

WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-356

Oktober 2002

ISSN 1437-322X

Archiv-Ex.:



*Bertram Böhmer, Jörg Konheiser, Hermann Kumpf,
Klaus Noack, Pavel Vladimirov*

**Einfluss der Gammastrahlung auf die
Schädigung von Druckbehältermaterialien und
auf reaktordosimetrische Messungen**

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

Als Manuskript gedruckt
Alle Rechte beim Herausgeber

FORSCHUNGSZENTRUM ROSSENDORF



WISSENSCHAFTLICH-TECHNISCHE BERICHTE

FZR-356

Oktober 2002

*Bertram Böhmer, Jörg Konheiser, Hermann Kumpf,
Klaus Noack, Pavel Vladimirov*

**Einfluss der Gammastrahlung auf die
Schädigung von Druckbehältermaterialien und
auf reaktordosimetrische Messungen**

Abschlussbericht

Reaktorsicherheitsforschung - Vorhaben-Nr.: 150 1221

Abschlussbericht

Final Report

Reaktorsicherheitsforschung - Vorhaben-Nr.: 150 1221
Reactor Safety Research - project No.: 150 1221

Vorhabentitel

**Einfluss der Gammastrahlung auf die Schädigung
von Druckbehältermaterialien und auf
reaktordosimetrische Messungen**

Project Title

**Influence of gamma irradiation on the deterioration of
reactor pressure vessel materials and on
reactor dosimetry measurements**

Autoren / Author (s) :

B. Böhmer, J. Konheiser, H. Kumpf, K. Noack, P. Vladimirov

**Dienststelle des Autors / Performing Organisation:
Forschungszentrum Rossendorf e.V.**

**Berichtsdatum / Publication Date: Oktober 2002
Berichts – Nr. / Report - No: FZR-356**

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie unter dem Förderkennzeichen 150 1221 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Das Forschungszentrum Rossendorf und die Autoren übernehmen keine Haftung für Schäden, die auf Grund von weiterführenden oder fehlerhaften Anwendungen der in diesem Bericht dargestellten Ergebnisse entstehen.

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung / Abstract	5
Kurze Darstellung	8
1. Aufgabenstellung	8
2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde	9
3. Planung und Ablauf des Vorhabens	10
4. Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Beginn der Arbeiten	10
5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen	13
Eingehende Darstellung der erzielten Ergebnisse	14
1. Analyse des Standes der Materialforschung zur Gammaversprödung – Beiträge zur Entwicklung neuer Schädigungskenngrößen	14
1.1. Zusammenfassung des gesonderten Berichts zur Materialforschung ...	14
1.2. Vereinfachte Modellvorstellungen zur strahlungsinduzierten Material- härtung und –versprödung	21
1.3. „Einfluss der Gammastrahlung“ im Zeitabriss	23
1.4. Mögliche Schädigungskenngrößen für Neutronenstrahlung	25
1.5. Neue Berechnung des DPA-Wirkungsquerschnitts von Eisen für Gammastrahlung	27
1.6. Ansatz für ein theoretisch rechnerisches Modell zum Ausheilungs- Effekt durch Gammastrahlung	28
2. Berechnungen von Flusspektren und Schädigungskenngrößen für Neutronen- und Gammastrahlung	29
2.1. Untersuchte Reaktoren	29
2.2. Berechnungsverfahren, Codes, Kerndaten und Berechnungsmodelle ..	29
2.3. Neutronenflusspektren	34
2.4. Gammaflusspektren	36
2.5. Flussintegrale	39
2.6. Schädigungskenngrößen	41
2.7. Anteil der Spaltgammas	44
3. Einfluss der Gammastrahlung auf die Ergebnisse von Neutronen- fluenzmessungen mit Spaltdetektoren	45
4. Vergleich von Ergebnissen unterschiedlicher Berechnungsverfahren und Fehlerbetrachtungen	46
4.1. Vergleich von deterministischen und Monte-Carlo-Rechnungen für für zwei Reaktoren	46
4.2. Vergleichsrechnungen für ein einfaches Testmodell	47
4.3. Fehlerbetrachtungen	50
5. Schlussfolgerungen aus den Rechenergebnissen	51

6. Allgemeine Schlussfolgerungen	52
7. Literaturverzeichnis	53
Anhang	55
Vergleiche von Rechenergebnissen für ein einfaches Testmodell	55
Voraussichtlicher Nutzen	59
Fortschritte auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen	59
Veröffentlichungen der FE-Ergebnisse	59

Kurzfassung

Die Strahlenversprödung von Druckbehälterstahl in gemischten Neutronen-Gammafeldern wird meist von den Neutronen dominiert, in einigen Fällen aber auch durch Gammastrahlung. In Abhängigkeit vom Reaktortyp kann Gammastrahlung die Bestimmung von Voreilfaktoren, die Interpretation von Bestrahlungsexperimenten und letztlich die Abschätzung der Lebensdauer der Reaktordruckbehälter (RDB) beeinflussen. Das Vorhaben hatte das Ziel, den aktuellen Kenntnisstand der Materialforschung zu diesem Problem aus der Literatur aufzuarbeiten und auf dessen Grundlage für einige Typen von Leichtwasserreaktoren den Einfluss der Gammastrahlung auf die Schädigung des RDB-Stahls einzuschätzen.

Absolute Neutronen- und Gammaflussspektren wurden für die russischen Druckwasserreakortypen WWER-440 und WWER-1000, letzterer in zwei Beladungsvarianten des Reaktorkerns, sowie für einen deutschen 1300 MW Druckwasserreaktor und einen deutschen 900 MW Siedewasserreaktor bestimmt. Ausgehend von den berechneten Spektren wurden verschiedene Flussintegrale und Strahlenschädigungskennzahlen für das Gebiet des azimuthalen und vertikalen Flussmaximums für verschiedene radiale Positionen zwischen Reaktorkern und biologischem Schild bestimmt, und in Tabellen gesondert für die Innen- und Außenseite der RDB, in der $\frac{1}{4}$ -RDB-Tiefe sowie an der Position der Voreilproben zusammengestellt. Von speziellem Interesse sind die berechneten relativen Beiträge der Gammastrahlung zu den Summen von Neutronen- und Gammabeiträgen. Als Schädigungskennzahlen wurden die Verlagerungen pro Eisenatom (DPA) getrennt für Neutronen und Gammas bestimmt sowie numerische Abschätzungen der Anzahl der so genannten „frei beweglichen Defekte“ (FMD) vorgenommen. Um eine Vorstellung von der Genauigkeit der erhaltenen DPA-Werte zu erhalten, wurden die Berechnungen unter Verwendung unterschiedlicher Einschätzungen von DPA-Wirkungsquerschnitten durchgeführt. Zusätzlich wurde mit Hilfe des Monte-Carlo-Codes EGS4 der mikroskopische DPA-Wirkungsquerschnitt für Gammastrahlung als Funktion der Gammaenergie neu berechnet.

Für Neutronenflussmessungen werden häufig spaltbare Detektormaterialien eingesetzt. Zur Auswertung dieser Messungen ist es erforderlich, den Anteil der durch Gammastrahlung induzierten Spaltungen abzuziehen. Diese Anteile wurden für die häufig benutzten Reaktionen $^{237}\text{Np}(n,f)$ und $^{238}\text{U}(n,f)$ berechnet. Beträchtliche Korrekturen zu den Neutronenmessungen erweisen sich insbesondere im Falle von $^{238}\text{U}(n,f)$ als notwendig.

Die meisten Berechnungen der Neutronen- und Gammastrahlungsfelder wurden mit Hilfe einer dreidimensionalen Synthese von 2D/1D-Flussverteilungen ausgeführt. Dazu wurde der S_N -Code DORT mit der Gruppendatenbibliothek BUGLE-96T verwendet. Zwecks Erhöhung der Zuverlässigkeit der Ergebnisse und zur Abschätzung der durch die Gruppennäherung verursachten Fehler der berechneten Werte wurden für zwei Reaktoren parallele Rechnungen mit dem Monte-Carlo-Code MCNP unter Verwendung der energiepunktweisen Kerndaten der ENDF/B-VI-Bibliothek ausgeführt. Da überraschend beträchtliche Diskrepanzen zwischen den Ergebnissen der beiden Berechnungsvarianten auftraten, wurde zusätzlich zu den geplanten Arbeitsaufgaben ein einfaches, eindimensionales 2-Zonenmodell mit nur einem Material in der äußeren Zone definiert, um mögliche Datenungenauigkeiten besser lokali-

sieren zu können. Ergebnisse von Berechnungen mit verschiedenen Datenbibliotheken und Codes für vier Modellvarianten mit jeweils einem Material - H₂O, Fe, Cr oder Ni - in der äußeren Zone wurden miteinander verglichen.

In einem gesonderten Bericht wird auf der Grundlage einer Literaturrecherche eine Analyse des aktuellen Standes der Materialforschung zur Neutronen- und Gamma-
versprödung vorgenommen. Mögliche Mechanismen der Beeinflussung der Strahlenversprödung durch Gammas werden dargelegt und einige eigene Beiträge entwickelt, u. a. ein Ansatz für ein Modell eines möglichen Ausheilungseffekts durch Gammastrahlung.

Abstract

Radiation embrittlement of pressure vessel steel in mixed neutron-gamma fields is mostly determined by neutrons, but in some cases also by gamma-radiation. Depending on the reactor type, gamma radiation can influence evaluations of lead factors of surveillance specimens, effect the interpretation of results of irradiation experiments and finally, it can result in changed pressure vessel lifetime evaluations. The project aimed at the evaluation of the importance of gamma radiation for RPV steel damage for several types of light-water reactors. Absolute neutron and gamma fluence rate spectra had been calculated for the Russian PWR types VVER-440 and two core loading variants of VVER-1000, for a German 1300 MW PWR and a German 900 MW BWR. Based on the calculated spectra several flux integrals and radiation damage parameters were derived for the region of the azimuthal flux maxima in the mid-planes for different radial positions between core and biological shield, especially, at the inner and outer surfaces of the PV walls, at the $\frac{1}{4}$ -PV-thickness and at the surveillance positions. The calculated relative contributions of the gamma radiation to the sums of gamma and neutron contributions are of special interest. As damage parameters the displacements per atom of iron (DPA) were obtained separately for neutrons and gammas as well as estimations of the numbers of "freely migrating defects" (FMD). To get some notion about the uncertainty of the obtained DPA, calculations were performed using different DPA cross-section evaluations. Additionally, the microscopic DPA-cross-section of iron was newly calculated in dependence on the energy of the impinging gamma radiation by means of the Monte Carlo code EGS4.

Fissionable materials are often used as activation detectors for neutron fluence measurements. To get the real value the analysis demands to take into account the gamma induced fissions. Therefore, the part of these fissions in the total number of fissions was estimated for the detector reactions $^{237}\text{Np}(n,f)$ and $^{238}\text{U}(n,f)$ in the calculated neutron/gamma fields. It has been found that considerable corrections of the neutron fluence measurements can be necessary, especially in case of $^{238}\text{U}(n,f)$.

Most of the calculations were performed using a three-dimensional synthesis of 2D/1D-flux distributions obtained by the S_N -code DORT with the BUGLE-96T group cross-section library. To increase the reliability of the results and to evaluate the influence of the group approximation on the calculated values, parallel calculations were performed for two reactors with the continuous energy Monte Carlo code MCNP using the nuclear data library ENDF/B-VI. As considerable discrepancies were found, extending the working plan of the project, simple one-dimensional two-zone testing models were defined with one material in the outer zones, allowing to specify possible data deficiencies for these materials. Results of calculations using different codes and data libraries for the materials H_2O , Fe, Cr and Ni, respectively, were compared. The reasons of appearing discrepancies were discussed.

On the basis of an inquiry of the literature an analysis of the state-of-art of material research on gamma embrittlement has been made. It is given in a special report which is added to this final report. Possible mechanisms governing the influence of gamma irradiation on material damage are described and several new ideas have been developed, e. g. an approach for a model of a possible effect of defect annealing by gamma radiation.

Kurze Darstellung

1. Aufgabenstellung

Die Materialien von Komponenten, die sich im oder nahe am Kern eines Leichtwasserreaktors befinden, sind einer sehr hohen Bestrahlung durch energiereiche Neutronen und Gammaquanten ausgesetzt. Mit zunehmender Strahlungsdosis ändern sich deren Eigenschaften, was erhebliche Auswirkungen auf die Sicherheitsbewertung der betreffenden Komponente haben kann. Ein gravierendes Beispiel ist die durch energetische Neutronen verursachte Materialversprödung. Wegen des verbundenen Risikopotentials steht dieses Phänomen der Neutronenversprödung seit geraumer Zeit im Zentrum der Forschung zur Komponentensicherheit der heutigen Leichtwasserreaktoren, insbesondere der Druckwasserreaktoren. Die sicherheitstechnisch sehr ungünstige Spezifik der russischen Druckwasserreaktoren vom Typ WWER, deren Druckbehälter (RDB) wegen der geringen Wasserabschirmung zum Reaktorkern im Vergleich zu anderen Reaktortypen wesentlich höheren Neutronendosen unterliegt, hat der Untersuchung dieses Phänomens besonderen Auftrieb gegeben. Es ist zum Gegenstand vieler internationaler Forschungsvorhaben, an denen auch das Institut für Sicherheitsforschung des Forschungszentrums Rossendorf teilnimmt, geworden.

Lange Zeit war man der Meinung, dass die Materialversprödung nur durch Neutronen verursacht wird und der Effekt der Gammastrahlung vernachlässigbar ist. Daher war auch die Materialforschung auf die Neutronenversprödung und die Reaktordosimetrieforschung auf die Entwicklung von Mess- und Berechnungsverfahren des Neutronenfeldes konzentriert. 1988 wurden die Ergebnisse von Materialuntersuchungen diverser Komponenten des *High Flux Isotope Reactors* (HFIR) des Oak Ridge National Laboratory (USA) publiziert [1]. Es wurde eine „beschleunigte Versprödung“ festgestellt, die mit der Neutronendosis allein nicht zu erklären war. Zur Aufklärung wurde ein spezielles Dosimetrie-Messprogramm am HFIR durchgeführt. Dessen sorgfältige Auswertung führte schließlich zu der Schlussfolgerung, dass der überwiegende Anteil der Versprödung durch die Gammabestrahlung verursacht wurde [2,3]. Der entscheidende Befund war, dass wegen der speziellen Konstruktion des HFIR an seinem Druckbehälter ein besonders hohes Gammafluss/Neutronenfluss-Verhältnis vorliegt, was zu seiner „beschleunigten“ Versprödung geführt hat.

Mit experimentellen und theoretischen Untersuchungen zu den Mechanismen der Gammaversprödung befasst sich seitdem eine Forschergruppe des Argonne National Laboratory (ANL), USA. Die bis zum Beginn des Vorhabens erzielten Ergebnisse besagten, dass hochenergetische Gammas gewisse Versprödungsmechanismen erheblich fördern oder sogar effektiver als Neutronen in Gang setzen könnten.

Im Vergleich zu Leistungsreaktoren weist der HFIR eine sehr spezielle Konstruktion auf, die eben zu dem ermittelten Verhältnis der Gamma- und Neutronenfluenzen führt. Auch war wegen der großen Sicherheitsreserven der Druckbehälter deutscher Leichtwasserreaktoren aus den neuen Erkenntnissen nicht mit gravierenden Konsequenzen auf deren Sicherheitsbewertung zu rechnen. Dennoch erschien es in Anbetracht der neuen Erkenntnisse als geboten, beispielhaft für einen 1300 MW Druckwasserreaktor und einen 900 MW Siedewasserreaktor deutscher Bauarten den Einfluss der Gammastrahlung auf die Materialversprödung nach dem aktuellen Kennt-

nisstand abzuschätzen. Dringender Handlungsbedarf erschien aber vor allem im Hinblick auf die Bewertung der Druckbehältersicherheit bei den russischen Druckwasserreaktoren vom WWER-Typ, die in Mittel- und Osteuropa betrieben werden, gegeben. Dieser ist einerseits durch den wesentlich geringeren Sicherheitsabstand allein schon für die Neutronenbestrahlung gegeben, andererseits auch dadurch, dass es für die meisten dieser Reaktoren kein verifiziertes Voreilprobensystem gibt. Deshalb sollten ein 440 MW Reaktor vom Typ WWER-440 und zwei 1000 MW Reaktoren vom Typ WWER-1000 in die Untersuchungen einbezogen werden, wobei letztere sich durch die Art der Beladung der Reaktorkerne unterscheiden: Standardbeladung und „Low leakage“-Beladung.

Die dargestellte Situation ergab die Motivation für das Vorhaben. Seine Ziele waren im einzelnen:

- Der aktuelle Stand der experimentellen Materialforschung, der theoretischen Interpretation beobachteter Effekte der Gammaversprödung und die Entwicklung von neuen Kenngrößen, die als Maßstab für die Materialschädigung durch Neutronen- und Gammastrahlung dienen könnten, sollte aufgearbeitet und in einem gesonderten Statusbericht dargelegt werden.
- Für die angeführten Reaktortypen sollten für realistische Kernbeladungen die absoluten Energiespektren der Gamma- und Neutronenflüsse im Bereich der maximalen Strahlungsbelastung ihrer Druckbehälter mit Hilfe moderner Neutronen/Gammatransportprogramme und Kerndatensätze berechnet werden. Aus den Spektren sollten mit der Strahlenschädigung korrelierte Kenngrößen, wie Verlagerungsraten (DPA-Raten), Spektrumsintegrale und gegebenenfalls andere abgeleitet und für beide Strahlungsarten gegenüber gestellt werden.
- Auf der Grundlage der Ergebnisse der gekoppelten Neutronen/Gammatransportrechnungen, sollte der Einfluss der Gammastrahlung durch von ihr induzierte Spaltungen auf Neutronenflussmessungen, die mit Spaltmaterialien durchgeführt werden, bestimmt werden.

2. Voraussetzungen, unter denen das FE-Vorhaben durchgeführt wurde

Das Vorhaben wurde in der Abteilung *Teilchen- und Strahlungstransport* des Instituts für Sicherheitsforschung des Forschungszentrum Rossendorf realisiert. Arbeiten zur Reaktordosimetrie und speziell zur Druckbehälterversprödung sind ein traditionelles Forschungsthema der Abteilung. Berechnungen der Neutronenbelastung von Druckbehältern verschiedener Reaktoren gehören zum Arbeitsspektrum der Abteilung. Dazu lag ein umfassendes Know-how vor. Das Vorhaben erforderte es, das Arbeitsfeld auf gekoppelte n/γ -Transportprobleme der Reaktordosimetrie zu erweitern.

Zum Teil gleichzeitig in der Abteilung realisierte Arbeiten an DFG-, EU-TACIS und WTZ-Projekten zu dieser Thematik waren hilfreich für die Ausführung dieses Vorhabens. Sehr nützlich waren die bestehenden langjährigen engen Kontakte zu Forschungseinrichtungen in Russland, aber auch zu Siemens/KWU, jetzt Framatome ANP und zu US-Instituten. Enge Beziehungen zur Abteilung „Material- und Komponentensicherheit“ des Instituts für Sicherheitsforschung trugen ebenfalls zum Erfolg des Vorhabens bei.

3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Für das Vorhaben war eine Gesamtlaufzeit von zwei Jahren, beginnend mit dem 1.4.1999 bewilligt worden. Der ursprünglich geplante zeitliche Ablauf der Arbeiten ist in der folgenden Tabelle dargestellt.

Geplanter Ablauf der Arbeiten zum Vorhaben

Arbeitskomplex (Kurztitel)	1999			2000			2001		
7.1 Stand der Materialforschung									
7.2 Berechnungen der Gamma-versprödungen									
7.2.1 Entwicklung Berechnungsverfahren									
7.2.2 Berechnungen									
7.2.3 Fehlerabschätzung									
7.2.4 Auswertung									
7.3 Einfluss auf reaktordosimetrische Messungen									

Leider stand ein geeigneter Materialwissenschaftler für die Arbeiten zu 7.1 erst ab Februar 2000 zur Verfügung. Dadurch verschoben sich einige der geplanten Arbeiten in ihrem Zeitablauf. Mit Hilfe einer kostenneutralen Verlängerung um 6 Monate konnten die Ziele des Projekts dennoch erreicht werden. Wegen personellen Problemen ergab sich allerdings eine erhebliche Verzögerung bei der Fertigstellung des Abschlussberichts, dessen Anfertigung nicht innerhalb des Vorhabens vorgesehen war.

4. Wissenschaftlicher und technischer Stand zu Beginn der Arbeiten

Bis 1994, als die Schlussfolgerungen aus den Befunden am HFIR (siehe 1.) gezogen worden waren, war der Einfluss der Gammastrahlung auf die Versprödung des Druckbehältermaterials von Kernreaktoren als absolut vernachlässigbar angesehen worden. Man hatte angenommen, dass wegen des kleinen DPA-Wirkungsquerschnittes für hochenergetische Gammas (über 1 MeV), der um zwei bis vier Größenordnungen kleiner als für Neutronen dieser Energie ist, deren Wechselwirkung mit dem Material entsprechend kleiner ist und daher für die Versprödung praktisch keine Bedeutung haben sollte. Eine entsprechende Abschätzung, die für die PCA-Anlage durchgeführt wurde, hat einen Anteil von 0.5% der Gammastrahlung an der totalen DPA-Rate ergeben [4]. Aus diesen Gründen war die Materialforschung, die Entwicklung von Fluenzberechnungs- und Messmethoden bis jetzt praktisch ausschließlich auf die Neutronenstrahlung ausgerichtet.

Das Dosimetrie-Messprogramm am HFIR und verbesserte Berechnungsmethoden hatten schließlich ergeben, dass am Druckbehälter die Gammafluenz um fast drei

Größenordnungen höher ist als die Neutronenfluenz [5]. Daraus ergab sich für die Gammastrahlung sogar eine fünffach höhere DPA-Rate als für die Neutronenstrahlung. Mit der Verwendung der summarischen DPA-Rate als Schädigungskenngröße, wie man sie bisher für die Neutronenstrahlung angewandt hatte ergab sich die experimentell gefundene sechsfache „Beschleunigung“ der Materialversprödung. Wichtig ist, dass bei dieser Interpretation für beide Strahlungsarten mit den DPA-Raten die gleichen Kenngrößen und mit gleicher relativer Wichtung berechnet wurden.

Seitdem die Befunde der Materialuntersuchungen am HFIR bekannt geworden waren befasst sich eine Gruppe des ANL mit experimentellen und theoretischen Arbeiten zum Effekt der Materialversprödung durch Gammastrahlung. Dort werden Materialien mit einem Elektronenstrahl aus einem Beschleuniger bestrahlt und anschließend deren Materialeigenschaften und Mikrostrukturen untersucht. Dieses Verfahren ist dadurch gerechtfertigt, dass die durch die primäre Gammastrahlung ausgelöste, hochenergetische Elektronenlawine der eigentliche Verursacher von primären Defekten im Material ist. Von dieser Gruppe wurde die These vertreten, dass sich die von Gammastrahlung produzierten, primären Defekte im Vergleich zu den von Neutronen induzierten durch eine höhere Überlebensrate und durch höhere Beweglichkeit gekennzeichnet sind. Der Transport dieser sogenannten „freely migrating defects“ (FMD's) kann folglich zu einer höheren Bildungsrate von versprödungsauslösenden Mikrostrukturen führen als es für Neutronenstrahlung derselben DPA-Rate der Fall ist [6-9]. Das würde bedeuten, dass zur Materialschädigung auch Gammastrahlungsdosen, die im Vergleich zur Neutronendosis nur eine kleine DPA-Rate ergeben, einen nicht zu vernachlässigenden Beitrag liefern könnten. Wegen der höheren FMD-Rate scheint Gammastrahlung auch verstärkt zur Versprödung durch die Bildung von sogenannten Kupfer-Clustern, die eine wesentliche Ursache der Versprödung von RDB-Stählen darstellen, beizutragen [10]. Untersuchungen zu diesem Phänomen sind ebenfalls im ANL im Gange. Insbesondere die Erkenntnisse der ANL-Gruppe, die der Gammastrahlung sogar ein erhöhtes Gewicht an der Materialschädigung zuschrieb, machten den Gammaeffekt einerseits zu einem wissenschaftlich interessanten Phänomen und andererseits zu einem, das dringlich aufzuklären war. Letzteres galt insbesondere im Hinblick auf die Sicherheit der russischen WWER-Reaktoren.

Im Kurchatov-Institut (Moskau) werden ebenfalls experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Materialschädigung durch Gammastrahlung durchgeführt. Aus dem Institut für Kernreaktoren (Dimitrovgrad) liegen Informationen vor, dass spezielle n/γ -Betrahlungen an der KORPUS-Anlage durchgeführt werden könnten. Diese wären für die Klärung des Problems von großer Bedeutung, da man hier die Bedingungen, wie sie bei einem Leistungsreaktor vorliegen, am besten simulieren könnte.

Auch der vollkommen unbefriedigende Stand der Berechnungsprogramme und der von ihnen verwendbaren Kerndatensätze für die Berechnung von gekoppelten Neutronen/Gammastransportproblemen hatte maßgeblich zu den verschiedenen Fehlinterpretationen der Ursachen der „beschleunigten“ Versprödung am HFIR beigetragen. Nachdem die Gammastrahlung als Ursache aufgeklärt war, ergab sich auch die Notwendigkeit, verfügbare Codes und Datensätze auf ihre Brauchbarkeit zu überprüfen. Ein Statusbericht der NEA zu RDB-Fluenzberechnungen stellte erhebliche Rückstände der n/γ -Transportcodes und der entsprechenden Kerndaten im Vergleich zu reinen Neutronentransportcodes fest und forderte dazu auf, diese zu verbessern

und vor allem an Experimenten zu verifizieren [11,12]. Bis zu Beginn des Vorhabens war über solche Aktivitäten noch nicht berichtet worden.

Das Vorhaben hat die folgende Literatur verwendet:

- [1] R. D. Cheverton et. Al.,
Evaluation of HFIR Pressure-Vessel Integrity Considering Radiation Embrittlement, ORNL/TM-10444, 1988
- [2] K. Farrell, S. T. Mahmood, R. E. Stoller, L. K. Mansur
Journal of Nuclear Materials, 210(1994) pp. 268-281
- [3] I. Remec, J.A. Wang, F.B.K. Kam, K. Farrell
Effects of Gamma-Induced Displacements on HFIR Pressure Vessel Materials, Journal of Nuclear Materials, 217(1994) pp. 258-268
- [4] R. Gold, B. J. Kaiser, J. P. McNeece
Gamma-ray Spectrometry in Light Water Reactor Environments, Radiation Metrology Techniques, Data Bases and Standardization, Gaithersberg, Maryland, 1982
- [5] R. Gold
A challenge to the international reactor dosimetry community: Quantify gamma ray spectra, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [6] D.E. Alexander and L.E. Rehn
The Contribution of High Energy Gamma Rays to Displacement Damage in LWR Pressure Vessels, J. Nucl. Mater. 209, (1994) 212-214
- [7] D.E. Alexander and L.E. Rehn
Gamma-Ray Displacement Damage in the Pressure Vessel of the Advanced Boiling Water Reactor, J. Nucl. Mater. 217, (1994) 213-216
- [8] D.E. Alexander and L.E. Rehn
The Role of Gamma Rays and Freely Migrating Defects in Reactor Pressure Vessel Embrittlement, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [9] L. E. Rehn, R.C. Birtcher
Experimental Studies of Free Defect Generation During Irradiation-Implications for Reactor Environments, J. Nucl. Mater. 205, (1993) 31-39
- [10] B. Petrovic et al.
Contribution of Gamma Irradiation to Material Damage at BWR Core Shroud and Pressure Vessel, Proc. 1998 ANS Radiation Protection and Shielding Division Topical Conference Technologies for the New Century, April 19-23, 1998, Nashville, Tennessee, USA, Vol. 2, p. 25-32
- [11] Report on Computing Radiation Dose to Reactor Pressure Vessel and Internals, State-of-the-Art, NEA/NSC/DOC (96) 5, October 1996
- [12] R. P. Rulko, I. Kodeli, E. Sartori
Review of the Status of Reactor Vessel Embrittlement Prediction, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [13] D. Kent Parsons
ANISN/PC Manual, EGG-2500 (December 1988)
- [14] DOORS3.2: One-, Two- and Three-Dimensional Discrete Ordinates Neutron/Photon Transport Code System, RSIC CODE PACKAGE CCC-650
- [15] J.E. White et al.
BUGLE-96: A Revised Multi-Group Cross Section Library for LWR Applications Based on ENDF/B-VI Release 3 (presented at the American Nuclear Society

- Radiation Protection & Shielding Topical Meeting, April 21-25, 1996, Falmouth, MA) (April 1996)
- [16] J. F. Briesmeister
MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code (Version 4A), Manual, LA-12625-M, 1993
 - [17] P.F. Rose, C.L. Dunford
Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File, ENDF-6, Brookhaven National Laboratory report BNL-NCS-44945 (July 1990)
 - [18] R. E. MacFarlane, D. W. Muir
The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91, Los Alamos National Laboratory report LA-12740-M (Oct 1994)
 - [19] A. G. Croff
ORIGEN-2- A revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-5621, Oak Ridge National Laboratory (1980)
 - [20] L.R. Greenwood and R.K. Smither
SPECTER: Neutron Damage Calculations for Materials Irradiations ANL/FPP/TM-197 (January 1985)

Die Arbeit zu 7.1 hat weiterführende Literatur zur Materialforschung verwendet. Sie ist im gesonderten Statusbericht angegeben.

5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

An den Arbeiten waren Wissenschaftler des Kurchatov-Institut RRC Moskau und des SEC NRS GOSATOMNADZOR Moskau direkt beteiligt. Von diesen beiden Institutionen wurden auch die Ausgangsdaten zur Berechnung der Reaktoren vom TYP WWER bereitgestellt. Die Ausgangsdaten für die Berechnung der deutschen Reaktoren wurden über KWU Siemens Erlangen, jetzt FRAMATOME ANP, von den Reaktorbetreibern zur Verfügung gestellt.

Zum Erfolg des Projekts trug auch die Zusammenarbeit mit Wissenschaftlern weiterer ausländischer Institutionen im Rahmen der EU-TACIS-Projekte NUCRUS96601 (1999-2000) und SR2/95 (1998-2001) bei. Obwohl bei diesen Projekten die Neutronendosimetrie an Leistungsreaktoren im Mittelpunkt stand, wurde in dieser Gemeinschaft das ungeklärte Problem des Einflusses der Gammastrahlung rege diskutiert.

Die traditionell engen Kontakte zur Abteilung „Material- und Komponentensicherheit“ des Instituts für Sicherheitsforschung des FZ Rossendorf waren insbesondere in der Zeit der Bearbeitung durch einen Materialwissenschaftler intensiviert worden.

Eingehende Darstellung der erzielten Ergebnisse

1. Analyse des Standes der Materialforschung zur Gammaversprödung – Beiträge zur Entwicklung neuer Schädigungskenngrößen

1.1. Zusammenfassung des gesonderten Berichts zur Materialforschung

Zu Punkt 7.1 des Arbeitsplanes des Vorhabens ist ein gesonderter Bericht (in Englisch) angefertigt worden, der diesem Abschlussbericht beigelegt ist: P. Vladimirov, B. Boehmer, K. Noack, *The Effect of Gamma Irradiation on Embrittlement of Reactor Pressure Vessel Steels*, interner Bericht des FZ Rossendorf, 2001. Er stellt das Ergebnis einer Literaturrecherche zum Stand der Forschung zum Effekt der Druckbehältermaterialversprödung durch Neutronen- und Gammastrahlung dar. Darüber hinaus enthält er zu mehreren Problemstellungen eigene Beiträge.

Zum Effekt der Gammastrahlung - künftig auch als „Gammaeffekt“ bezeichnet - liegen bisher noch relativ wenige Arbeiten vor. Die durch Neutronen induzierte Materialversprödung kann über verschiedene Mechanismen bewirkt werden, bei denen allerdings die im Metallgitter enthaltenen Verunreinigungen immer eine befördernde Rolle zu spielen scheinen. Man ist heute der Meinung, dass für Stähle mit hohem Kupfergehalt (> 0.1 at %) hauptsächlich Phänomene der Kupferatome im Metall die Versprödung induzieren. Die bisherigen Vorstellungen der Gruppe des ANL zum Effekt der Gammastrahlung auf die Materialversprödung gehen davon aus, dass die grundlegenden Mechanismen dieselben sind wie man sie bis heute aus den Untersuchungen zur Versprödung durch Neutronen gewonnen hat. Die Unterschiede sollten lediglich in verschiedenen Abläufen von Teilphänomenen liegen, die dann zu einem quantitativ anderen, summarischen Effekt in der Materialschädigung führen können.

Die Recherche hat auch ergeben, dass es experimentelle Befunde gibt, die auf einen Ausheilungseffekt von Strahlungsschäden durch Gammastrahlung hindeuten. Ein Analogon für Neutronenstrahlung scheint es nicht zu geben. Ein Ansatz für eine Modellbeschreibung dieses Effekts wurde erarbeitet. Seine Weiterentwicklung und Umsetzung in numerische Codes und anschließende Untersuchungen würden allerdings mehrere Mannjahre eines qualifizierten Wissenschaftlers erfordern.

Es ist aber zu betonen, dass entscheidende Fortschritte bei der Erforschung des Gammaeffekts der Materialversprödung nur durch Untersuchungen von Materialien erbracht werden können, die in geeigneten Simulationsexperimenten bestrahlt worden sind. Dazu käme vor allem die KORPUS-Anlage des Instituts für Kernanlagen Dimitrovgrad (Russland) in Betracht.

Die erzielten Ergebnisse der durchgeführten Arbeiten werden im folgenden kurz zusammengefasst dargestellt. Die zitierten Publikationen beziehen sich auf das im Statusbericht gegebene Literaturverzeichnis.

Kapitel 1 gibt eine sehr gestraffte Einleitung zum Problem der Versprödung von Druckbehälterstählen unter der Einwirkung von Neutronen- und Gammastrahlung. Die wesentlichen Unterschiede in der Zusammensetzung der Stähle amerikanischer und russischer Reaktoren werden angegeben.

Kapitel 2 gibt einen Überblick über den aktuellen Kenntnisstand zur Materialversprödung durch Neutronenstrahlung. Als deren grundsätzliche Ursachen kommen zwei Erscheinungen in Betracht:

- Materialhärtung durch die Bildung von Versetzungsstoppnern so dass angrenzende Materialbereiche nicht mehr an Versetzungsflächen aneinander gleiten können und
- Absonderung von Phosphoratomen an Korngrenzen und an Grenzflächen zwischen Defekt- und Materialmatrixbereichen, die zur Schwächung der Adhäsionskräfte führt.

Beide können als Folge verschiedener Teilprozesse auch in Kombination auftreten. Die wichtigsten Versetzungsstopper sind Cu-reiche Ausfällungen und Cu-angereicherte Zonen. Aber auch bei der Absonderung von Phosphor an Grenzflächen spielen Cu-Atome als Katalysatoren eine fördernde Rolle.

Im Kapitel 3 sind experimentelle Befunde dargelegt, die durch Gammastrahlung induzierte Materialversprödung belegen. Der erste war die am Druckbehälter des *High Flux Isotope Reactor* (HFIR) des *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) beobachtete „beschleunigte“ Materialversprödung, die einen um den Faktor 6 stärkeren Grad aufwies als es durch die Bestrahlung durch die schnellen Neutronen hätte sein sollen [9]. Der unbefriedigende Stand von reaktordosimetrischen Mess- und Berechnungsmethoden hatte mehrere Fehldeutungen der Ursachen des Befundes begünstigt. Ein spezielles Messprogramm mit verbesserten Neutronen- und Gammamessungen hat schließlich zur Schlussfolgerung geführt, dass die Ursache der „beschleunigten“ Versprödung einfach der Beitrag, der durch die Gammastrahlung induziert wurde, ist. Der Gammafluss ist am RDB des HFIR fast drei Größenordnungen höher als der Neutronenfluss und bewirkt dadurch auch eine fünffach höhere DPA-Rate. Wichtig ist der Fakt, dass die gleichgewichtete Summe beider DPA-Raten gerade die Materialschädigung (Verschiebung der DBTT) ergibt, wie man sie nach den bisherigen Erfahrungen erwartet, wenn man die totale DPA-Rate als diejenige von schnellen Neutronen ansehen würde. Dieser Sachverhalt gilt für die Bestrahlungstemperatur von 50-60 °C, wie sie am RDB des HFIR vorlag.

Von einer Wissenschaftlergruppe des *Argonne National Laboratory* (ANL) wurden 10 MeV Elektronenstrahlen verwendet, um den Effekt der Gammastrahlung an RDB-Materialien zu simulieren [12]. Diese Methode ist gerechtfertigt, weil die Gammastrahlung im Material Elektronen freisetzt, deren Wechselwirkung mit dem Metallgitter dann zur eigentlichen Materialschädigung führt. Die für den HFIR gezogene Schlussfolgerung wurde bestätigt. Auf Grund der geringen Reichweite der Elektronen waren allerdings nur sehr kleinen Proben untersucht worden, an denen keine Charpy-Tests der Versprödung, sondern nur Härtetests durchgeführt werden konnten.

Auf ähnliche Weise wurden von einer japanischen Gruppe Materialien mit Elektronen der Energie 2-2.5 MeV bestrahlt und untersucht [13]. Sie stellte jedoch fest, dass die Elektronenstrahlung, eine wesentlich stärkere Härtung der Materialien bewirkte als es durch Neutronenstrahlen derselben DPA-Dosen der Fall ist.

In der russischen Publikation [14] sind die Ergebnisse von Materialuntersuchungen dargestellt, die den RDB-Wänden von zwei stillgelegten Reaktoren vom Typ WWER-440 entnommen wurden. Sie sind erklärbar, wenn man der Gammastrahlung auch einen Ausheilungseffekt zuordnet.

Im Kapitel 4 sind die von der ANL-Gruppe für Druckbehälter diverser amerikanischer Reaktoren berechneten DPA-Werte der Gamma- und Neutronenstrahlung zusammengestellt [17-19]. Druckwasser-, Siedewasser- und fortgeschrittener Siedewasserreaktor (PWR, BWR, ABWR) unterscheiden sich hinsichtlich der RDB-Strahlungsbelastungen hauptsächlich dadurch, dass sie zwischen Kern und RDB unterschiedlich dicke Wasserschichten haben. Mit zunehmendem Wasserspalt, also von PWR zu ABWR, wächst das Verhältnis von Gamma- zu Neutronenfluss und folglich auch das Verhältnis der zugehörigen DPA-Raten. Für den ABWR wurde ein Verhältnis von 0.6 berechnet.

Während der Arbeiten zum Projekt war die Publikation [9] erschienen. Sie stellt eine kritische Analyse der von der ANL-Gruppe in deren ersten Publikationen zum Gammoeffekt vertretenen These an, dass Gammastrahlung auch bei gleichem DPA-Wert um bis zu hundertfach effizienter Versprödung induzieren könnte als hochenergetische Neutronen. Im Gegensatz dazu berechnen die Autoren die Summe der gleichgewichteten DPA-Werte für Gamma- und Neutronenstrahlung für den ABWR und legen diese der Ermittlung der Materialschädigung zu Grunde. Als Maximalwert des Verhältnisses von Gamma- zu Neutronen-DPA berechnen sie den Wert 0.74. Ihr Vorgehen rechtfertigen sie durch experimentelle Befunde anderer Autoren, die in der Mehrheit die These einer effizienteren Gammaversprödung nicht unterstützen. Allerdings sind deren Bestrahlungen ausschließlich im Niedrigtemperaturbereich von 50-60 °C durchgeführt worden. Für Temperaturen von 260-300 °C, die typisch für RDB-Bedingungen sind, liegen solche Ergebnisse noch nicht vor. Solche Untersuchungen sind als gemeinsame Aktion der ANL-Gruppe mit der University of California angekündigt worden. Trotzdem ziehen die Autoren von [9] den Schluss, dass der Beitrag der Gammastrahlung zur DPA-Rate beim ABWR im Vergleich zu anderen Reaktortypen zwar relativ zur Neutronen-DPA-Rate hoch ist aber absolut die totale DPA-Rate so niedrig ist, dass auch nach 40-jährigem Betrieb des Reaktors eine merkliche Materialschädigung ausgeschlossen wird.

In Kapitel 5 sind die mikro-strukturellen Phänomene dargestellt, die nach heutiger Kenntnis die Materialversprödung durch Neutronenbestrahlung verursachen. Zahlreiche experimentellen Befunde belegen, dass in Stählen und in Fe-Cu-Legierungen mit einem Kupfergehalt > 0.1 at% kupferreiche Ausfällungen (CRP) eine entscheidende Rolle spielen. Deren typische Ausdehnung liegt im Bereich von 2-5 nm und ihre Teilchendichte erreicht 10^{17} - 10^{18} cm⁻³. Im Kernbereich der Ausfällungen erreicht die Konzentration der Cu-Atome 45-95%. Unter Neutronenstrahlung bleibt ihre Ausdehnung etwa konstant aber die Teilchendichte nimmt zu. Einen Strahlungsschwellwert für diese Ausfällungen scheint es nicht zu geben.

Man hat gefunden, dass die CRP auch mit Mn-, Ni- und Si-Atomen angereichert sind, obwohl deren Konzentrationen im Ausgangszustand der Materialmatrix die Löslichkeitsgrenzen nicht überschreiten. Es wird angenommen, dass die Ausfällung durch Cu-Atome in Gang gesetzt wird. In den CRP hat Kupfer die größte Anreicherung im Vergleich zur Metallmatrix; sie ist um vier- bis fünffach höher als die von Mangan und Nickel und zwar auch dann, wenn der Kupfergehalt niedriger als der von Mn oder Ni ist. Im allgemeinen wird die Modellvorstellung vertreten, dass sich diese Ausfällungen bereits während und innerhalb der durch ein Neutron ausgelösten Stoßkaskade formieren. Eigene Überlegungen dazu werden in Kapitel 9 angestellt. Bei Untersuchungen von bestrahltem Wand- und Schweißnahtmaterial des WWER-440 wurde

gefunden, dass die CRP in etwa sphärischer oder zylindrischer Form vorlagen, mit einem typischen Ausmaß von 3-4 nm.

Bei kupferarmen Stählen bilden sich an Stelle der ausgeprägten CRP eher dünnere, diffuse Zonen (Wolken) mit relativen Anreicherungen von Mn-, Si-, P- und Cu-Atomen.

Gegenstand von Untersuchungen ist die Frage, wie die CRP im Zeitablauf entstehen. Es wird angenommen, dass sich in der Kaskade kleine Cluster von etwa 10-20 Cu-Atomen oder kleine Cu-angereicherte Zonen mit einem Ausmaß kleiner als 1 nm (CEZ) bilden und die dann später durch Diffusionsprozesse wachsen oder sich auflösen können.

Im Kapitel 6 werden an Hand von Computer-Simulationen und deren Ergebnissen die heutigen Kenntnisse des Ablaufs der durch Neutronen ausgelösten Kaskaden von Rückstoßatomen dargelegt. Man unterscheidet vier Zeitphasen:

- bis zu ≈ 0.1 ps: *Stoßphase*;
charakteristische Zeit für Atom-Stöße, Produktion von primären Defekten – Leerstellen und Zwischengitteratome (Frenkel-Paare);
- bis zu ≈ 1 ps: *Relaxationsphase*;
in ihr vollzieht sich die Ausbreitung der Stoßlawine;
- bis zu ≈ 10 ps: *Abkühlungsphase*;
das von der Stoßlawine erfasste Volumen kühlt sich ab, in dieser Zeit erfolgt auch der Hauptteil der Rekombinationen der primären Defekte;
- bis zu $\approx 10^6$ s: *Diffusionsphase*;
Langzeitphase in der sich durch Diffusionstransport der in den Kaskaden produzierten Defekte größere Defektansammlungen wie CRP oder Cu-angereicherte Zonen bilden, die schließlich dann die unmittelbare Ursache der Verhärtung und Versprödung des Materials darstellen.

In praktischer Hinsicht ist besonders die Diskussion verschiedener Defektkenngößen von Bedeutung. Die Anzahl der von ihren Gitterplätzen gestoßenen Atome N_{NRT} wird nach dem so genannten „NRT-Standard“ berechnet [33]. Sie hängt von der kinetischen Energie des primären, die Kaskade auslösenden Rückstoßatoms ab. Diese Anzahl geht in die Berechnung der DPA (displacements per atom) ein. Die DPA ist die heute international anerkannte Kenngröße für die Materialversprödung durch Neutronenstrahlung. Bereits während des Ablaufs der Kaskade aber vor allem in der anschließenden Abkühlungsphase finden Rekombinationen der primären Defekte statt. Nur etwa 30% überleben diese Phase. Die Zahl der überlebenden Defekte N_f hängt ebenfalls von der Energie des primären Rückstoßatoms und auch schwach vom Material ab. Wegen der relativ hohen Konzentration von Defekten im Kaskadenvolumen können auch im Anfangsstadium der Diffusionsphase während des Defekttransports noch Rekombinationen stattfinden. Die dann überlebenden Defekte, die das Kaskadenvolumen verlassen können, werden auch als „freely migrating defects“ (FMD) bezeichnet. Die Anzahl der FMD hängt ebenfalls von der Energie des primären Rückstoßatoms und vom Material ab [39].

Mit den im Projekt berechneten, energieabhängigen Neutronenflüssen an der Innenseite der Druckbehälter der Reaktoren WWER-440, WWER-1000 (Standard-Variante), deutscher Druckwasserreaktor (DWR) und deutscher Siedewasserreaktor (SWR) (s. 2.) wurden die Energiespektren der primären Rückstoßatome und damit die Mittelwerte der oben beschriebenen Defektzahlen berechnet.

In Kapitel 7 werden die Ergebnisse eigener Berechnungen des DPA-Wirkungsquerschnitts für Eisen für Gammastrahlung bestimmter Energie angegeben und mit anderen verglichen. Es gilt als gesichert, dass im Falle von Gammastrahlung die Atome aus ihren Gitterplätzen nicht direkt in Folge einer Wechselwirkung eines Gammaquants mit einem Atom verlagert werden, sondern, dass dies erst durch die Elektronen und Positronen geschieht, die bei Compton-Streuung, photoelektrischem Effekt und bei Paarbildung freigesetzt werden [44,45]. Für Gammaenergien bis zu 10 MeV sind andere Prozesse vernachlässigbar. In bisherigen Publikationen zu dieser Problematik wurde der Elektronen/Positronentransport vereinfacht behandelt: die Energiemoderation wurde mit einem kontinuierlichen Abbremsmodell beschrieben und die Freisetzung weiterer Elektronen/Positronen wurde vernachlässigt. In den eigenen Rechnungen sind diese Näherungen nicht gemacht worden. Die Berechnungen wurden mit dem Monte-Carlo-Code EGS4 durchgeführt: Ein Gammaquant einer vorgegeben Energie wird in einem unendlich ausgedehnten Eisenmedium gestartet und sein erster Atomstoß mit der Freisetzung von Elektronen/Positronen simuliert. Der Transport des Gammaquants ist damit beendet und es werden anschließend nur noch die Transporte der erzeugten Elektronen/Positronen stochastisch nachgebildet. Dabei werden die zugehörigen Verlagerungsquerschnitte unter Verwendung des Mackinley-Feshbach-Modells für Elektronen/Positronen-Atomstöße und für eine Verlagerungsschwellwertenergie von 40 eV (in einer Rechnung auch mit 35 eV), die dem ASTM-Standard entspricht [50], berechnet. Die benutzte Berechnungsmethode wurde überprüft, indem die Näherungen der anderen Autoren mit dem Code EGS4 nachgebildet wurden und verschiedene Fälle verglichen wurden: Die Ergebnisse stimmten sehr genau überein, womit die Richtigkeit der Methode nachgewiesen wurde

In Kapitel 8 werden die eigenen Berechnungen von DPA-Raten (DPA/s), die für die vier Reaktortypen durchgeführt wurden, beschrieben, deren Ergebnisse präsentiert und diskutiert. Standardmäßig werden die DPA-Raten für neutronenbestrahlte RDB-Stähle als Faltung des anliegenden energieabhängigen Neutronenflusses mit einem von der Neutronenenergie abhängigen mikroskopischen DPA-Wirkungsquerschnitt, der mit Hilfe des Moduls HEATR im Datenaufbereitungscode NJOY [54] nach dem NRT-Standard für reines Eisen ermittelt wurde, berechnet. Nach dem NRT-Standard wird die Anzahl N_{NRT} der von einem primär verlagerten Atom, das die kinetische Energie E hat, im Verlaufe seines Transports produzierten Leerstellen näherungsweise bestimmt:

$$N_{NRT} = 0.8 \cdot E^* / (2E_d),$$

wobei E^* der Anteil an E ist, der für elastische Stöße, die zu einer Verlagerung des gestoßenen Atoms führen, zur Verfügung steht und E_d der Energieschwellwert ist, der zu einer Verlagerung eines Atoms aus seinem Gitterplatz notwendig ist (ASTM-Empfehlung: $E_d=40$ eV für Eisen). Es bot sich an, diesem Näherungsmodell ein alternatives Modell gegenüber zu stellen, das den tatsächlichen Transport der primär gestoßenen Atome im Material mit weniger Näherungen beschreibt. Dieser Transport

wird mit Hilfe des Programms BOLT, das vom Mitautor P. Vladimirov im Kurchatov-Institut Moskau entwickelt worden war [57], als Lösung einer entsprechenden, stationären und zeitunabhängigen Boltzmann-Gleichung berechnet. Die als Input für BOLT benötigte, energieabhängige Produktionsrate der primär durch Neutronenstöße verlagerten Atome (auch als PKA-Spektrum bezeichnet, PKA – primary knocked-on atom), die auch vom Energiespektrum des anliegenden Neutronenflusses abhängt, wird mit Hilfe des Datenaufbereitungscode NJOY [54], das auf die evaluierten Kern-datenbibliotheken vom Typ ENDF/B zurück greift, berechnet. Beide Verfahren sind verwendet worden, um jeweils für die vier betrachteten Reaktoren an deren RDB-Innenwänden (in der Mittelebene) die durch die Neutronenstrahlung induzierten DPA-Raten zu berechnen. Die benötigten energieabhängigen Neutronenflüsse sind im Projekt berechnet worden. Die erhaltenen DPA-Raten sind in Tab. 1 zusammen mit früheren ebenfalls im Rahmen des Projekts erhaltenen Ergebnissen [61] wiedergegeben.

Die entsprechende, durch Gammastrahlung induzierte DPA-Rate wurde als Faltung des in Kapitel 7 berechneten, mikroskopischen Gamma-DPA-Wirkungsquerschnitts mit den im Projekt berechneten, energieabhängigen Gammaflüssen ermittelt. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 2 und 3 gegeben. Für die russischen Reaktoren sind die DPA-Raten den Ergebnissen von [61] gegenüber gestellt. Beide sind in sehr guter Übereinstimmung. In den Tabellen bedeuten PWR und BWR die deutschen Reaktoren DWR und SWR.

Tab. 1: Neutroneninduzierte DPA-Raten an den Innenseiten von RDB-Wänden

Reactor	Flux, $n/(cm^2 s)$	Damage rate, DPA/s		
		Present work		Ref. [61]
		BOLT	HEATR	
VVER-440	1.017×10^{12}	1.90×10^{-10}	1.61×10^{-10}	1.87×10^{-10}
VVER-1000	2.258×10^{11}	4.36×10^{-11}	3.73×10^{-11}	4.36×10^{-11}
PWR	1.496×10^{10}	5.39×10^{-12}		-
BWR	3.266×10^9	1.40×10^{-12}		-

Tab. 2: Gammainduzierte DPA-Raten an den Innenseiten von RDB-Wänden

Reactor	Flux, $\gamma/(cm^2 s)$	Damage rate, DPA/s	
		Present work	Ref. [61]
		VVER-440	4.27×10^{12}
VVER-1000	3.48×10^{12}	1.99×10^{-12}	1.94×10^{-12}
PWR	5.11×10^{11}	3.26×10^{-13}	-
BWR	6.06×10^{11}	2.37×10^{-13}	-

Tab. 3: Neutronen- und Gammaflüsse über 1 MeV und zugehöriges Verhältnis der DPA-Raten an den Innenseiten von RDB-Wänden

Reactor	Flux ($E_n > 1 \text{ MeV}$), $n/(cm^2 s)$	Flux ($E_\gamma > 1 \text{ MeV}$), $\gamma/(cm^2 s)$	DPA ratio, $(\gamma/n)_{dpa}$
VVER-440	9.58×10^{11}	1.42×10^{12}	1.37×10^{-2}
VVER-1000	3.52×10^{10}	1.95×10^{12}	4.56×10^{-2}
PWR	3.52×10^9	2.03×10^{11}	0.060
BWR	9.30×10^8	2.34×10^{11}	0.169

In Kapitel 9 wird ein neues theoretisches Modell für die Bildung von mit Kupferatomen angereicherten Zonen (CEZ) dargelegt. Dieses Modell wurde so erweitert, dass es einen Annealing-Effekt durch Gammastrahlung einschließt. Seine numerische Umsetzung und Anwendung stehen noch aus. Es zeigt aber qualitativ eine Abnahme der Zahl der CEZ mit zunehmenden, durch Gammastrahlung ausgelösten Defekten. Nach diesem Modell nimmt der Ausheilungseffekt durch Gammastrahlung relativ vom VVER-440 zum SWR zu.

Kapitel 10 gibt eine sehr kurze Zusammenfassung der durchgeführten Arbeiten und der erzielten Ergebnisse.

1.2. Vereinfachte Modellvorstellungen zur strahlungsinduzierten Materialhärtung und –versprödung

Abb. 1 gibt eine vereinfachte, schematische Darstellung der mikroskopischen Vorgänge, die zur strahlungsinduzierten Materialversprödung führen. Neutronen- und Gammastrahlung erzeugen auf unterschiedliche Weise dieselben primären Defekte - Paare von Leerstellen und Zwischengitteratomen:

- Neutronen erzeugen primäre Defekte durch Kaskaden der Rückstoßatome, d.h. mit relativ hoher Dichte innerhalb des Kaskadenvolumens. Deren Produktionsrate pro Materialatom ist die so genannte **DPA-Rate (displacements per atom per second)**. Der Großteil von ihnen rekombiniert, nur wenige können das Kaskadenvolumen verlassen, anschließend frei diffundieren und dadurch die Bildung von Mikrostrukturen befördern, die unmittelbare Ursache für die Materialhärtung und –versprödung darstellen. Sie werden als „freely migrating defects“ (FMD) bezeichnet.
- Gammas setzen durch Stöße mit Atomen Elektronen und Positronen frei, die ihrerseits bei ausreichender kinetischer Energie Atome aus ihren Plätzen stoßen können. Diese Vorgänge laufen nicht wie bei Neutronen räumlich konzentriert in Kaskaden ab. Daher haben die Defekte eine wesentlich geringere Rekombinationsrate, d.h. sie sind praktisch a-priori FMD's. Diese Wirkungsweise über Elektronen/Positronen erlaubt es, die Einwirkung von Gammastrahlung auf Materialien mit Hilfe von Elektronenstrahlen zu simulieren.

Die primären Defekte befördern bzw. lösen Transporte verschiedener Atome im Material aus. Vor allem sind es in die Materialmatrix eingelagerte Verunreinigungen, die dadurch zur Bildung von Mikrostrukturen führen können, die dann ihrerseits als unmittelbare Ursachen der Materialhärtung und –versprödung erscheinen. In Stählen von Reaktordruckbehältern sind vor allem Kupfer und Phosphor, die dabei eine hervorragende Rolle spielen. Kupfer führt zu Cu-reichen, deutlich ausgeprägten Atomanhäufungen (auch als Cluster oder Ausfällungen bezeichnet, Abkürzung: CRP) oder zu Cu-angereicherten Zonen (CEZ), mit geringeren Atomdichten als Cluster. Beide können Versetzungen von Materialzonen, die unter Belastung aneinander gleiten, stoppen, was sich als Härtung des Materials äußert. Andere Verunreinigungen, vor allem Phosphor, sammeln sich an Korn- und Phasengrenzen und reduzieren dadurch die Adhäsionskräfte. Diese Phänomene führen dazu, dass das Material nur noch in eingeschränktem Maße elastisch auf Belastungen reagieren kann und eher zur Rissbildung neigt.

Es gibt auch Ergebnisse von Materialuntersuchungen, die sich erklären lassen, wenn man der Gammastrahlung auch einen Ausheilungseffekt von Strahlungsdefekten zuordnet. Theoretisch-rechnerische Modelle für einen solchen Effekt scheint es nicht zu geben.

Die DPA-Zahl, d.h. die über die Bestrahlungsdauer integrierte DPA-Rate, hat sich international als Standard zur quantitativen Charakterisierung der Materialversprödung durchgesetzt. Die DPA „korreliert“ mit der experimentell bestimmbar Verschiebung der Übergangstemperatur vom „zähen zum spröden“ Materialzustand (*DBTT – ductile-to-brittle transition temperature*), die in den so genannten Charpy-Tests eines bestrahlten Materials bestimmt wird, s. Abb. 3 und 4.

Microscopic Level Processes Resulting in Embrittlement

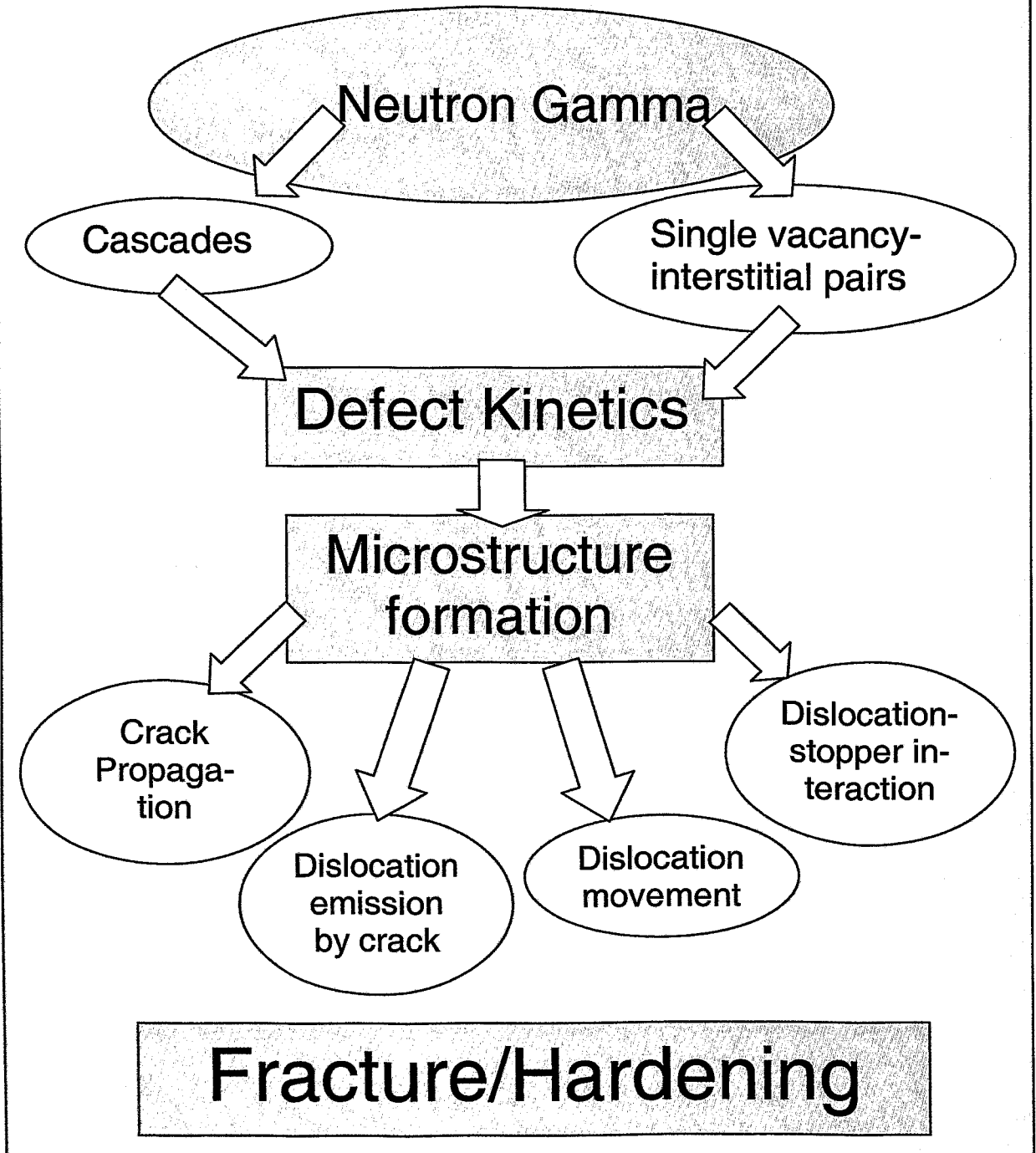


Abb. 1: Schematische Darstellung der mikroskopischen Prozesse, die zur strahlungsinduzierten Materialversprödung führen

1.3. „Einfluss der Gammastrahlung“ im Zeitabriss

Vor 1986:

Da der DPA-Wirkungsquerschnitt für Gammas um mindestens drei Größenordnungen kleiner ist als der für Neutronen (s. Abbildung 2) galt die Annahme: Versprödung von RDB-Stählen wird durch die Neutronenstrahlung verursacht, ein Beitrag der Gammastrahlung ist vernachlässigbar!

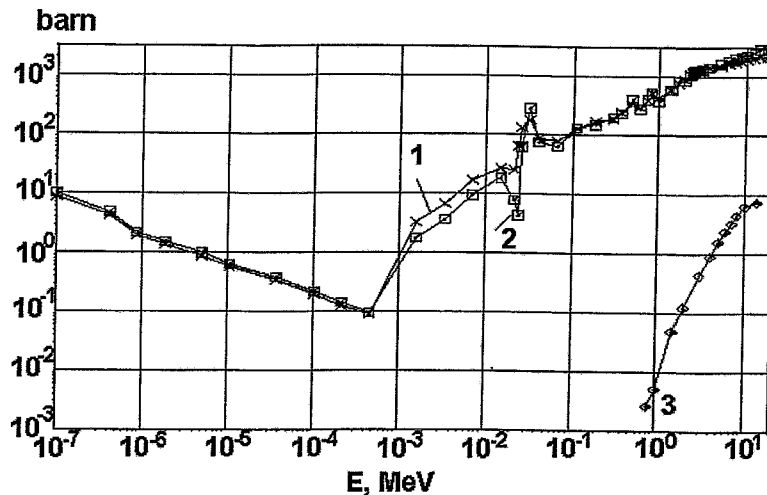


Abb. 2: DPA-Wirkungsquerschnitt von Fe für Neutronen (1-EUR, 2-ASTM) und Gammas (3-Baumann)

1986 – Surveillance-Proben des HFIR (ORNL, USA):

- Die entnommenen Überwachungsproben zeigen eine „Beschleunigung“ der Versprödung um einen Faktor 6, im Vergleich zu der durch schnelle Neutronen ($E_n \geq 1$ MeV) erwarteten! Abbildung 3 zeigt die Verschiebungen der DBTT für verschiedene RDB-Stähle, die als Proben im HFIR und an einem Testreaktor eingesetzt waren.
- Die Ursachen waren unklar.
- Im Verlaufe der Untersuchungen zu diesem Problem kam es zu mehreren Fehldeutungen der Ursachen. Sie waren die Folge von unzulänglichen reaktordosimetrischen Mess- und Berechnungsmethoden!
- Die Aufklärung gelang erst durch

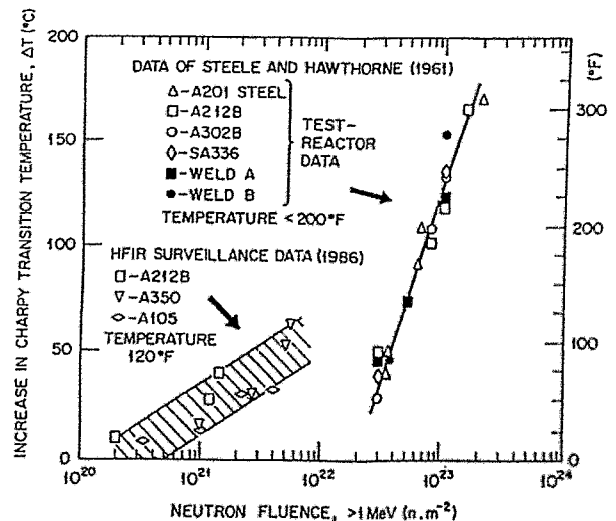


Abb. 3: Verschiebung der DBTT von RDB-Stählen unter Neutronenbestrahlung

ein spezielles Dosimetrie-Messprogramm mit verbesserten Mess- und Berechnungsmethoden.

1994-1996 – These der ANL-Gruppe „Erhöhte Effizienz der Gamma-Defekte“:

- Die ANL-Gruppe (Alexander, Rehn u.a.) vertritt die These einer erhöhten Effizienz der gamma-induzierten primären Defekte im Vergleich zu den durch Neutronen induzierten (bis zu einem Faktor 100 !) [6-9].

1994 – Publikation der „Endergebnisse“ der Untersuchungen am HFIR [2,3]:

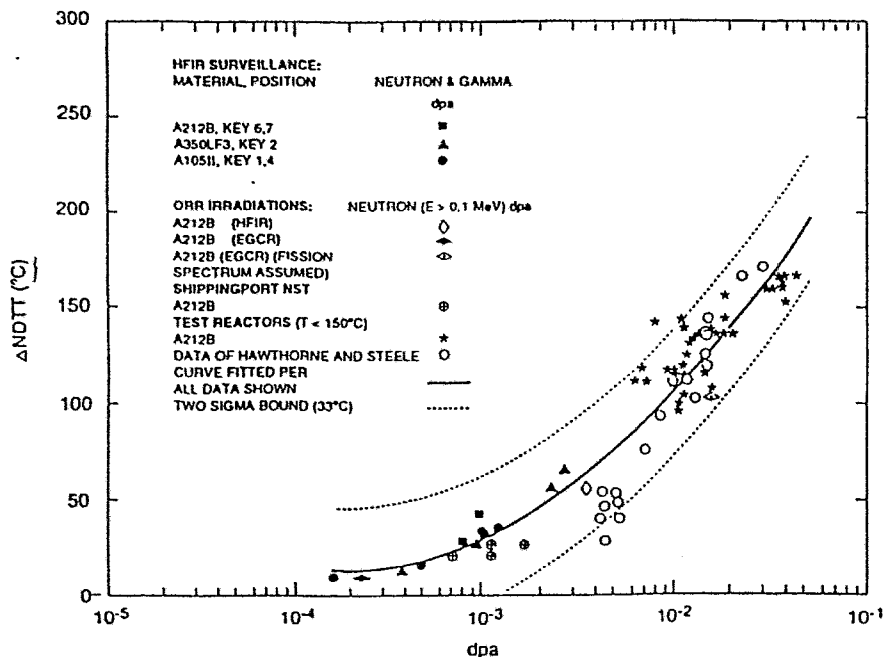


Abb. 4: Verschiebung der DBTT in Abhängigkeit von der Summe von neutronen- und gamma-induzierten DPA

- Der hochenergetische Gammafluss ($E_\gamma > 1 \text{ MeV}$) an der Position der Materialproben beim HFIR erwies sich um fast drei Größenordnungen höher als der schnelle Neutronenfluss ($E_n > 1 \text{ MeV}$), was zu einer fünffach höheren DPA-Rate durch Gammas führte.
- Die gleichgewichtete Summe der Gamma- und Neutronen-DPA korreliert mit der DBTT-Verschiebung eben so, wie es für reine Neutronenbestrahlung der Fall ist, s. Abbildung 4. Sie erklärt die beobachtete sechsfache Beschleunigung der Versprödung der RDB-Materialproben.

Zwei Sachverhalte sind bei dieser Interpretation hervorzuheben:

- Hierbei wird **nicht** auf die These einer höheren Effizienz der gamma-induzierten DPA zurück gegriffen und
- es wird **kein** Ausheilungseffekt der Gammastrahlung in Rechnung gestellt!

1997-heute – „Einfluss der Gammastrahlung“ ist noch nicht aufgeklärt:

In jüngster Zeit erschienen Publikationen, in denen experimentelle Untersuchungsergebnisse vorgestellt werden, die der Gammastrahlung einen Ausheilungseffekt zu attestieren scheinen:

- Amajev A.D. et al., *Atomnaja Energija* **82** (5) (1997) 351-354
Nikolaenko V.A. et al., *Metally* **2** (1998) 112-117
Nikolaenko V.A. et al., *Journ. Nucl. Mat.* **271&272** (1999) 120-122
- Elektronenbestrahlungen von Materialproben bei 50°C haben die für den HFIR gezogene Schlussfolgerung (kein Effizienzfaktor > 1 für Gammastrahlung) bestätigt [Alexander D.E. et al., *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **373** (1995) 155-163, Alexander D.E. et al., eingereicht an *Journal of Nuclear Materials*].
 - Eine andere Gruppe fand jedoch, dass Elektronenbestrahlungen von Materialproben zu einer stärkeren Härtung führen, als es für Neutronenstrahlen derselben Dosen der Fall ist [Tobita T. et al., *Proc. of SMiRT-15*, Seoul, Korea, Aug. 15-20, 1999, X-205].
 - In der jüngsten Publikation über Berechnungen zur RDB-Versprödung beim amerikanischen ABWR stützen sich die Autoren auf die überwiegende Zahl von experimentellen Befunden, die keinen Effizienzfaktor > 1 für Gammastrahlung gefunden haben [Garner F.A. et al., 18th Int. Symp., ASTM STP 1325, West Conshohocken, PA, 1999]. Sie erkennen aber an, dass es für ihre Schlussfolgerung keine experimentellen Ergebnisse im Temperaturbereich 250-300°C, wie er für RDB relevant ist, gibt. Gerade im höheren Temperaturbereich nehmen die diffusionsgetriebenen Effekte zu, sollten also die FMD als Schädigungskennzahl im Vergleich zur DPA an Bedeutung gewinnen.

Zusammenfassend ist festzustellen:

- *In den Publikationen gibt es noch nicht aufgeklärte Widersprüche.*
- *Besonders negativ ist, dass es im für RDB relevanten Temperaturbereich 250-300°C zu wenig experimentelle Untersuchungen gibt.*
- *Entsprechende Untersuchungen der RDB-Materialien der stillgelegten WWER-440 des „KKW Greifswald“ könnten dazu beitragen, diese Lücke zu schließen.*

1.4. Mögliche Schädigungskenngrößen für Neutronenstrahlung

Wie bereits dargelegt, kann der zeitliche Ablauf der in den durch hochenergetische Neutronen ausgelösten Kaskaden ablaufenden Prozesse in Phasen eingeteilt werden. In der *Stoßphase* (≤ 1 ps) werden die primären Defekte durch Atomstöße der nachfolgend generierten Rückstoßatome produziert. Ihre mittlere Anzahl (DPA) kann näherungsweise nach dem so genannten NRT-Standard berechnet werden. $\langle N_{NRT} \rangle$ sei diese Zahl pro Anzahl der Kaskaden, die von einem primär aus seinem Gitterplatz gestoßenen Atom (PKA: *primary knocked-on atom*) ausgelöst werden. In den *Ausbreitungs- und Abkühlungsphasen* (≤ 10 ps) rekombiniert ein Großteil der primären Defekte. Die mittlere Anzahl der überlebenden Defekte pro Kaskade sei $\langle N_F \rangle$. In der *Diffusionsphase* ($\leq 10^6$ s) findet der Langzeittransport der Defekte statt, an dem diejenigen teilnehmen, die das Kaskadenvolumen verlassen konnten. Ihre mittlere Anzahl pro Kaskade sei $\langle N_{FMD} \rangle$. Die Abhängigkeiten der drei Kennzahlen von der Energie des PKA und (schwach) vom Material sind in der Literatur gegeben. Im Vorhaben wurden die energieabhängigen Neutronenflüsse an der Innenseite der RDB der Reaktoren WWER-440, WWER-1000 (Standard), eines deutschen 1300 MW-Druckwasserreaktors (DWR) und eines deutschen 900 MW-Siedewasserreaktors

(SWR) berechnet. Ausgehend von diesen wurden mit Hilfe des Codes NJOY und ENDF/B-VI die zugehörigen PKA-Energiespektren bestimmt und damit schließlich die drei gemittelten Kennzahlen bestimmt. Dabei wurde für die Effektivität ε der Bildung eines FMD aus einem PKA mit der Energie E_{PKA} folgende Abhängigkeit angewendet [10]:

$$\varepsilon = 0.01 + 0.380 E_{PKA}^{-0.893}$$

Die den Berechnungen zu Grunde gelegten PKA-Spektren sind in normierter Form in Abbildung 5 dargestellt.

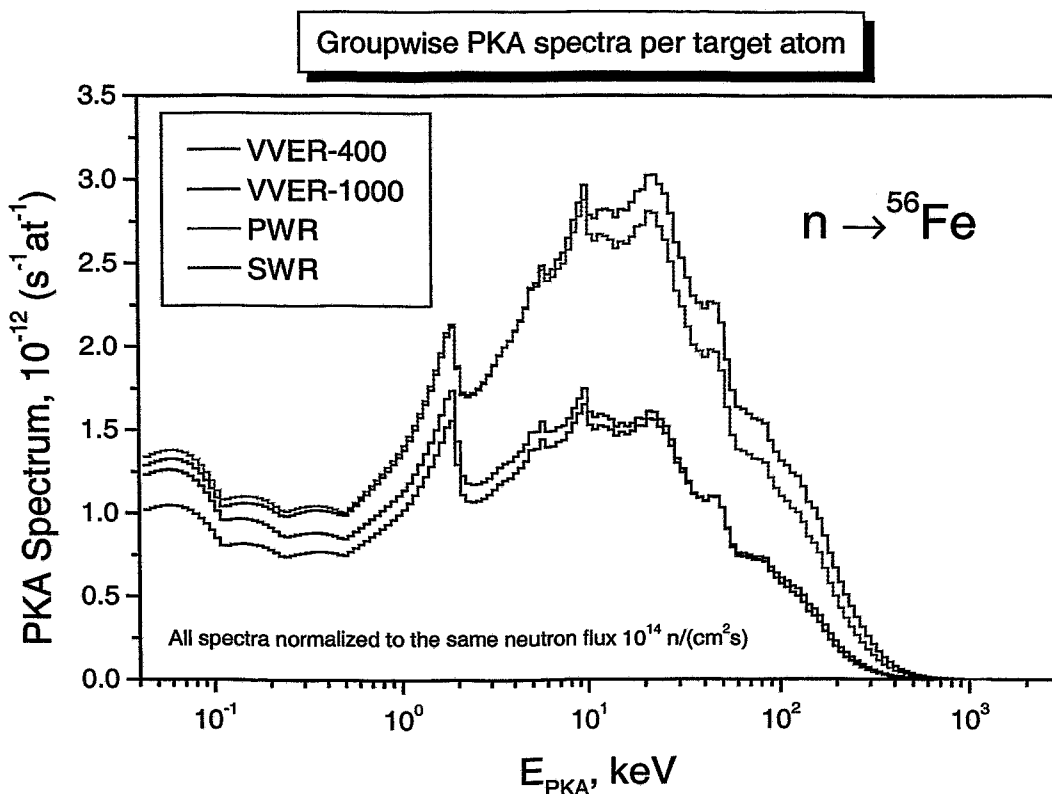


Abb. 5: Normierte PKA-Spektren in Eisen, die durch die Neutronenflüsse an den RDB-Innenseiten ausgelöst werden

Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Tabelle 4 gegeben.

Tabelle 4: Berechnete, mittlere Defektanzahlen die pro Kaskade durch die Neutronenstrahlung an der RDB-Innenseite produziert werden

Defektanzahl pro Kaskade	WWER-440	WWER-1000	DWR	SWR
$\langle N_{NRT} \rangle$	67	79	101	119
$\langle N_F \rangle / \langle N_{NRT} \rangle \%$	31	31	30	30
$\langle N_F \rangle$	20,9	24,3	30,6	35,3
$\langle N_{FMD} \rangle / \langle N_{NRT} \rangle \%$	3,6	3,4	3,1	2,8
$\langle N_{FMD} \rangle$	2,4	2,7	3,1	3,3

Folgende Schlussfolgerungen können gezogen werden:

- Die vom WWER-440 zum SWR zunehmende Anzahl $\langle N_{NRT} \rangle$ erklärt sich mit der Erhärtung des Neutronenspektrums.
- Würde man von der DPA auf eine auf $\langle N_F \rangle$ basierte Schädigungskenngröße übergelien, hätte es keine Auswirkungen auf die Relation der prognostizierten RDB-Versprödung der betrachteten Reaktoren; das Verhältnis $\langle N_F \rangle / \langle N_{NRT} \rangle$ ist praktisch konstant.
- Das Verhältnis $\langle N_{FMD} \rangle / \langle N_{NRT} \rangle$ nimmt leicht ab. Daher würde eine auf den FMD basierende Schädigungskenngröße eine vom WWER-440 zum SWR hin schwächere Neutronenversprödung pro Neutronenflusseinheit ausweisen als die DPA. Dieser Effekt liegt aber im Bereich von lediglich 25%.
- Eine FMD-basierte Kenngröße für Neutronen und Gammas hätte eine relative Verstärkung der durch Gammastrahlung induzierten Versprödung um den Faktor $\langle N_{NRT} \rangle / \langle N_{FMD} \rangle \cong 30$ zur Folge.

1.5. Neue Berechnung des DPA-Wirkungsquerschnitts von Eisen für Gammastrahlung

In den bisher publizierten Berechnungen des DPA-Wirkungsquerschnitts für Gammastrahlung werden die folgenden Näherungen im Elektronen/Positronentransport gemacht: Es wird ein kontinuierliches Abbremsmodell für die Energiemoderation der Teilchen durch das Material benutzt und die Freisetzung weiterer sekundärer Elektronen/Positronen wird vernachlässigt. In den eigenen Berechnungen werden diese Näherungen vermieden: der Elektronen/Photonentransport wird mit Hilfe des Monte-Carlo-Codes EGS4 behandelt. Die Ergebnisse der eigenen Berechnung für Eisen sind in Abbildung 6 gegeben und den Ergebnissen anderer Autoren gegenübergestellt.

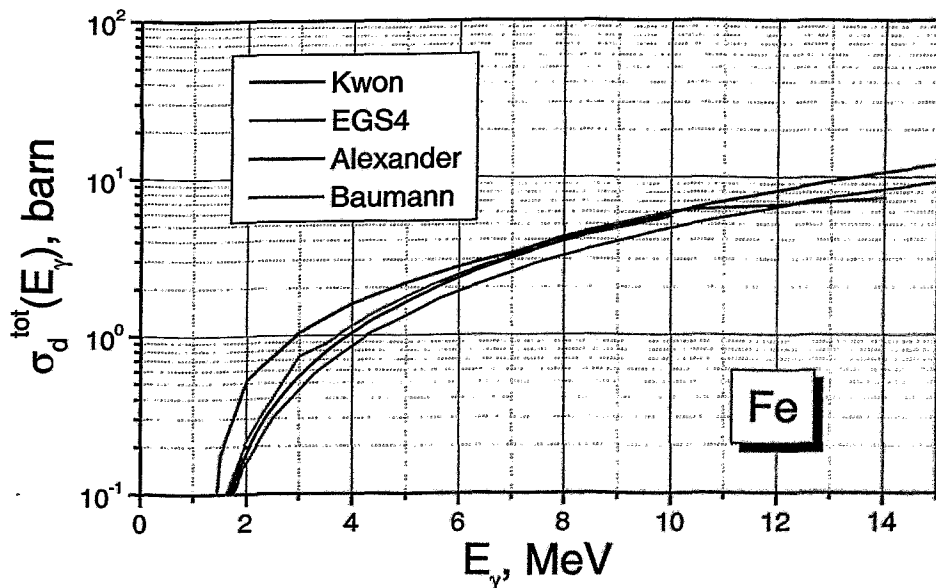


Abb. 6: Vergleich des neu berechneten DPA-Wirkungsquerschnitts von Eisen mit den Ergebnissen anderer Autoren

Die folgenden Schlussfolgerungen können gezogen werden:

- *Der neu, ohne die üblichen Näherungen berechnete DPA-Wirkungsquerschnitt von Eisen erweist sich im Energiebereich $2 \text{ MeV} \leq E_\gamma \leq 12 \text{ MeV}$ kleiner als die von anderen Autoren berechneten.*
- *Es bestehen beträchtliche Unterschiede zwischen den Ergebnissen verschiedener Autoren.*

1.6. Ansatz für ein theoretisch-rechnerisches Modell zum Ausheilungseffekt durch Gammastrahlung

In der Literatur wurden solche Modelle nicht gefunden. An Hand des Phänomens der Bildung von Cu-angereicherten Zonen innerhalb von Kaskadenbereichen wurde ein Ansatz für ein Modell entwickelt, das einen Ausheilungseffekt der Gammastrahlung widerspiegelt. Es ist allerdings noch nicht bis zu publikationsfähiger Qualität ausgearbeitet. Auf der Grundlage von Diffusionsmodellen für die Kupfer- und Eisenatome in einem mit Leerstellen und Zwischengitteratomen angefüllten Material (Eisen), das konstanter Bestrahlung mit Neutronen und Gammas ausgesetzt ist, wird eine Beziehung für die Gleichgewichtskonzentration N_{CEZ} der CEZ im Material, hergeleitet:

$$N_{CEZ} \approx 1/(1 + \beta), \quad \beta = G_\gamma / G_{FMD}.$$

Hier ist G_γ die Generationsrate primärer Defekte durch Gammastrahlung und G_{FMD} die FMD-Produktionsrate durch Neutronenstrahlung. Sie ergibt sich aus der Gleichgewichtsbilanz zwischen der CEZ-Generationsrate (näherungsweise gleich der Kaskadengenerationsrate angenommen) durch die konstante, anliegende Neutronenstrahlung und ihrer Auflösungsrate durch das Auseinanderdiffundieren der Cu-Atome dar.

Die Schlussfolgerung des Ansatzes ist:

- *Die Reduktion von N_{CEZ} durch die von der Gammastrahlung produzierten Defekte kann als Ausheilungseffekt interpretiert werden.*

2. Berechnungen von Flussspektren und Schädigungskenngrößen für Neutronen und Gammas

2.1. Berechnete Reaktoren

Für folgende Reaktoren wurden Berechnungen ausgeführt:

- **WWER-440:** Der WWER-440 ist ein Druckwasserreaktor, der neben dem WWER-1000 und dem RBMK weiteste Verbreitung in ehemaligen Ostblockstaaten sowie in Finnland gefunden hat. Er besitzt hexagonale Brennelemente und azimuthal eine angenäherte 30°-Symmetrie des Reaktorkerns.
- **WWER-1000:** Der WWER-1000 ist der Reaktortyp, der in Russland und sieben anderen Staaten den größten Anteil an der nuklearen Stromerzeugung hat. Er hat wie der WWER-440 hexagonale aber größere Brennelemente und eine 60°-Symmetrie des Reaktorkerns. Der Reaktor zeichnet sich durch die komplizierte Geometrie einer von Kühlkanälen durchzogenen Kernumfassung aus. Für beide WWER-Reaktortypen ist die Strahlungsversprödung des Druckbehälters ein gravierendes Problem. Es wurden folgende zwei Beladungsvarianten untersucht:
 - „Standard“: Standard-Kernbeladung
 - „Low Leakage“: Kernbeladung mit verringertem Ausfluss und somit reduzierter RDB-Strahlenbelastung. Dazu wurden in den äußersten Brennelementreihen die Brennelemente mit dem höchsten Abbrand positioniert.
- **DWR:** Der 1300 MW_{el.}-Druckwasserreaktor deutscher Bauart hat eine azimuthale 45°-Core-Symmetrie und quadratische Brennelemente. Die Surveillance-Proben sind an der Außenwand des Kernbehälters (Barrel) angebracht.
- **SWR:** Der 900 MW_{el.}-Siedewasserreaktor deutscher Bauart besitzt quadratische Brennelemente und der Reaktorkern zeigt eine azimuthale 45°-Symmetrie. Die Surveillance-Proben sind mit einem Abstandshalter an der Innenwand des RDB befestigt.

2.2. Berechnungsverfahren, Codes, Kerndaten und Berechnungsmodelle

a) Das Ziel bestand darin, für die Reaktoren bei Nominalleistung die energieabhängigen Neutronen- und Gammaflüsse ($\Phi_n(r,E)$ und $\Phi_\gamma(r,E)$) entlang des Radius (r) in der Mittelebene außerhalb des Reaktorkerns zu berechnen und damit diverse Energieintegrale und als Faltung mit dem makroskopischen DPA-Wirkungsquerschnitt von Eisen die DPA-Rate für verschiedene Positionen zu bestimmen. Dafür sollten verfügbare Codes und Kerndatenbibliotheken, die häufig zur Lösung derartiger Aufgaben eingesetzt werden, verwendet werden.

b) Berechnungsverfahren:

Nach dem **Syntheseverfahren** wurden die dreidimensionalen Flussverteilungen um die Mittelebene aus Ergebnissen ein- und zweidimensionaler **S_N-Rechnungen** konstruiert:

$$\Phi(r,\theta,z,E) = \Phi(r,\theta,E) * \left(\frac{\Phi(r,z,E)}{\Phi(r,E)} \right).$$

Die Rechnungen wurden in einer Energiegruppennäherung durchgeführt, so dass im weiteren die Energievariable durch den Gruppenindex g ersetzt ist. Bei den meisten Rechnungen wurde eine Variante des Syntheseverfahrens eingesetzt, die auf der Verwendung des zweidimensionalen S_N-Codes auch für die eindimensionale Rechnung beruht:

$$\Phi_g(R, \Theta, Z) = \Phi_g(R, \Theta) * \left[\frac{\Phi_g(R, Z)}{\Phi_g^{1D}(R, \Theta)} \right],$$

wobei $\Phi_g^{1D}(R, \Theta)$ unter Verwendung des gleichen (R, Θ) -Gitters berechnet wurde wie $\Phi_g(R, \Theta)$, jedoch für ein eindimensionales Zylindermodell. Der Vorteil dieses Verfahrens ist die Reduzierung unphysikalischer Θ -Oszillationen.

Für den WWER-1000 mit Standardbeladung und den 1300 MW DWR wurden auch dreidimensionale **Monte-Carlo-Berechnungen** von $\Phi(r, \theta, z, E)$ ausgeführt, um die Ergebnisse der S_N -Rechnungen abzusichern. Da die Synthesemethode die Geometrie und die Quellverteilung im Bereich um die Mittelebene sehr gut berücksichtigt, sollte der Ergebnisvergleich beider Methoden Hinweise auf den Einfluss der Energiegruppennäherung geben. Geometrien und Spaltquellverteilungen wurden in beiden Fällen weitgehend exakt berücksichtigt. Bei den Monte-Carlo-Rechnungen wurde die Gewichtsfenstermethode zur Varianzreduktion angewandt.

c) Codes:

Die eindimensionalen S_N -Rechnungen wurden mit dem Codes **ANISN** oder **DORT**, die zweidimensionalen mit **DORT** [14] ausgeführt. Für die Monte-Carlo-Rechnungen wurde der Code **MCNP4B** bzw. **MCNP4C** verwendet [16]. Das für die MCNP-Rechnungen bereitzustellende Energiespektrum der prompten Spaltgammas wurde mit dem Datenaufbereitungsprogramm **NJOY** erstellt [18].

d) Kerndaten:

Für die S_N -Codes wurde die als internationaler Standard für reaktordosimetrische Flussberechnungen angesehene Kerndatenbibliothek in **Energiegruppennäherung BUGLE-96T** (47 Energiegruppen für Neutronen und 20 Energiegruppen für Gammas) verwendet [15]. Sie ist aus der Bibliothek evaluierter Kerndaten **ENDF/B-VI Rev. 3** [17] speziell für reaktordosimetrische Flussberechnungen bei Leichtwasserreaktoren erstellt worden. Sie enthält für einzelne Reaktorzonen und Reaktortypen (DWR und SWR) spezielle Gruppensätze, die durch Gruppenreduktion aus der ebenfalls auf ENDF/B-VI Rev. 3 beruhenden 199-Neutronen/42-Gammagruppen-Bibliothek **VITAMIN-B6** [19] erstellt wurden. Die benötigten Wichtungsspektren wurden aus Rechnungen auf der Basis von VITAMIN-B6 und eines eindimensionalen Modells eines typischen DWR bzw. SWR bestimmt. Die MCNP-Rechnungen wurden mit den **energiepunktweise** gegebenen Wirkungsquerschnitten der Bibliothek **ZZ-MCNPDATA** durchgeführt [RSIC DATA LIBRARY COLLECTION – DLC-0200/03], die ebenfalls auf Daten von ENDF/B-VI beruhen.

e) Berechnungsmodelle:

▪ „**Inhomogene**“ *Rechnungen*

Die Flussberechnungen sind als sogenannte „inhomogene“ Rechnungen ausgeführt worden, d. h. es ist bei jeder **eine unabhängige, äußere Teilchenquellverteilung** (Neutronen oder Gammas) gegeben. Die Neutronenquellverteilungen wurden aus den von den Betreibern erhaltenen Informationen über die Leistungsverteilung konstruiert und den Codes als Input zur Verfügung gestellt.

▪ *Komponenten der Gammastrahlung*

- „**Spaltgammas**“, die unmittelbar beim Spaltprozess freigesetzt werden;

- „**Spaltproduktgammas**“, die bei Zerfällen der radioaktiven Spaltprodukte emittiert werden;
- „**Sekundäre Gammas**“, die unmittelbar aus neutronen-induzierten Kernreaktionen (Einfang und unelastische Streuung) hervorgehen;
- „**Aktivierungsgammas**“, die bei Zerfällen durch Neutronen aktivierter Kerne der Strukturmaterialien entstehen.
- „**Aktinidengammas**“, die bei Zerfällen der im Core vorhandenen oder beim Abbrand entstandenen Aktinide entstehen.

Laut Literatur ist der Anteil der Aktivierungsgammas vernachlässigbar; er wurde im Vorhaben nicht betrachtet. Aktinidengammas wurden berücksichtigt, jedoch ist ihr Anteil relativ zu den Spaltproduktgammas beim Leistungsreaktor so gering, dass sie im weiteren nicht gesondert erwähnt werden.

▪ **Quellverteilungen**

- **Ortsverteilungen:**

Sie sind für Neutronen, Spalt- und Spaltproduktgammas durch die **Ortsverteilungen der Kernspaltungen** gegeben. Diese wurden aus den von den Reaktorbetreibern erhaltenen Informationen konstruiert. Für alle Reaktoren **außer dem SWR** wurden die Ortsverteilungen der von den Quellen emittierten Teilchen sowohl mit MCNP als auch mit DORT in den $(r-\theta)$ -Rechnungen in den zwei bzw. drei äußeren Brennelementreihen **brennstabweise** nachgebildet. Für den SWR lagen nur integrale Angaben für die, allerdings relativ kleinen Brennelemente vor. Dafür wurden besonders viele Höhenschichten berücksichtigt, da die Moderatorichte im SWR-Kern stark höhenabhängig ist. Die für 10 – 24 Höhenschichten gegebenen vertikalen Verteilungen wurden in den MCNP-Rechnungen exakt, in den S_N -Synthese-Rechnungen näherungsweise, berücksichtigt.

Die Ortsverteilungen der sekundären Gammas werden nicht als Eingabedaten benötigt. Sie werden bei gekoppelten Neutronen/Gammatransport-rechnungen in den benutzten Programmen automatisch nach deren Modellen simuliert.

Die Berücksichtigung der Spaltgammaquelle ist bei inhomogenen Rechnungen relativ kompliziert. Wenn sie, wie die Neutronenspaltquelle, vorgegeben wird, dürfen die Spaltgammas der beim Neutronentransport stattfindenden Spaltungen nicht berücksichtigt werden. Das ist aber mit den für die S_N -Codes zur Verfügung stehenden Datenbibliotheken nicht möglich, da die Neutronen-Gamma-Produktionsmatrizen auch die Spaltgammaquelle mit einschließen. Übliche Praxis ist es davon auszugehen, dass die beim Transport der Spaltneutronen entstehenden Spaltgammas die Spaltgammaquelle exakt repräsentieren. Das ist aber nur dann der Fall, wenn pro Quellspaltung beim Neutronentransport auch wieder genau eine Spaltung am gleichen Ort und am gleichen Isotop stattfindet. Das trifft aber nur zu, wenn die Neutronenquellen aus einer kritischen (homogenen) Rechnung stammen und das Modell der homogenen Rechnung mit dem der inhomogenen Rechnung übereinstimmt. Das ist bei unseren Modellen angenähert der Fall. Bei den MCNP-Rechnungen wurde von der Möglichkeit des Codes Gebrauch gemacht, die Gammaspaltquelle beim Neutronentransport abzuschalten. Anschließend wurde auf der Basis der Neutronenspaltquelle mit Hilfe von NJOY und ENDF/B-VI-Daten die Gammaspaltquelle berechnet. Mit dieser wurde eine reine Gammatransportrechnung durchgeführt, deren Ergebnisse zu den Ergebnissen der Neutronen-Gamma-Transportrechnung mit abgeschalteter Spaltgammaquelle addiert wurden.

Energieverteilungen:

Die Spaltneutronenspektren der wichtigsten Spaltisotope wurden für jeden Reaktor entsprechend der Anteile der Isotope an den Spaltungen zu einem Gesamtspaltspektrum zusammengefasst. Die Spektren der Spaltgammas und sekundären Gammas sind im Falle der S_N -Rechnungen in den Neutron-Gamma-Übergangsmatrizen enthalten. Für die mit MCNP getrennt durchgeführten Transportrechnungen der Spaltgammas wurden die Energieverteilung und die Anzahl der Spaltgammas/Spaltung mit Hilfe von NJOY auf der Basis von ENDF/B-VI bestimmt.

Problematisch sind die Energiespektren der Spaltproduktgammas. Diese Gammaquelle muss in den benutzten Transportcodes vorgegeben werden. Im Vorhaben war vorgesehen, die Bildung der Spaltprodukte und deren Zerfallsketten mit Hilfe des Programms *ORIGEN-2* [20] zu berechnen, für typische Abbrandzustände der Brennelemente die Quellstärke und das Energiespektrum der Spaltproduktgammas zu ermitteln und in einer separaten Gamma-rechnung die Gammaflüsse zu bestimmen. Es musste aber festgestellt werden, dass die berechnete Quellstärke (3.22 MeV pro Spaltung) im Vergleich zu Literaturangaben (6.5 bis 7.8 MeV pro Spaltung) um den Faktor zwei zu klein war. Die Ursache dieser Differenz konnte innerhalb des Projektes nicht geklärt werden. *Die im folgenden angegebenen Ergebnisse für die Gammastrahlung enthalten daher nicht den Anteil der Spaltproduktgammas!* Eine konservative Abschätzung dieses Anteils ergibt sich, wenn man ihn dem Beitrag der Spaltgammas gleichsetzt. Letzterer kann allerdings nicht mit DORT und ANISN, sondern nur mit Hilfe von MCNP (wie hier praktiziert) explizit berechnet werden.

** Nach Ablauf des Vorhabens war es gelungen, die Ursachen des Fehlers, der mit ORIGEN-2 aufgetreten war, aufzuklären und die entsprechenden Berechnungen auszuführen. Es stellte sich heraus, dass die in ORIGEN-2 verwendete Datenbasis keine Informationen über die kurzlebigen Nuklide mit Zerfallszeiten < 20 s enthält, wodurch etwa die Hälfte der Gammas fehlt. Erst in der jüngsten Version von ORIGEN-S, das Bestandteil des Programmpakets SCALE [22] ist, sind diese Informationen enthalten. Das damit berechnete Energiespektrum der Spaltproduktgammas ist in Abbildung 7 mit dem der Spaltgammas (aus ENDF/B-VI / NJOY) verglichen. Es ist im für die RDB-Versprödung relevanten Energiebereich $1 \text{ MeV} < E_\gamma < 10 \text{ MeV}$ wesentlich weicher und daher das Transmissionsvermögen dieser Gammas durch Materialschichten deutlich schwächer.*

▪ *Geometrien*

Alle Rechnungen sind für **azimuthale Symmetriesektoren**, die den Reaktorkernen angepasst waren, durchgeführt worden: 30° für den WWER-440, 60° für die WWER-1000 Reaktoren und 45° für die deutschen Reaktoren. Die Geometrien für die einzelnen Rechnungen wurden **so detailgetreu wie nach den vorhandenen Informationen möglich nachgebildet**. In den S_N -Rechnungen wurden **sehr feine Rechengitter** verwendet, die es ermöglichten, sowohl die Geometrien als auch die stabweisen Quellverteilungen gut nachzubilden.

Für den Transport der Neutronen und Gammas wurden die Brennelemente als homogene Materialmischungen mit den gemittelten Kerndichten berücksichtigt. Abbildung 8 zeigt als Beispiel einen Schnitt durch die Mittelebene des für die Berechnung des WWER-1000 verwendeten Modells.

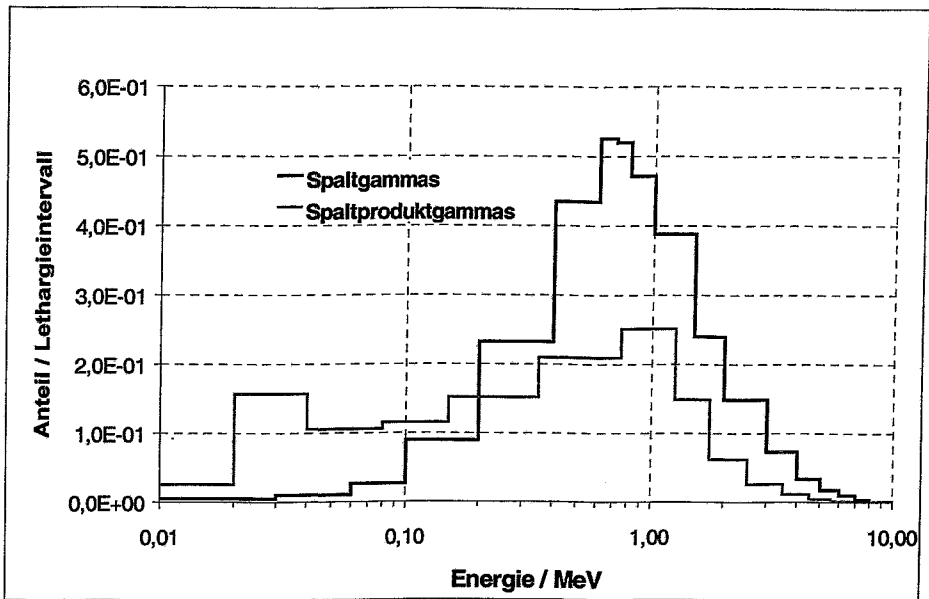


Abb. 7: Normierte Energiespektren der Spaltgammas und Spaltproduktgammas

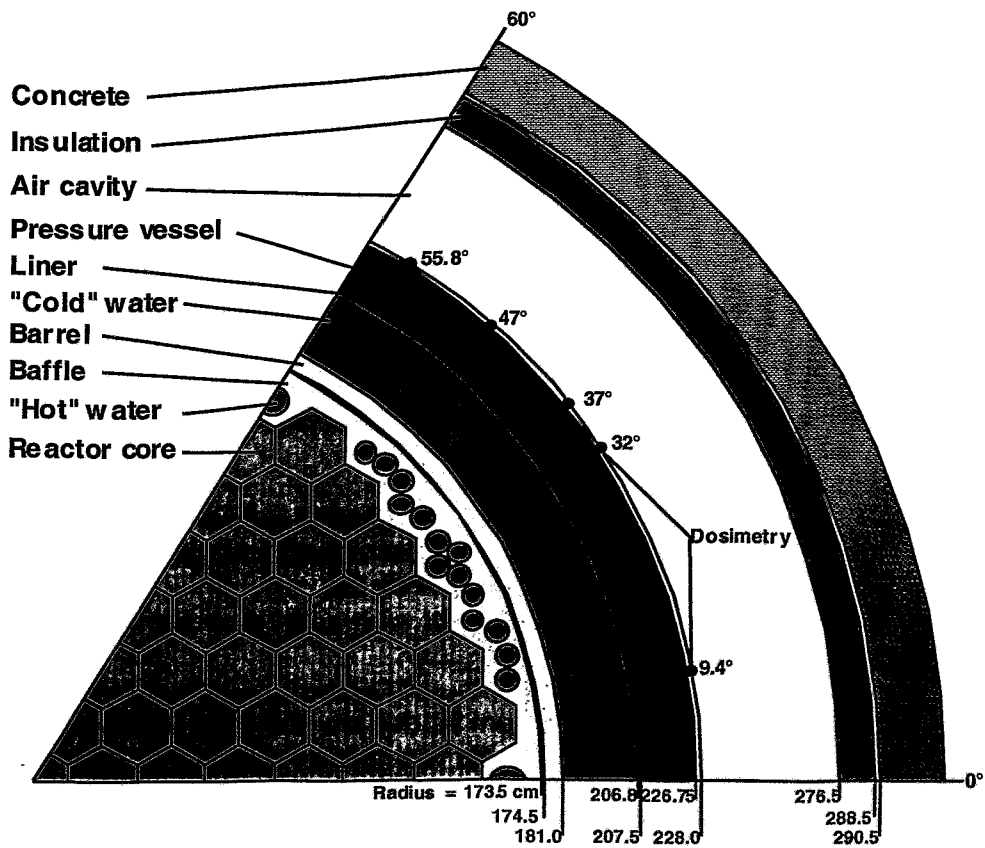


Abb. 8: Horizontaler Querschnitt durch den 60° Symmetriesektor des WWER-1000 mit Dosimeterpositionen

2.3. Neutronenflussspektren

In Abbildung 9 sind die berechneten absoluten energieabhängigen Neutronenflüsse (= Neutronenspektren) an den RDB Innenwänden für die vier berechneten Reaktortypen in der 47-Gruppen-Struktur der BUGLE-96-Bibliothek abgebildet. Diese und alle weiteren Neutronen- und Gammaberechnungen erfolgten für das axiale (=vertikale) und azimuthale Maximum des Flusses (Ausnahme: Surveillance-Position des SWR, die nicht im Flussmaximum liegt). Die Spektren für den WWER-1000 beziehen sich auf die Standardbeladung. Die Neutronen- und Gammaskpektren der Low Leakage-Variante unterscheiden sich nur im absoluten Niveau des Flusses und praktisch nicht in der Form des Spektrums. Deshalb ist es ausreichend, die Ergebnisse für die Low-Leakage Variante des WWER-1000 nur in Form von Integralwerten wiederzugeben.

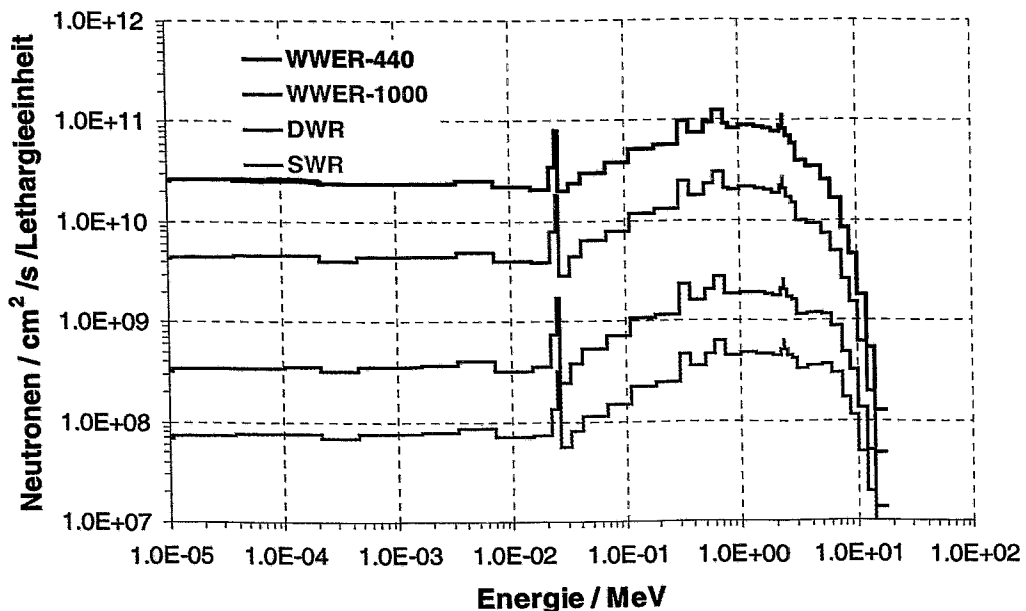


Abb. 9: Energieabhängige Neutronenflüsse im azimuthalen und axialen Flussmaximum an den RDB-Innenwänden verschiedener Reaktoren

Aus den Rechenergebnissen ergeben sich die folgenden Schlussfolgerungen:

- *Hauptsächlich wegen der zunehmenden Wasserspaltdicke nimmt die Neutronenbelastung vom WWER-440 zum SWR hin stark ab.*
- *Mit dem zunehmenden Wasserspalt ergibt sich auch eine Härtung des Neutronenenergiespektrums.*

Die Innenseite des RDB im Flussmaximum ist der am höchsten belastete Punkt und deshalb für konservative Abschätzungen die wichtigste Position. Für drei der vier betrachteten Reaktortypen wurden jedoch auch noch radiale Abhängigkeiten integraler Größen sowie Spektren an anderen wichtigen Positionen bestimmt, insbesondere:

- die $\frac{1}{4}$ Tiefe des RDB, die für die Bruchfestigkeit des RDB wesentlich ist,
- die Außenwand des RDB, an welcher Messungen mit Aktivierungsdetektoren möglich sind,

- die Surveillance-Position (für PWR und SWR), für welche ein Vergleich der Bestrahlungsparameter relativ zum RDB wichtig ist.
- In den Abbildungen 10-12 sind die Neutronenspektren an den genannten wichtigen Positionen bei WWER-1000, PWR und SWR gegenübergestellt.

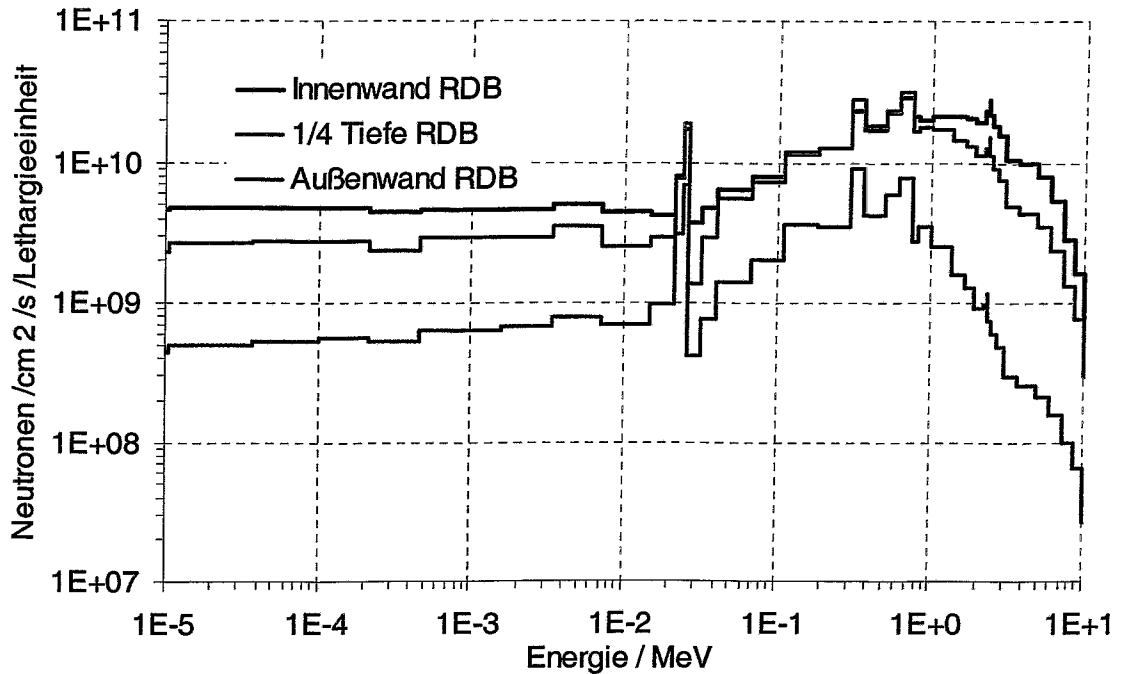


Abb. 10: Neutronenflussspektren an verschiedenen Positionen des WWER-1000

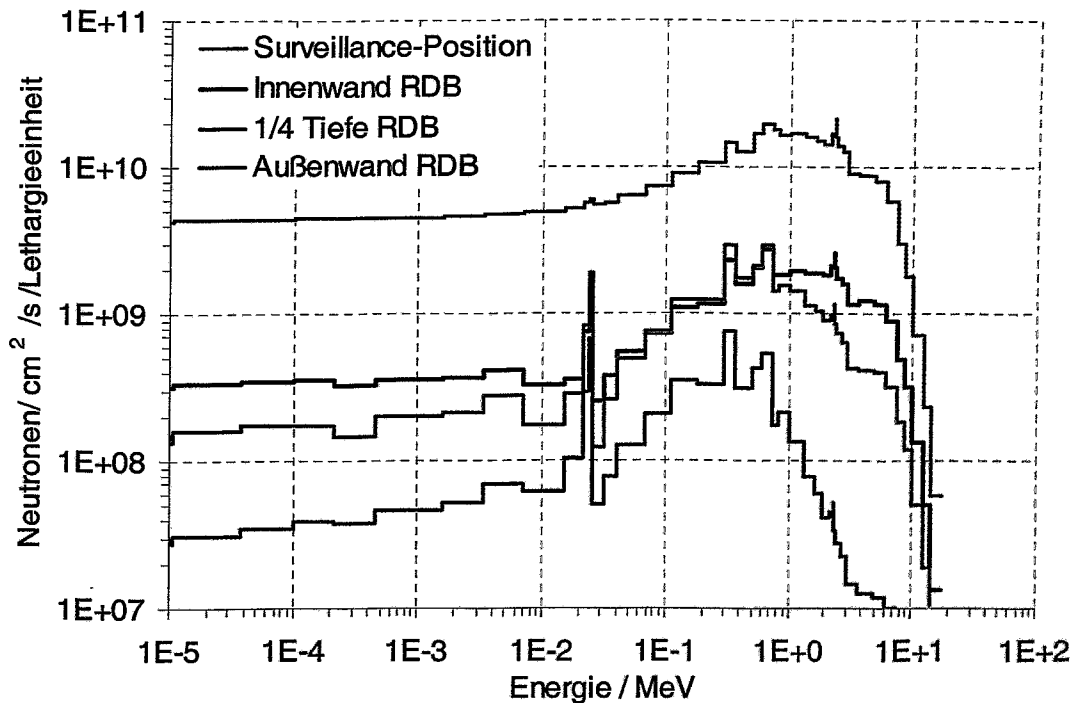


Abb. 11: Neutronenflussspektren an verschiedenen Positionen des DWR

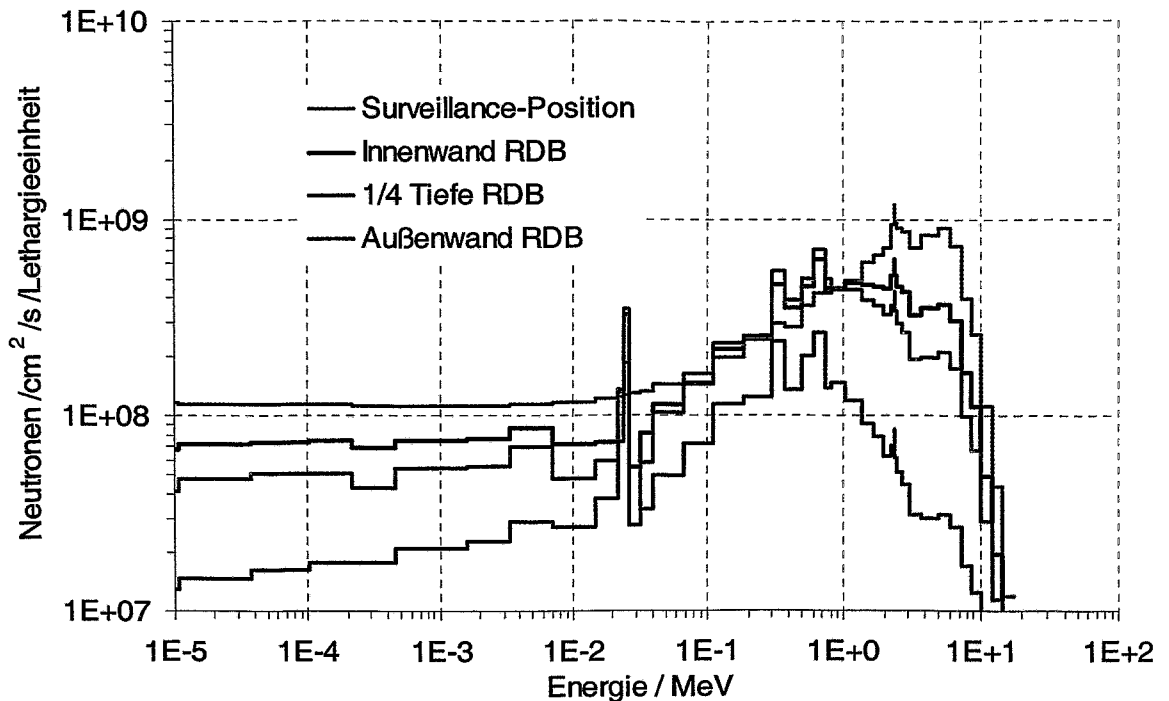


Abb. 12: Neutronenflussspektren an verschiedenen Positionen des SWR

Ein Vergleich der Spektren an verschiedenen Positionen im RDB zeigt, dass die Spektren von innen nach außen weicher werden. Das erklärt sich aus dem großen inelastischen Streuquerschnitt und der Anisotropie der Streuung im Eisen. Dadurch kommt es zu einem schnellen Herunterstreuen der hochenergetischen Neutronen in Richtung des Flussgradienten. Wichtig ist auch, dass die Spektren an den Surveillance-Positionen von DWR und SWR härter sind als die an den entsprechenden 1/4 RDB-Tiefe-Positionen.

2.4. Gammaflussspektren

In Abbildung 13 sind die berechneten energieabhängigen Gammaflüsse (= Gamma-spektren) an den Flussmaxima der RDB-Innenseiten in der 20-Gruppen-Struktur der BUGLE-96-Bibliothek dargestellt. In den Abbildungen 14-16 sind für WWER-1000, PWR und SWR die Gammaspektren für die beschriebenen wichtigen Positionen gegenübergestellt.

Aus den berechneten Gammaflussspektren ergeben sich die folgenden Schlussfolgerungen:

- Die Gammaflüsse an den Innenwänden unterscheiden sich für die vier Reaktortypen weniger als die Neutronenflüsse.
- Die Gammaflüsse sind um etwa 1-2 Größenordnungen größer als die Neutronenflüsse.
- Das Verhältnis von Gamma- zu Neutronenflüssen nimmt vom WWER-440 zum SWR hin zu. Die Ursachen dafür sind einerseits die sehr gute Neutronenabschirmung von Wasser und andererseits dessen schlechte Gammaabschirmung. Hin-

zu kommt die Produktion hochenergetischer sekundärer Gammas durch Neutroneneinfang am Wasserstoff und im Eisen.

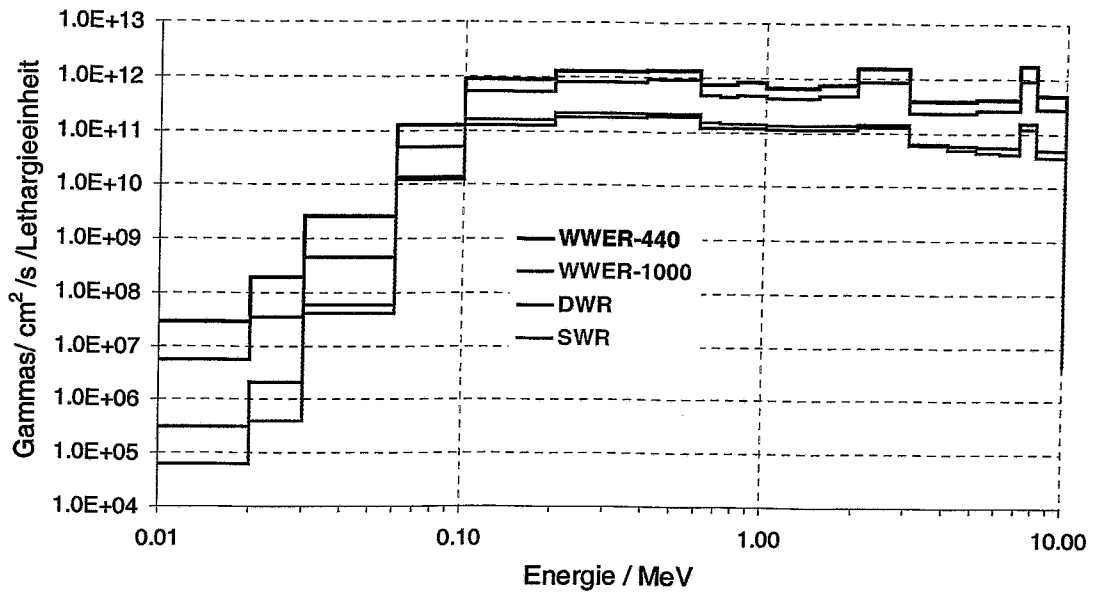


Abb. 13: Energieabhängige Gammaflüsse im azimuthalen und axialen Flussmaximum an den RDB-Innenwänden verschiedener Reaktoren

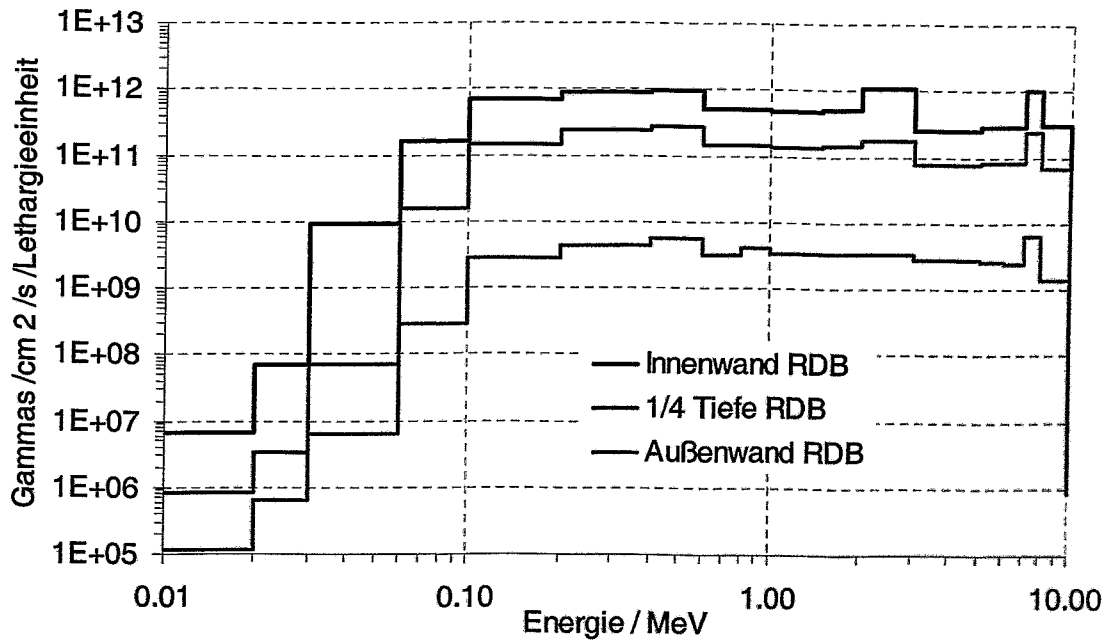


Abb. 14: Gammaflussspektren an verschiedenen Positionen des WWER-1000

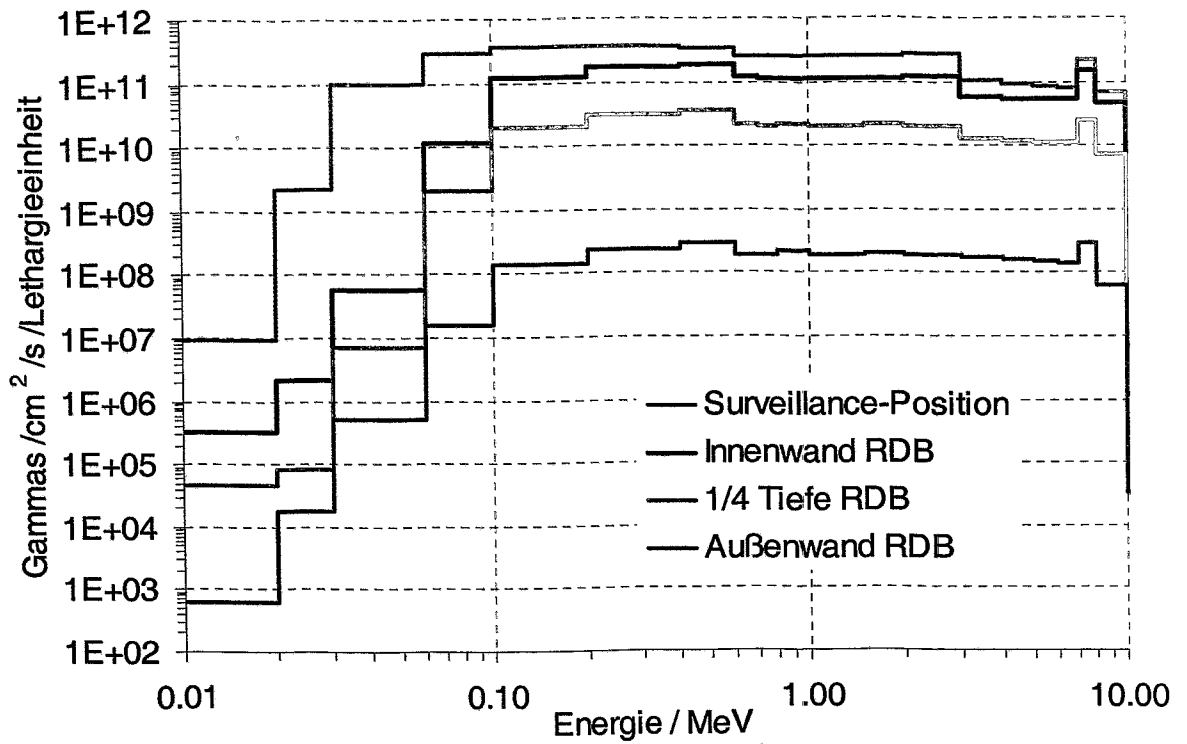


Abb. 15: Gammaflusspektren an verschiedenen Positionen des DWR

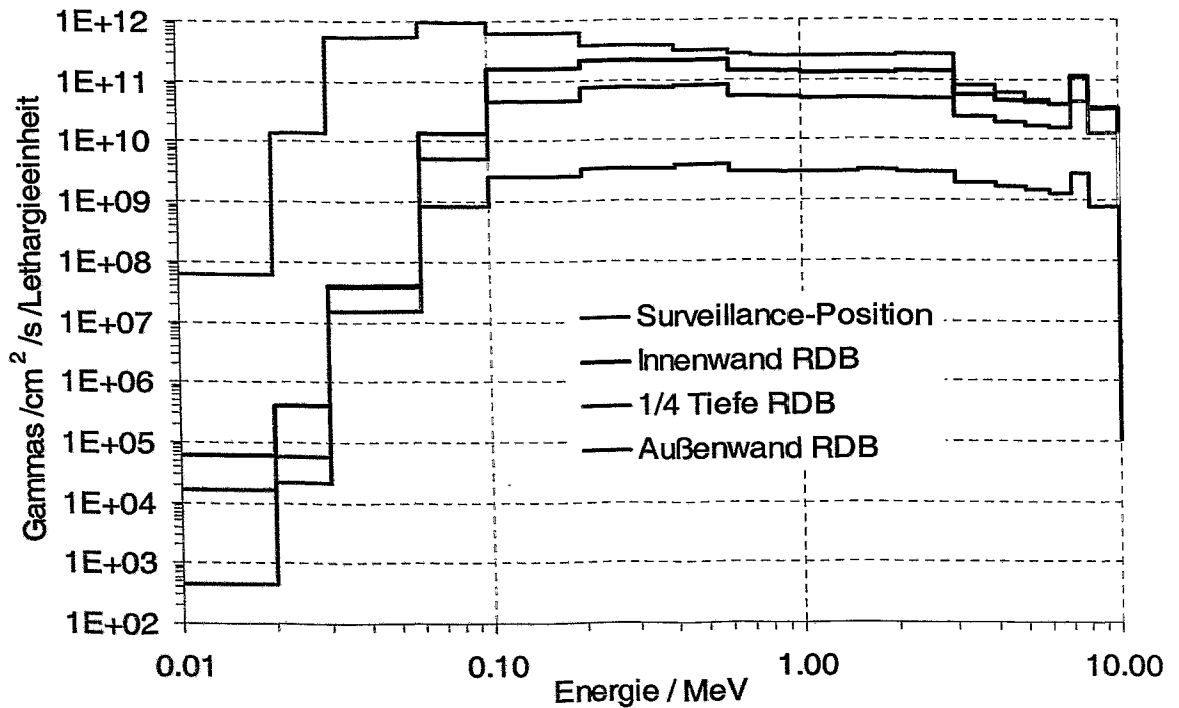


Abb. 16: Gammaflusspektren an verschiedenen Positionen des SWR

2.5. Flussintegrale

In den folgenden Tabellen und Grafiken sind für die berechneten Reaktoren und interessierenden Ortspunkte folgende wichtige Integralwerte gegeben, die von den berechneten Spektren abgeleitet wurden:

- $\Phi_{n-total}$, $\Phi_{\gamma-total}$ - die über den gesamten Energiebereich integrierten „totalen“ Neutronen- bzw. Gammaflüsse
- $\Phi_{n,E>.1MeV}$, $\Phi_{n,E>.5 MeV}$, $\Phi_{n,E>1MeV}$ - Neutronenflussintegrale mit der unteren Integrationsgrenze $E= 0.1$ MeV, 0.5 MeV bzw. 1 MeV
- $\Phi_{n-therm}$ - Neutronenflussintegral unterhalb 0.414 eV
- $\Phi_{\gamma, E>1MeV}$ - Gammaflussintegral oberhalb 1 MeV

Für die Auswahl der Flussintegrale ist von Bedeutung,

- dass $\Phi_{n,E>.5 MeV}$ gegenwärtig in den ehemaligen Ostblockstaaten und $\Phi_{n,E>1MeV}$ in den USA und Westeuropa als primäre Schädigungskennzahlen in Sicherheitsvorschriften genutzt werden,
- dass für $\Phi_{n-total}$ und $\Phi_{n-therm}$ größere Beiträge zur Gammaproduktion erwartet werden und
- dass nur Gammaquanten mit Energien oberhalb 1 MeV Atomverlagerungen verursachen können.

Folgende Bezeichnungen wurden verwendet:

- „In-Vessel“ bzw. „Ex-Vessel“ bedeuten Innen- bzw. Außenseite des RDB
- $\frac{1}{4}$ -Tiefe bezeichnet die Position bei $\frac{1}{4}$ der Dicke des RDB von dessen Innenwand aus gemessen.
- „Surv.-Pos.“ bedeutet: Position der Überwachungsproben.
- Aus drucktechnischen Gründen wurden teilweise auch plausible deutsche Bezeichnungen gewählt, wie z. B. „Fn tot“ für $\Phi_{n-total}$. Alle Flüsse sind in *Teilchen pro cm^2 und s* angegeben.

Tab. 5: Flussintegrale in Teilchen/ cm^2 /s für verschiedene Reaktoren und Positionen

Reactor	Position	$\Phi_{n-total}$	$\Phi_{n-thermal}$	$\Phi_{n,E>0.1 MeV}$	$\Phi_{n,E>0.5 MeV}$	$\Phi_{n,E>1 MeV}$	$\Phi_{\gamma-total}$	$\Phi_{\gamma, E>1 MeV}$
WWER-440	In-Vessel	1.12E+12	5.13E+11	2.66E+11	1.88E+11	1.18E+11	4.27E+12	2.18E+12
WWER-1000 Standard	In-Vessel	2.65E+11	1.34E+11	7.00E+10	4.70E+10	3.08E+10	3.03E+12	1.20E+12
	$\frac{1}{4}$ Tiefe	1.03E+11	8.15E+09	5.85E+10	3.41E+10	1.83E+10	7.25E+11	2.76E+11
	Ex-Vessel	2.23E+10	1.41E+09	1.24E+10	5.45E+09	1.82E+09	1.62E+10	7.08E+09
WWER-1000 Low-Leakage	In-Vessel	1.98E+11	9.92E+10	5.30E+10	3.56E+10	2.33E+10	2.31E+12	9.15E+11
	$\frac{1}{4}$ Tiefe	7.85E+10	6.05E+09	4.48E+10	2.60E+10	1.40E+10	5.54E+11	2.12E+11
	Ex-Vessel	1.81E+10	1.16E+09	9.91E+09	4.31E+09	1.44E+09	1.28E+10	5.58E+09
DWR	Surv.-Pos.	2.43E+11	1.30E+11	5.37E+10	3.72E+10	2.49E+10	1.40E+12	4.04E+11
	In-Vessel	1.95E+10	7.79E+09	6.68E+09	4.74E+09	3.33E+09	7.16E+11	2.43E+11
	$\frac{1}{4}$ Tiefe	8.13E+09	8.51E+07	5.38E+09	3.03E+09	1.58E+09	9.78E+10	3.68E+10
	Ex-vessel	1.71E+09	7.83E+07	9.29E+08	3.45E+08	9.31E+07	8.74E+08	3.95E+08
SWR	Surv.-Pos.	1.70E+10	1.32E+10	2.24E+09	1.88E+09	1.59E+09	2.12E+12	3.43E+11
	In-Vessel	3.63E+09	9.80E+08	1.66E+09	1.23E+09	8.74E+08	6.27E+11	2.12E+11
	$\frac{1}{4}$ Tiefe	2.26E+09	1.21E+08	1.46E+09	9.82E+08	6.12E+08	2.22E+11	7.95E+10
	Ex-Vessel	7.99E+08	3.63E+07	4.71E+08	2.61E+08	1.24E+08	1.26E+10	5.14E+09

In den Abbildungen 17-19 sind die radialen Abhängigkeiten der Spektrumsintegrale $\Phi_{n-total}$, $\Phi_{n-thermal}$, $\Phi_{n,E>1 MeV}$ und $\Phi_{\gamma,E>1 MeV}$ dargestellt.

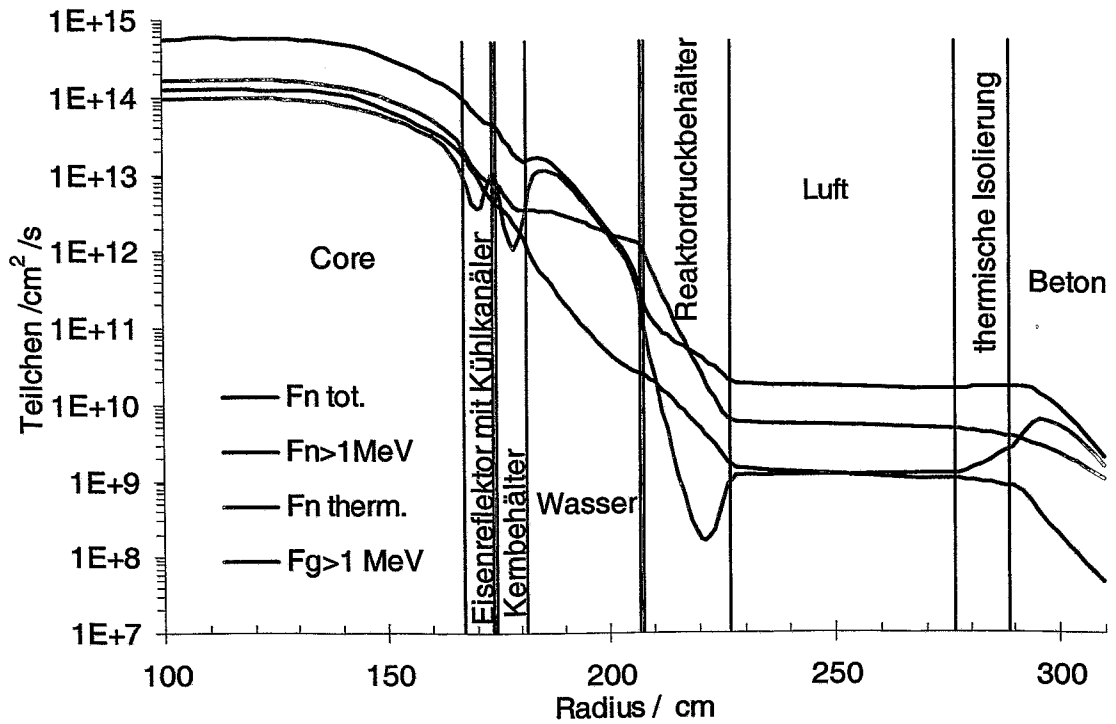


Abb. 17: Radiale Verläufe integraler Neutronen- und Gammaflüsse im WWER-1000

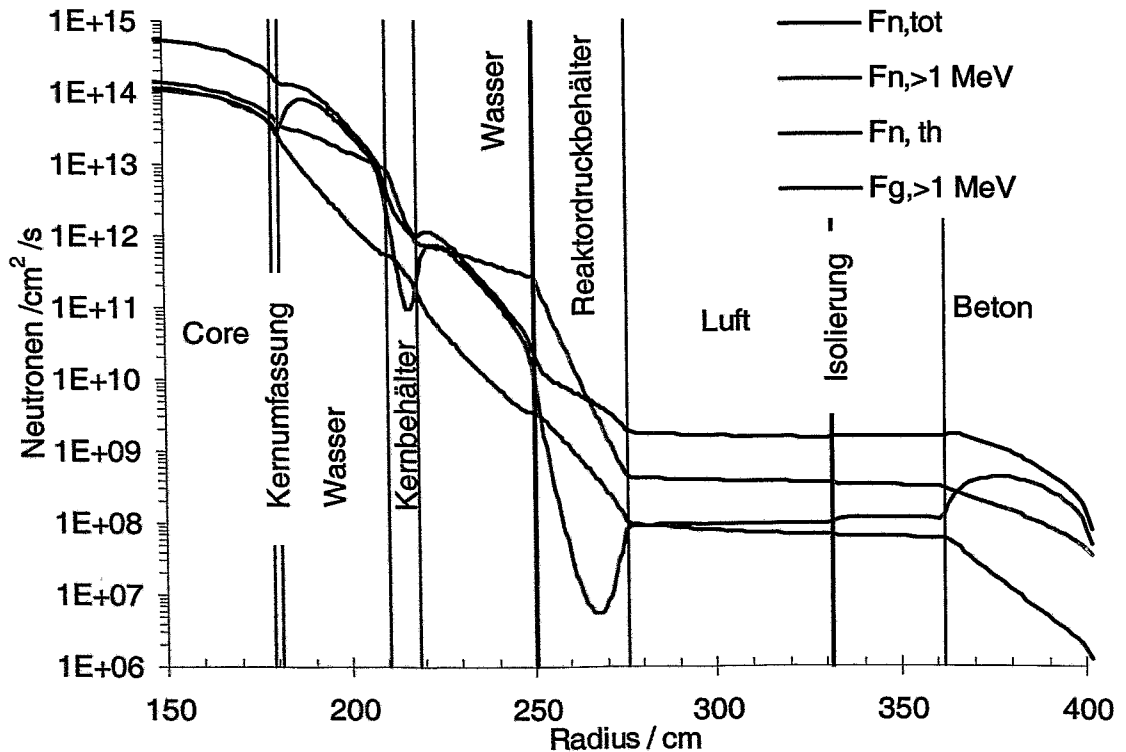


Abb. 18: Radiale Verläufe integraler Neutronen- und Gammaflüsse im DWR

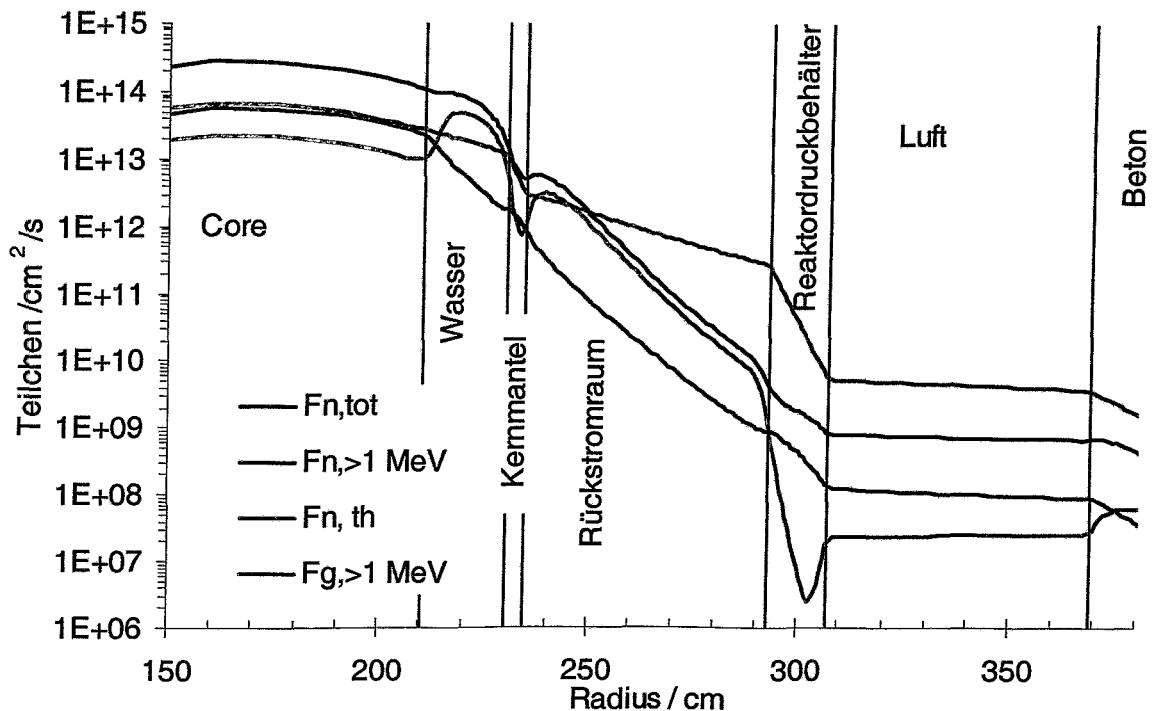


Abb. 19: Radiale Verläufe integraler Neutronen- und Gammaflüsse im SWR

Die radialen Abhängigkeiten zeigen deutlich den generellen radialen Abfall der Flüsse von innen nach außen, abgesehen von Aufbucklungen des thermischen Neutronenflusses in Kernnähe im Wasser, im Beton, sowie in der äußeren Schicht des RDB, die vom Wasserstoff des Betons beeinflusst wird. Starke Absenkungen des thermischen Flusses treten im Stahl des Kernbehälters und des RDB auf. Zu sehen ist auch, dass die hochenergetischen Gammaquanten im Wasser wesentlich geringer und im Stahl etwas stärker abgeschwächt werden als die schnellen Neutronen. Der lokale Einfang thermischer Neutronen trägt im RDB offenbar wenig zur Gammaproduktion bei, da deren radiale Abhängigkeiten im RDB völlig unterschiedlich sind.

2.6. Schädigungskenngrößen

Als generell nutzbare Schädigungskenngrößen, die sowohl für Neutronen als auch für Gammas Anwendung finden können, kommen nach dem heutigen Kenntnisstand in erster Linie die Verlagerungsraten pro Fe-Atom (DPA bzw. DPA/s) und die frei beweglichen Defekte pro Fe-Atom (FMD bzw. FMD/s) in Frage. Für die Berechnung der Neutronen-DPA-Raten wurden die von der ASTM empfohlenen DPA-Wirkungsquerschnitte (s. Abb. 2) mit den berechneten Neutronenspektren gefaltet. Die Gamma-DPA-Raten wurden mit Hilfe der berechneten Gammaspektren und der in Abb. 5 gezeigten vier Wirkungsquerschnittsätze, von Baumann et al., Alexander et al., Kwon et al. und mit dem im Vorhaben berechneten Datensatz, bestimmt. Durch Vergleich der mit den verschiedenen Wirkungsquerschnitten erhaltenen Ergebnisse können Rückschlüsse auf deren Genauigkeit gezogen werden.

Wie im Kapitel 1. erläutert, können die Gamma-FMD-Raten mit den Gamma-DPA-Raten gleichgesetzt werden. Für Neutronen wurde das Verhältnis von FMD-Raten zu DPA-Raten verwendet, wie es ebenfalls im Kapitel 1. bestimmt wurde. Thermische

Neutronen haben eine ähnliche hohe Effektivität zur Produktion von FMD wie Gammas. Ihre Wirkung beruht auf dem Rückstoß der bei ihrem Einfang entstehenden Gammastrahlung. Da dieser für Fe-Atome relativ gering ist, entstehen keine oder nur kleine Defektkaskaden mit entsprechend geringer Rekombinationswahrscheinlichkeit der Defektpaare. Unsere Berechnungen zeigten jedoch, dass in den vorliegenden Fällen dieser Effekt aufgrund der geringen thermischen Flüsse im Stahl vernachlässigt werden kann.

In Tabelle 6 sind die durch Neutronen- und Gammastrahlung verursachten DPA- und FMD-Raten für die einzelnen Reaktoren und wichtigsten Positionen gegenübergestellt. Als DPA-Wirkungsquerschnitte wurden hier die Daten von Kwon et al. eingesetzt, da sie zuletzt publiziert wurden.

Tab. 6: Neutronen und Gamma DPA- und FMD-Raten für verschiedene Reaktoren

Reactor	Position	DPA _n /s	DPA _γ /s	$\gamma/(n+\gamma)$ %	FMD _n	FMD _γ	$\gamma/(n+\gamma)$ %
WWER-440	In-Vessel	1.87E-10	2.63E-12	1.4	6.42E-12	2.63E-12	29.0
WWER-1000 Standard	In-Vessel	4.70E-11	1.72E-12	3.5	1.60E-12	1.72E-12	51.9
	¼ Tiefe	3.05E-11	4.01E-13	1.3	1.04E-12	4.01E-13	27.9
Ex-Vessel	Ex-Vessel	4.65E-12	1.06E-14	0.2	1.58E-13	1.06E-14	6.3
	In-Vessel	3.58E-11	1.32E-12	3.6	1.22E-12	1.32E-12	52.0
WWER-1000 Low-Leakage	¼ Tiefe	2.34E-11	3.09E-13	1.3	7.95E-13	3.09E-13	28.0
	Ex-Vessel	3.71E-12	8.44E-15	0.2	1.26E-13	8.44E-15	6.3
DWR	Surv.-Pos.	3.90E-11	4.62E-13	1.2	1.21E-12	4.62E-13	27.6
	In-Vessel	5.14E-12	3.26E-13	6.0	1.59E-13	3.26E-13	67.2
	¼ Tiefe	2.81E-12	4.90E-14	1.7	8.72E-14	4.90E-14	36.0
	Ex-Vessel	3.23E-13	5.60E-16	0.2	1.00E-14	5.60E-16	5.3
SWR	Surv.-Pos.	2.52E-12	2.95E-13	10.5	7.05E-14	2.95E-13	80.7
	In-Vessel	1.34E-12	2.37E-13	15.0	3.76E-14	2.37E-13	86.3
	¼ Tiefe	9.69E-13	8.96E-14	8.5	2.71E-14	8.96E-14	76.8
	Ex-Vessel	2.37E-13	6.12E-15	2.5	6.64E-15	6.12E-15	48.0

Der berechnete Anteil der Gamma-DPA-Rate an der Gesamt-DPA-Rate entlang des Radius im vertikalen und azimuthalen Maximum der Flüsse wird für drei Reaktoren in den Abbildungen 20-22 gezeigt.

Dabei wird folgendes deutlich:

- Der relative Gammaanteil an der gesamten DPA-Rate nimmt bei allen Reaktoren den höchsten Wert an der RDB-Innenwand an.
- Wegen des größeren Wasserspalts ist er bei den deutschen Reaktoren größer als bei den russischen Reaktoren.
- Der relative Gammaanteil ist maximal für den SWR, er beträgt dort etwa 15%.
- Unterschiedlich berechnete, mikroskopische DPA-Wirkungsquerschnitte weisen diesen Anteil bis zu 30% verschieden aus, siehe 3.1.2 und „Statusbericht zur Materialforschung“.

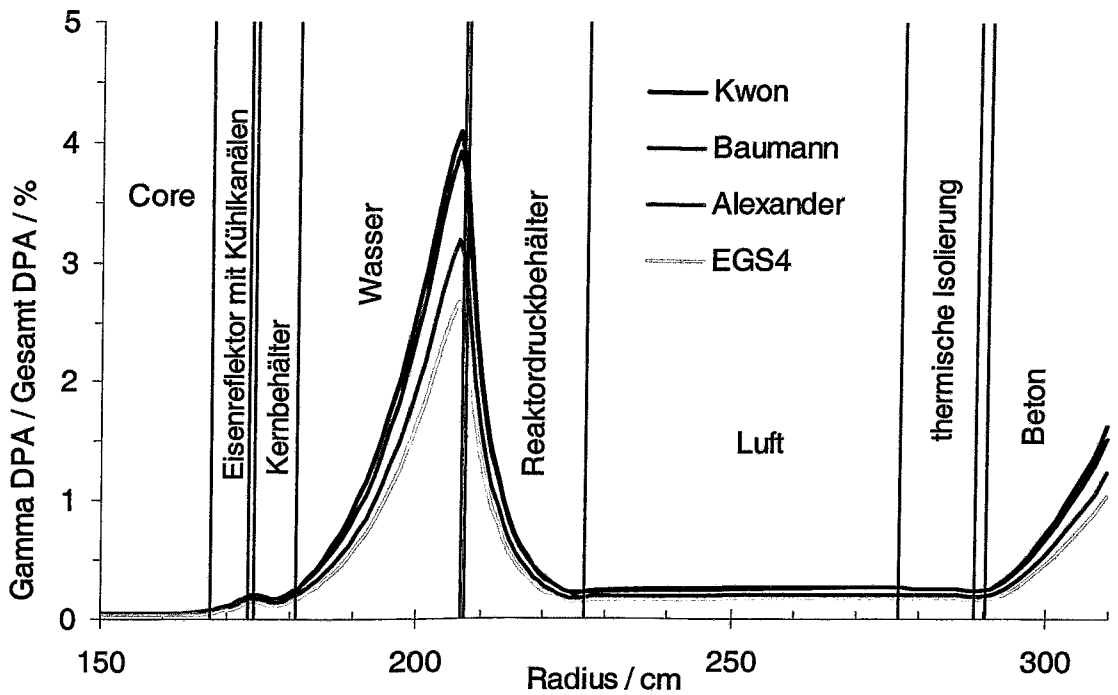


Abb. 20: Radiale Abhängigkeiten der Gammaanteile der DPA im WWER-1000 berechnet mit verschiedenen Gamma-DPA-Wirkungsquerschnitten

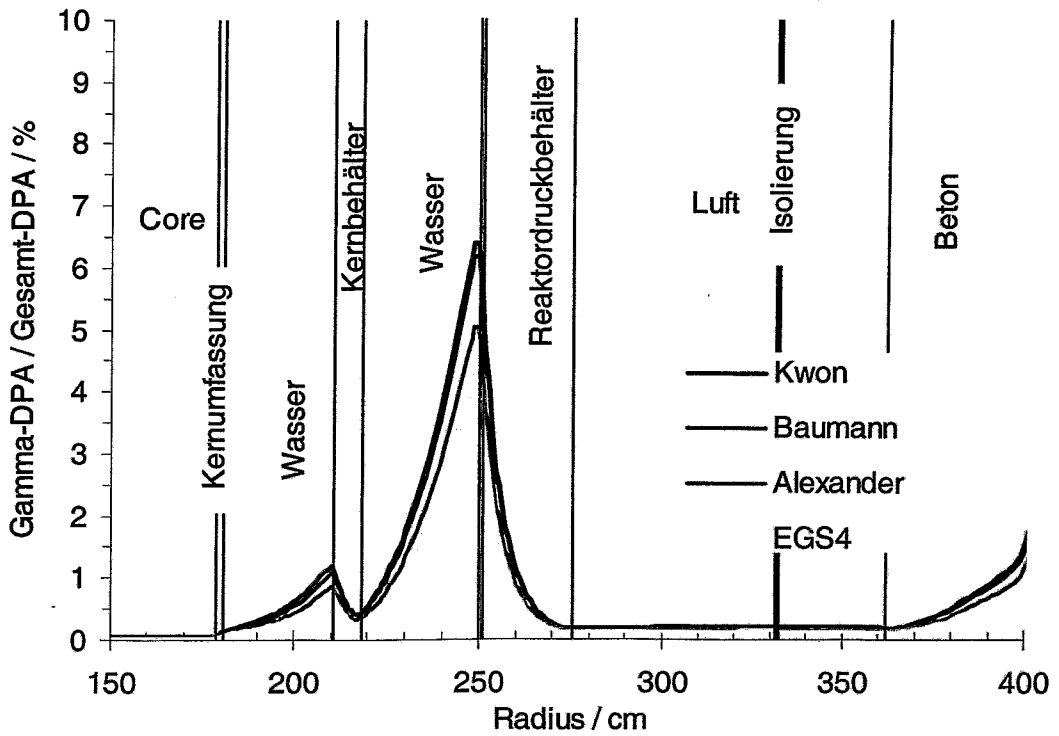


Abb. 21: Radiale Abhängigkeiten der Gammaanteile der DPA im DWR berechnet mit verschiedenen Gamma-DPA-Wirkungsquerschnitten

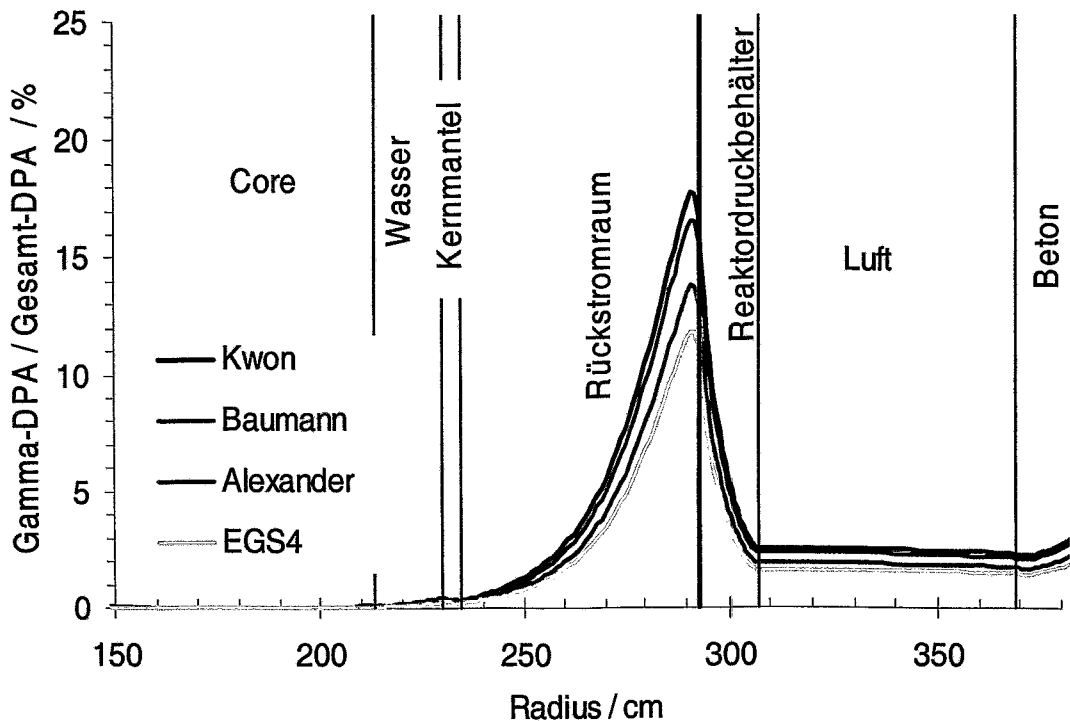


Abb. 22: Radiale Abhängigkeiten der Gammaanteile der DPA im SWR berechnet mit verschiedenen Gamma-DPA-Wirkungsquerschnitten

2.7. Anteil der Spaltgammas

In Tabelle 7 ist der Anteil der Spaltgammas am Gesamtgammafluss und an der Gesamt-Gamma-DPA-Rate für verschiedene Positionen im DWR angegeben. Diese Werte konnten nur mit Hilfe von MCNP bestimmt werden, welches eine Ausschaltung der Spaltgammas beim Neutronentransport zulässt. Es wurde zunächst eine Neutronen/Gamma-Rechnung mit ausgeschalteter Spaltgammaquelle durchgeführt, dann eine reine Gammarechnung mit der auf Basis von NJOY und ENDF/BVI bestimmten Gammaspaltquelle. Das Ergebnis dieser Rechnung wurde mit der Summe der Ergebnisse beider Rechnungen verglichen.

Tab. 7: Anteil der „Spaltgammas“ an Gammaflüssen und Gamma-DPA im DWR

Integralwert	Surv. Proben	In-Vessel	¼-Tiefe	Ex-Vessel
Gamma-DPA-Rate	12	5	5	6
Totaler Gammafluss	34	21	17	23
Gammafluss, $E_\gamma > 1 \text{ MeV}$	29	17	16	12

Ähnliche Rechnungen für den WWER-1000 ergaben wesentlich kleinere Anteile der Spaltgamma, für die totalen Gammaflüsse z.B. 4.3% an der RDB-Innenwand und 2.9% an der RDB-Außenwand. Ursache dessen sind die relativ dicken Stahlschichten in Form des Baffle und des Barrel beim WWER-1000.

3. Einfluss der Gammastrahlung auf die Ergebnisse von Neutronenflussmessungen mit Spaltdetektoren

Spaltdetektoren, die auf der Messung der Spaltproduktaktivität von Schwellwertspaltreaktionen, wie $^{237}\text{Np}(n,f)$ oder $^{238}\text{U}(n,f)$ beruhen, sind sehr gut geeignet den wichtigen unteren Teil des Energiebereich der schnellen Neutronen bei Fluenzmessungen im Umfeld des RDB abzudecken. Ihre Ansprechfunktionen korrelieren sehr gut mit dem DPA-Wirkungsquerschnitt. Auf Grund des physikalischen Effekts der Gamma-spaltung sprechen diese Detektoren aber auch auf Gammastrahlung an. Deshalb können Spaltdetektoren in den gemischten Neutronen-Gammafeldern in Reaktoren nur verwendet werden, wenn es möglich ist, die Beiträge der Gamma-spaltung abzutrennen. Im Falle sehr hoher Gammafluss/Neutronenfluss-Verhältnisse können Spaltdetektoren verwendet werden, um Informationen über beide Komponenten zu gewinnen. Voraussetzung ist in jedem Falle, dass die Beiträge beider Komponenten berechnet werden können. Deshalb wurden auf der Basis der mit S_N -Synthese bestimmten Spektren die Gamma- und Neutronenspaltraten für drei charakteristische Positionen für vier Reaktoren berechnet. In Tabelle 8 sind die Verhältnisse der Gamma-Spaltraten zu den Neutronen-Spaltraten dargestellt. Die Tabelle zeigt, dass in allen Fällen außer für die Außenwände von WWER-1000 und DWR Gammakorrekturen zu den Messwerten notwendig sind. Die höchsten Gammaanteile wurden für ^{238}U und für den SWR gefunden.

Tab. 8: Verhältnis der Gamma-Spaltrate zur Neutronen-Spaltrate für ^{237}Np und ^{238}U in %

Reactor	WWER-1000 Standard		WWER-1000 Low leakage		DWR		SWR	
	^{237}Np	^{238}U	^{237}Np	^{238}U	^{237}Np	^{238}U	^{237}Np	^{238}U
Surv. Pos.	-	-	-	-	3.25	8.22	22.09	34.05
Inner Wall	10.72	24.82	10.78	24.76	17.60	33.04	35.07	54.06
Outer Wall	0.67	3.98	0.67	4.00	0.50	3.62	6.17	19.01

4. Vergleich von Ergebnissen unterschiedlicher Berechnungsverfahren und Fehlerbetrachtungen

4.1. Vergleich von deterministischen und Monte-Carlo-Rechnungen für zwei Reaktoren

Der Monte-Carlo-Code MCNP4B bzw. MCNP4C mit punktwiser Darstellung der Energieabhängigkeit der auf ENDF/B-VI Rev.3 basierenden Kerndaten wurde eingesetzt, um an zwei Reaktoren die Ergebnisse der deterministischen Berechnungen zu überprüfen. In Tabelle 9 sind die Verhältnisse der mit beiden Verfahren erhaltenen Flussintegrale angegeben.

Tab. 9: Verhältnisse der Neutronen- und Gamma-Flussintegrale aus S_N -Synthese- und MCNP-Rechnungen für WWER-1000 und DWR

Reaktor	Position	$\Phi_{n-total}$	$\Phi_{n-therm}$	$\Phi_{n,E>.1MeV}$	$\Phi_{n,E>.5 MeV}$	$\Phi_{n,E>1MeV}$	$\Phi_{\gamma,total}$	$\Phi_{\gamma, E>1MeV}$
WWER-1000	In-Vessel	0.94	1.44	1.13	1.18	1.21	0.85	0.85
	¼ Tiefe	1.24	2.64	1.24	1.25	1.25	0.86	0.92
	Ex-Vessel	2.03		1.37	1.30	1.28	1.08	1.03
DWR	Surv. Pos.	0.76	0.74	0.79	0.80	0.81	0.95	0.93
	In-Vessel	0.87	0.77	0.91	0.92	0.94	1.23	1.10
	¼ Tiefe	0.90	0.25	0.92	0.88	0.84	0.77	0.80
	Ex-Vessel	0.71	0.39	0.75	0.78	0.81	0.50	0.65

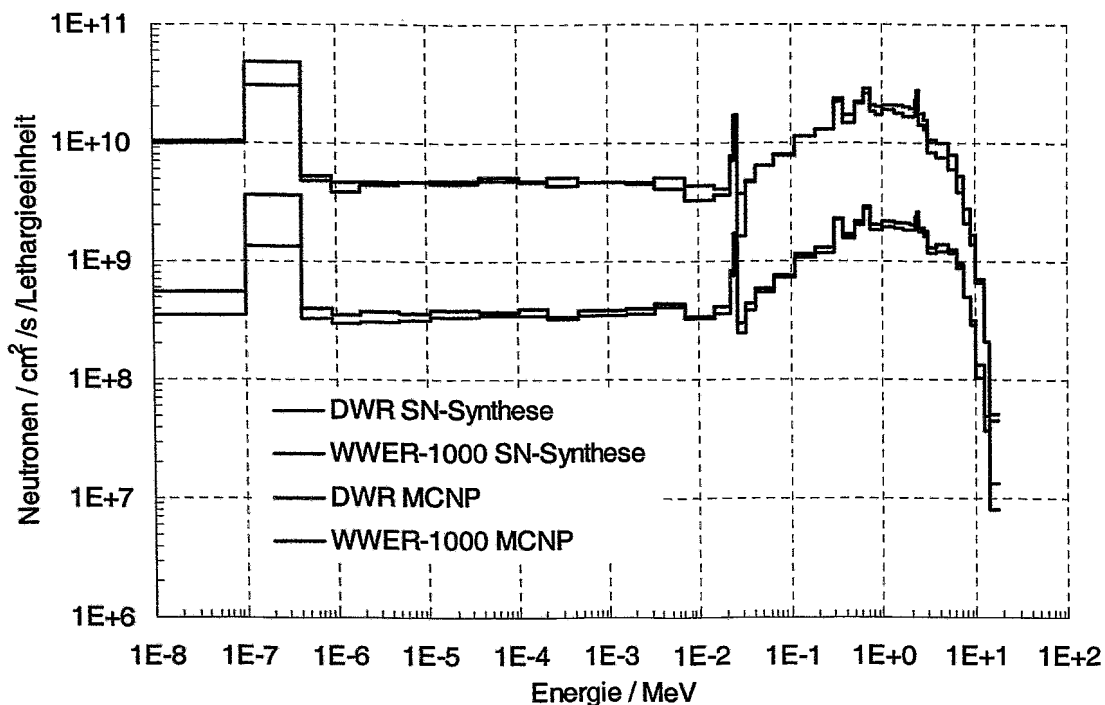


Abb. 23: Neutronenflussspektren an den RDB-Innenwänden von WWER-1000 und DWR

Abbildung 23 zeigt beispielhaft die mit beiden Verfahren berechneten Neutronenflusssspektren an den Innenwänden der beiden Reaktoren. In Abbildung 24 sind die entsprechenden Gammaflusssspektren dargestellt.

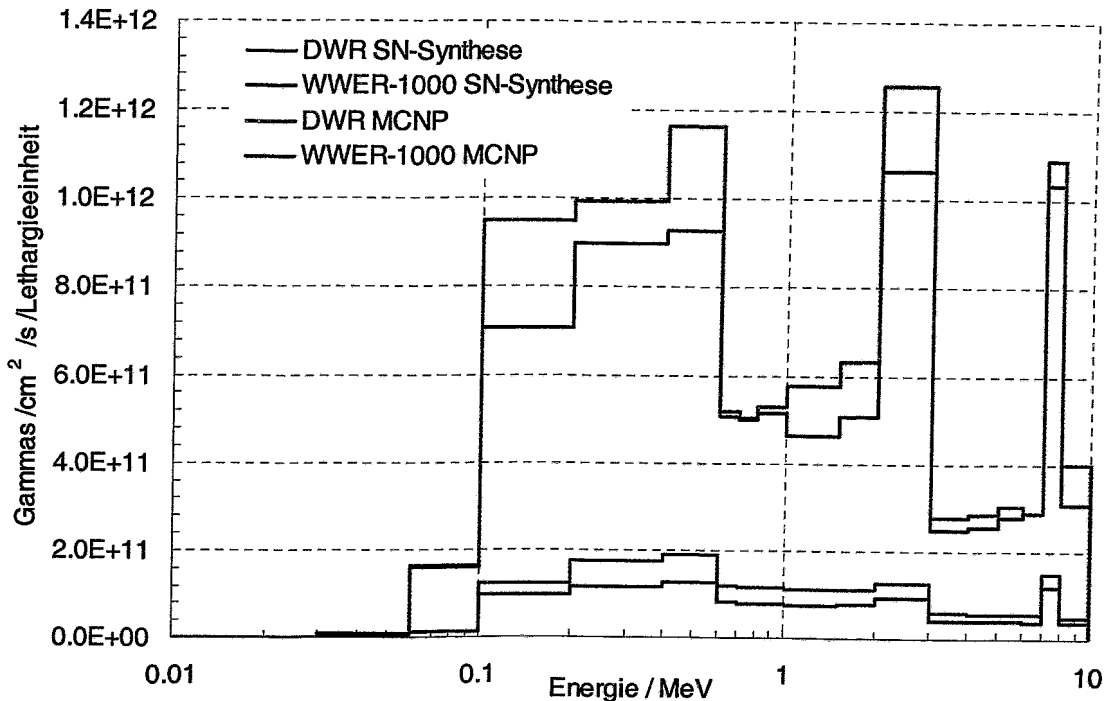


Abb. 24: Gammaflusssspektren an den RDB-Innenwänden von WWER-1000 und DWR

Die folgenden Schlussfolgerungen können gezogen werden:

- Die MCNP-Ergebnisse für den RDB differieren von den deterministischen Rechnungen im Mittel um 20%, sowohl für schnelle Neutronen als auch für Gammas.
- Für thermische Neutronen sind die Diskrepanzen wesentlich größer und erreichen in einem Fall den Faktor 4. Insbesondere die Diskrepanzen für die Außenwand von Balakovo-3 erfordern noch weitere Untersuchungen.

4.2. Vergleichsrechnungen für ein einfaches Testmodell

Die insgesamt relativ großen Diskrepanzen zwischen MCNP- und S_N -Synthese-Ergebnissen erforderten eine Überprüfung der Ursachen. Da die unterschiedlichen Darstellungsweisen oder Fehler der Kerndaten als wahrscheinlichste Ursachen der Diskrepanzen anzunehmen waren, erschien es zweckmäßig, die Unterschiede an einem eindimensionalen zylindrischen 2-Zonenmodell zu untersuchen. Es ist in Abbildung 25 dargestellt. Die innere Zone des Testmodells hatte eine typische Zusammensetzung eines Reaktorkerns, die äußere bestand in vier verschiedenen Modellvarianten aus jeweils einem der wichtigsten Materialien des Bereichs außerhalb des Reaktorkerns: H_2O , Fe, Cr, Ni. Damit sollte versucht werden, Mängel in den Datenfiles und Näherungsmethoden für die einzelnen Materialien aufzufinden. Die Neutronenquelle wurde zu 1 Neutron pro cm Kernhöhe und als räumlich konstant angenommen. Das Spaltspektrum wurde vorgegeben.

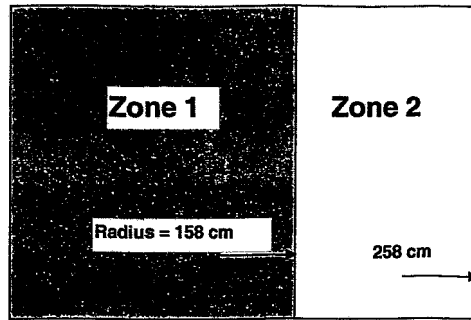


Abb. 25: Abmaße des zylindrischen Testmodells

Die für verschiedene radiale Punkte im Reaktorkern und äußerer Zone verglichenen Funktionale waren:

- Neutronen-Flussintegrale für $E_n < 0.414$ eV, $E_n > 0$ MeV, $E_n > 0.1$ MeV, $E_n > 0.5$ MeV und $E_n > 3$ MeV,
- Gamma-Flussintegrale für $E_\gamma > 0$ MeV, $E_\gamma > 1$ MeV und $E_\gamma > 3$ MeV.

Die Dicke der äußeren Zone von 1 m macht die erhaltenen Ergebnisse auch für Abschirmrechnungen interessant. Das Modell wurde auf dem WGRD VVER Meeting in April 2001 in Rez für internationale Vergleichsrechnungen vorgeschlagen, an denen sich dann auch russische Wissenschaftler beteiligten. Ziel war es, insbesondere die Konsistenz der Ergebnisse für Gammaflüsse und niederenergetische Neutronen zu untersuchen. Verglichen wurden drei deterministische Codes auf der Basis der Methode der diskreten Ordinaten und die Monte-Carlo-Codes MCNP4C und TRAMO. Tabelle 10 beschreibt die verwendeten Kombinationen von Codes und Datenbibliotheken. Die Abbildungen 26 und 27 zeigen als Beispiele einige der berechneten Funktionale in Abhängigkeit vom Radius für die zwei wichtigsten Modellvarianten mit H_2O bzw. Fe in der äußeren Zone. Die Darstellung aller Funktionale in jeweils einer Abbildung ist möglich, da sich die Kurven in den hauptsächlich interessierenden äußeren Zonen nach Funktionalen gruppieren.

Tab. 10: Am Test beteiligte Codes und Datenbibliotheken

Kerndatenbibliothek	Code	Beschreibung
ENDF/B-6 (Rev.3)	MCNP4C	Monte-Carlo, continuous energy data
ENDF/B-6 (Rev.1)	TRAMO [23]	Monte-Carlo, 640n + 94γ group data
ABBN-93 (Ver.99.01a) [24]	MCNP4C	Monte-Carlo, 299n + 15γ group data
	DORT	299n + 15γ group data
BUGLE-96T	ROZ-6 [25]	47n + 20γ group data
	DORT	47n + 20γ group data
	ANISN	47n + 20γ group data
VITAMIN-B6	ROZ-6	199n + 42γ group data
	DORT	199n + 42γ group data

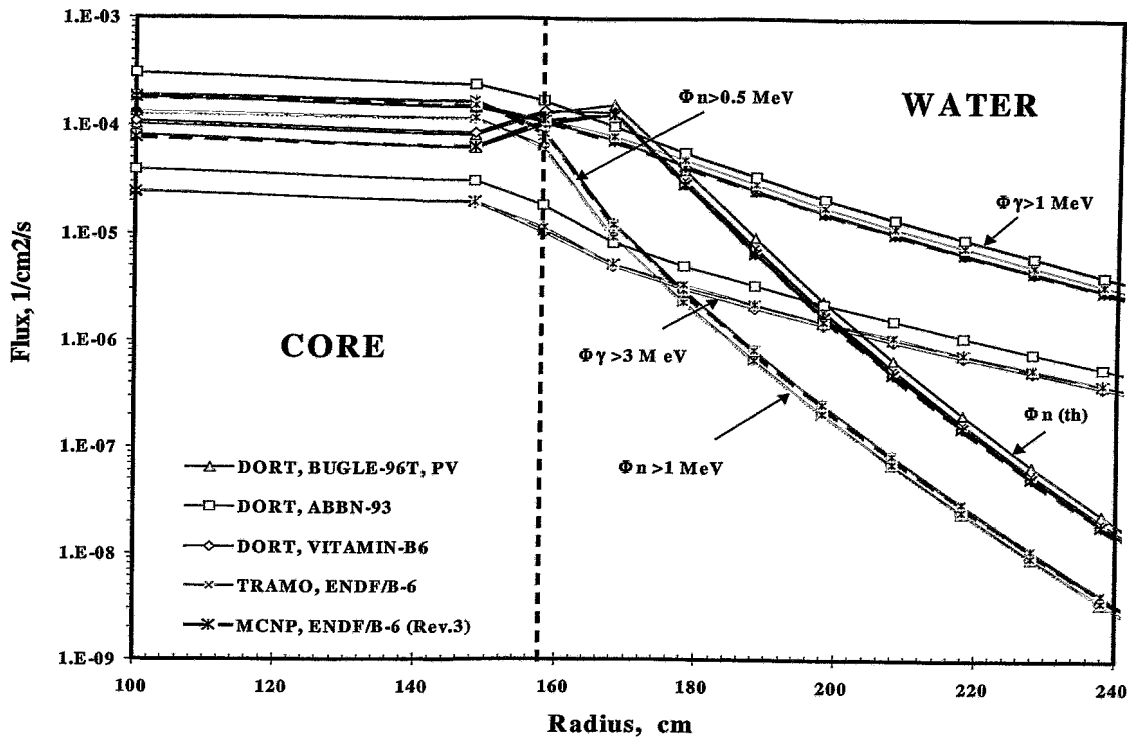


Abb. 26: Neutronen- und Gammaflüsse für Modell mit äußerer H₂O-Zone bei der Temperatur T=300°K

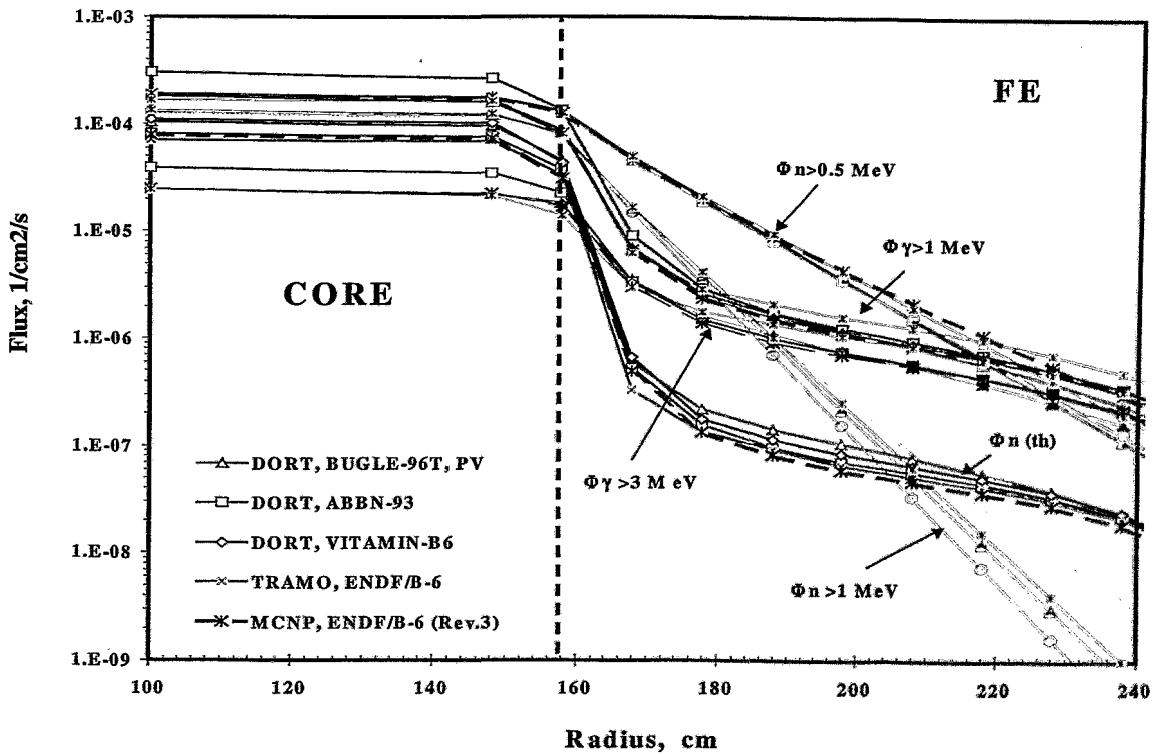


Abb. 27: Neutronen- und Gammaflüsse für Modell mit äußerer Fe-Zone bei der Temperatur T=300°K

In den Abbildungen 1 – 3 des Anhangs sind die Verhältnisse der mit verschiedenen Codes und Daten erhaltenen Ergebnisse zu den entsprechenden MCNP-Ergebnissen für alle vier betrachteten Modellvarianten dargestellt. Die MCNP/ENDF/B-VI-Ergebnisse dienen als Basisdaten, da sie auf der genauesten Behandlung der eingeschätzten Kerndaten beruhen und keine Gruppennäherung verwendet wird.

Die durchgeführten Vergleiche geben einen Eindruck von der Konsistenz unabhängiger Berechnungen eines einfachen Modells mit Codes und Daten, die heute für RDB-Fluenzberechnungen eingesetzt werden. Für schnelle Neutronen und für RDB-Berechnungen typische Dicken unter 20-25 cm stimmten die Ergebnisse abgesehen von der auf einer völlig anderen Datenbasis beruhenden russischen ABBN-93-Bibliothek innerhalb von 10% bei den H₂O- und Fe-Modellen, innerhalb von 15% beim Cr-Modell und innerhalb von 35% beim Ni-Modell überein. Für niederenergetische Neutronen sowie für größere Dicken sind die Diskrepanzen für alle Modellvarianten außer dem H₂O-Modell wesentlich größer und erreichen teilweise Faktoren von mehr als 2. Die gefundenen Diskrepanzen der Gammaflüsse sind im allgemeinen nicht wesentlich größer als die der Neutronenflüsse und geringer als die der thermischen Neutronenflüsse. Das kann durch Kompensation von Diskrepanzen der Gammaproduktion in verschiedenen Neutronenenergie- und Ortsbereichen erklärt werden.

Nach einer sorgfältigen Analyse der Ergebnisse kann das beschriebene Testmodell als Rechenbenchmark zum Testen von Codes und Datenbibliotheken Anwendung finden.

4.3. Fehlerbetrachtungen

Die Genauigkeit der DPA-Berechnungen im RDB- und Surveillance-Bereich hängt wesentlich von der Genauigkeit der Neutronen- und Gammaflussberechnungen sowie von der Genauigkeit der DPA-Wirkungsquerschnitte ab. Die durchgeführten Vergleiche weisen auf mögliche Ungenauigkeiten der mit Standardmethoden bestimmten schnellen Neutronen- und Gammaflüsse oberhalb von 1 MeV von etwa 30% hin. Der Vergleich der mit verschiedenen DPA-Querschnitten erhaltenen Gamma-DPA-Werte zeigt ebenfalls Abweichungen von bis zu 30%. Die Differenzen der thermischen Flüsse sind wesentlich größer, sie beeinflussen aber den Gammafluss wegen dessen komplexen Entstehungsmechanismus jedoch schwächer als erwartet.

Aus den Vergleichen ergeben sich mögliche Gesamtfehler der mit Standardmethoden bestimmten Gamma-DPA-Raten und der Verhältnisse von Gamma-DPA zu Gesamt-DPA von etwa 50%. Die tatsächlichen Fehler der Ergebnisse können jedoch auch wesentlich größer sein als es die Differenzen der Vergleichsrechnungen anzeigen, da alle verwendeten Datensätze weitgehend auf den gleichen Grunddaten beruhen und da nicht alle möglichen Fehlerquellen berücksichtigt wurden. Eine exakte Fehleranalyse auf der Basis von allerdings sehr aufwendigen Sensitivitätsberechnungen wird gegenwärtig vor allem durch unzureichende Informationen über die benötigten Fehler der Eingangsdaten behindert. Aus diesen Gründen sind neue Dateneinschätzungen sowie Experimente zur Überprüfung der Gammafeldberechnungen in gemischten Neutronen-Gamma-Feldern erforderlich. Zuverlässige Experimente im Spaltenergiebereich, an denen berechnete Gammapektren verifiziert werden könnten, fehlen zurzeit noch.

5. Schlussfolgerungen aus den Rechenergebnissen

Aus den Rechenergebnissen lassen sich die folgenden Schlussfolgerungen ziehen.

Hinsichtlich der Materialproblematik (auf DPA-Basis):

- *Wie die neutronen-induzierte DPA-Rate nimmt auch die gamma-induzierte DPA-Rate über den RDB von innen nach außen ab, allerdings schwächer. Bei DWR und SWR haben beide DPA-Raten ihre größten Werte an den Positionen der Überwachungsproben.*
- *Die relativen Anteile der Gammastrahlung an den totalen DPA-Raten im Maximum an der RDB-Innenwand sind:
WWER-440: 1.5%, WWER-1000: 3.5%, DWR: 6%, SWR: 15%.
Innerhalb der RDB nimmt dieser Anteil schnell ab.*
- *An den Positionen der Überwachungsproben bei DWR und SWR sind diese Anteile nur 1.2% bzw. 11%.*
- *Die im Vorhaben nicht berücksichtigte Komponente der Spaltproduktgammastrahlung bringt nur geringfügige Korrekturen der angegebenen Werte. Der relative Anteil der Spaltgammastrahlung an der gesamten Gamma-DPA ist nur etwa 4% beim WWER-1000 (Standard) und etwa 5% beim DWR, d. h. den wesentlichen Beitrag erbringen die sekundären Gammas. Wegen des weicheren Energiespektrums (s. Abb. 7) wird der vernachlässigte Beitrag noch deutlich niedriger sein.*

Hinsichtlich reaktordosimetrischer Mess- und Berechnungsmethoden:

- *Für die Berechnungen der Neutronen- und Gammaflüsse wurden die zwei Programm- und Datenpakete angewandt, die weltweit am häufigsten verwendet werden und als „Standard“ angesehen werden. Die Geometrie und die Quellverteilungen wurden bei beiden Berechnungen besonders detailgetreu nachgebildet. Dennoch ergaben sich für die zwei berechneten Reaktoren WWER-1000 (Standard) und DWR zum Teil erhebliche Unterschiede:*
 - *Für die schnellen Neutronenflüsse – bis zu 40 %.*
 - *Für den thermischen Neutronenfluss – bis zu einem Faktor 2.5 und mehr.*
 - *Für die Gammaflüsse - bis zu 50%.*
- *Diese großen Differenzen treten auch an den „Ex-Vessel“-Positionen auf. Diese Positionen sind deshalb von Bedeutung, weil dort gelegentlich Aktivierungsmessungen vorgenommen werden, an Hand derer die Berechnungen überprüft werden.*
- *Die großen Differenzen in den Flussberechnungen führen zu Abweichungen in den DPA-Raten bis zu 50%. In den Positionen „In-Vessel“ und „¼-Tiefe“ betragen sie bis zu 30%. Die Ergebnisse des relativen Anteils der Gamma-DPA unterscheiden sich bis zu 30%.*
- *Für Neutronenflussmessungen werden auch Spaltmaterialien verwendet. Der durch Gammastrahlung ausgelöste Anteil der Spaltungen muss bei der Auswertung berücksichtigt werden. Er wächst mit höherem Anteil der Gammastrahlung. Beim SWR ergibt er sich an der „Ex-Vessel“-Position zu ~20%. Ein quantitativ fester Zusammenhang mit dem relativen Anteil der Gammastrahlung an der Gesamt-DPA-Rate kann nicht festgestellt werden.*

6. Allgemeine Schlussfolgerungen

Aus den im Vorhaben erzielten Ergebnisse sind die folgenden allgemeinen Schlussfolgerungen zu ziehen.

1. Experimentelle Befunde belegen, dass die Neutronenversprödung gut mit der DPA-Zahl als Kenngröße charakterisiert werden kann. Ein Übergang zu einer auf FMD basierenden Kenngröße würde eine ganz ähnliche Korrelation ergeben, da beide Größen monoton miteinander zusammenhängen.
2. Experimentelle Ergebnisse belegen auch, dass im Bereich niedriger Temperaturen (50-60°C) die Versprödungen sowohl durch Neutronen- als auch durch Gammastrahlung mit der DPA-Zahl als gemeinsame Kenngröße in der richtigen Relation zueinander beschrieben werden. Entsprechende Untersuchungen für den für Leistungsreaktoren relevanten Temperaturbereich von 250-300°C sind angekündigt worden, die Ergebnisse stehen noch aus.
3. Sollte sich der Extremfall herausstellen, dass sich das Verhältnis beider Strahlenschädigungen mit einer auf FMD basierten Kenngröße richtig beschreiben lässt, dann hätte das die Konsequenz, dass die Gammastrahlung mit einem Faktor ≈ 30 (entspricht $\langle N_{NRT} \rangle / \langle N_{FMD} \rangle$ in Tabelle 4 im Abschnitt 1.4) stärker bewertet werden müsste und sich dadurch eine „Beschleunigung“ der RDB-Versprödung ergeben würde. Die angegebenen DPA-Raten müssten dann durch die FMD-Raten ersetzt werden. Tabelle 11 gibt die relativen Anteile der Gammastrahlung an den totalen FMD-Raten in den Maxima an den RDB-Innenwänden und die „Beschleunigungsfaktoren“ $(DPA_n + DPA_\gamma \times 30) / DPA_n$, die sich im Vergleich zur DPA als Kenngröße ergeben würden.

Tab. 11: Auf FMD basierende RDB-Versprödungen (s. Text)

	WWER-440	WWER-1000	DWR	SWR
γ -Anteil, %	42	52	66	84
Beschleunigungsfaktor	1.4	2.1	2.9	6.3

4. Allerdings scheint es auch Anzeichen für einen Ausheilungseffekt durch Gammastrahlung zu geben. Zurzeit gibt es kein Modell für einen solchen Mechanismus.
5. Es ist Aufgabe der Materialforschung, diese bestehenden Unklarheiten mit dem Einfluss der Gammastrahlung auf die Versprödung von RDB-Stählen aufzuklären. Vor allem fehlen experimentelle Untersuchungsergebnisse von entsprechend bestrahlten Materialproben. Gezielte Untersuchungen von RDB-Materialproben der stillgelegten Reaktoren WWER-440 des ehemaligen Kernkraftwerks Greifswald könnten zur Aufklärung beitragen.
6. Der Einsatz von zwei Programm- und Datenpaketen, die beide den internationalen Entwicklungsstand darstellen, zur Berechnung von Neutronen- und Gammaflüssen in den RDB und in deren Umgebung hat große Differenzen ergeben, obwohl die Rechenmodelle so ähnlich wie möglich gehalten wurden und für beide praktisch dieselbe Kerndatengrundlage, nämlich die Bibliothek ENDF/B-VI, verwendet wurde.
7. Laut Literatur und eigenen Erfahrungen bei Neutronenflussberechnungen ergeben sich noch größere Abweichungen, wenn mit verschiedenen Datensätzen gerechnet wird. Das gilt insbesondere für Gammaflussberechnungen, da die Gammaproduktionsquerschnitte als sehr unsicher eingeschätzt werden.

8. *Diese Aussagen werden bestätigt durch Vergleiche von Testrechnungen mit unterschiedlichen Daten und Codes für ein einfaches Testmodell, bei welchem die erhaltenen beträchtlichen Differenzen nur auf die Daten zurückgeführt werden können.*
9. *Um Fortschritte bei den Berechnungsmethoden und Kerndatensätzen für die Reaktordosimetrie zu erzielen, bedarf es in erster Linie Neutronen/Gamma-Benchmarkexperimente in möglichst einfacher, gut rechenbarer Struktur. Solche Experimente waren im ersten Projektantrag (1997) vorgeschlagen worden.*

7. Literaturverzeichnis

- [1] R. D. Cheverton et. Al.,
Evaluation of HFIR Pressure-Vessel Integrity Considering Radiation Embrittlement, ORNL/TM-10444, 1988
- [2] K. Farrell, S. T. Mahmood, R. E. Stoller, L. K. Mansur
Journal of Nuclear Materials, 210(1994) pp. 268-281
- [3] I. Remec, J.A. Wang, F.B.K. Kam, K. Farrell
Effects of Gamma-Induced Displacements on HFIR Pressure Vessel Materials, Journal of Nuclear Materials, 217(1994) pp. 258-268
- [4] R. Gold, B. J. Kaiser, J. P. McNeece
Gamma-ray Spectrometry in Light Water Reactor Environments, Radiation Metrology Techniques, Data Bases and Standardization, Gaithersberg, Maryland, 1982
- [5] R. Gold
A challenge to the international reactor dosimetry community: Quantify gamma ray spectra, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [6] D.E. Alexander and L.E. Rehn
The Contribution of High Energy Gamma Rays to Displacement Damage in LWR Pressure Vessels, J. Nucl. Mater. 209, (1994) 212-214
- [7] D.E. Alexander and L.E. Rehn
Gamma-Ray Displacement Damage in the Pressure Vessel of the Advanced Boiling Water Reactor, J. Nucl. Mater. 217, (1994) 213-216
- [8] D.E. Alexander and L.E. Rehn
The Role of Gamma Rays and Freely-Migrating Defects in Reactor Pressure Vessel Embrittlement, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [9] L. E. Rehn, R.C. Birtcher
Experimental Studies of Free Defect Generation During Irradiation-Implications for Reactor Environments, J. Nucl. Mater. 205, (1993) 31-39
- [10] B. Petrovic et al.
Contribution of Gamma Irradiation to Material Damage at BWR Core Shroud and Pressure Vessel, Proc. 1998 ANS Radiation Protection and Shielding Division Topical Conference Technologies for the New Century, April 19-23, 1998, Nashville, Tennessee, USA, Vol. 2, p. 25-32
- [11] Report on Computing Radiation Dose to Reactor Pressure Vessel and Internals, State-of-the-Art, NEA/NSC/DOC (96) 5, October 1996
- [12] R. P. Rulko, I. Kodeli, E. Sartori

- Review of the Status of Reactor Vessel Embrittlement Prediction, 9th International Symposium on Reactor Dosimetry, Prague, Sept. 1996
- [13] D. Kent Parsons
ANISN/PC Manual, EGG-2500 (December 1988)
 - [14] DOORS3.2: One-, Two- and Three-Dimensional Discrete Ordinates Neutron/Photon Transport Code System, RSIC CODE PACKAGE CCC-650
 - [15] J.E. White et al.
BUGLE-96: A Revised Multi-group Cross Section Library for LWR Applications Based on ENDF/B-VI Release 3 (presented at the American Nuclear Society Radiation Protection & Shielding Topical Meeting, April 21-25, 1996, Falmouth, MA) (April 1996)
 - [16] J. F. Briesmeister
MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code (Version 4A), Manual, LA-12625-M, 1993
 - [17] P.F. Rose, C.L. Dunford
Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File, ENDF-6, Brookhaven National Laboratory report BNL-NCS-44945 (July 1990)
 - [18] R. E. MacFarlane, D. W. Muir
The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 91, Los Alamos National Laboratory report LA-12740-M (Oct 1994)
 - [19] J.E. White, et al., Proc. Intern. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, ORNL, 1995, p.733-736.
 - [20] A. G. Croff
ORIGEN-2- A revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-5621, Oak Ridge National Laboratory (1980)
 - [21] L.R. Greenwood and R.K. Smither
SPECTER: Neutron Damage Calculations for Materials Irradiations ANL/FPP/TM-197 (January 1985)
 - [22] SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation; NUREG/CR-0200, Rev. 6 (ORNL/NUREG/CSD-2/R6), Vols. I, II and III (December 1999)
 - [23] H.-U. Barz, J. Konheiser, *FZR-245* (FZ Rossendorf, 1998).
 - [24] G.N. Manturov, M.N. Nikolaev and A.M. Tsiboulia, in *INDC(CCP)-409/L* (IAEA, Vienna, 1997), p.65-110.
 - [25] A.V. Averin, A.M. Voloschenko, et al., in *Advances in Mathematics, Computations and Reactor Physics., Proc. Of the Intern. Top. Meeting*, (Pittsburgh, 1991), 5, p.30.3 5-1.

Anhang

Vergleiche von Rechenergebnissen für ein einfaches Testmodell

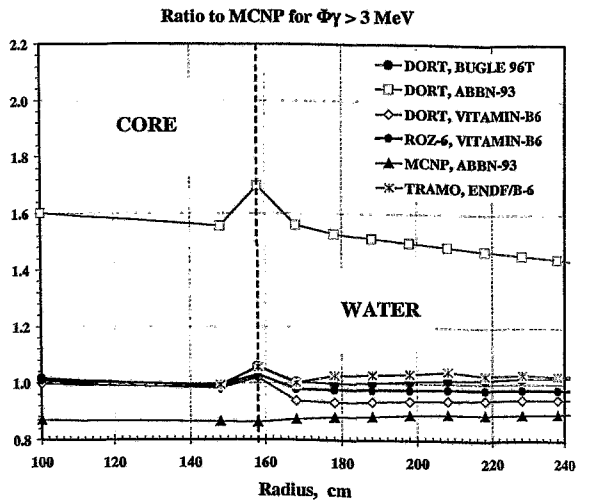
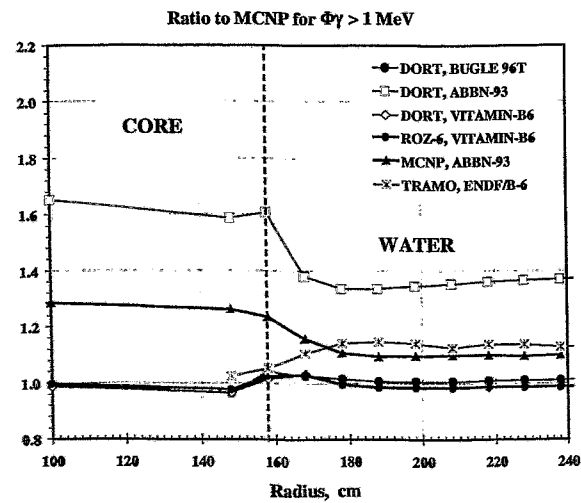
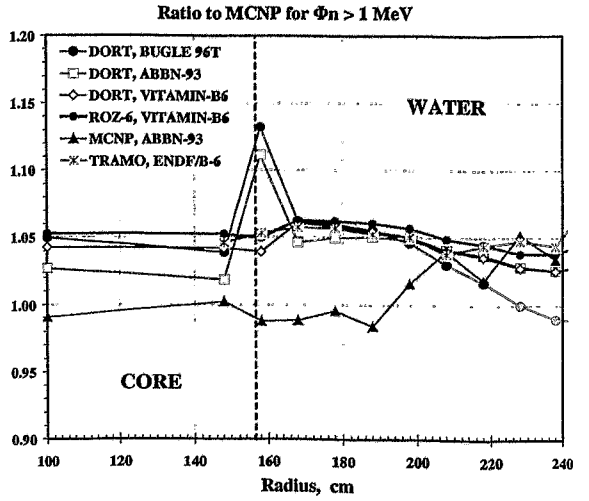
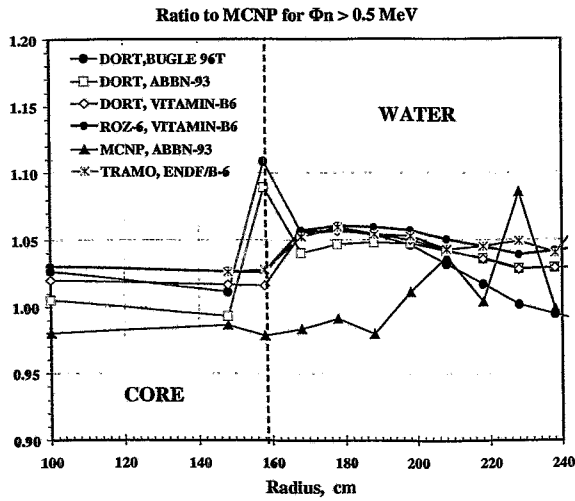
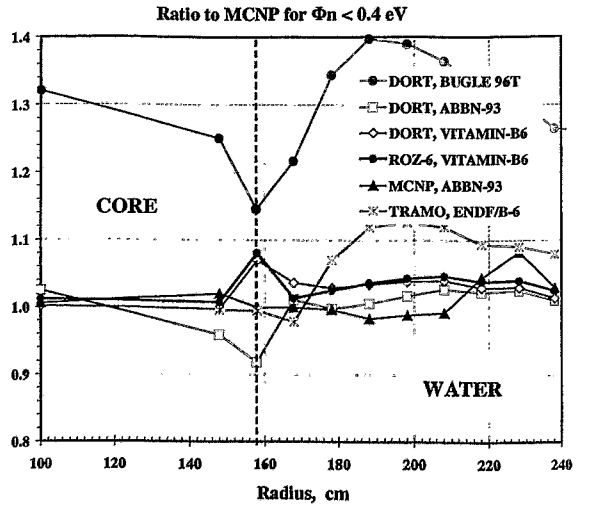
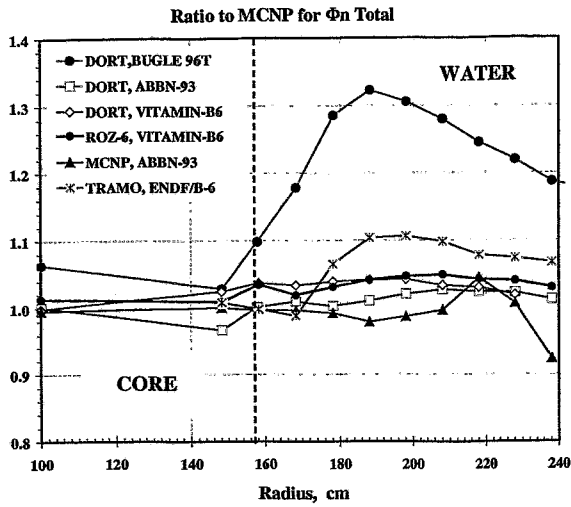


Abb. 1: Neutronen- und Gammaflüsse relativ zu MCNP-Ergebnissen für das Modell mit H₂O-Zone

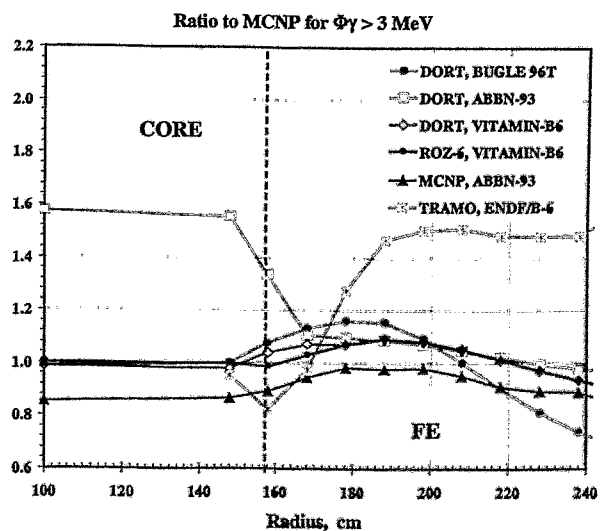
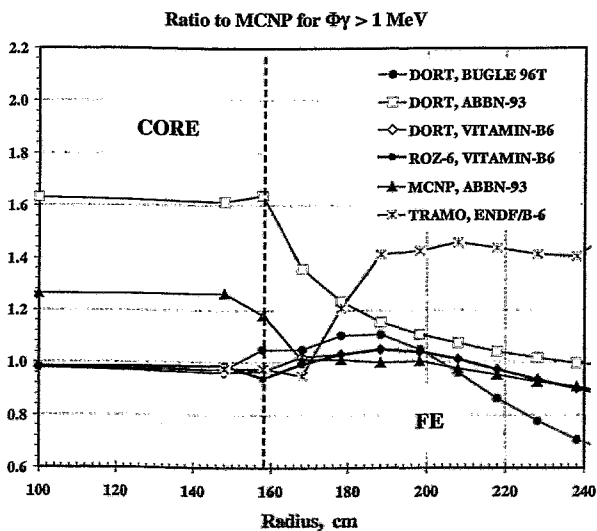
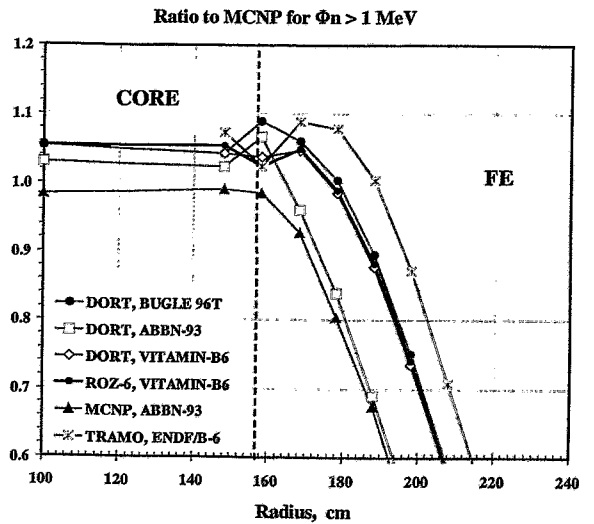
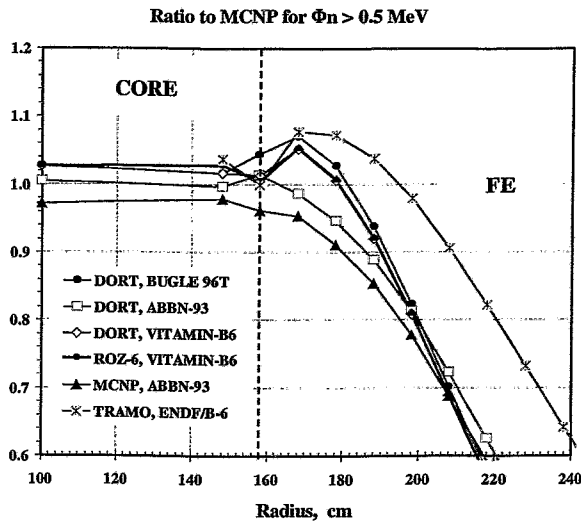
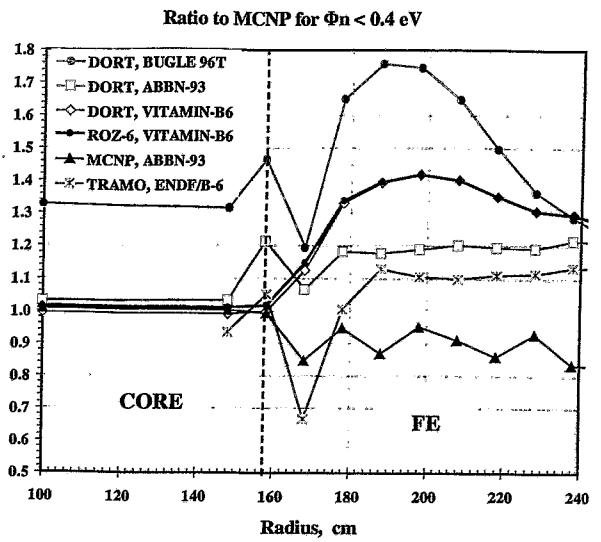
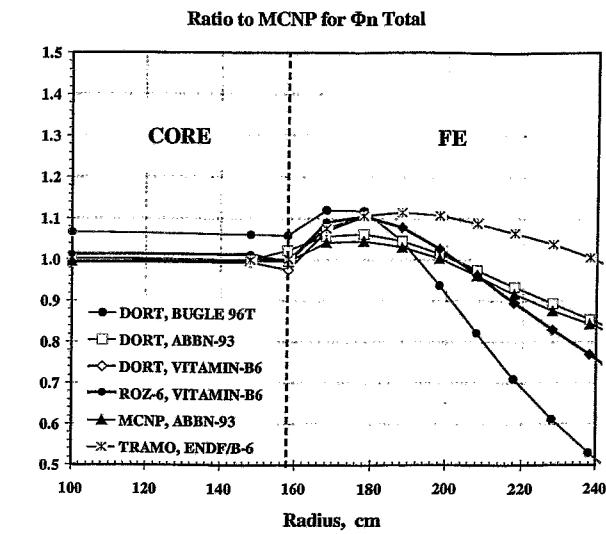


Abb. 2: Neutronen- und Gammaflüsse relativ zu MCNP-Ergebnissen für Modell mit Fe-Zone

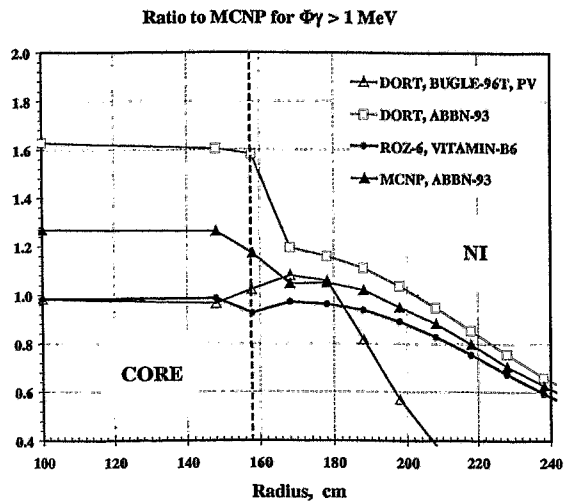
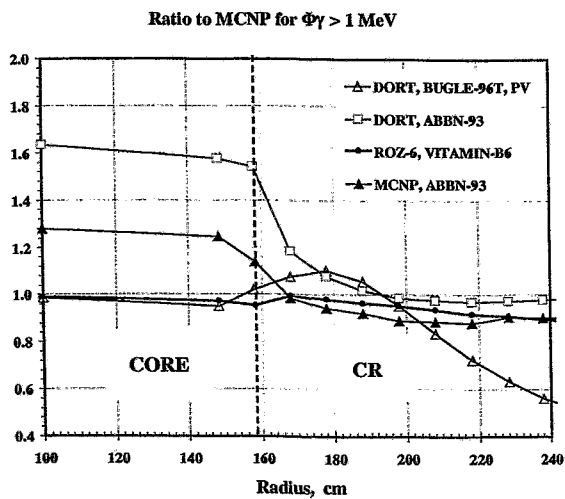
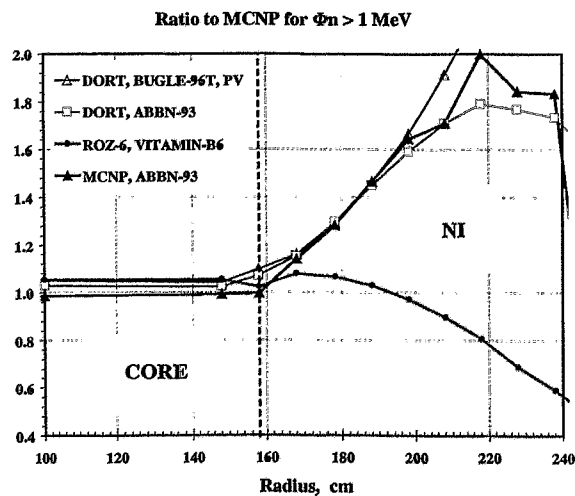
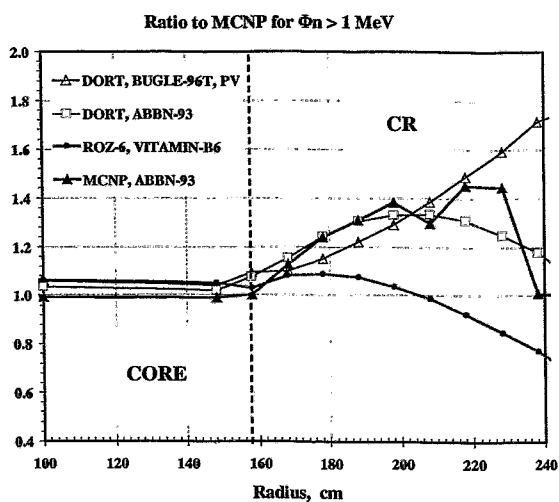
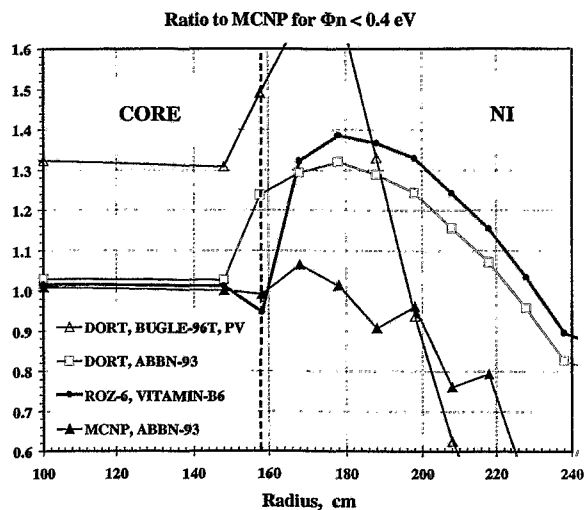
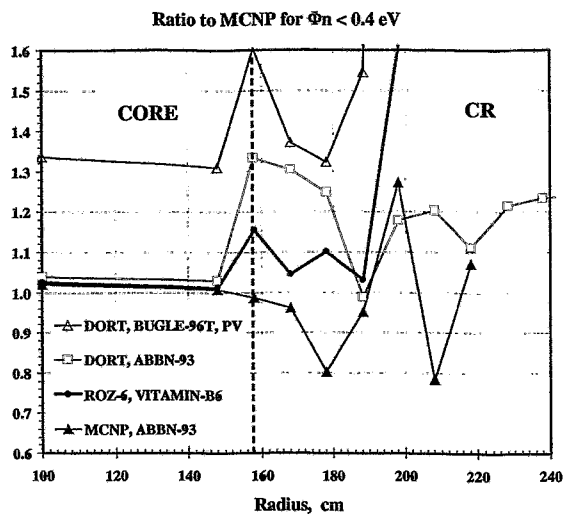


Abb. 3: Neutronen- und Gammaflüsse relativ zu MCNP-Ergebnissen für die Modelle mit Cr-Zone und Ni-Zone

Voraussichtlicher Nutzen

Die Ergebnisse des Vorhabens ermöglichen es, den Einfluss der Gammastrahlung auf die strahlungsinduzierte Materialversprödung von Reaktorkomponenten außerhalb des Reaktorkerns, darunter insbesondere die des Reaktordruckbehälters, sowie den Bedarf an weiterer Forschung auf diesem Gebiet genauer einzuschätzen. Das Vorhaben wird zur Erhöhung der Sicherheit von in Betrieb befindlichen Leistungsreaktoren vorwiegend in Russland, aber auch in Deutschland, beitragen.

Fortschritte auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Im Mai 2001 wurde auf der Jahrestagung Kerntechnik in Dresden folgende Arbeit vorgetragen:

J. Koban, E. Polke, L. Toric

Einfluss von Gammastrahlung auf den RDB und die Überwachungsprogramme, Proceedings der Jahrestagung Kerntechnik 2001, 15. – 17. Mai 2001, Dresden, ISSN 0720-9207, p. 693-696

Die Autoren bestimmten Neutronen- und Gamma-DPA- und FMD-Raten für zwei der auch im Vorhaben untersuchten Reaktortypen, den deutschen PWR und den SWR. Die Ergebnisse der Autoren stimmen weitgehend mit den im Vorhaben erhaltenen überein. Differenzen erklären sich hauptsächlich durch die Unterschiede der verwendeten DPA-Wirkungsquerschnitte für Gammastrahlung.

Veröffentlichungen der FE-Ergebnisse

Die Ergebnisse der Forschungsergebnisse des Vorhabens gingen bisher in folgende Veröffentlichungen ein:

- /1/ E. Brodtkin, A. Egorov, S. Zaritsky, B. Böhmer
Contribution of Gamma Irradiation to Material Damage at VVER Pressure Vessels, Proceedings der Jahrestagung Kerntechnik 2000, 23. – 25. Mai 2000, Bonn, ISSN 0720-9207, p. 597-600
- /2/ Böhmer, B.; Borodkin, G.; H. Kumpf
Dort-MCNP Discrepancies for a Simple Testing Model - Proposal of a Calculational Neutron-Gamma Benchmark, Vortrag zum WGRD-VVER Meeting, April 23 -25, 2001, Rez, Czech Republic
- /3/ Böhmer, B.; Borodkin, G.; Konheiser, J.; Manturov, G.
Testing of Neutron Data Libraries in Application to Reactor Pressure Vessel Dosimetry, International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, 7-12th Oct. 2001, Tsukuba, Japan

- /4/ Böhmer, B.; Borodkin, G.; Konheiser, J.; Noack, K.; Polke, E.; Rogov, A.; Vladimirov, P.
Neutron and Gamma Fluence and Radiation Damage Parameters of Ex-core Components of Russian and German Light Water Reactors, 11th International Symposium on Reactor Dosimetry, 18 -23 August 2002, Brussels, Belgium
- /5/ Böhmer, B.; Borodkin, G.; Brodtkin, E.; Egorov, A.; Konheiser, J.; Kozhevnikov, S.; Manturov, G.; Voloshenko, A.; Zaritsky, S.,
ANISN-DORT-ROZ-MCNP-TRAMO Neutron-Gamma Flux Intercomparison Exercise for a Simple Testing Model, 11th International Symposium on Reactor Dosimetry, 18 -23 August 2002, Brussels, Belgium