaftliche Untersuchungen zur Verfügung gestellt wurden. Das im vorliegenden Projekt untersuchte Material stammt aus Segment G3.B1.8 was dem geschmiedeten Ring 0.3.1 auf etwa halber Höhe des RDB entspricht, die genaue Lage ist in Abbildung 4.1 dargestellt. Die im vorliegenden Projekt untersuchten Proben wurden aus zerbrochenen Hälften von Charpy-V-Proben hergestellt, die in einem vorangehenden Projekt getestet wurden. Die Orientierung dieser ursprünglichen Proben innerhalb des Segments G3.B1.8 ist ebenfalls in Abbildung 4.1 angegeben.

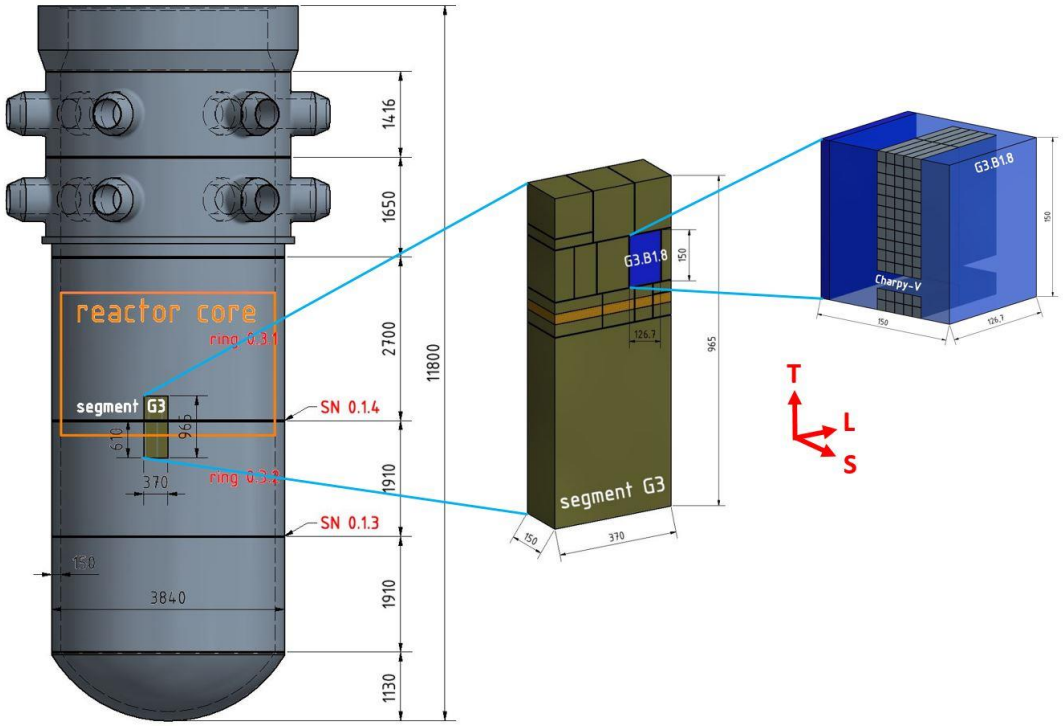


Abbildung 4.1: Lage des für die Untersuchung des Grundwerkstoffs verwendeten Segments G3.B1.8 sowie der ursprünglichen Charpy-V-Proben im Reaktordruckbehälter von Block 8 KKW Greifswald.

Das Material ist ein Stahl des Typs 15Kh2MFAA mit der in Tabelle 1 angegebenen chemischen Zusammensetzung und wurde während des Herstellung des Reaktordruckbehälters der folgenden Wärmebehandlung unterzogen [18]:

- Austenitisierung bei 1000°C gefolgt von Abschreckung in Öl
- Anlassen bei 680-720°C und anschließende Abkühlung an Luft
- Homogenisierung bei 665°C für 31-95 Stunden und Abkühlung im Ofen
- Spannungsarmglühen nach dem Unterpulverschweißen der geschmiedeten Ringe zum Zusammenbau des RDB

	C	Mn	Si	Cr	Ni	Mo	V	P	Cu
15Kh2MFAA / GW-8	0,15	0,45	0,30	2,86	0,10	0,79	0,31	0,008	0,05
10KhMFT / SG-4	0,04	1,10	0,31	1,47	0,13	0,49	0,17	0,032	0,13

Tabelle 1: Chemische Zusammensetzung der untersuchten RDB-Stähle in Gewichtsprozent, (Restanteil: Fe).

Das Ergebnis ist ein weitgehend homogener Stahl dessen Mikrostruktur beispielhaft anhand des metallographischen Gefüges in Abbildung 4.2 sowie als EBSD-Orientierungsmapping in Abbildung 4.3 dargestellt ist. Sie entspricht einer oberen (körnigen) Bainit-Struktur. Die durchschnittliche ehemalige Austenit-Korngröße beträgt im Mittel 177 µm und variiert von 50 bis 600 µm. Die Mangan-Silizium Einschlüsse haben eine durchschnittliche Größe von 20 µm und ihre maximale Größe überschreitet in einigen Fällen 200 µm.

Abbildung 4.2: Metallographisches Gefüge des Grundwerkstoffs GW-8.

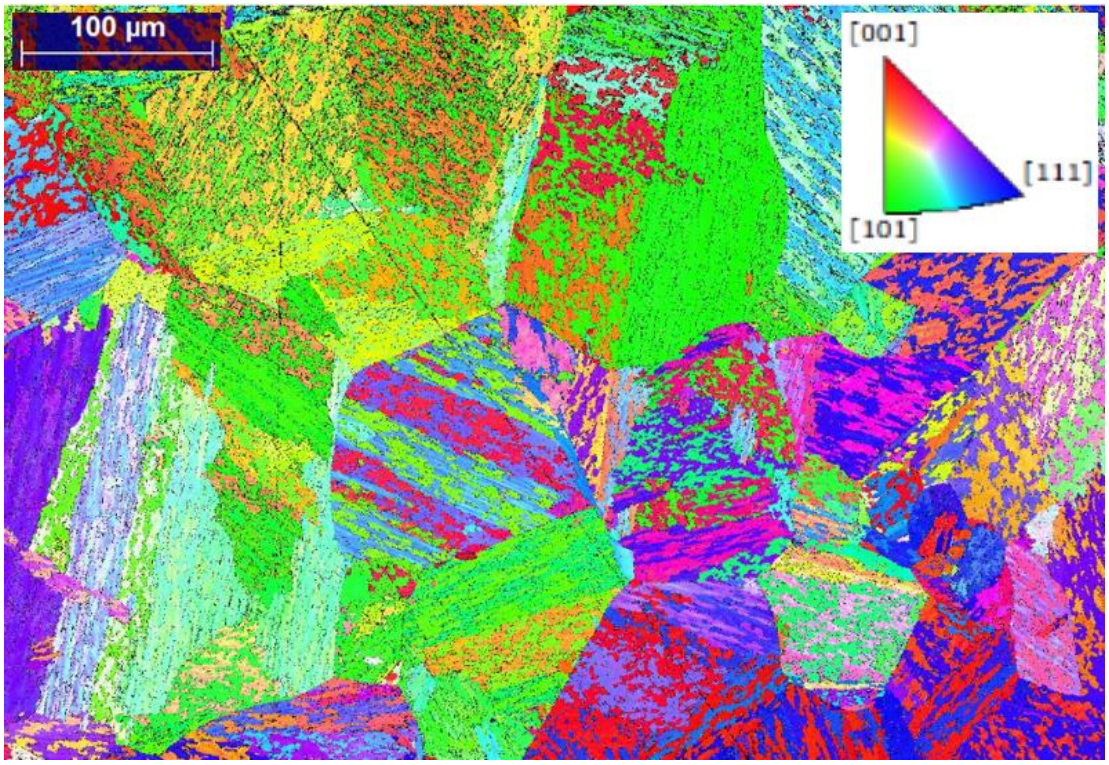


Abbildung 4.3: EBSD-Orientierungsmapping für den Grundwerkstoff GW-8.

Insbesondere in der mittels EBSD erzeugten Darstellung der Kornorientierungen wird die hierarchische Mikrostruktur des Bainits deutlich (Abbildung 4.4). Die ehemaligen Austenitkörner sind in Blöcke und Pakete unterteilt. Innerhalb eines Blockes gibt es Pakete mit zwei verschiedenen Orientierungen, die durch großwinklige Paketgrenzen getrennt sind. Die Breite der Paketbündel beträgt im Mittel $45 \pm 4\ \mu m$ und reicht von 18 µm bis 157 µm, was nahe an der ehemaligen Austenitkorngröße liegt. Die Pakete sind in kleinere Einheiten unterteilt die durch Kleinwinkelkorngrenzen voneinander getrennt sind.

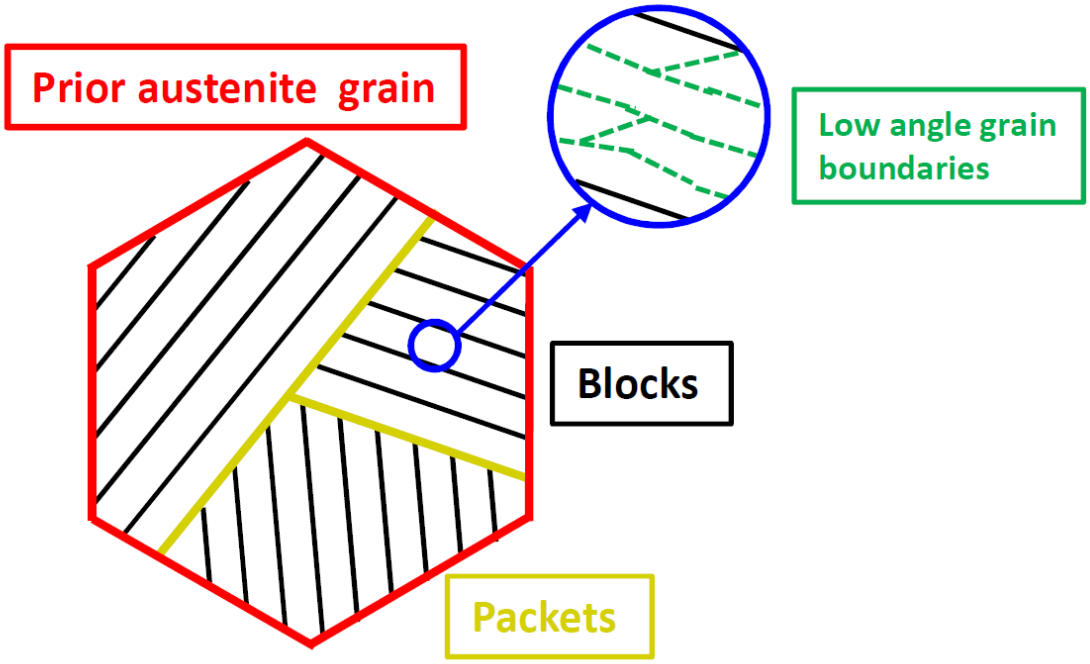


Abbildung 4.4: Schematische Struktur des Bainits.

Da Block 8 des KKW Greifswald nicht mehr in Betrieb genommen wurde stand das Material ursprünglich nur im unbestrahlten Zustand zur Verfügung. Im Rahmen früherer Projekte wurden jedoch verschiedene Serien neutronenbestrahlter Proben durch nachträgliche Bestrahlung des Ausgangsmaterials hergestellt. Das in diesem Projekt untersuchte Material wurde im Zuge des NAP-2(C) Experiments in der BAGIRA Bestrahlungsvorrichtung am Versuchsreaktor des EK-CER in Budapest unter den in Tabelle 2 angegebenen Bedingungen bestrahlt [16]. Dabei ist zu beachten, dass sich die Bestrahlungsbedingungen (insbesondere die um drei Größenordnungen höhere Flussrate) deutlich von denen während des realen Kraftwerksbetriebs (vergleichbar mit SG-4 in Tabelle 2) unterscheiden.

	Temperatur [°C]	Zeit [Tage]	Fluenz, $E > 1\ MeV$ $[10^{19}\ n/cm^2]$	Flussrate, $E > 1\ MeV$ $[10^{19}\ n/cm^2 s]$
GW-8	290	48,75	11,7	27,8
SG-4	270	3207,9	1,073	0,0387

Tabelle 2: Bestrahlungsbedingungen der untersuchten RDB-Stähle.

4.1.2 Schweißnahtmaterial SG-4

Das im Folgenden als SG-4 bezeichnete Schweißnahtmaterial wurde aus dem Reaktordruckbehälter des zwischen 1979 und 1990 in Betrieb befindlichen Block 4 des KKW Greifswald nach dessen Stilllegung in Form von Bohrkernen ($\emptyset = 119\,mm$) mithilfe eines speziellen Hohlbohrers [19] herausgeschnitten. Wie auch für den Grundwerkstoff GW-8 wurden die in diesem Projekt untersuchten Proben aus zerbrochenen Hälften von Charpy-V-Proben geschnitten, die ursprünglich in einem anderen Projekt getestet wurden. In diesem Fall entstammt das Material einem Bohrkern aus der Gürtellinien-Schweißnaht SN 0.1.4, dessen Lage im RDB in Abbildung 4.5 dargestellt ist.

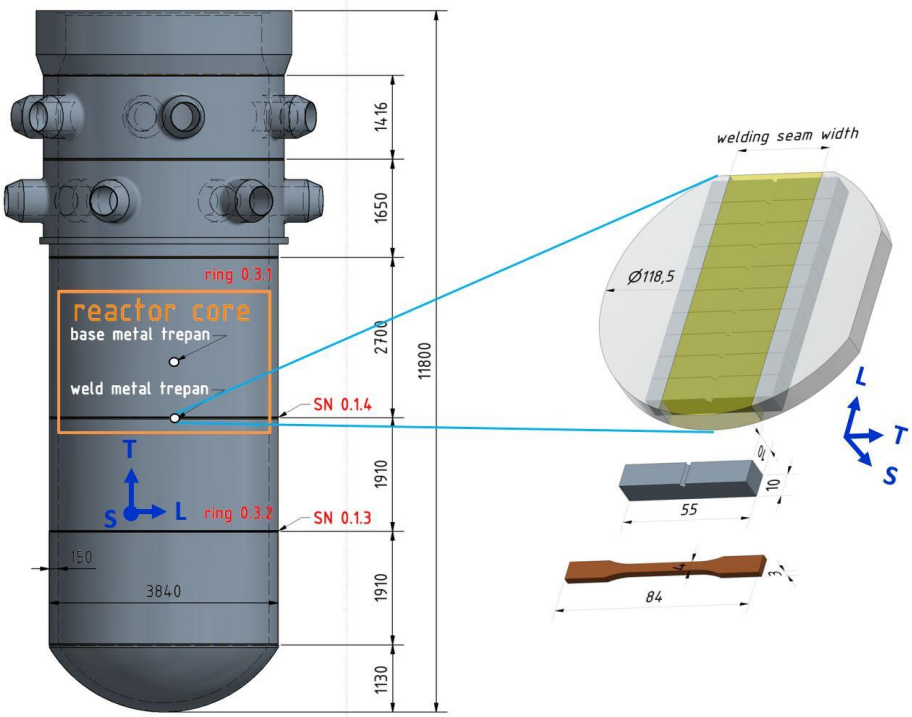


Abbildung 4.5: Lage des untersuchten Bohrkerns der Schweißnaht in Block 4 KKW Greifswald und Orientierung des ursprünglichen Charpy-V Proben.

Abbildung 4.6 zeigt einen geätzten Querschnitt des Bohrkerns, auf dem deutlich die helle Schweißnaht innerhalb des dunkleren Grundwerkstoffs erkennbar ist. Das Material für die Proben wurden an einer Stelle entnommen, die einer Entfernung von 76mm von der Innenseite des RDB entspricht.

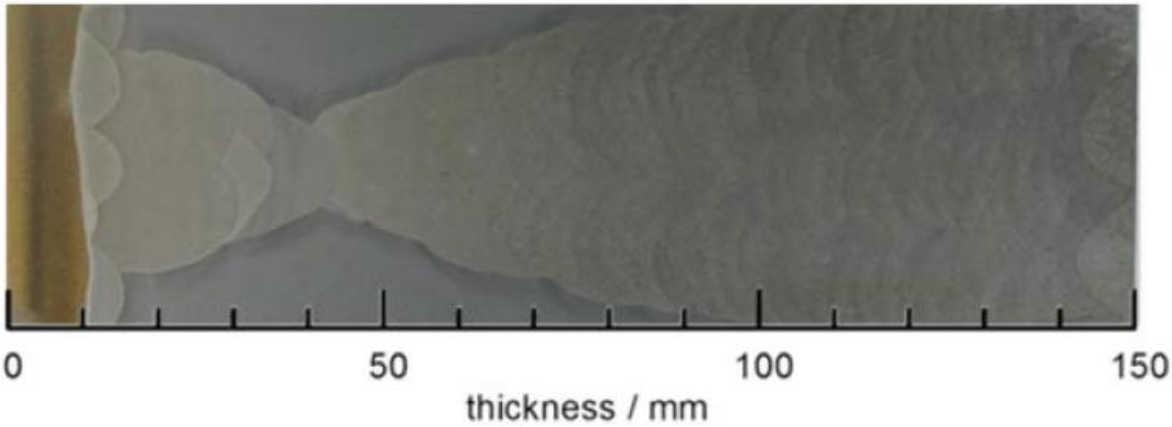


Abbildung 4.6: Geätzter Querschnitts des Bohrkerns SN 0.1.4 [20]. Mehrlagenschweißnaht (hell) umgeben von Grundwerkstoff (dunkel).

Block 4 war ein VVER-440/V230 Reaktor der ersten Generation nach einem Entwurf von OKB Gidropress. Der RDB wurde in den Izhora-Werken (ehem. Sowjenunion) im Unterpulver-schweißverfahren aus geschmiedeten Ringen hergestellt [21]. Das Material entspricht einem RDB-Stahl des Typs 10KhMFT mit der in Tabelle 2 angegebenen Zusammensetzung. Von dem aktiv strahlenden Material konnten keine elektronenmikroskopischen Aufnahmen zur genaueren Charakterisierung der Mikrostruktur angefertigt werden. Stattdessen wurden EBSD-Messungen der Kornorientierung, an einem vergleichbaren Schweißnahtmaterial (Sv10KhMFT, AR-W Armenia Block 2) durchgeführt das auch im unbestrahlten Zustand zur Verfügung stand (Abbildung 4.7). Die Struktur entspricht größtenteils nadelförmigem Ferrit mit darin verteilten sehr großen Körnern des ehemaligen Austenits. Die Korngrößenverteilung ist dadurch sehr inhomogen und liegt zwischen $d = 0{,}51\ \mu m$ und $d = 14{,}82\ \mu m$ bei einer durchschnittlichen Größe von $d = 1{,}14\ \mu m$.

Während des Kraftwerkbetriebs war Block 4 an insgesamt 3208 Betriebstagen aktiv und das Schweißnahtmaterial wurde damit effektiv unter den in Tabelle 2 angegebenen Bedingungen neutronenbestrahlt. Es wurde keine weitere Bestrahlung durchgeführt, so dass die vorliegenden Proben exakt dem durch einen praktischen Kraftwerksbetrieb hervorgerufenen Bestrahlungszustand entsprechen.

Zu Beginn des Projekts standen keine unbestrahlten Chargen des SG-4 Materials mehr zur Verfügung. Bei einem Teil der Proben wurde deshalb eine mehrstündige Wärmebehandlung bei einer Temperatur deutlich über der Betriebs- bzw. Bestrahlungstemperatur durchgeführt.

Aus vorangehenden Untersuchungen [17] ist bekannt, dass diese Art von Wärmebehandlung zu einer nahezu vollständigen Erholung der strahlungsinduzierten Änderung der Mikrostruktur führt. Entsprechend behandelte Proben konnten deshalb als Substitution für unbestrahlte SG-4 Proben verwendet werden.

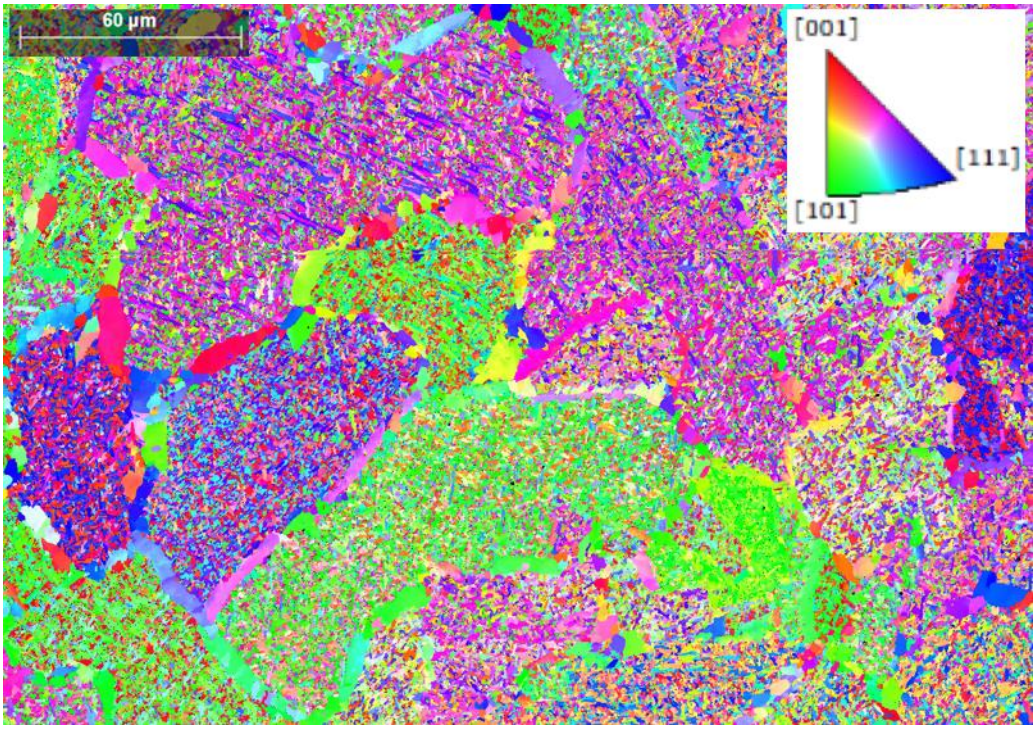


Abbildung 4.7: EBSD-Orientierungsmapping einer Schweißnaht des Typs 10KhMFT (AR-W Armenia Block 2).

4.2 Herstellung der Proben

Alle Proben wurden mittels Drahterodierung (EDM) aus zerbrochenen Hälften in vorangehenden Projekten getesteter Charpy-V-Proben hergestellt. Die Lage dieser ursprünglichen Proben im Reaktordruckbehälter ist in Abbildung 4.8 dargestellt. Als Proben für die Vickers-Härteprüfung sowie sie SANS-Messungen wurden Scheiben der Größe 10x10x1mm³ geschnitten (Abbildung 4.9a) und auf einer Seite mechanisch bis zu einer Körnung von P1200 abgeschliffen, um eine glatte und verformungsfreie Oberfläche sicherzustellen. Für die Small-punch Tests wurden ebenfalls dünne Scheiben (10x10x0,5mm³; Abbildung 4.9b) geschnitten. Aufgrund der geringeren Anforderungen an die Probenoberfläche wurde in diesem Fall auf ein mechanisches Schleifen verzichtet. Stattdessen wurde der Erodierdraht nach dem ersten Schnitt in zwei weiteren Passagen mit jeweils

geringerer Geschwindigkeit und angepassten Parametern an der Probe entlanggeführt. So konnte ohne weitere Nachbehandlung eine ausreichend glatte Oberfläche mit nur wenig ausgeprägter Oxidschicht erzielt werden.

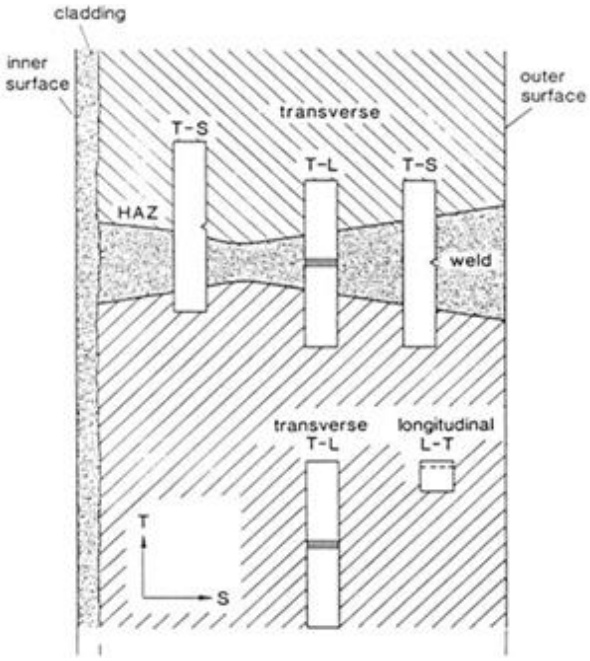
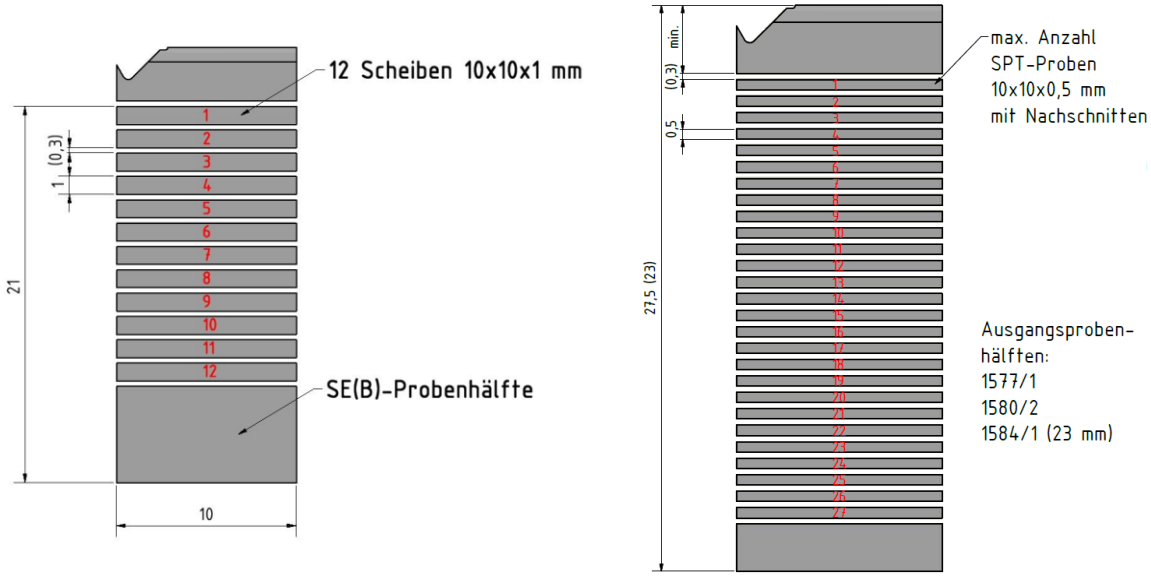


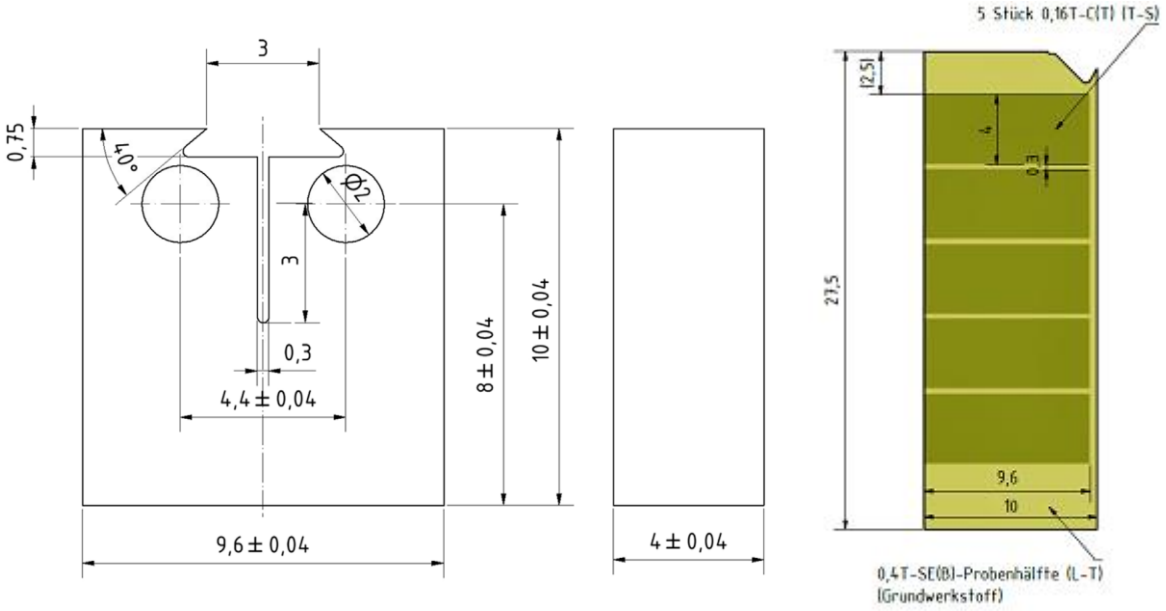
Abbildung 4.8: Orientierung der ursprünglichen L-T (GW-8) und T-L (GW-4) Charpy-V-Proben [20].



a. b.

Abbildung 4.9: Schnittplan für Vickers-Härteprüfung (a.) bzw. SPT-Proben (b.) aus Hälften zerbrochener Charpy-V-Proben.

Zur Herstellung der 0,16T-CT(Mini-CT)-Proben wurden zunächst Blöcke der Dimension 9,6x10x4mm³ aus den Charpy-V-Probenhälften herausgeschnitten (Abbildung 4.10b) und anschließend durch weitere Schnitte sowie Bohrungen zu der in Abbildung 4.10a skizzierten Geometrie verarbeite, die dem ASTM E1921-21 Standard entspricht. Anschließend wurden die Proben mit einem *Swingly 1 kN micro*-Pulsator (SincoTec) auf eine initiale Risslänge von $a_0 \approx 4\ mm$ angeschwungen.



a. b.

Abbildung 4.10: Geometrie der 0,16T-C(T) Proben für bruchmechanische Untersuchungen und Lage der Proben in den ursprünglichen Charpy-V-Probenhälften.

4.3 Wärmebehandlung

Zur Simulation einer zeitlich fortschreitenden Nassausheilung des mit Neutronen bestrahlten Materials wurden einige der entsprechenden Charpy-V-Probenhälften vor der Proben-herstellung bei einer Temperatur von 343 °C und unter Argonatmosphäre für 100, 300, 1000 sowie 2000 Stunden in einem Röhrenofen (Carbolite Gero mit Inertgas Aufwertung) wärmebehandelt. Die Temperatur wurde über einen Eurotherm Controller und auf den Probenhälften angebrachte Thermoelemente kontrolliert und nach einer Aufheizphase mit 15 °C/s über die gesamte Glühdauer innerhalb von ± 1 °C um die Zieltemperatur von 343 °C gehalten. Danach wurde der Ofen abgeschaltet und die Probenhälften nach vollständiger Abkühlung wie in Abschnitt 4.2 beschrieben zu den im vorliegenden Projekt verwendeten Proben weiterverarbeitet.

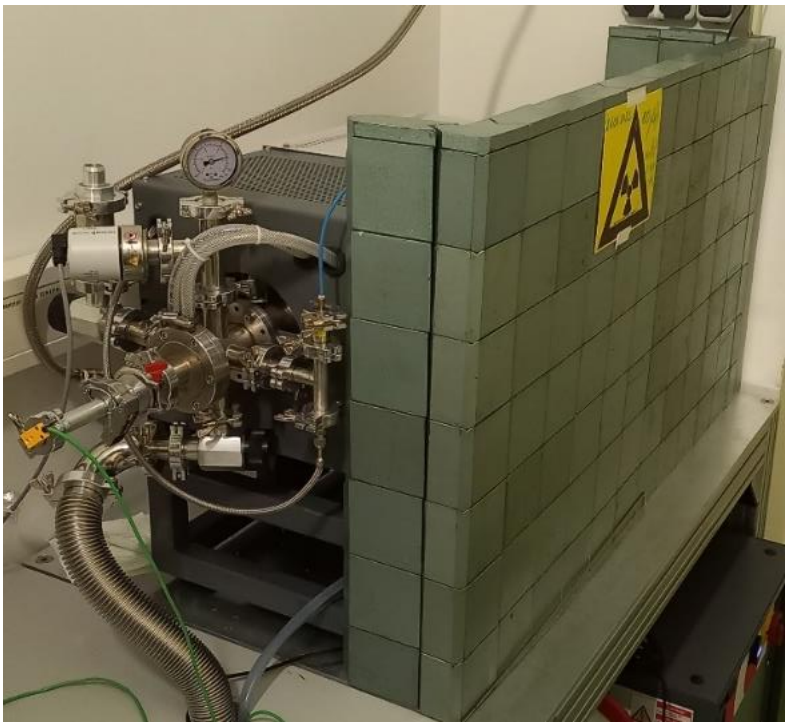


Abbildung 4.11: Für die Wärmebehandlung verwendeter Einröhrenofen Carbolite Gero mit Inertgas Aufwertung (FHA 13/50/200) und Strahlenschutzblöcken aus Blei.

Derselbe Ofen wurde auch verwendet um einen Teil des nur im neutronenbestrahlten Zustand verfügbaren Schweißnahtmaterials SG-4 für 152 Stunden bei 475 °C zu glühen. In früheren Untersuchungen zum Trockenausheilverhalten dieses Materials wurde nachgewiesen, dass eine solche Glühung zu einer praktisch vollständigen Rückbildung der durch Neutronenstrahlung induzierten Änderungen der Mikrostruktur führt [17]. Die auf diesem Wege wärmebehandelten Proben wurden deshalb im weiteren Verlauf des Projekts als Substitution für unbestrahltes Schweißnahtmaterial untersucht.

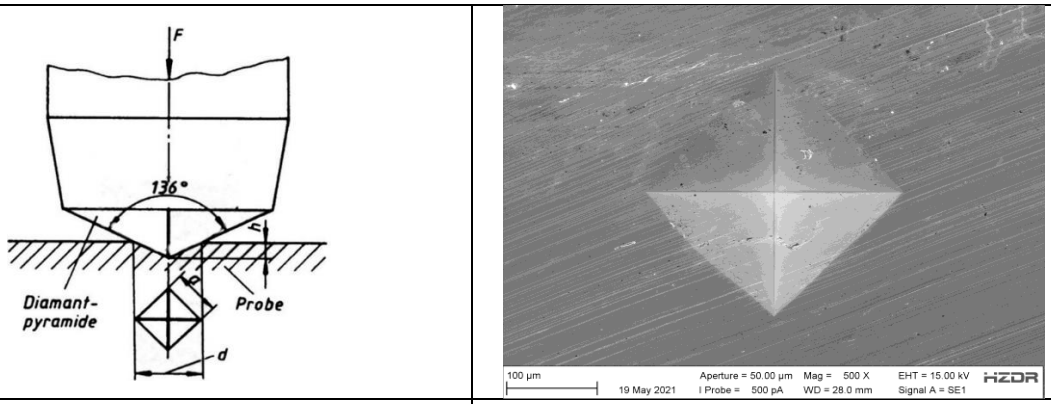
4.4 Messung der Vickershärte

Die Messung der Vickershärte wurde mit einer Universalprüfmaschine ZHU 2.5 (Abbildung 4.12) der Firma Zwick/Roell mit eingebautem optischen Mikroskop und entsprechend der Norm 6507 durchgeführt. Bei dem Verfahren wird ein pyramidenförmiger Eindringkörper mit einer definierten Kraft in das zu prüfende Material gepresst (Abbildung 4.13a) und der resultierende Eindruck (Abbildung 4.13b) optisch vermessen. Die Vickershärte kann dann aus der Kraft F (hier 98,1 N / Härteskala HV10) und der Diagonale d des verbleibenden Eindrucks entsprechend Gleichung 1 berechnet werden.

$$HV = 0{,}1891\frac{F}{d^2} \qquad (1)$$

Abbildung 4.12: Härteprüfgerät ZHU 2.5 mit Strahlenschutzabschirmung.

Für jeden untersuchten Materialzustand wurde die Vickershärte als Durchschnitt über mindestens 16 gültige Messungen mit einem Abstand von 500 µm zwischen den Eindrücken bestimmt. Die korrekte Kalibrierung des Systems wurde vor und regelmäßig während der Messreihen mithilfe einer Referenzprobe bekannter Härte kontrolliert.



a. b.

Abbildung 4.13: a.) Schematische Darstellung der Vickers-Härteprüfung (nach Norm 6507) und b.) typischer Eindruck in Grundwerkstoff GW-8.

4.5 Small-punch Test

Die Duktil-Spröd-Übergangstemperatur des Grundwerkstoffs GW-8 wurde mit dem Small-punch Testverfahren entsprechend der europäischen Norm EN 10371 bestimmt. Dabei werden dünne Scheiben des zu testenden Materials in einem Probenhalter mit kreisförmiger Aussparung eingespannt und durch das Anpressen eines sphärischen Stempels bzw. einer aufliegenden Kugel bei konstanter Geschwindigkeit bis zum Versagen gedehnt (Abbildung 4.14).

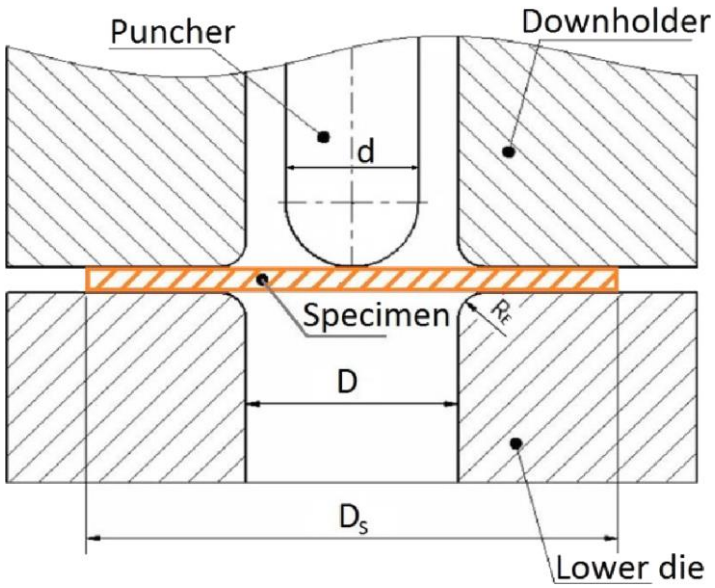


Abbildung 4.14: Schematische Darstellung des Small-Punch Testverfahrens [22].

Die Tests wurden an einer Universalprüfmaschine des Typs Inspekt 10 (Hegewald & Peschke) in einem selbst angefertigten Probenhalter mit den folgenden wesentlichen Parametern durchgeführt:

- Durchmesser des Stempels: $d = 2{,}5\ mm$
- Durchmesser der Aussparung im Probenhalter: $D = 4\ mm$
- Kantentyp des Probenhalters: $0{,}2\ mm \times 45°$
- Messung der Stempelverschiebung v über induktiven Sensor mit Genauigkeit ±1 µm
- Kraftmessung über kalibrierte Kraftmesszelle (±5 N)

Eine genauere Beschreibung kann in [22] gefunden werden.

Eine Reihe von Testtemperaturen zwischen -160 °C und 26° C wurde durch die kontrollierte Kombination von Stickstoffkühlung und induktiver Heizung mittels einer Temperatur-kontrolleinheit (cRio von National Instruments) eingestellt. Für jeden Test wurde dann die Small-Punch Energie E_m als Integral der Last-Verschiebungs-Kurve F(v) bis zur maximalen Kraft F_m berechnet und die Duktil-Spröd-Übergangstemperatur (DBTT) aus einer tanh-Ausgleichs-kurve der normalisierten Small-Punch Energie $E_n = E_m/F_m$ gegenüber der Testtemperatur bestimmt. Entsprechend der Norm EN 10371 ist die DBTT in diesem Fall diejenige Temperatur, bei der die Ausgleichskurve den Punkt zwischen ihrer Hoch- und Tieflage schneidet.

4.6 Referenztemperatur entsprechend dem Master Curve-Konzept

Die Bruchzähigkeit wurde an Mini-CT Proben gemessen und entsprechend den Vorgaben des Standards ASTM E1921-21 nach dem Master Curve-Konzept [23] ausgewertet. Angerissene 0,16T-(C)T Proben (Abbildung 4.10a) wurden dazu in einer Servohydraulischen Testmaschine (MTS 810.21) zyklisch belastet und das resultierende Risswachstums mit einem Ansetz-aufnehmer (clip-on Extensometer Modell 3541-005M-025M-LHT von Epsilon Technology) überwacht und. Aus den so ermittelten Werten wurden zunächst die elastische und plastische Komponente des J-Integrals am Punkt der Rissinstabilität sowie anschließend die Bruchzähigkeit berechnet. Um den Einfluss der geringeren Probengröße zu kompensieren wurde die gemessene Bruchzähigkeit $K_{JC(0.16T)}$ gemäß Gleichung 2 in den Wert umgerechnet, der bei der Messung an Proben der Standardgröße 1T-(C)T zu erwarten wäre.

$$K_{JC(1T)} = 7{,}4MPa\sqrt{m} + 0{,}63 \cdot K_{JC(0.16T)} \qquad (2)$$

Wie bei den Small-Punch Tests wurde $K_{JC(1T)}$ mit diesem Verfahren in einem weiten Temperaturbereich (T=-130 °C bis T=-45 °C) ermittelt und anschließend mit einer Ausgleichskurve ausgewertet, in diesem Fall der namensgebenden Master Curve für die mittlere, an 1T-(C)T Proben gemessene Bruchzähigkeit (Gleichung 3; [23])

$$K_{JC(1T,med)} = 30 + 70 \cdot \exp[0{,}19(T - T_0)]\, MPa\sqrt{m} \qquad (3)$$

T_0 wird als Referenztemperatur bezeichnet und gibt diejenige Temperatur an, bei der die (mittlere) Bruchzähigkeit einen Wert von $100\ MPa\sqrt{m}$ überschreitet.

Mit konstant gehaltenem Wert für T_0 und abgewandelten Versionen von Gleichung 3 wurden auch Kurven für die untere 2% bzw. obere 98% Grenze der Bruchzähigkeitsverteilung berechnet:

$$K_{JC(1T,2\%)} = 24{,}1 + 29 \cdot \exp[0{,}19(T - T_0)]\ MPa\sqrt{m} \quad (4)$$

$$K_{JC(1T,98\%)} = 35{,}5 + 108{,}3 \cdot \exp[0{,}19(T - T_0)]\ MPa\sqrt{m} \quad (5)$$

Details zum Master Curve-Konzept und den durchgeführten Konvertierungs- sowie Ausgleichsrechnungen (Gleichung 2-5) können [23] und [24] entnommen werden.

4.7 Kleinwinkel-Neutronenstreuung (SANS)

Alle SANS-Messungen wurden an Instrument D33 [25] des Instituts Laue-Langevin (ILL) in Grenoble mit Neutronen der Wellenlänge 0,462 nm und einem Strahldurchmesser von 8 mm durchgeführt. Der Abstand zwischen Probe und Detektor betrug 2 m. Während der Messung wurden ein Sättigungsmagnetfeld der Stärke 3T senkrecht zum Neutronenstrahl aktiviert. Numerische Auswerteprogramem des ILL wurden verwendet um die magnetische und nukleare Komponente des Streuquerschnitts als Funktion des Streuvektors zu separieren. Die Größenverteilung der Streuzentren wurde über eine indirekte Fourier-Transformation [26] der Abweichung der magnetischen Komponente vom unbestrahlten Grundzustand, unter der Annahme einer zufälligen Verteilung nichtmagnetischer Streuzentren in der ferromagnetischen Matrix, berechnet. Zur Berechnung von Größe, numerischer Dichte und Volumenanteil wurde eine sphärische Form der Streuzentren angenommen.

4.8 Testmatrix

Aufgrund zeitlicher Beschränkungen und begrenzter Verfügbarkeit wurden die oben beschriebenen Untersuchungsmethoden nicht auf alle denkbaren Kombinationen aus Material, Bestrahlungszustand und Dauer der Erholungsglühung angewendet. Insbesondere für das Schweißnahtmaterial SG-4, das nur einen kleinen Volumenanteil der ursprünglich getesteten Charpy-V-Proben darstellte und wovon zudem noch ein Teil nach langfristiger

Glühung zur Substitution des unbestrahlten Zustands verwendet werden musste, konnte nur die Vickers Härteprüfung als vollständige Messreihe durchgeführt werden. Insgesamt wurden die folgenden Materialien und Zustände getestet:

- **Vickers Härteprüfung:** Beide Materialien im unbestrahlten (Substitution durch langfristig geglühtes SG-4), bestrahlten und nach der Bestrahlung für 100, 300, 1000 und 2000 Stunden bei 343 °C wärmebehandelten Zustand.
- **Small-punch Test:** Grundwerkstoff GW-8 im unbestrahlten, bestrahlten und nach der Bestrahlung für 100 und 1000 Stunden bei 343 °C wärmebehandelten Zustand.
- **Bruchmechanische Untersuchung (Master Curve):** Grundwerkstoff GW-8 im unbestrahlten, bestrahlten und nach der Bestrahlung für 1000 Stunden bei 343 °C wärmebehandelten Zustand.
- **SANS:** Grundwerkstoff GW-8 im unbestrahlten, bestrahlten und nach der Bestrahlung für 300 Stunden bei 343 °C wärmebehandelten Zustand.

5 Ergebnisse

5.1 Vickershärte

Mittelwert und Standardabweichung aus jeweils 16 gültigen Messungen der Vickershärte HV10 für jeden untersuchten Materialzustand sind in den Tabellen 3 (GW-8) bzw. 4 (SG-4) angegeben.

Zustand	HV10	HV10 - $HV10_u$	η [%]
unbestrahlt	213,13 ± 4,0	-	-
bestrahlt	253,7 ± 4,0	40,4 ± 4,6	
bestrahlt, 100 Stunden	246,2 ± 3,5	32,9 ± 4,1	19 ± 15
bestrahlt, 300 Stunden	237,7 ± 2,5	24,4 ± 3,3	40 ± 16
bestrahlt, 1000 Stunden	226,5 ± 2,6	13,2 ± 3,4	67 ± 19
bestrahlt, 2000 Stunden	222,6 ± 1,6	9,3 ± 2,7	77 ± 19

Tabelle 3: Vickershärte HV10 für alle untersuchten Zustände des Grundwerkstoffs GW-8. Zeitangaben bei bestrahlten Zuständen geben die Dauer der Erholungsglühung bei einer der Nassausheilung entsprechenden Temperatur von 343 °C an.

	HV10	HV10 - $HV10_u$	η [%]
unbestrahlt*	178,9 ± 1,9	-	-
bestrahlt	223,7 ± 1,3	44,8 ± 2,3	-
bestrahlt, 100 Stunden	223,0 ± 2,4	44,1 ± 3,1	2 ± 6
bestrahlt, 300 Stunden	216,2 ± 2,3	37,3 ± 3,0	17 ± 7

bestrahlt, 1000 Stunden	212,5 ± 4,1	33,6 ± 4,5	25 ± 11
bestrahlt, 2000 Stunden	206,5 ± 2,3	27,6 ± 3,0	38 ± 8

*Substitution durch für 152 Stunden bei T=450 °C geglühtes Ausgangsmaterial

Tabelle 4: Vickershärte HV10 für alle untersuchten Zustände des Schweißnahtmaterials SG-4. Zeitangaben bei bestrahlten Zuständen geben die Dauer der Erholungsglühung bei einer der Nassausheilung entsprechenden Temperatur von 343 °C an.

Für bestrahlte Materialzustände enthalten die Tabellen ebenfalls den Absolutwert der Strahlungsinduzierten Härtezunahme ($HV10_i - HV10_u$) sowie den durch Erholungsglühung bei 343 °C erzielten Grad der Erholung η, der folgendermaßen berechnet wurde:

$$\eta = \left(1 - \frac{(HV10_{i,a} - HV10_u)}{(HV10_i - HV10_u)}\right) \times 100\% = \frac{\left(HV10_i - HV10_{i,a}\right)}{(HV10_i - HV10_u)} \times 100\% \qquad (6)$$

Gleichung 6 ist so konzipiert, dass der Grad der Erholung linear zwischen keiner Änderung der Härte während des Erholungsglühens ($HV10_{i,a} = HV10_i \rightarrow \eta = 0\%$) und vollständiger Rückbildung der strahlungsinduzierten Härteänderung (($HV10_{i,a} = HV10_u \rightarrow \eta = 100\%$) abgebildet wird.

Die strahlungsinduzierte Erhöhung der Vickershärte ist dabei für beide Materialien vergleichbar (ΔHV10=40 für GW-8 und ΔHV10=45 für SG-4) und durch die Wärmebehandlung bei 343 °C kann eine signifikante Erholung dieser Härteänderung erreicht werden, die für das Schweißnahtmaterial allerdings erst mit einer gewissen Verzögerung einsetzt und dann im weiteren Verlauf etwa halb so hoch ausfällt wie für den Grundwerkstoff.

Abbildung 5.1 (GW-8) und Abbildung 5.2 (SG-4) zeigen die Entwicklung der Vickershärte mit zunehmender Dauer der Erholungsglühung bei 343 °C. In beiden Fällen wurde auch bis zu einer Glühdauer von 2000 Stunden weder eine vollständige Erholung (η=100%) erreicht noch ist eine Sättigung des Kurvenverlaufs zu erkennen. Eine weitergehende Erholung bei noch längerer Glühdauer wäre deshalb zu erwarten. Insbesondere für das Schweißnahtmaterial scheint die Entwicklung des Erholungsgrades nach einer anfänglichen Verzögerung nahezu linear mit der Glühdauer zu verlaufen.

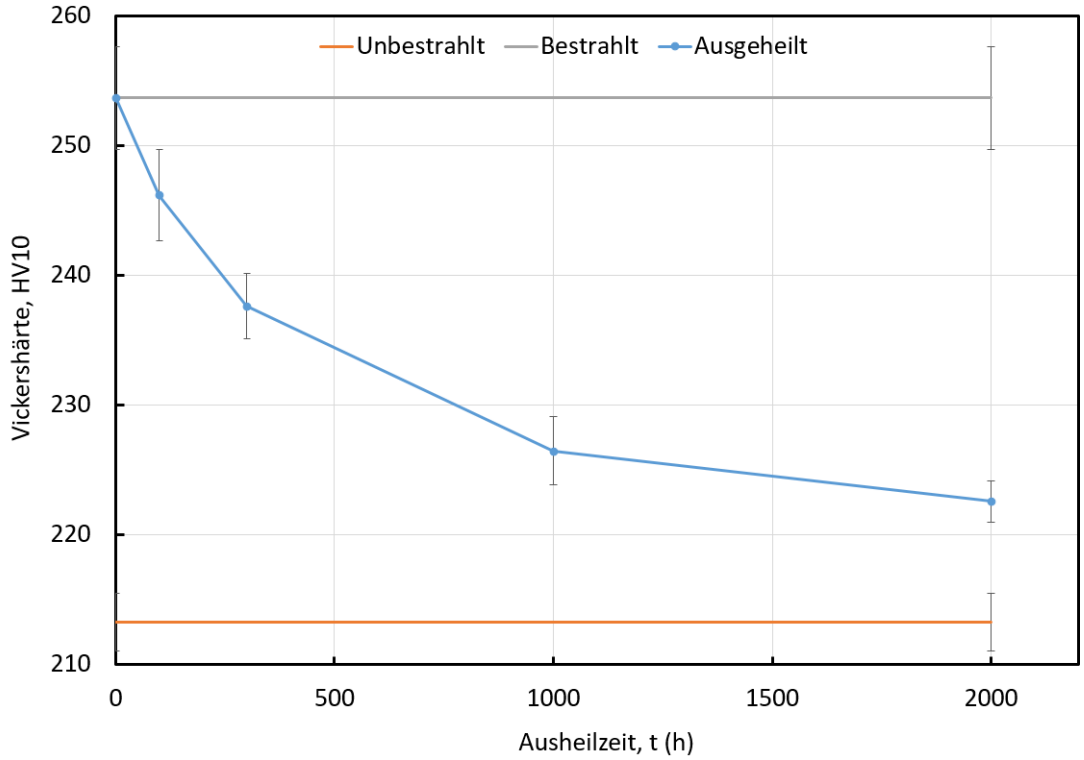


Abbildung 5.1: Erholung der Vickershärte HV10 des Grundmaterials GW-8 mit zunehmender Ausheilzeit bei $T = 343\,°C$.

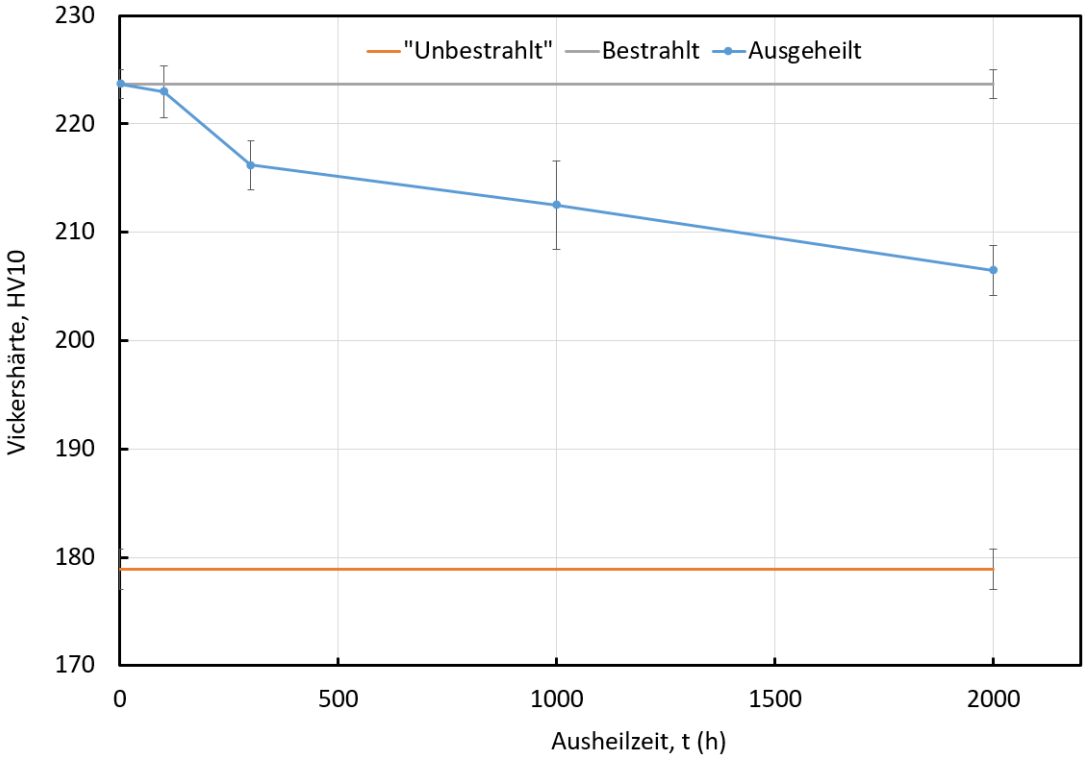


Abbildung 5.2: Erholung der Vickershärte HV10 des Schweißnahtmaterials GW-4 mit zunehmender Ausheilzeit bei $T = 343\,°C$.

5.2 Small-Punch Test

Wie beispielhaft an den ausgewählten Last-Verschiebungs-Kurven des bestrahlten Grundmaterials in Abbildung 5.3 zu sehen (Messkurven aller durchgeführten Tests siehe Anhang) steigen für alle untersuchten Materialzustände sowohl die maximale Last als auch die Dehnung am Punkt des Materialversagens mit steigender Testtemperatur an.

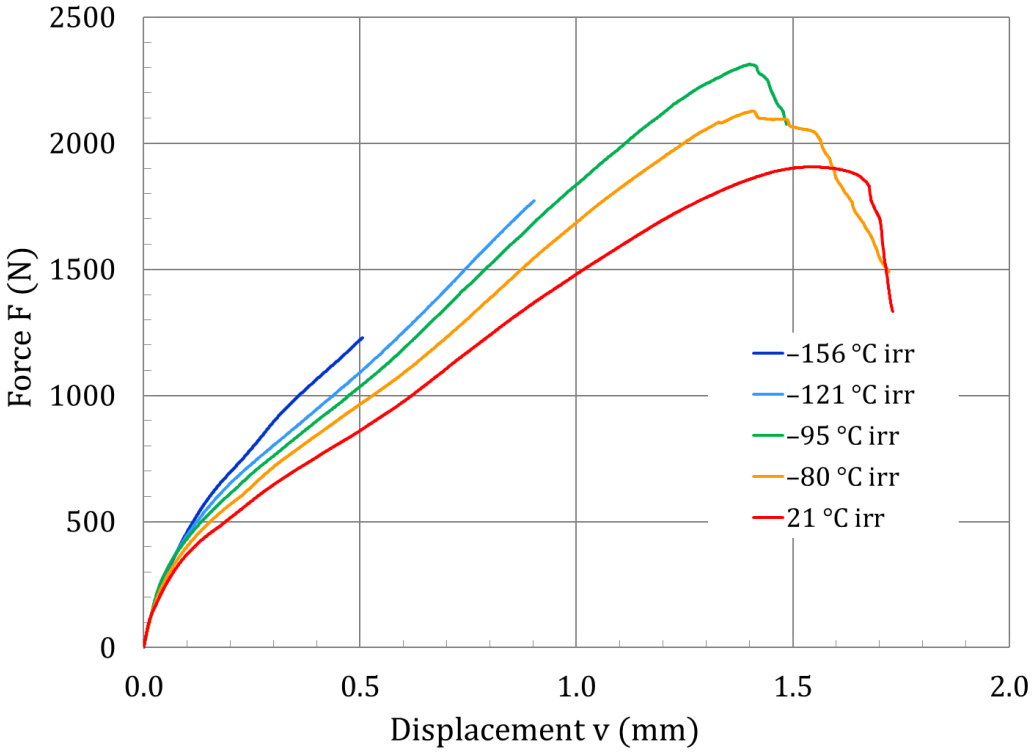


Abbildung 5.3: Ausgewählte Last-Verschiebungs-Kurven aus Small-Punch-Test bei unterschiedlichen Temperaturen für das bestrahlte Grundmaterial GW-8.

Die aus dem Integral der Last-Verschiebungs-Kurve bis zur Maximalkraft berechnete (normierte) Small-Punch Energie aller durchgeführten Versuche ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Mit Ausnahme des Zustands nach 100 Stunden Glühdauer, bei dem sich auch die Steigung im Übergangsbereich deutlich ändert, bewirkt die Bestrahlung und anschließende Wärmebehandlung hauptsächlich eine Parallelverschiebung des Spröd-duktilen Übergangs. Die in Tabelle 5 zusammengefasste Duktil-Spröd-Übergangstemperatur T_{SP} wurde als diejenige Temperatur ermittelt, bei der die ebenfalls in Abbildung 5.4 eingezeichneten tanh-Ausgleichskurven den Mittelwert zwischen der unteren und oberen Sättigung erreichen. Die zugehörigen Messfehler wurden durch Anwendung einer Monte-Carlo-Methode entsprechend [27] bestimmt. Für die beiden Erholungsgeglühten Zustände wurde der Grad der Erholung η analog zu Gleichung 6 (mit T_{SP} anstelle von HV10) berechnet und ist ebenfalls

in Tabelle 5 angegeben. Insgesamt zeigen die Ergebnisse eine deutliche bestrahlungsinduzierte Erhöhung der Übergangstemperatur sowie eine signifikante Erholung dieses Anstiegs durch die Wärmebehandlung bei 343 °C. Der erzielte Grad der Erholung liegt allerdings auch nach 1000h noch deutlich unter 100% und ist in etwa mit dem Wert zu vergleichen, der für die Erholung der Vickershärte des Schweißnahtmaterials beobachtet wurde.

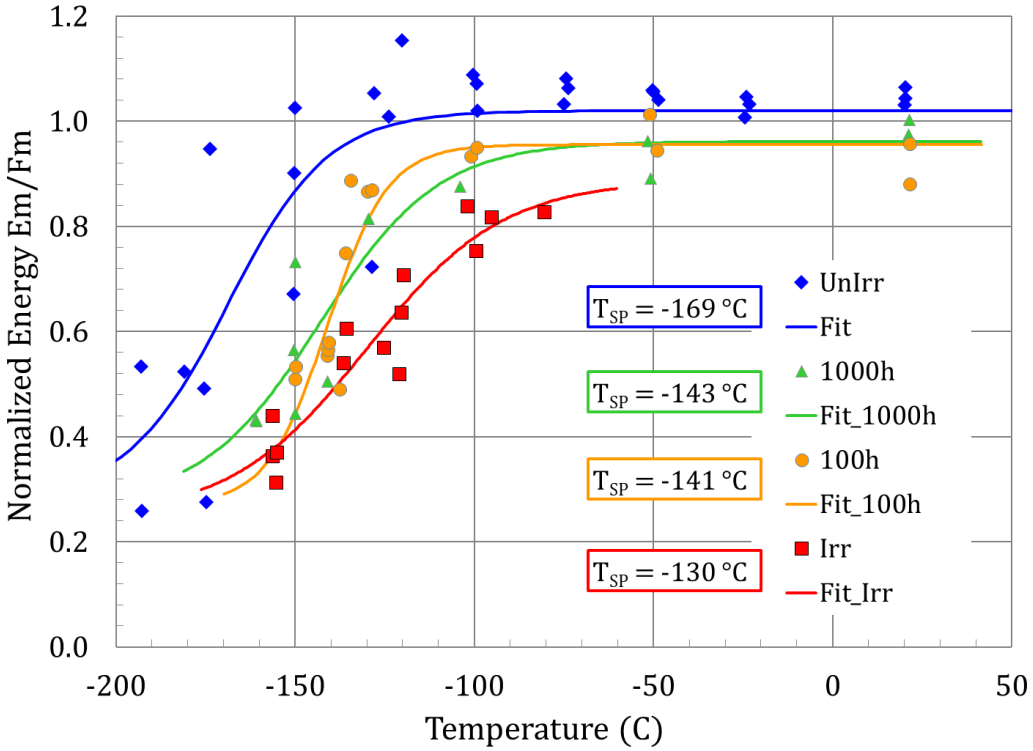


Abbildung 5.4: Normalisierte Small-Punch-Energie für den Grundwerkstoff GW-8 im unbestrahlten und bestrahlten/wärmebehandelten Zustand.

Zustand	T_{SP} [°C]	$T_{SP} - T_{SP,u}$ [K]	η [%]
unbestrahlt	-170 ± 4	-	-
bestrahlt	-130 ± 5	40 ± 7	-
bestrahlt, 100 Stunden	-141 ± 3	29 ± 5	28 ± 17
bestrahlt, 1000 Stunden	-144 ± 5	26 ± 7	35 ± 22

Tabelle 5: Aus Small-punch Tests ermittelte Duktil-Spröd-Übergangstemperatur T_{SP} für alle untersuchten Zustände des Grundwerkstoffs GW-8. Zeitangaben bei bestrahlten Zuständen geben die Dauer der Erholungsglühung bei einer der Nassausheilung entsprechenden Temperatur von 343 °C an.

5.3 Bruchmechanik (Master Curve)

Die an 0.16T-(C)T Proben ermittelte und anschließend entsprechend Gleichung 2 in äquivalente Werte bei einer Messung an 1T-(C)T Standardproben konvertierte Bruchzähigkeit

für den Grundwerkstoff GW-8 ist in Abbildung 5.5 (unbestrahlt), Abbildung 5.6 (bestrahlt) sowie Abbildung 5.7 (bestrahlt und für 1000 Stunden bei 343 °C wärmebehandelt) dargestellt. Kreise zeigen Datenpunkte an, die den Validitätskriterien des Standards ASTM E1921-21 entsprechen und für die Berechnung der als gestrichelte Linie eingezeichneten Ausgleichskurve (Master Curve) berücksichtigt wurden. Mit Dreiecken gekennzeichnete Messpunkte liegen außerhalb des durch eine gepunktete Linie begrenzten Validitätsbereichs.

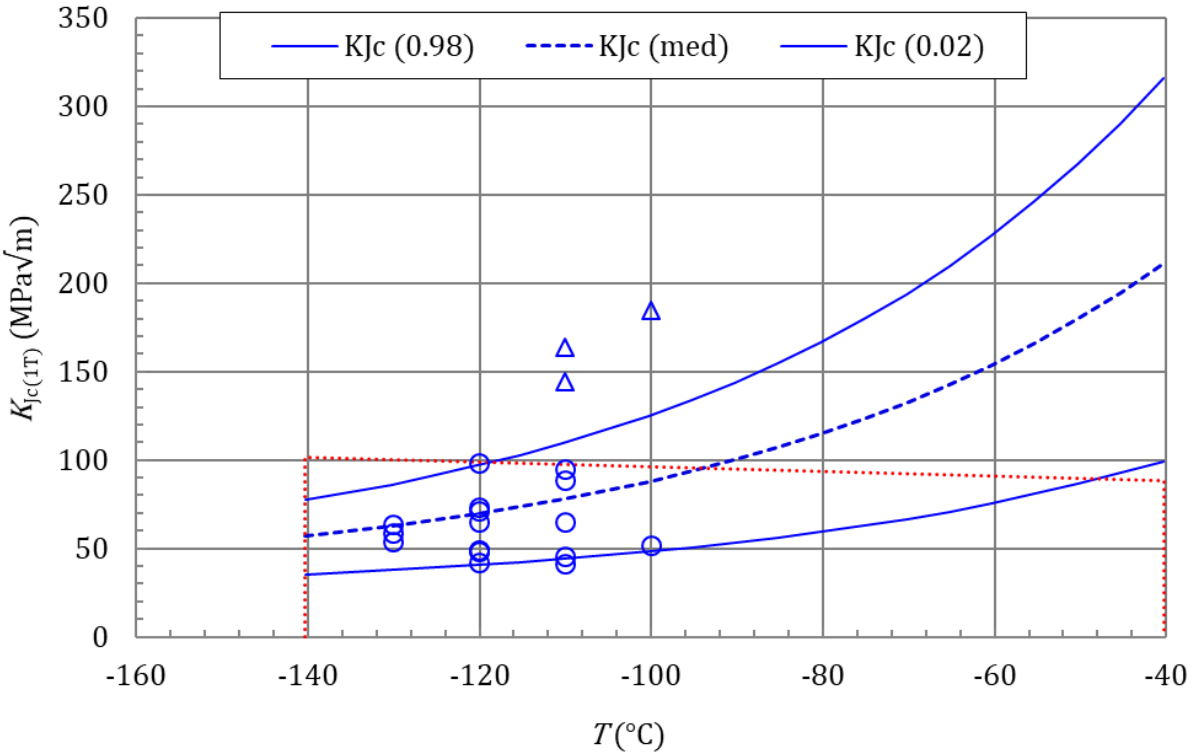


Abbildung 5.5: Master-Curve Auswertung des Bruchmechanischen Verhaltens für den Grundwerkstoff GW-8 im unbestrahlten Zustand.

Die aus den Ausgleichkurven bestimmte Referenztemperatur T_0 aller untersuchten Zustände des Grundmaterials GW-8 ist in Tabelle 6 zusammengefasst. Für den bestrahlten Zustand liegt diese Temperatur signifikant oberhalb des Werts für das unbestrahlte Material, was einer deutlichen strahlungsinduzierten Versprödung entspricht. Nach einer Wärmebehandlung für 1000 Stunden bei 343 °C nimmt T_0 wieder denselben Wert an, wie für das unbestrahlte Referenzmaterial. Aufgrund der hohen Messunsicherheit kann eine vollständige Erholung der strahlungsinduzierten Versprödung allerdings nicht sicher nachgewiesen werden. Dennoch ist von einem Grad der Erholung von mindestens η=50% auszugehen.

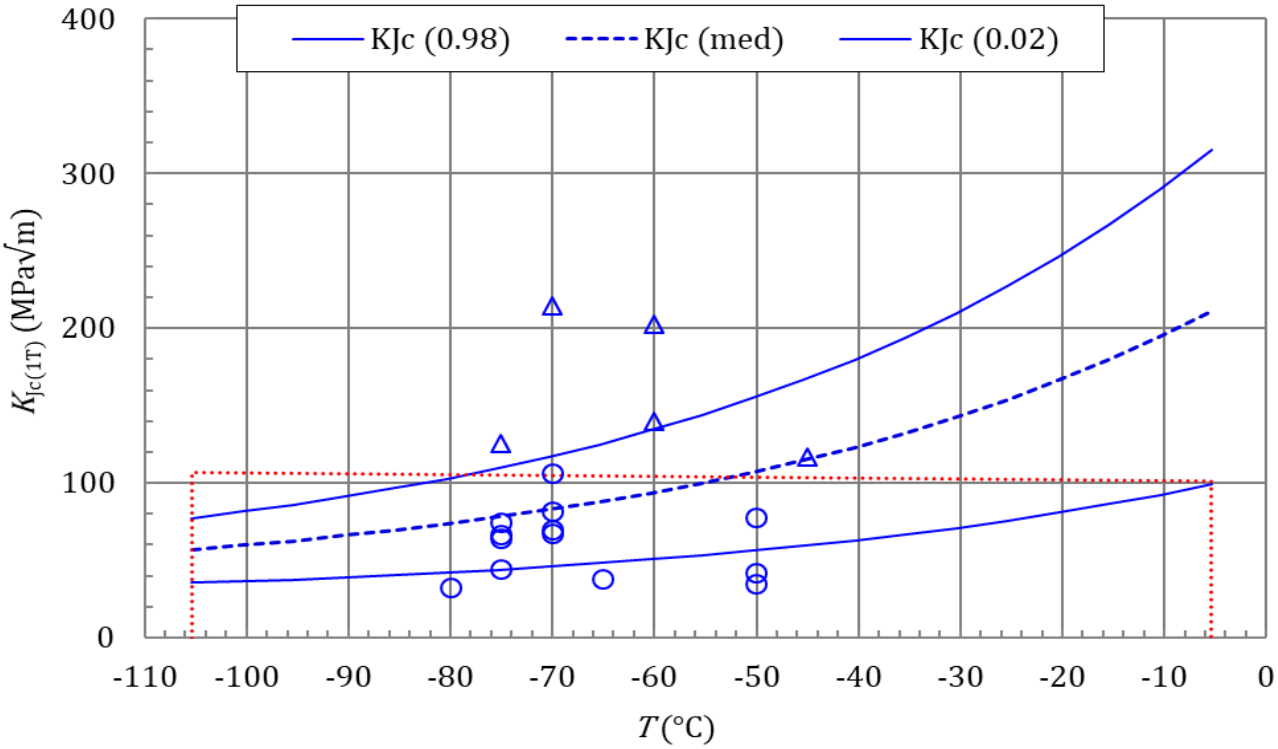


Abbildung 5.6: Master-Curve Auswertung des Bruchmechanischen Verhaltens für den Grundwerkstoff GW-8 im bestrahlten Zustand.

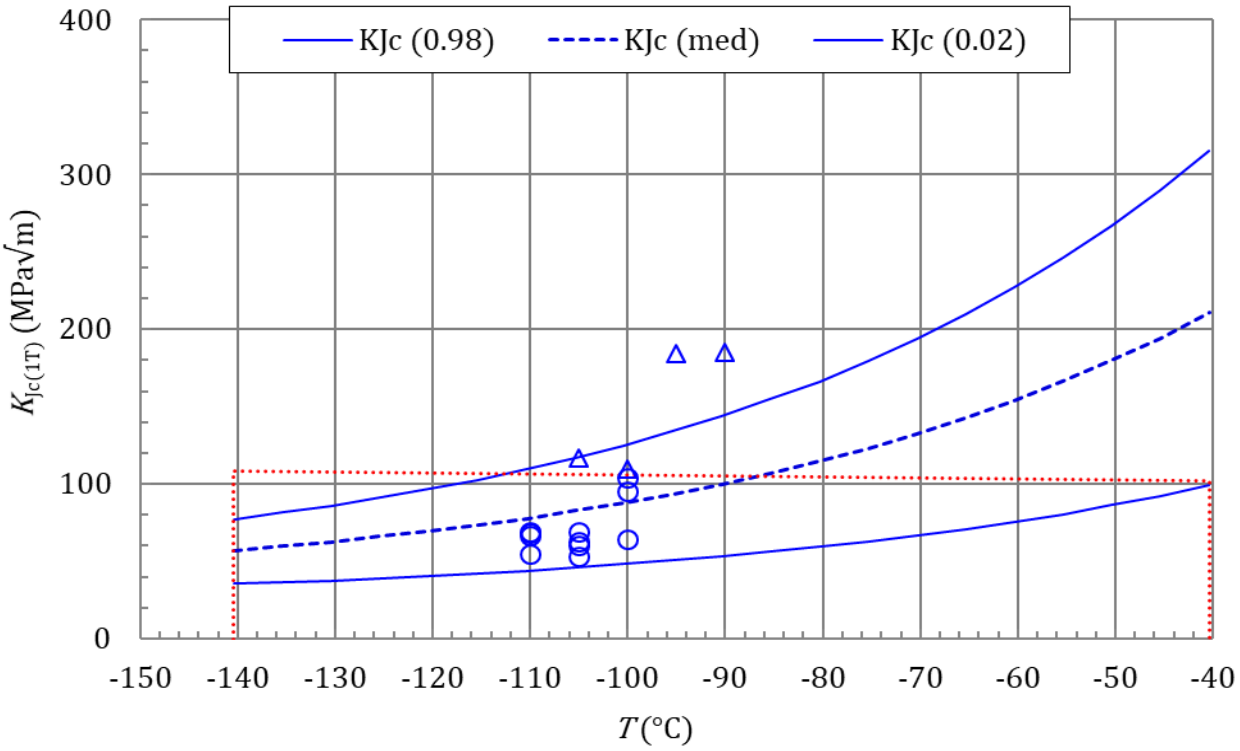


Abbildung 5.7: Master-Curve Auswertung des Bruchmechanischen Verhaltens für den Grundwerkstoff GW-8 im ausgeheilten Zustand nach Wärmebehandlung für 1000h bei T=343°C.

Zustand	T_0 [°C]	$T_0 - T_{0,u}$ [K]	η [%]
unbestrahlt	-90,3 ± 6,1	-	-
bestrahlt	-55,4 ± 6,4	35 ± 9	-
bestrahlt, 1000 Stunden	-90,4 ± 6,9	0 ± 10	100 ± 50

Tabelle 6: Entsprechend dem Master-Curve Konzept ermittelte Referenztemperatur T_0 für den unbestrahlten, bestrahlten und für 1000 Stunden bei 343 °C ausgeheilten Grundwerkstoff GW-8.

5.4 Kleinwinkel-Neutronenstreuung

Abbildung 5.8 zeigt den aus den SANS-Messungen rekonstruierten Streuquerschnitt sowie dessen nukleare und magnetische Komponenten als Funktion des Streuvektors Q. Die Abweichung der magnetischen Komponente des bestrahlten und für 300 Stunden bei 343 °C wärmebehandelten Zustands von der unbestrahlten Referenz ist noch einmal separat in Abbildung 5.9 dargestellt. Aus den eingezeichneten Ausgleichskurven wurde durch eine inverse Fourier-Transformation [26] die Größenverteilung der Streuzentren ermittelt und ist in Abbildung 5.10 in Form der numerischen Dichte sowie des Volumenanteils als Funktion des Radius gegeben. Als Folge der Bestrahlung zeigt sich eine deutliche Zunahme der Streuzentren im Vergleich mit dem unbestrahlten Zustand. Der sogenannte A-Faktor (Quotient aus gesamtem und magnetischer Komponente des Streuquerschnitts) beträgt 1,8 ± 0,1, was in Kombination mit der chemischen Zusammensetzung des Stahls auf die Bildung von Mn-Ni-Si-(-Cr)-reichen Clustern hinweist [28]. Die Größe Cluster ist beinahe ausschließlich auf den Sub-Nanometer Bereich beschränkt. Während der Wärmebehandlung sinkt die Anzahl der strahlungsinduzierten Cluster wieder ab (Abbildung 5.10a), was einer signifikanten Erholung der Mikrostruktur entspricht. Gleichzeitig wachsen die verbleibenden Cluster offenbar an, so dass eine Vergröberung beobachtet wird die für Cluster mit einem Radius größer 1,5 nm trotz abnehmender Gesamtzahl zu einem deutlichen Anstieg des Volumenanteils führt (Abbildung 5.10b).

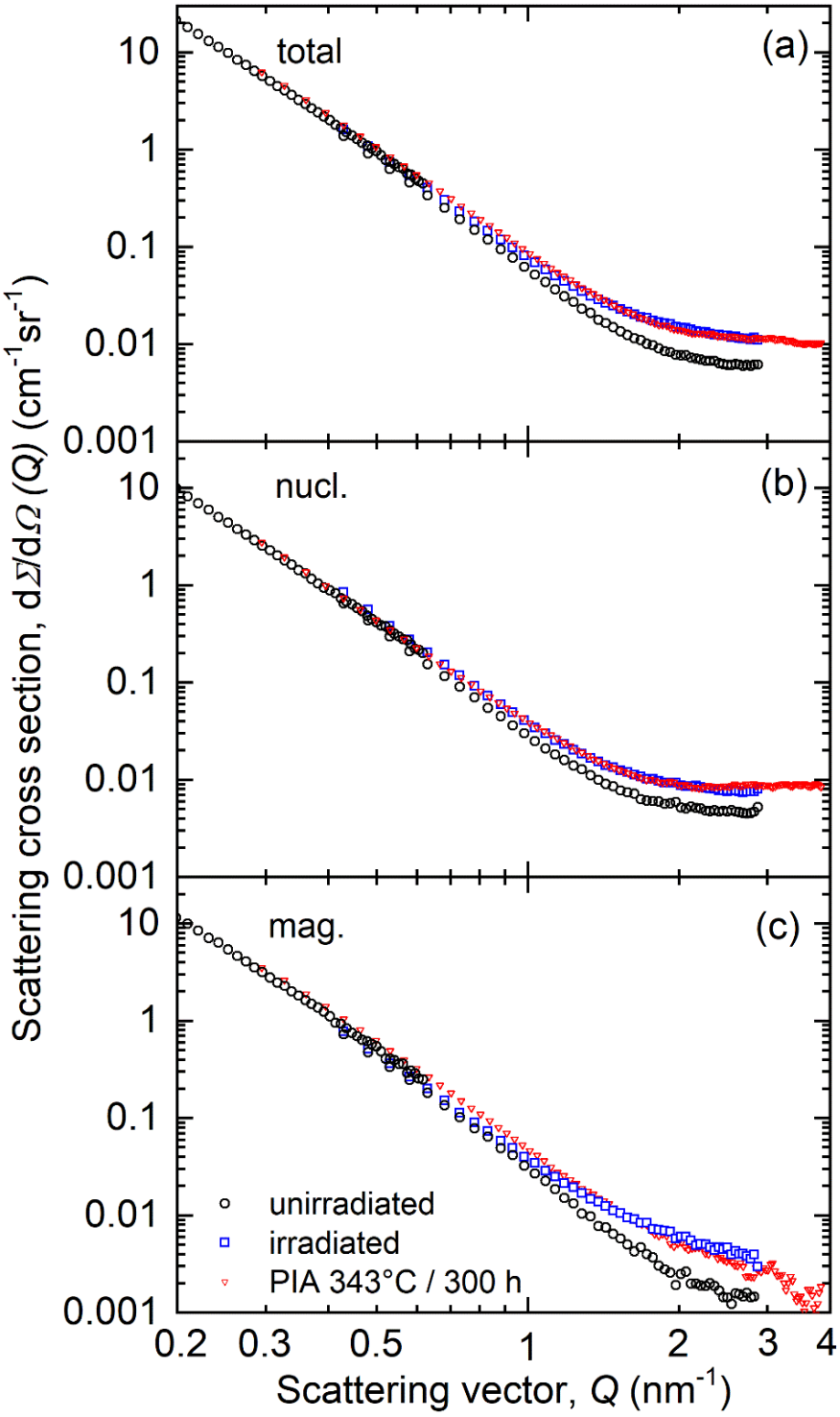


Abbildung 5.8: SANS-Streuquerschnitt für das Grundmaterial GW-8 im unbestrahlten, bestrahlten und wärmebehandelten (t=300h) Zustand.

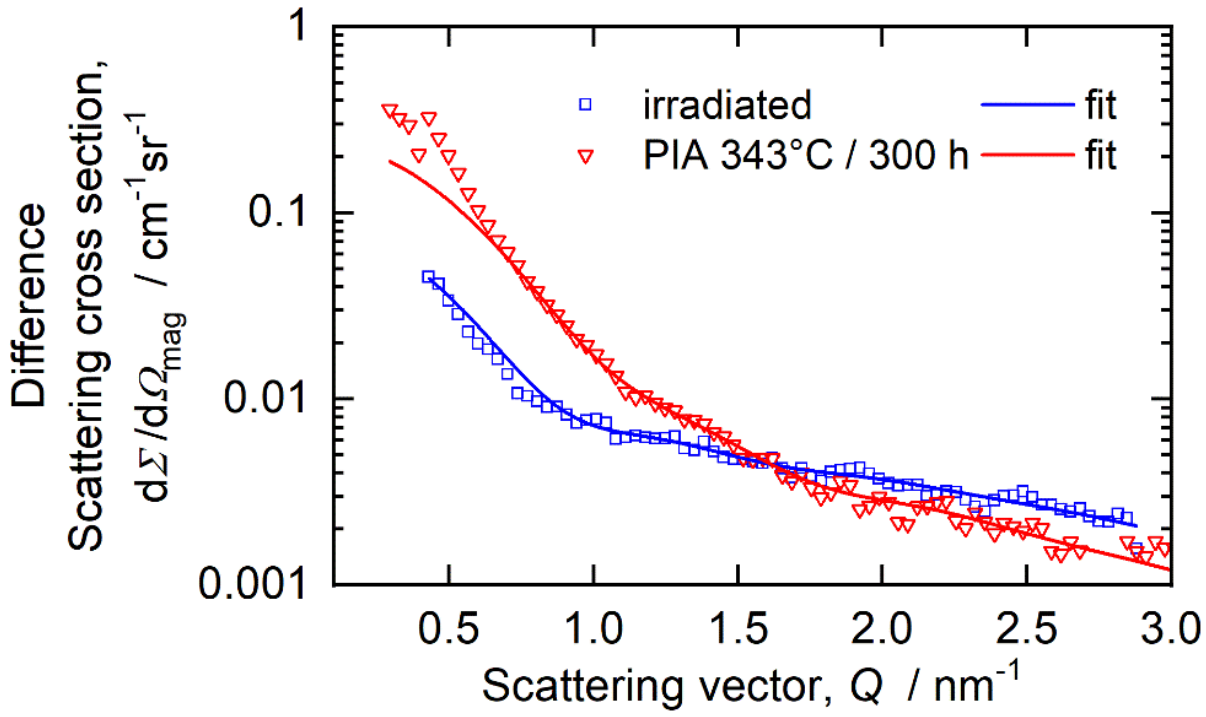
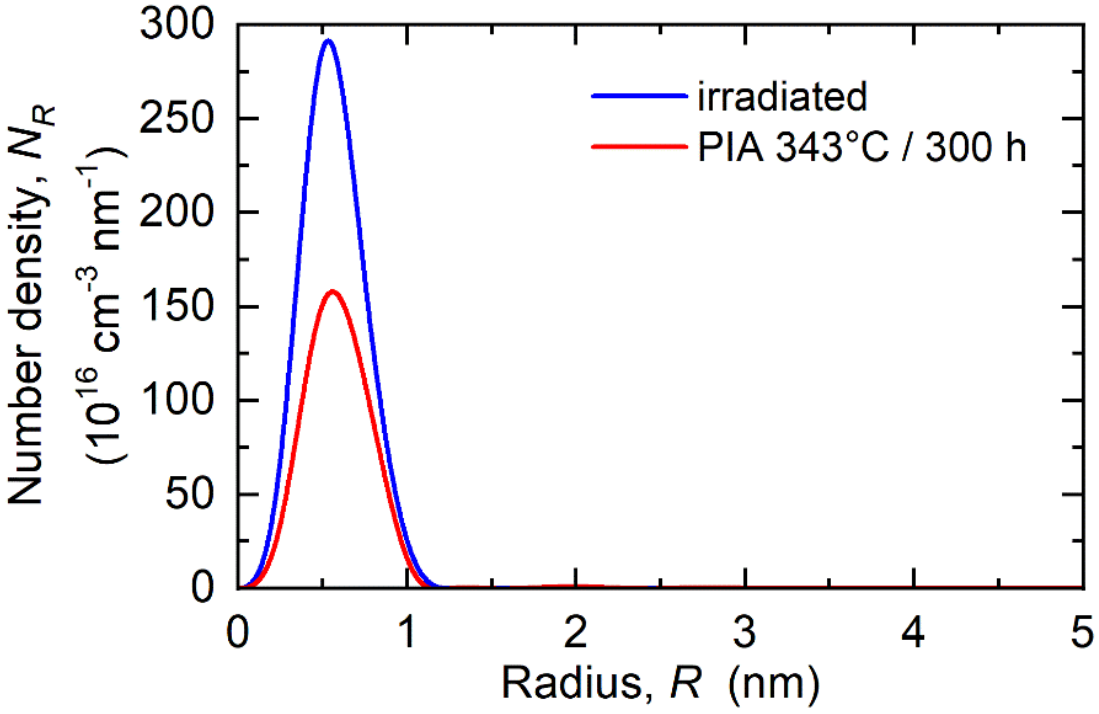


Abbildung 5.9: Abweichung der magnetischen Komponente des SANS-Streuquerschnitts zwischen dem unbestrahlten und bestrahlten/wärmebehandelten Zustand des Grundmaterials GW-8.

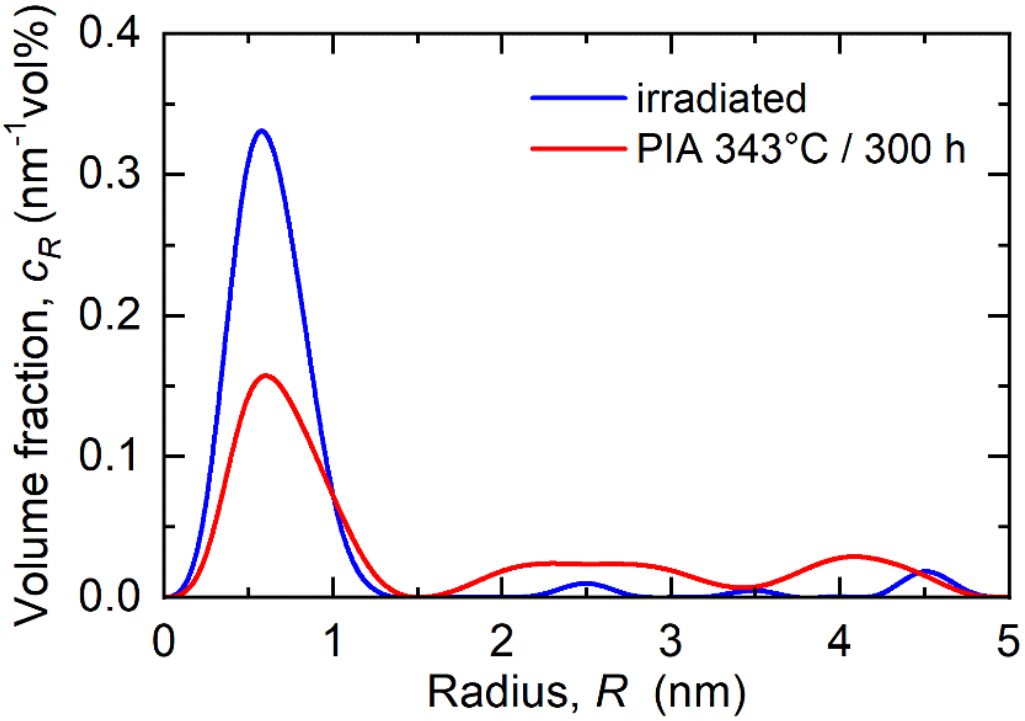
Die durch Integration der Größenverteilungen in Abbildung 5.10 erhaltenen Werte für den gesamten Volumenanteil bzw. die Anzahl der strahlungsinduzierten Cluster sind in Tabelle 7 zusammengefasst. Für beide Parameter zeigt sich eine signifikante Erholung nach der Wärmebehandlung. Der Grad der Erholung in Bezug auf den Volumenanteil fällt entsprechend der beobachteten Vergröberung geringer aus, da die im Mittel gewachsenen Cluster den Rückgang der numerischen Dichte teilweise ausgleichen. Zur Berechnung von η analog zu Gleichung 6 wurde vorausgesetzt, dass sowohl Volumenanteil als auch numerische Dichte der strahlungsinduzierten atomaren Cluster im unbestrahlten Zustand definitionsgemäß gleich null sind ($c_0 = N_0 \equiv 0$)

Zustand	c [vol%]	η [%]	N [cm^{-3}]	η [%]
bestrahlt	0,19 ± 0,02	-	136 ± 15	-
bestrahlt, 300 Stunden	0,15 ± 0,02	21 ± 17	78 ± 8	43 ± 17

Tabelle 7: Aus SANS-Messungen ermittelte Kennwerte der Fremdatomcluster in bestrahltem und für 300 Stunden bei ausgeheiltem Grundwerkstoff GW-8.



(a)



(b)

Abbildung 5.10: Numerische Dichte (a) und entsprechender Volumenanteil (b) der aus den SANS-Daten ermittelten strahlungsinduzierten atomaren Cluster.

5.5 Grad der Erholung

Der mit unterschiedlichen Methoden ermittelte Grad der Erholung für den Grundwerkstoff GW-8 ist in Tabelle 8 zusammengefasst. Alle Methoden zeigen einen signifikanten Rückgang der strahlungsinduzierten Veränderung in den jeweils gemessenen Parametern durch eine der Nassausheilung entsprechende Wärmebehandlung bei 343 °C. Das Erholungsverhalten unterscheidet sich je nach Methode relativ stark. Die Ergebnisse sind aber zumindest insofern konsistent, als dass sich die jeweils nach derselben Dauer der Wärmebehandlung ermittelten Grade der Erholung innerhalb der (hohen) Messunsicherheit überlappen.

Methode	Dauer der WB [Stunden]	η [%]
Vickershärte (HV10)	100	19 ± 15
	300	40 ± 16
	1000	67 ± 19
	2000	77 ± 19
Small-punch Test (T_{SP})	100	28 ± 17
	1000	35 ± 22
Bruchmechanik (T_0)	1000	100 ± 50
SANS (c)	300	21 ± 17
SANS (N)	300	43 ± 17

Tabelle 8: Vergleich des mit den unterschiedlichen angewandten Methoden ermittelten Erholungsgrads für den Grundwerkstoff GW-8.

6 Diskussion

Alle untersuchten Parameter zeigen eine deutliche Erholung des bestrahlten Grundwerkstoffs GW-8 infolge der Wärmebehandlung bei 343 °C. Für Vickershärte und Duktil-Spröd-Übergangstemperatur T_{SP}, die jeweils an mindestens zwei unterschiedlich lange geglühten Probensätzen bestimmt wurden, steigt der Grad der Erholung wie erwartet mit der Dauer der Wärmebehandlung an und zeigt im Falle von HV10 auch nach 2000 Stunden keine Sättigung. Eine weitere Verlängerung der Wärmebehandlung war allerdings im Rahmen des vorliegenden Projekts nicht realisierbar und hätte auch keinen Bezug zur praktischen Anwendung an Reaktordruckbehältern mehr, da eine solch lange Standzeit des Kraftwerks die Vorteile der Nassausheilung wieder zunichtemachen würde. Während die nach 100 Stunden Wärmebehandlung ermittelten Grade der Erholung für HV 10 (19±15 %) und T_{SP} (28±17 %) noch vergleichbar sind unterscheiden sie sich nach 1000 Stunden schon deutlich (67±19 %

bzw. 35±22 %). Der nach dieser Dauer der Wärmebehandlung ebenfalls ermittelte Grad der Erholung für die Referenztemperatur T_0 entsprechend dem Master-Curve Konzept weicht ebenfalls deutlich von diesen beiden Werten ab (η = 100±50%). Ein möglicher Grund dafür ist, dass die bruchmechanischen Kennwerte T_{SP} und T_0 auch von anderen temperaturabhängigen Effekten wie Beispielsweise der Korngrenzensegregation beeinflusst werden, die sich in der reinen (Vickers-) Härte nicht niederschlagen. Das Erholungsverhalten dieser Effekte kann sich von der Rückbildung der strahlungsinduzierten Härtung unterscheiden und somit zu den abweichenden Werten für η beitragen. T_0 ist außerdem mit einer sehr hohen statistischen Abweichung behaftet. Basierend auf in der Literatur verfügbaren Ergebnissen wäre eigentlich eine Korrelation von T_0 und T_{SP} zu erwarten [22, 29, 30]. Ein entsprechender Grad der Erholung bezüglich T_0 im Bereich von η=50-60% würde immer noch mit den gemessenen Werten zusammenpassen.

Der Unterschied im Grad der Erholung in Bezug auf Dichte N und Volumenanteil c der aus den SANS Messungen ermittelten strahlungsinduzierten atomaren Cluster hängt mit dem durch die Wärmebehandlung induzierten Wachstum der Körner zusammen. Der Volumenanteil wächst mit der dritten Potenz des Durchmessers, so dass schon ein geringes Wachstum der verbleibenden strahlungsinduzierten Cluster die mit der Erholung verbundene Auflösung der restlichen ausgleichen kann.

Der gemessene A-Faktor (Quotient aus gesamtem und magnetischer Komponente des Streuquerschnitts) von 1,8 ± 0,1 lässt außerdem Rückschlüsse auf die Art der strahlungsinduzierten Cluster zu. Kupferreiche Cluster weisen üblicherweise A-Faktoren deutlich größer als 2 auf [31] und können daher ausgeschlossen werden. Ebenso Leerstellencluster mit $A \approx 1{,}5$ [32]. Die Präsenz von Versetzungsringen kann nicht ausgeschlossen werden [33], trägt aber kaum zum beobachteten Streuquerschnitt bei [32]. Die wahrscheinlichste verbleibende Möglichkeit sind Mn-Ni-Si-reiche Cluster [28], die möglicherweise auch das im GW-8 enthaltene Cr absorbieren können.

Die Entwicklung des Grads der Erholung mit fortschreitender Dauer der Wärmebehandlung ist in Abbildung 6.1 dargestellt. Unterschiedliche Messmethoden sind mit verschiedenen Symbolen markiert. Die eingezeichnete Linie stellt keinen Fit oder modellbasierte Voraussage dar. Sie wurde heuristisch gewählt um den Verlauf einer möglichen Erholung während der

fortlaufenden Wärmebehandlung darzustellen. Der Verlauf schneidet alle Datenpunkte innerhalb der statistischen Messunsicherheit und zeigt somit, dass die erzielten Ergebnisse auch methodenübergreifend eine konsistente Charakterisierung der Erholung erlauben.

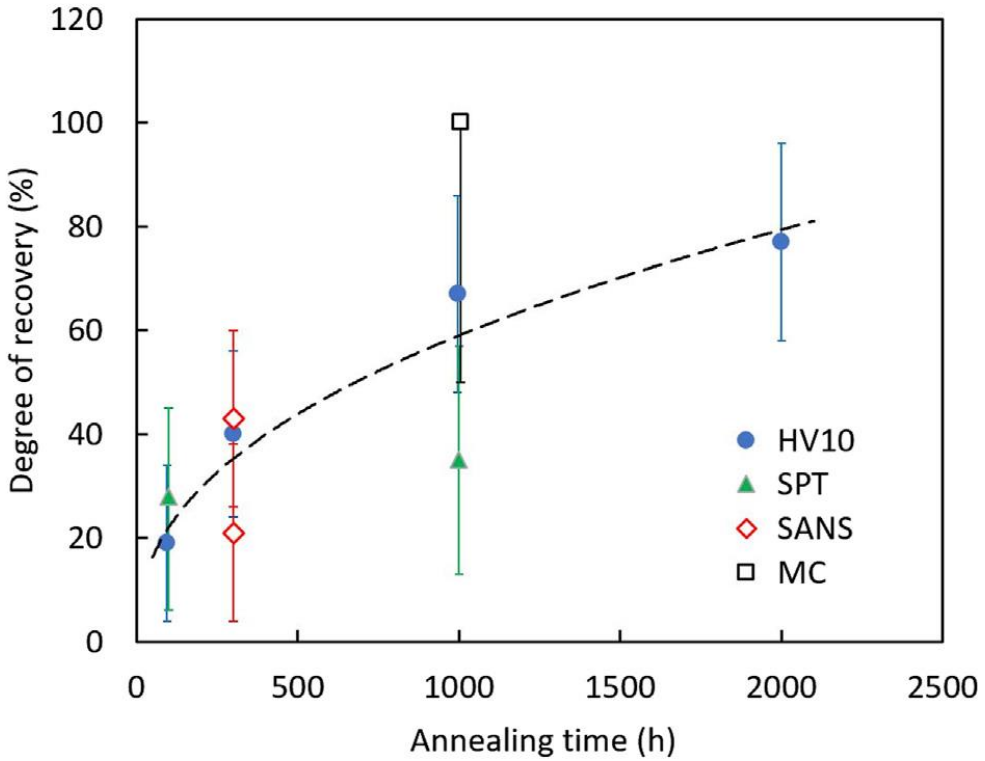


Abbildung 6.1: Zeitliche Entwicklung der Erholung des bestrahlten Grundwerkstoffs GW-8 mit zunehmender Glühdauer bei 343 °C.

Das Erholungsverhalten des Schweißnahtmaterials ist von besonderem praktischen Interesse, da Greifswald Block 4 längerfristig in Betrieb war und damit sowohl Zustand als auch Bestrahlungsbedingungen des Materials genau den Anwendungsfall für eine eventuelle Nassausheilung zur Verlängerung der sicheren Betriebsdauer des RDB repräsentieren. Eine nachträgliche Bestrahlung mit Neutronen, wie für den im vorliegenden Projekt untersuchten Grundwerkstoff, unterscheidet sich von den Bestrahlungsbedingungen im realen Kraftwerksbetrieb meistens um mehrere Größenordnungen, was die Übertragbarkeit der daran erzielten Ergebnisse auf praktische Anwendungen einschränkt. Im Gegensatz zum Grundwerkstoff wurde für das bestrahlte Schweißnahtmaterial keine signifikante Erholung der Vickershärte nach 100 Stunden Wärmebehandlung festgestellt. Auch der Grad der Erholung nach 300, 1000 und 2000 Stunden ist geringer als für den bestrahlten

Grundwerkstoff, so dass die Erholung schwächer ausgeprägt und zudem zeitlich verzögert erscheint. Da für beide Werkstoffe auch nach 2000 Stunden Glühzeit keine Sättigung des Erholungsverhaltens beobachtet wurde kann aber nicht ausgeschlossen werden, dass bei ausreichend langer Wärmebehandlung der gleiche Gesamt-Erholungsgrad für SG-4 und GW-8 erzielt werden kann. Mögliche Ursachen für die Abweichung im Erholungsverhalten können sowohl das Material als auch die Bestrahlungsbedingungen sein. Eine detaillierte Einschätzung ist schwierig, da sich Grundwerkstoff und Schweißnaht sowohl in ihrer Mikrostruktur als auch (bis auf den Gehalt an Si und Ni) in fast allen Parametern der chemischen Zusammensetzng signifikant unterscheiden. Der höhere Phosphorgehalt des Schweißnahtmaterials begünstigt beispielsweise die Segregation an Korngrenzen und auch der höhere Kupferanteil kann sich negativ auf das Erholungsverhalten auswirken [15]. Hinsichtlich der Bestrahlungsbedingungen lag die Bestrahlungstemperatur der Schweißnaht (270 °C) unter der des Grundwerkstoffs (290 °C). Der auf den ersten Blick geringe Unterscheid von 20 K ist signifikant, da der eigentlich relevante Parameter der Unterschied ΔT zwischen den Temperaturen der Bestrahlung und der Wärmebehandlung ist, und im Fall der Schweißnaht fast 40% über dem Grundwerkstoff liegt. Höhere Temperaturunterscheide ΔT erlauben im Allgemeinen die Rückbildung zusätzlicher strahlungsinduzierter Merkmale der Mikrostruktur. Sie können also nur zu einer verstärkten Erholung führen, nicht aber zu der in diesem Fall beobachteten abgeschwächten Erholung der bei deutlich höherem ΔT wärmebehandelten Schweißnaht. Erwartungsgemäß wäre das Erholungsverhalten der Schweißnaht bei gleichem ΔT (also einer geringeren Temperatur der Wärmebehandlung) sogar nochmals geringer als im vorliegende Fall, das heißt der Unterschied in ΔT führt zu einer Maskierung der durch andere Effekte hervorgerufenen Abweichung im ErFholungsverhalten zwischen Schweißnaht und Grundmaterial. Ein weiterer signifikanter Unterschied in den Bestrahlungsbedingungen sind die für den Grundwerkstoff um eine Größenordnung höhere Fluenz sowie insbesondere die um drei Größenordnungen höhere Flussrate. Bestrahlungen mit hoher Flussrate erzeugen tendenziell eher sogenannte instabile Matrixdefekte [34] anstelle relativ stabiler atomarer Cluster. Solche instabilen Matrixdefekte lösen sich schon bei einem geringen Temperaturunterschied zwischen Bestrahlung und Wärmebehandlung, wie $\Delta T \approx 43\ °C$ für GW-8, nahezu vollständig auf. Die schnellere und wirkungsvollere Erholung des Grundwerkstoffs unter den gleichen

Bedingungen der Wärmebehandlung ist deshalb wahrscheinlich hauptsächlich auf die deutlich höhere Flussrate während der Bestrahlung und die damit verbundene Bildung leicht löslicher instabiler Matrixeffekte sowie kleinere Beiträge durch die chemische Zusammensetzung des Materials zurückzuführen.

Zur abschließenden Einordnung sollten die erzielten Ergebnisse auch mit bereits in der Literatur veröffentlichten Daten verglichen werden. Dabei ist zu beachten, dass sich Dauer und/oder Temperatur der Wärmebehandlung in den meisten veröffentlichten Studien deutlich von der Nassausheilung unterscheiden. Einer der wenigen Fälle mit vergleichbaren Parametern ist die Untersuchung der Änderung ΔTT der aus Charpy-V Tests ermittelten Spröd-Duktil-Übergangstemperatur nach der Wärmebehandlung eines neutronenbestrahlten VVER-440 RDB-Stahls (Grundwerkstoff und Schweißnaht) für 150 Stunden bei 340 °C durch Amayev et. al [14]. Die erzielten Grade der Erholung liegen im Bereich $\eta = 0 - 36\%$ mit einem durchschnittlichen Wert von $\eta = 20\%$ für den Grundwerkstoff und leicht verringerter Erholung für das Schweißnahtmaterial und stimmen damit gut mit den im vorliegenden Projekt ermittelten Erholungsgraden bezüglich HV10 und T_{SP} nach $t = 100\,h$ überein. Gleichzeitig zeigen die mit weiterer Wärmebehandlung noch deutlich ansteigenden Grade der Erholung, dass das Erholungspotential einer Nassausheilung nach 100 Stunden noch nicht ausgeschöpft ist. Ulbricht et. al [35] berichten Erholungsgrade bezüglich der Vickershärte im Bereich $\eta \approx 15 - 20\%$ nach der Wärmebehandlung bestrahlter Kupferhaltiger RDB Stähle des Typs A533B für 10 Stunden bei 350 °C. Trotz einer deutlich geringeren Dauer der Wärmebehandlung wurde also eine vergleichbare Erholung bezüglich der Vickershärte festgestellt wie nach 100 Stunden Wärmebehandlung im vorliegenden Projekt. Ursache dafür ist wahrscheinlich der deutlich höhere Kupfergehalt der in [35] untersuchten Stähle (JRQ 0,15% Cu; JPA 0,29% Cu), der auch in anderen Studien [15] einen positiven Einfluss auf das Erholungsverhalten zeigt. Erholungsgrade um $\eta \leq 50\%$ wurden in [11] aus Charpy-V Tests neutronenbestrahlter RDB Stähle des Typs A302B nach 672 Stunden Wärmebehandlung bei 343 °C ermittelt, was gut mit den im vorliegenden Projekt erzielten Werten für η bezüglich T_0 und T_{SP} nach $t = 1000h$ übereinstimmt. Boothby et. al [36] haben in Situ SANS-Messungen während der Wärmebehandlung einer Kupferreichen (0,56%) RDB-Schweißnaht bei 347 °C durchgeführt und berichten nach 0,5 Stunden einen Grad der Erholung von 9% bezüglich des

Volumenanteils bzw. 15% bezüglich der Anzahl der strahlungsinduzierten atomaren Cluster. Diese Werte passen zumindest vom Verhältnis her zu den im vorliegenden Projekt aus SANS-Messungen ermittelten Graden der Erholung ($\eta = 21\%$ bzw. $\eta = 43\%$) nach $t = 300\ h$, ein detaillierter Vergleich ist aufgrund der sehr unterschiedlichen Dauer der Wärmebehandlung und der abweichenden chemischen Zusammensetzung aber nicht sinnvoll.

7 Zusammenfassung

Im vorliegenden Projekt wurde das Erholungsverhalten neutronenbestrahlter RDB-Stähle des Typs VVER-440 aus dem ehemaligen Kernkraftwerk Greifswald während der langfristigen Wärmebehandlung bei einer der Nassausheilung entsprechenden Temperatur von 343 °C anhand verschiedener Methoden der mechanischen und mikrostrukturbasierten Charakterisierung untersucht. Alle verwendeten Untersuchungsmethoden zeigen eine signifikante Erholung der strahlungsinduzierten Versprödung als Folge der Wärmebehandlung und beweisen damit, dass durch eine Nassausheilung des Reaktordruckbehälters prinzipiell eine Verlängerung der sicheren Betriebsdauer von Druckwasser-Reaktoren erreicht werden kann. Für den Grundwerkstoff GW-8 steigt der erzielte Grad der Erholung mit zunehmender Dauer der Wärmebehandlung auf bis zu 80%, variiert jedoch teils deutlich je nach untersuchtem Parameter. Die Erholung des Schweißnahtmaterials SG-4 wurde aus Zeitgründen und eingeschränkter Verfügbarkeit nur über die Messung der Vickershärte HV10 charakterisiert. Hier zeigte sich eine gegenüber dem Grundwerkstoff zeitlich verzögerte bzw. nach gleicher Dauer der Wärmebehandlung geringere Erholung von bis zu 38% nach 2000 Stunden Wärmebehandlung. Da aber, wie für den Grundwerkstoff, auch nach dieser Zeit noch keine Sättigung des Erholungsverhaltens beobachtet wurde kann vermutet werden, dass bei hinreichend langer Glühdauer für beide Materialien eine fast vollständige Erholung der strahlungsinduzierten Versprödung erreicht werden kann.

Literaturverzeichnis:

1. Dudarev, S.L., *Grand Challenges in Nuclear Engineering.* Frontiers in Nuclear Engineering, 2022. **Volume 1 - 2022** DOI: 10.3389/fnuen.2022.945270.

2. Ortner, S., *A review of structural material requirements and choices for nuclear power plant.* Frontiers in Nuclear Engineering, 2023. **Volume 2 - 2023** DOI: 10.3389/fnuen.2023.1253974.

3. Mager, T.R., Y.G. Dragunov and C. Leitz, *Thermal annealing of an embrittled reactor pressure vessel.*, in *Technical Report IWG-LMNPP-98/3*. 1998, International Atomic Energy Agency, International Working Group on Life Management of Nuclear Power Plants: Vienna. p. 505-530.

4. Sokolov, M.A., W.L. Server and R.K. Nanstad. *Thermal Annealing of Reactor Pressure Vessels*. in *ASME 2015 Pressure Vessels and Piping Conference*. 2015. DOI: 10.1115/pvp2015-45783.

5. Brumovsky, M., *5 - Embrittlement of reactor pressure vessels (RPVs) in WWER-type reactors*, in *Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessels (RPVs) in Nuclear Power Plants*, N. Soneda, Editor. 2015, Woodhead Publishing. p. 107-131 DOI: https://doi.org/10.1533/9780857096470.2.107.

6. Ahlstrand, R., E. Klausnitzer, D. Lange, C. Leitz, D. Pastor, M. Valo and L. Steele, *Evaluation of the Recovery Annealing of the Reactor Pressure Vessel of NPP Nord (Greifswald) Units 1 and 2 by Means of Subsize Impact Specimens*, in *Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume)*. 1993, ASTM International. p. 0 DOI: 10.1520/stp24785s.

7. Pelli, R. and K. Törrönen, *On thermal annealing of irradiated PWR pressure vessels.* International Journal of Pressure Vessels and Piping, 1998. **75**(15): p. 1075-1095 DOI: https://doi.org/10.1016/S0308-0161(97)00078-1.

8. Viehrig, H.-W., J. Schuhknecht, U. Rindelhardt and F.-P. Weiss, *Investigation of Beltline Welding Seam of the Greifswald WWER-440 Unit 1 Reactor Pressure Vessel.* Journal of ASTM International, 2009. **6**(5): p. 1-10 DOI: 10.1520/jai101925.

9. Brumovsky, M., R. Ahlstrand, J. Brynda, L. Debarberis, J. Kohopaa, A. Kryukov and W. Server, *Annealing and Re-embrittlement of Reactor Pressure Vessel Materials*. AMES Report. Vol. 19. 2008, Petten (Netherlands): European Commission.

10. Potapovs, U., G.W. Knighton and A.S. Denton, *Critique of in-place annealing of SM-1A nuclear reactor vessel.* Nuclear Engineering and Design, 1968. **8**(1): p. 39-57 DOI: https://doi.org/10.1016/0029-5493(68)90015-0.

11. Fabry, A., F. Motte, G. Stiennon, J. Debrue, P. Gubel and J.V.d. Velde, *Annealing of the BR3 reactor pressure vessel*, in *Proceedings of the twelfth water reactor safety information meeting. Rockville, Maryland*. 1984, U.S. Nuclear Regulatory Comission.

12. Server, W.L. and E.C. Biemiller, *Recent evaluation of the "wet" annealing to resolve reactor pressure vessel embrittlement*, in *Proceedings of the SMiRT-12 conference*, K. Kussmaul, Editor. 1993.

13. Krasikov, E., *Radiation intensification of the reactor pressure vessels recovery by low temperature heat treatment (wet annealing).* IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 2015. **81** DOI: 10.1088/1757-899X/81/1/012002.

14. Amayev, A.D., A.M. Kryukov and M.A. Sokolov, *Recovery of the Transition Temperature of Irradiated WWER-440 Vessel Metal by Annealing*, in *Radiation Embrittlement of Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels: An International Review (Fourth Volume)*, L.E. Steele, Editor. 1993, ASTM International. p. 0.

15. Kryukov, A., *Actual issues of VVER reactor pressure vessel irradiation embrittlement assessment*, in *Proceedings of the EUROSAFE 2019 Conference*. 2019, Gesellschaft für Reaktorsicherheit: Cologne (Köln). p. 9-20.

16. Gillemot, F., *Study of irradiation effects at the research reactor.* Strength of Materials, 2010. **42**(1): p. 78-83 DOI: 10.1007/s11223-010-9191-7.

17. Ulbricht, A., E. Altstadt, F. Bergner, H.W. Viehrig and U. Keiderling, *Small-angle neutron scattering investigation of as-irradiated, annealed and reirradiated reactor pressure vessel weld material of decommissioned reactor.* Journal of Nuclear Materials, 2011. **416**(1): p. 111-116 DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.12.219.

18. Brumovsky, M., J. Brynda, Z. Hrbek and J. Sulc, *Properties of semiproducts for VVER 440 reactor pressure vessels*. 1981, Skoda, Plzen (Czechoslovakia): Czech Republic.

19. Viehrig, H.W., E. Altstadt and M. Houska, *Investigation of Decommissioned Reactor Pressure Vessels of the Nuclear Power Plant Greifswald*. 2018: HZDR, Helmholtz Zentrum Dresden-Rossendorf.

20. Viehrig, H.W., E. Altstadt, M. Houska, G. Müller, A. Ulbricht, J. Konheiser and M. Valo, *Investigation of decommissioned reactor pressure vessels of the nuclear power plant Greifswald*. HZDR-Report 088, 2018, eISSN: 2191-8716.

21. Timofeev, B., M. Brumovsky and U. von Estorff, *Certification Report of 15Kh2MFA/15Cr2MoVA Steel and its Welds for VVER Reactor Pressure Vessels: Technical Report JRC57754*. 2010, Publications Office of the European Union.

22. Altstadt, E., F. Bergner and M. Houska, *Use of the small punch test for the estimation of ductile-to-brittle transition temperature shift of irradiated steels.* Nuclear Materials and Energy, 2021. **26**: p. 100918 DOI: https://doi.org/10.1016/j.nme.2021.100918.

23. Wallin, K., *The master curve method: a new concept for brittle fracture.* International Journal of Materials and Product Technology, 1999. **14**(2-4): p. 342-354 DOI: 10.1504/ijmpt.1999.036276.

24. Altstadt, E., F. Bergner, J.-E. Brandenburg, P. Chekhonin, J. Dykas, M. Houska and A. Ulbricht, *Recovery of neutron-irradiated VVER-440 RPV base metal and weld exposed to isothermal annealing at 343°C up to 2,000 h.* Frontiers in Nuclear Engineering, 2024. **Volume 3 - 2024** DOI: 10.3389/fnuen.2024.1446635.

25. Dewhurst, C.D., I. Grillo, D. Honecker, M. Bonnaud, M. Jacques, C. Amrouni, A. Perillo-Marcone, G. Manzin and R. Cubitt, *The small-angle neutron scattering instrument D33 at the Institut Laue-Langevin.* Journal of Applied Crystallography, 2016. **49**(1): p. 1-14 DOI: doi:10.1107/S1600576715021792.

26. Glatter, O., *Determination of particle-size distribution functions from small-angle scattering data by means of the indirect transformation method.* Journal of Applied Crystallography, 1980. **13**(1): p. 7-11 DOI: doi:10.1107/S0021889880011429.

27. Urwank, P., *Unambiguous curve fitting and error estimation for charpy impact test data of reactor pressure vessel steels, suitable for a small number of samples.* Journal of Nuclear Materials, 1989. **161**(1): p. 24-29 DOI: https://doi.org/10.1016/0022-3115(89)90458-3.

28. Almirall, N., P.B. Wells, T. Yamamoto, K. Wilford, T. Williams, N. Riddle and G.R. Odette, *Precipitation and hardening in irradiated low alloy steels with a wide range of Ni and Mn compositions.* Acta Materialia, 2019. **179**: p. 119-128 DOI: https://doi.org/10.1016/j.actamat.2019.08.027.

29. Viehrig, H.W., J. Boehmert and J. Dzugan, *Some issues by using the master curve concept.* Nuclear Engineering and Design, 2002. **212**(1): p. 115-124 DOI: https://doi.org/10.1016/S0029-5493(01)00465-4.

30. Nanstad, R.K., W.L. Server, M.A. Sokolov, G.R. Odette and N. Almirall. *Some Useful Mechanical Property Correlations for Nuclear Reactor Pressure Vessel Steels*. in *ASME 2018 Pressure Vessels and Piping Conference*. 2018. DOI: 10.1115/pvp2018-84786.

31. Mathon, M.H., A. Barbu, F. Dunstetter, F. Maury, N. Lorenzelli and C.H. de Novion, *Experimental study and modelling of copper precipitation under electron irradiation in dilute FeCu binary alloys.* Journal of Nuclear Materials, 1997. **245**(2): p. 224-237 DOI: https://doi.org/10.1016/S0022-3115(97)00010-X.

32. Bergner, F., A. Ulbricht, M. Hernandez-Mayoral and P.K. Pranzas, *Small-angle neutron scattering study of neutron-irradiated iron and an iron–nickel alloy.* Journal of Nuclear Materials, 2008. **374**(1): p. 334-337 DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.07.008.

33. Kočík, J., E. Keilová, J. Čížek and I. Procházka, *TEM and PAS study of neutron irradiated VVER-type RPV steels.* Journal of Nuclear Materials, 2002. **303**(1): p. 52-64 DOI: https://doi.org/10.1016/S0022-3115(02)00800-0.

34. Odette, G.R. and G.E. Lucas, *Recent progress in understanding reactor pressure vessel steel embrittlement.* Radiation Effects and Defects in Solids, 1998. **144**(1-4): p. 189-231 DOI: 10.1080/10420159808229676.

35. Ulbricht, A., F. Bergner, C.D. Dewhurst and A. Heinemann, *Small-angle neutron scattering study of post-irradiation annealed neutron irradiated pressure vessel steels.* Journal of Nuclear Materials, 2006. **353**(1): p. 27-34 DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2006.02.083.

36. Boothby, R.M., J.M. Hyde, H. Swan, D. Parfitt, K. Wilford and P. Lindner, *SANS examination of irradiated RPV steel welds during in-situ annealing.* Journal of Nuclear Materials, 2015. **461**: p. 45-50 DOI: https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2015.02.036.

Anhang

Ergebnisse der Small-Punch Tests

#	$T[°C]$	$F_m[N]$	$v_m[mm]$	$E_{SP}[mJ]$	$F_e[N]$	$v_e[mm]$	Art des Bruchs
3	-155,0	1373	0,594	508	428	0,086	spröde
4	-156,3	1354	0,587	492	406	0,083	spröde
5	-101,9	2339	1,44	1961	378	0,081	spröde
6	-99,4	2139	1,297	1610	344	0,069	spröde
7	-119,7	2261	1,247	1597	364	0,074	spröde
8	-121,0	1771	0,902	918	379	0,076	spröde
9	-120,3	2078	1,11	1321	416	0,085	spröde
10	-125,2	1905	0,991	1083	409	0,084	spröde
11	-95,1	2313	1,401	1890	339	0,063	spröde
12	-135,7	2222	1,089	1346	410	0,081	spröde
13	-136,5	1874	0,943	1011	414	0,09	spröde
14	-156,2	1559	0,713	686	464	0,096	spröde
15	-155,3	1230	0,506	384	452	0,098	spröde
16	-80,4	2127	1,411	1560	323	0,068	spröde

Tabelle A-1: Ergebnisse der einzelnen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 ohne weitere Wärmebehandlung.

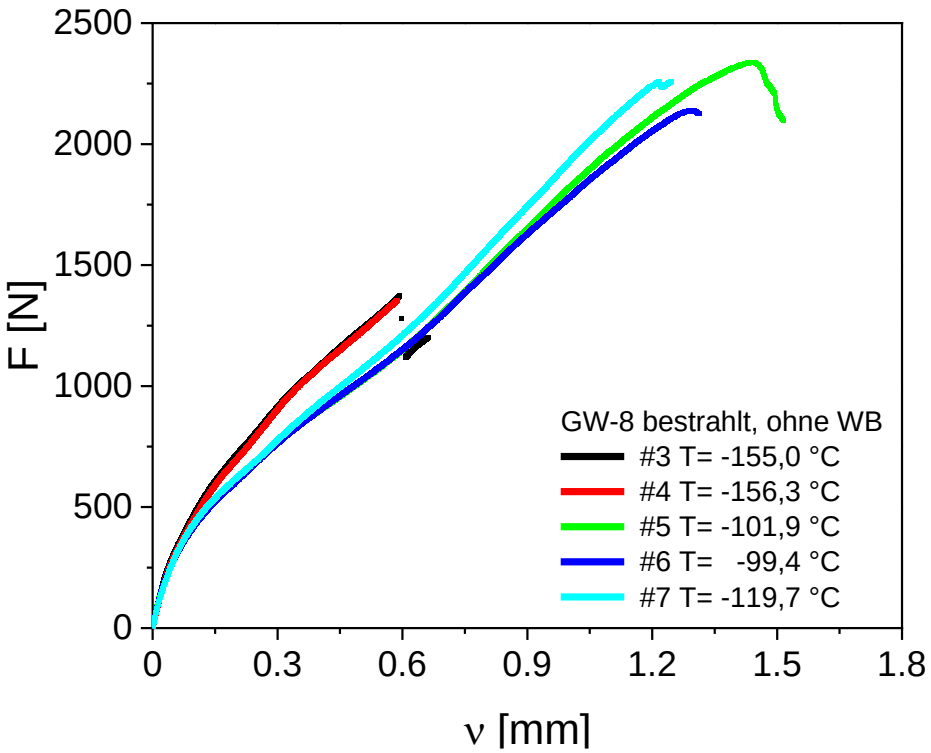


Abbildung A-1: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil I.

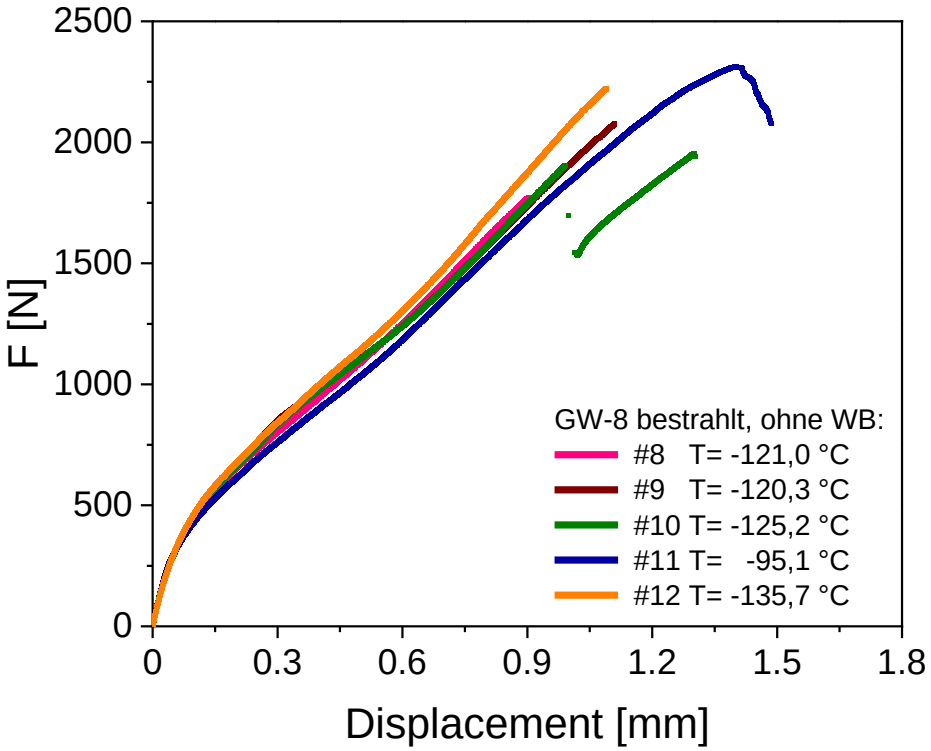


Abbildung A-2: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil II.

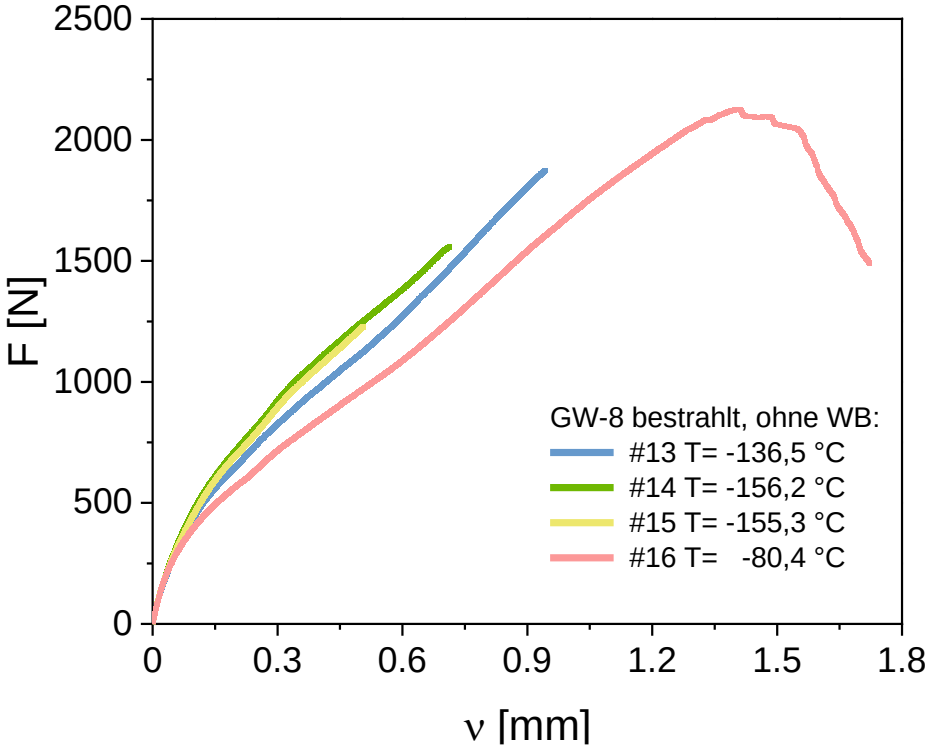


Abbildung A-3: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil III.

#	$T[°C]$	$F_m[N]$	$v_m[mm]$	$E_{SP}[mJ]$	$F_e[N]$	$v_e[mm]$	Art des Bruchs
1	21,5	1749	1,471	1540	291	0,064	duktil
2	21,6	1802	1,604	1723	282	0,057	duktil
3	-49,0	1984	1,566	1873	305	0,058	duktil
4	-50,9	1860	1,626	1882	304	0,063	duktil
5	-99,2	2400	1,622	2280	366	0,072	duktil
6	-100,9	2413	1,605	2250	363	0,073	duktil
7	-149,7	1899	0,916	1011	484	0,084	spröde
8	-149,9	1867	0,892	950	475	0,085	spröde
9	-140,7	1999	0,999	1130	452	0,082	spröde
10	-141,0	1979	0,994	1096	426	0,076	spröde
11	-129,7	2510	1,506	2174	399	0,081	spröde
12	-128,6	2423	1,453	2103	401	0,071	spröde
13	-135,8	2434	1,32	1824	457	0,082	spröde
14	-137,5	1585	0,884	776	386	0,073	spröde
15	-134,5	2264	1,446	2007	461	0,084	spröde
16	-140,5	2007	1,025	1162	462	0,052	spröde
18	-107,8	2099	1,336	1649	377	0,077	spröde

Tabelle A-2: Ergebnisse der einzelnen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach Wärmebehandlung für 100h bei T=343°C.

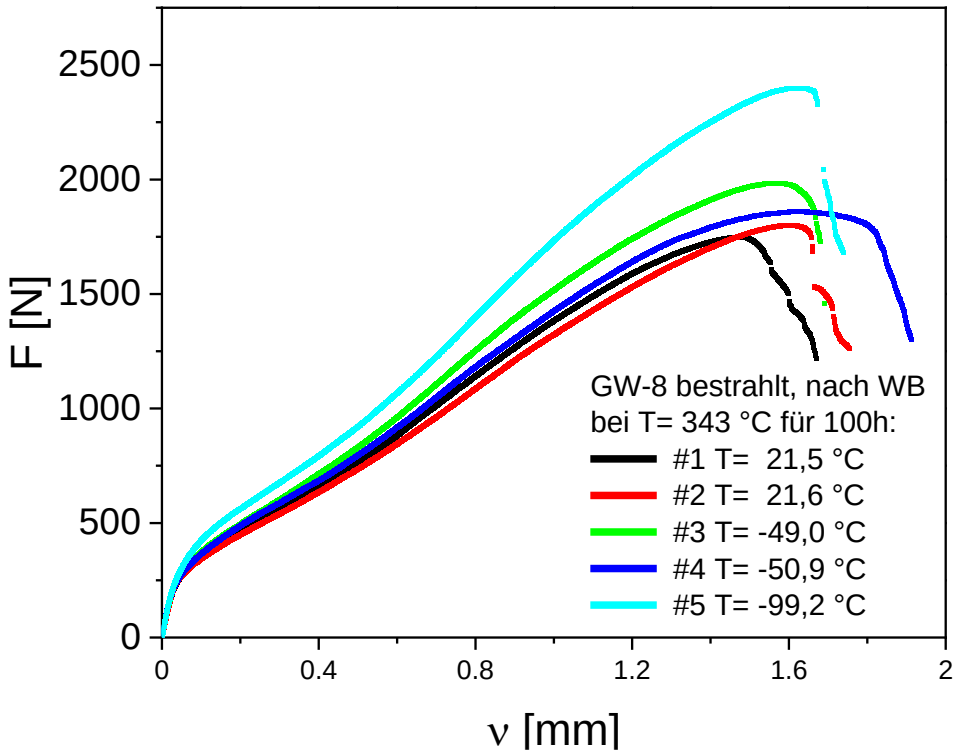


Abbildung A-4: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 100h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil I.

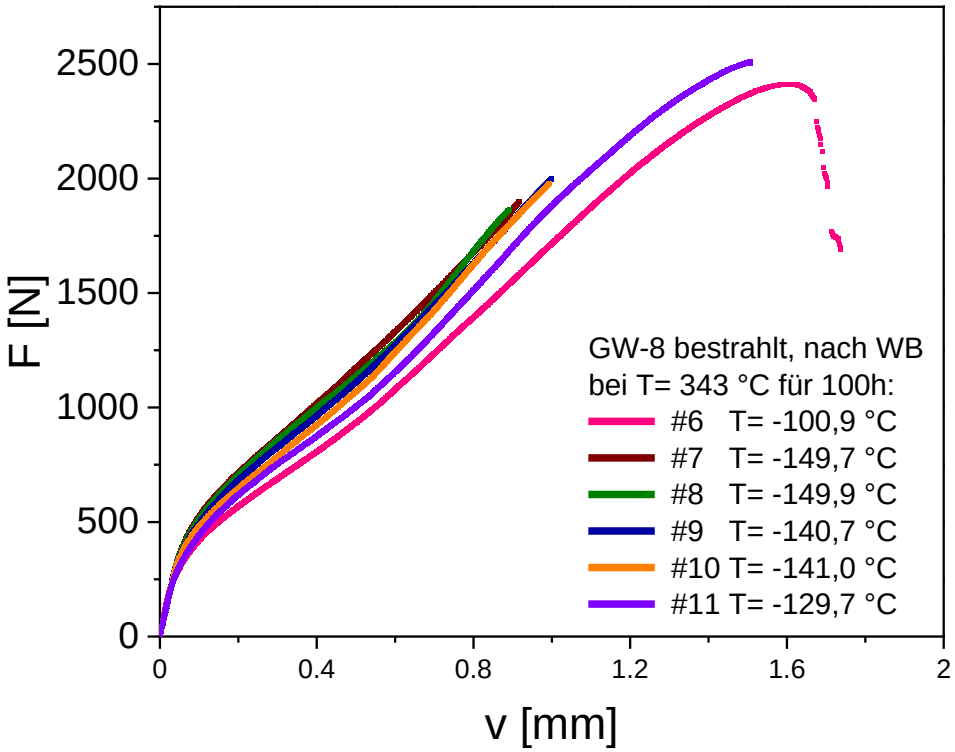


Abbildung A-5: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 100h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil II.

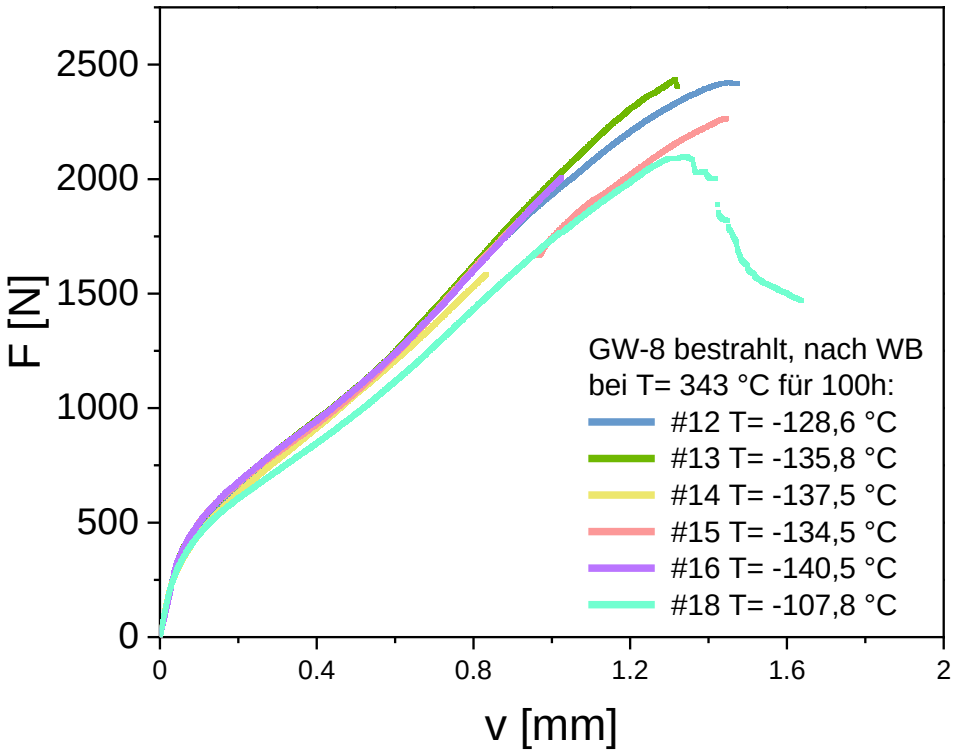


Abbildung A-6: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 100h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil III.

#	$T[°C]$	$F_m[N]$	$v_m[mm]$	$E_{SP}[mJ]$	$F_e[N]$	$v_e[mm]$	Art des Bruchs
1	21,3	1816	1,594	1772	289	0,06	duktil
2	21,4	1822	1,663	1827	276	0,051	duktil
3	-50,8	2061	1,521	1837	308	0,063	duktil
4	-51,6	1944	1,573	1870	311	0,06	duktil
5	-103,9	2296	1,506	2011	350	0,068	duktil
6	-100,6	2273	1,601	2134	384	0,079	duktil
7	-150,4	2046	1,002	1155	445	0,08	spröde
8	-149,9	1567	0,754	694	441	0,082	spröde
9	-129,6	2514	1,417	2047	451	0,082	spröde
10	-140,9	1866	0,867	942	517	0,087	spröde
11	-150,0	2637	1,288	1930	570	0,101	spröde
12	-160,8	1610	0,679	692	622	0,109	spröde
13	-161,1	1707	0,702	738	601	0,103	spröde

Tabelle A-3: Ergebnisse der einzelnen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach Wärmebehandlung für 1000h bei T=343°C.

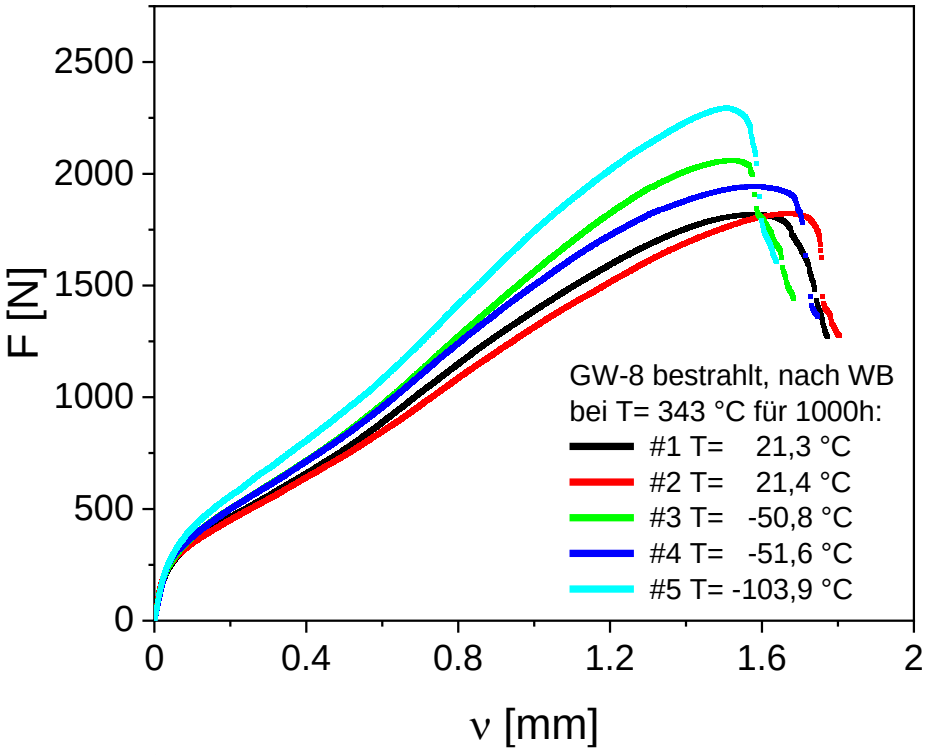


Abbildung A-7: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 1000h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil I.

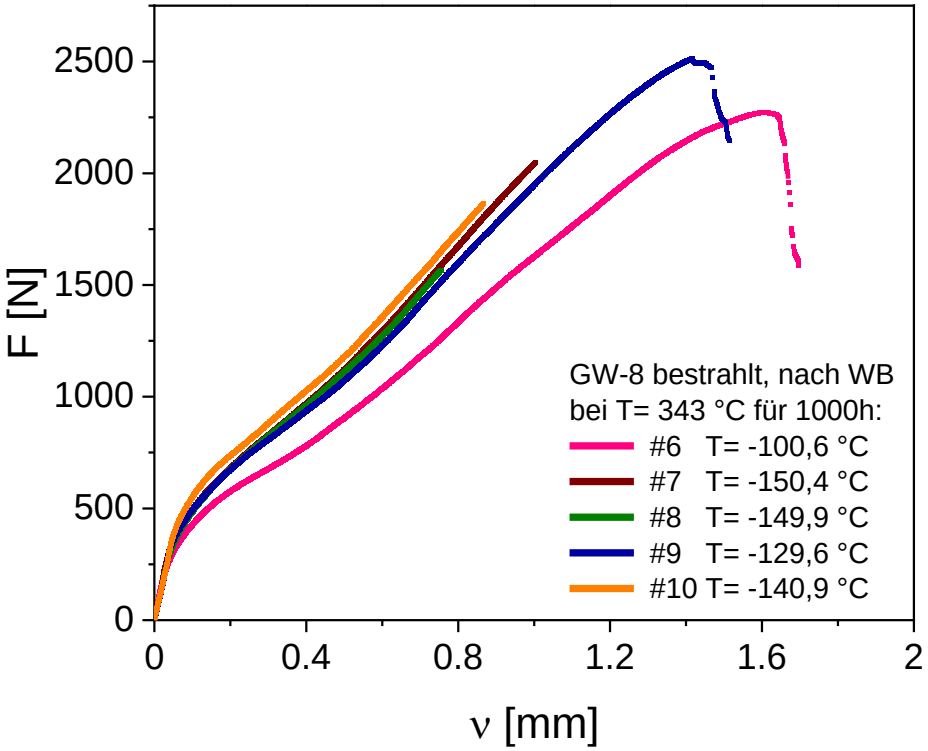


Abbildung A-8: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 1000h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil II.

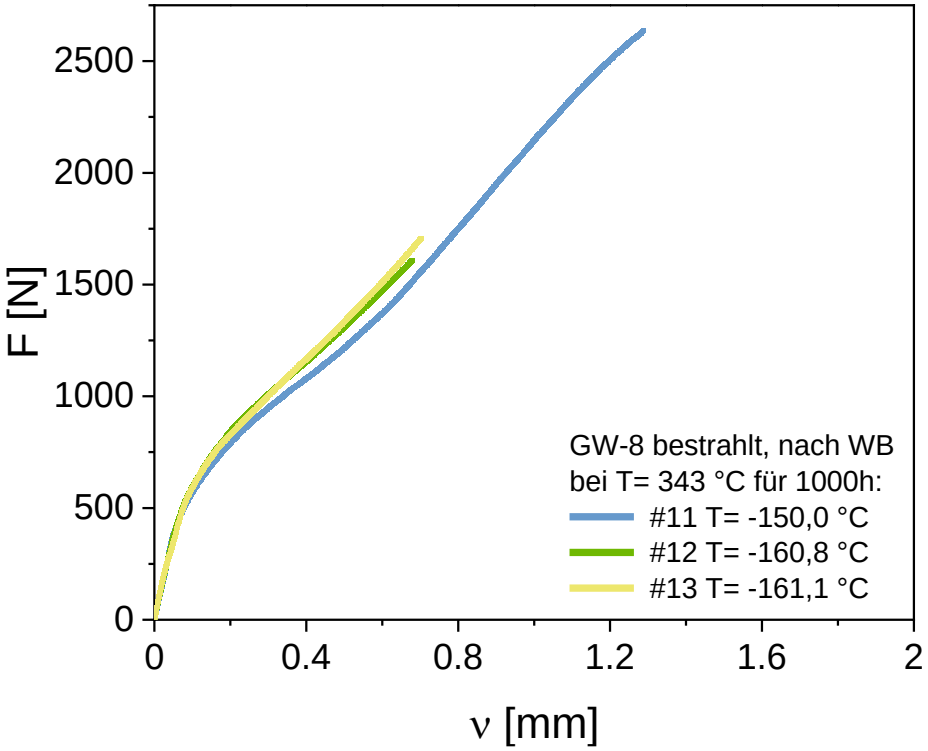


Abbildung A-9: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach 1000h Wärmebehandlung bei $T = 343°C$. Teil III.

#	$T[°C]$	$F_m[N]$	$v_m[mm]$	$E_{SP}[mJ]$	$F_e[N]$	$v_e[mm]$	Art des Bruchs
4	20,1	1699	1,734	1751	270	0,093	duktil
5	20,3	1744	1,778	1857	269	0,102	duktil
6	20,3	1727	1,759	1803	255	0,092	duktil
7	100,7	1554	1,613	1491	244	0,078	duktil
8	100,4	1556	1,666	1547	258	0,081	duktil
9	100,0	1583	1,726	1617	217	0,071	duktil
10	201,8	1448	1,649	1430	237	0,083	duktil
11	201,3	1517	1,648	1501	250	0,073	duktil
12	201,3	1530	1,716	1560	241	0,089	duktil
13	332,2	1335	1,519	1189	229	0,08	duktil
14	331,5	1384	1,492	1210	248	0,078	duktil
15	331,8	1376	1,602	1356	236	0,074	duktil
16	-74,3	2071	1,855	2240	314	0,088	duktil
18	-120,2	2402	1,992	2771	332	0,116	duktil
19	-24,1	1967	1,795	2058	261	0,079	duktil
20	-23,3	1878	1,77	1938	249	0,081	duktil
21	-24,4	1862	1,724	1877	278	0,086	duktil
22	-50,3	1939	1,769	2054	291	0,073	duktil
23	-50,0	1877	1,774	1982	286	0,091	duktil
24	-48,7	1845	1,732	1920	298	0,092	duktil
25	-75,1	2025	1,776	2089	302	0,095	duktil
26	-73,7	1996	1,829	2122	271	0,083	duktil
28	-99,3	2291	1,838	2455	332	0,093	duktil
30	-99,1	2253	1,817	2298	310	0,104	duktil
31	-128,5	2056	1,353	1488	347	0,112	spröde
32	-123,8	2502	1,787	2522	338	0,119	duktil
33	-128,0	2552	1,873	2687	382	0,135	duktil
34	-150,2	2494	1,6	2249	479	0,124	spröde
35	-150,0	2666	1,775	2735	456	0,115	duktil
36	-150,5	2004	1,259	1345	377	0,11	spröde
37	-173,7	2823	1,681	2675	550	0,142	duktil
38	-175,5	1498	0,829	737	451	0,118	spröde
39	-174,7	926	0,431	255	395	0,094	spröde
40	-192,9	977	0,43	253	415	0,114	spröde
41	-193,0	1612	0,898	861	389	0,084	spröde
42	-180,9	1145	1,11	600	116	0,082	spröde
43	-100,3	2274	1.955	2476	328	0,138	duktil

Tabelle A-4: Ergebnisse der einzelnen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8.

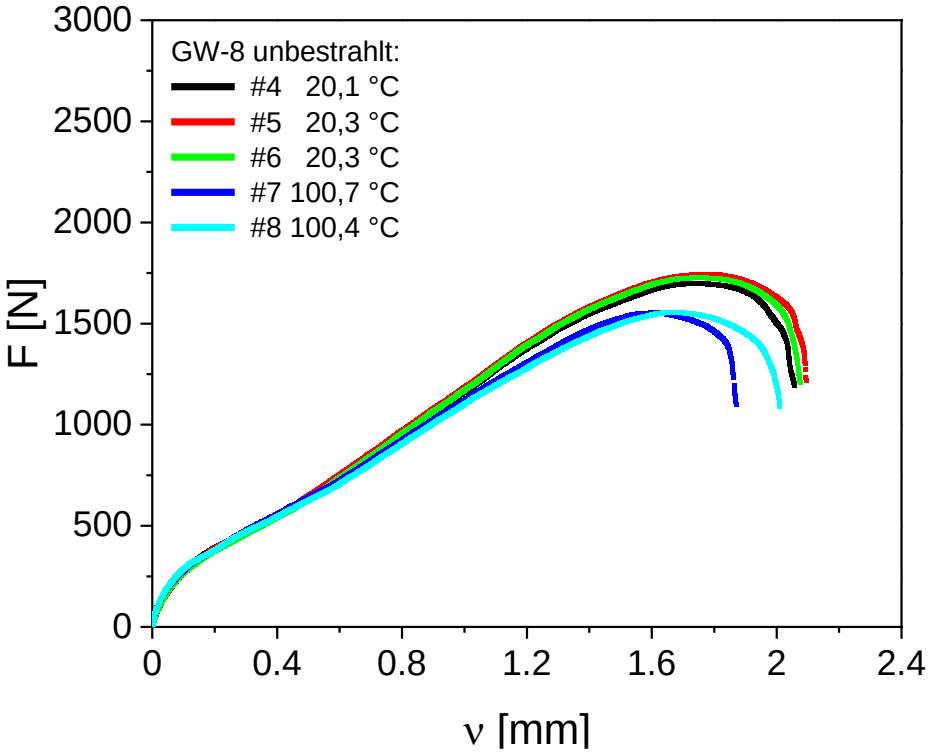


Abbildung A-10: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil I.

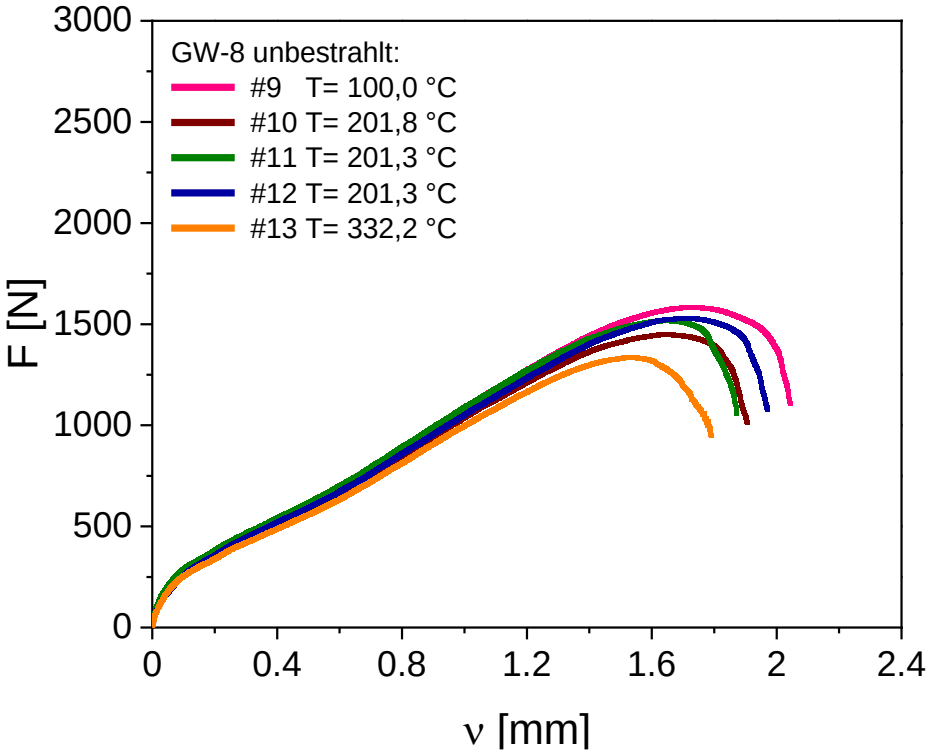


Abbildung A-11: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil II.

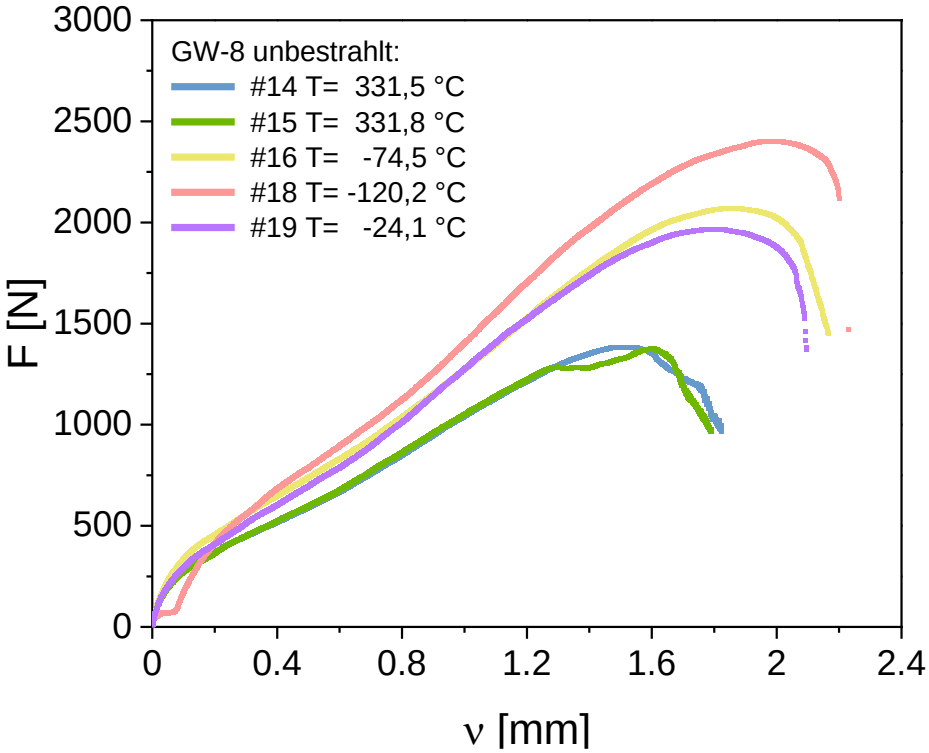


Abbildung A-12: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil III.

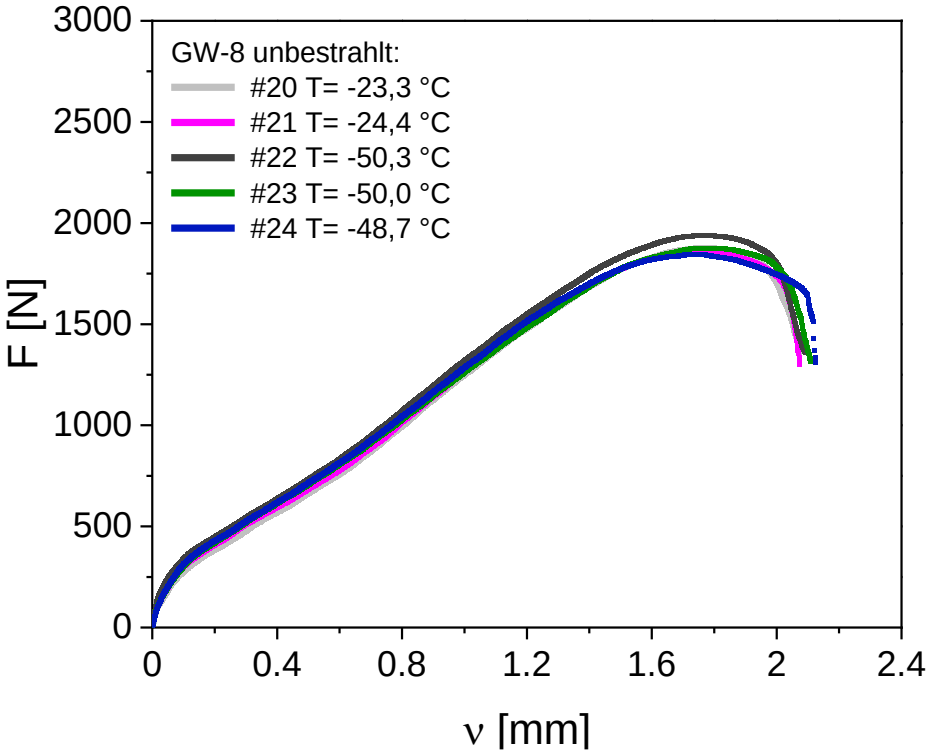


Abbildung A-13: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil IV.

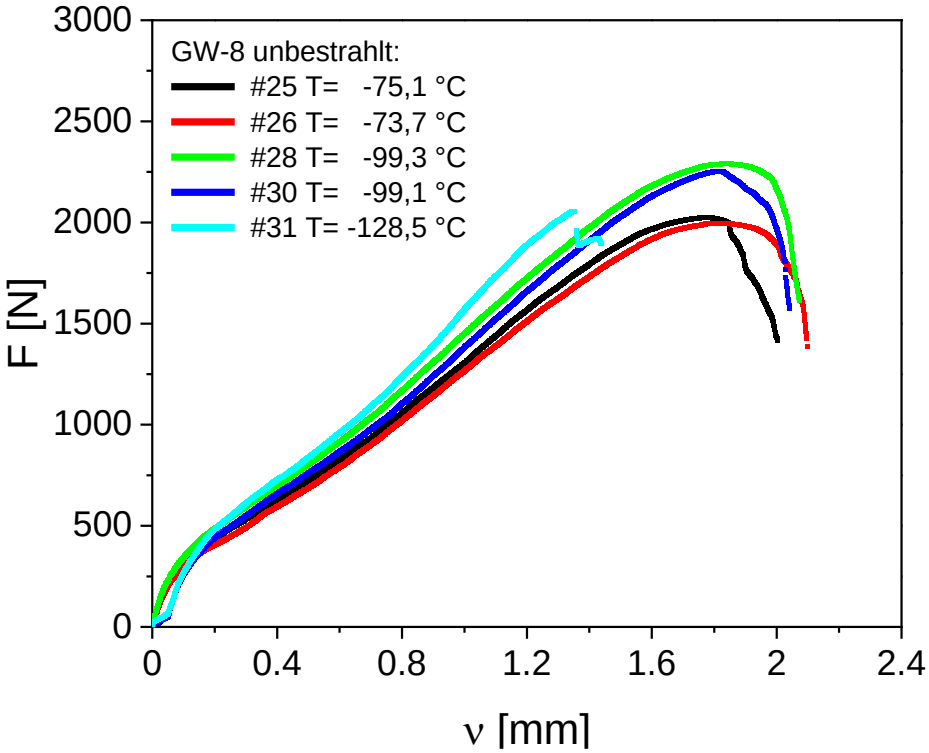


Abbildung A-14: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil V.

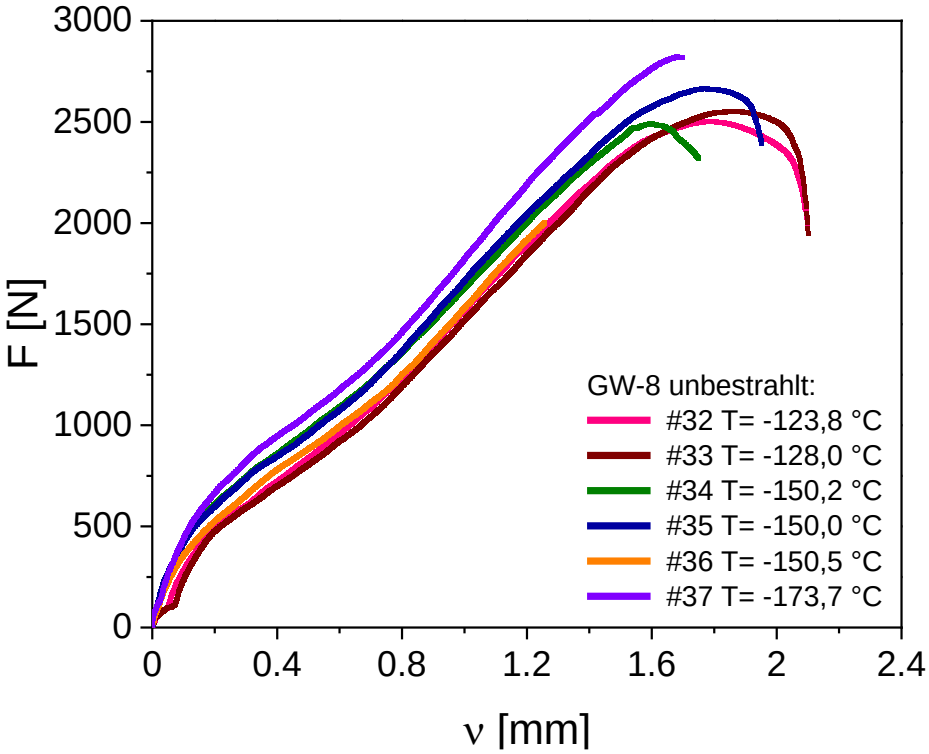


Abbildung A-15: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil VI.

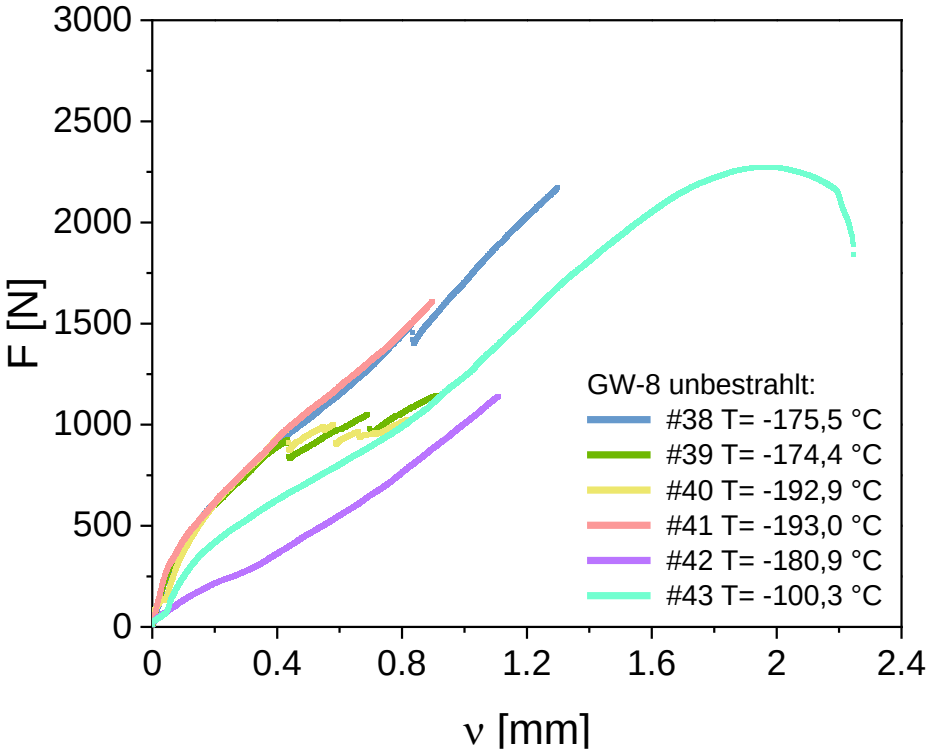


Abbildung A-16: Last-/Verschiebungskurven aus individuellen Small-Punch-Tests für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8. Teil VII.

Individuelle Bruchmechanik der geprüften Mini-CT Proben

#	$Or.$	W $[mm]$	B $[mm]$	a_0 $[mm]$	E $[GPa]$	σ_{ys} $[MPa]$	T $[°C]$	K_{JC} $[MPa\sqrt{m}]$	K_{JC}^{limit} $[MPa\sqrt{m}]$	$K_{JC(1T)}$ $[MPa\sqrt{m}]$
0	L-S	8,05	3,99	3,75	209,5	777,6	-50	55,12	160,21	41,11
2	L-S	8,04	3,98	3,97	209,5	777,6	-50	43,52	155,77	34,80
4	L-S	8,00	4,01	3,81	209,4	773,6	-45	172,74	157,72	116,29
5	L-S	7,98	3,96	4,02	209,5	777,6	-50	111,93	152,71	77,76
6	L-S	8,00	3,98	4,02	209,6	785,7	-60	310,02	154,92	202,45
7	L-S	8,04	3,96	3,93	209,7	794,1	-70	99,08	158,27	69,68
8	L-S	7,96	3,97	3,92	209,7	794,1	-70	328,88	156,97	214,24
9	L-S	7,92	3,99	3,70	209,8	798,4	-75	105,99	160,99	74,12
A	L-S	7,94	3,99	3,90	209,8	802,8	-80	38,88	157,79	31,88
B	L-S	7,95	3,97	3,98	209,8	798,4	-75	186,93	156,19	124,94
C	L-S	7,92	3,98	3,83	209,8	798,4	-75	90,23	158,48	64,19
D	L-S	7,91	3,96	3,91	209,8	798,4	-75	58,07	156,53	43,92
E	L-S	7,98	3,97	3,74	209,7	794,1	-70	157,42	160,80	106,40
F	L-S	7,92	3,99	3,91	209,7	794,1	-70	117,50	156,34	81,37
G	L-S	7,95	4,01	3,90	209,8	798,4	-75	93,37	157,66	66,42
H	L-S	7,93	3,98	4,03	209,7	794,1	-70	94,70	154,23	66,98
I	L-S	7,93	3,97	3,92	209,7	789,9	-65	47,92	155,92	37,56
J	L-S	7,94	3,99	3,97	209,6	785,7	-60	209,68	154,69	139,38

Tabelle A-5: Ergebnisse der bruchmechanischen Tests individueller Mini-CT Proben zur Bestimmung der Referenztemperatur T_0 entsprechend dem Master-Curve Konzept für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 ohne weitere Wärmebehandlung.

#	$Or.$	W $[mm]$	B $[mm]$	a_0 $[mm]$	E $[GPa]$	σ_{ys} $[MPa]$	T $[°C]$	K_{JC} $[MPa\sqrt{m}]$	K_{JC}^{limit} $[MPa\sqrt{m}]$	$K_{JC(1T)}$ $[MPa\sqrt{m}]$
5	L-S	7,97	4,04	3,98	210,1	825,8	-105	87,53	159,32	62,63
6	L-S	7,94	3,98	3,93	210,1	825,8	-105	71,89	159,54	52,65
7	L-S	7,93	3,96	3,99	210,1	830,6	-110	74,44	158,80	54,21
8	L-S	7,91	3,98	3,86	210,0	821,0	-100	161,29	159,95	108,86
9	L-S	7,95	3,95	3,82	210,0	821,0	-100	153,89	161,49	104,05
A	L	8,10	3,99	4,23	209,9	811,8	-90	281,85	209,92	184,80
B	L	8,07	4,01	4,16	210,1	830,6	-110	96,01	158,10	67,91
C	L	8,05	3,99	4,20	210,1	830,6	-110	93,69	156,93	66,38
D	L	8,07	4,00	4,01	210,1	830,6	-110	97,20	161,04	66,63
E	L	8,08	3,99	4,18	210,1	825,8	-105	97,62	157,59	66,88
F	L	8,08	3,99	4,03	210,0	821,0	-100	138,59	159,92	94,64

G	L	8,05	3,98	4,03	210,0	821,0	-110	90,46	159,44	64,33
H	L	8,08	3,98	4,05	210,0	816,4	-95	279,97	158,99	183,54
I	L	8,05	3,97	4,10	210,1	825,8	-105	83,50	158,39	59,93
J	L	8,04	3,98	4,03	210,1	825,8	-105	173,51	159,72	116,44

Tabelle A-6: Ergebnisse der bruchmechanischen Tests individueller Mini-CT Proben zur Bestimmung der Referenztemperatur T_0 entsprechend dem Master-Curve Konzept für den bestrahlten Grundwerkstoff GW-8 nach Wärmebehandlung für 1000h bei T=343°C.

#	$Or.$	W $[mm]$	B $[mm]$	a_0 $[mm]$	E $[GPa]$	σ_{ys} $[MPa]$	T $[°C]$	K_{JC} $[MPa\sqrt{m}]$	K_{JC}^{limit} $[MPa\sqrt{m}]$	$K_{JC(1T)}$ $[MPa\sqrt{m}]$
1	L-S	8,01	3,98	4,01	210,1	663,9	-110	53,01	143,28	40,77
2	L-S	8,01	3,99	3,98	210,4	720,6	-130	81,36	149,60	58,63
3	L-S	7,99	4,01	3,91	210,0	641,6	-100	280,17	142,16	183,99
4	L-S	7,99	3,98	4,15	210,3	690,0	-120	100,98	143,07	70,95
5	L-S	8,01	3,98	4,01	210,1	663,9	-110	217,32	143,24	144,15
6	L-S	7,99	4,00	3,97	210,1	663,9	-110	90,84	143,68	64,62
7	L-S	7,99	3,98	4,06	210,1	663,9	-110	138,75	142,04	94,71
8	L-S	7,98	3,98	4,02	210,3	690,0	-120	104,75	145,27	73,32
9	L-S	7,99	3,98	4,03	210,3	690,0	-120	65,63	145,23	48,71
10	L-S	8,01	3,98	4,03	210,3	690,0	-120	144,56	145,69	98,37
11	L-S	8,00	3,96	3,91	210,3	690,0	-120	64,18	147,61	47,76
12	L-S	8,01	3,98	4,01	210,3	690,0	-120	54,39	145,95	41,64
13	L-S	8,01	3,99	4,04	210,1	663,9	-110	129,05	142,79	88,65
14	L-S	8,00	4,00	4,10	210,1	663,9	-110	59,85	141,59	45,10
15	L-S	8,01	4,00	3,92	210,4	720,6	-130	89,27	150,90	63,64
16	L-S	8,00	3,99	4,00	210,1	663,9	-110	247,52	143,22	163,24
17	L-S	7,98	3,98	4,10	210,0	641,6	-100	70,18	138,69	51,57
18	L-S	8,02	3,99	4,04	210,3	690,0	-120	90,77	145,60	64,55
19	L-S	7,99	4,00	3,85	210,4	720,6	-130	73,38	151,67	53,63
20	L-S	8,00	4,01	4,16	210,3	690,0	-120	65,59	143,01	48,74

Tabelle A-7: Ergebnisse der bruchmechanischen Tests individueller Mini-CT Proben zur Bestimmung der Referenztemperatur T_0 entsprechend dem Master-Curve Konzept für den unbestrahlten Grundwerkstoff GW-8.