KfK 5403 September 1994

Materialverhalten unter Bestrahlung

W. Dienst Institut für Materialforschung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Materialforschung

KfK 5403

Materialverhalten unter Bestrahlung

W. Dienst

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript gedruckt Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

Kurzfassung

Da es an wirklich umfassenden Darstellungen des Materialverhaltens unter Bestrahlung mangelt, die für eine Einführung in dieses Wissensgebiet geeignet sind, wird mit diesem Bericht der Inhalt einer entsprechenden Vorlesung des Autors an der Universität Karlsruhe einem größeren Leserkreis zugänglich gemacht.

Zunächst werden die verschiedenen Strahlungsarten hinsichtlich ihrer Wirkung auf Materialien sowie die unter technischen Gesichtspunkten in Betracht kommenden Materialgruppen vorgestellt. Den Besonderheiten des Bestrahlungsverhaltens von Polymerwerkstoffen und Glas ist ein spezielles Kapitel gewidmet. Das Hauptgewicht liegt dann aber bei der Darstellung der Bestrahlungswirkung in kristallinen Materialien mit folgenden Punkten: Atomverlagerungsrate unter Neutronenstrahlung, Auswirkung von Punktdefekten und Bildung von Defektaggregaten, Volumenänderung, Änderung elektrischer, thermischer und mechanischer Eigenschaften von keramischen, graphitischen und metallischen Werkstoffen. Schließlich wird auch die Bedeutung der Atomumwandlung unter Neutronenbestrahlung behandelt, besonders im Hinblick auf Radioaktivierung und Gasblasenbildung.

Abstract

Material Behaviour under Irradiation

There is a lack of really comprehensive presentations of the behaviour of materials under irradiation, which are qualified for an introduction to this field of knowledge. Therefore this report gives access to the contents of an appropriate lecture of the author at the Karlsruhe university which thus becomes available to a larger circle of readers.

First the different kinds of radiation are presented with regard to their effect on materials, and also the groups of materials to be considered under technical aspects. A separate chapter is devoted to the particularities of the irradiation behaviour of polymer and glass materials. But the main importance is subsequently given to the presentation of the irradiation effects in crystalline materials with the following items: atom displacement rate under neutron irradiation, effect of point defects and formation of defect aggregates, volume change, change of electric, thermal and mechanical properties of ceramics, graphitic and metallic materials. Finally the significance of atom transmutation under neutron irradiation is treated, especially with regard to radioactivation and gas bubble formation.

Inhaltsverzeichnis

1.	Einleitung	1
2.	Strahlungsarten	3
2.1	Elektromagnetische Strahlung	3
2.2	Elektronenstrahlung	4
2.3	Neutronenstrahlung	5
2.4	Ionenstrahlung	6
2.5	Bestrahlungsdosis	8
3.	Materialien der Kerntechnik	9
3.1	Metallische Werkstoffe	9
3.2	Graphit und faserverstärkter Kohlenstoff	12
3.3	Keramische Materialien	13
4.	Bestrahlungsverhalten von nichtkristallinen Materialien	14
4.1	Polymerwerkstoffe	14
4.1.1	Bestrahlungsbedingte Reaktionen	14
4.1.2	Technische Nutzung, Eigenschaftsänderung	16
4.2	Glasmaterialien	18
5.	Kristallgitterschäden unter Bestrahlung	19
5.1	Berechnung der Punktdefekterzeugung	20
5.1.1	Auswirkung von Kernstößen durch Neutronen	20
5.1.2	Einfluß von Ionisierungsprozessen	23
5.1.3	Atomverlagerungsrate in keramischen Werkstoffen	23
5.1.4	Ionenbestrahlung	24
5.2	Folgen der Punktdefekterzeugung	25
5.2.1	Atomplatzwechsel	25
5.2.2	Permanente Kristalldefekte	25
5.2.3	Kristallographische Merkmale von Bestrahlungsdefekten	26
5.2.4	Thermische Ausheilung von Bestrahlungsdefekten	27
6.	Eigenschaftsänderungen kristalliner Materialien unter Bestrahlung	29
6.1	Amorphisierung	29
6.2	Volumenänderung	30
6.2.1	Porenschwellung	30

6.2.2	Graphit-Schrumpfung und -Schwellung	31
6.2.3	Graphit-Abtragung durch Ionenstöße	32
6.3	Eigenschaftsänderungen keramischer Werkstoffe	33
6.3.1	Wärmeleitfähigkeit	34
6.3.2	Elektrische Eigenschaften	36
6.3.2.1	Leitfähigkeit	36
6.3.2.2	Dielektrischer Verlust	37
6.3.3	Mechanische Eigenschaften	38
6.3.3.1	E-Modul	38
6.3.3.2	Bruchfestigkeit	39
6.3.3.3	Spezielles Verhalten von Graphit-Werkstoffen	40
6.3.3.4	Kriechen unter Bestrahlung	40
6.4	Eigenschaftsänderungen metallischer Werkstoffe	41
6.4.1	Zugfestigkeit	42
6.4.2	Versprödung	43
6.4.3	Kriechen unter Bestrahlung	44
7.	Einfluß von Atomumwandlungsvorgängen	45
7.1	Transmutation unter Neutronenbestrahlung	45
7.2	Radioaktivierung	46
7.2.1	Starke Radioaktivierung (i.b. von Stählen)	47
7.2.2	"Low activation materials (LAM)"	48
7.3	Gasblasenbildung und Spaltprodukteinlagerung	49
Literatu	ır	51
Tabelle	n	53
Abbildu	ıngen	60

1. Einleitung

Die durch Einwirkung von energiereichen atomaren Teilchen, in geringerem Maß auch von energiereichen Quanten elektromagnetischer Strahlung in Materialien verursachten Eigenschaftsänderungen werden meistens im Zusammenhang mit kerntechnischen Anwendungen dargestellt. So könnte der Blick darauf verstellt werden, daß die Bestrahlungseffekte im Prinzip gleichwertig neben den Auswirkungen der Temperaturänderung, der plastischen Verformung oder von herstellungsbedingten Kristallgitter- und Gefügefehlern stehen. Dabei ist der letzte Punkt für nichtmetallische Werkstoffe relevant. Die bestrahlungsbedingten Eigenschaftsänderungen ähneln zum Teil denjenigen unter den erwähnten konventionellen Einflüssen, sie weisen andererseits aber Besonderheiten auf, deren Analyse zu beträchtlichem festkörperphysikalischen und auch -chemischen Erkenntnisgewinn geführt hat.

Die Ähnlichkeit ist besonders ausgeprägt für die Festigkeitserhöhung von Metallen durch Teilchenbestrahlung und durch Verformung. In beiden Fällen entstehen Versetzungsstrukturen, die eine zunehmende Hemmung des Versetzungsgleitens bewirken. Die unter Bestrahlung durch Kondensation von Punktdefekten erzeugten Versetzungsschleifen sind selbst zwar nicht gleitfähig, das ist aber für ihre Hemmungswirkung auf die Gleitversetzungen ohne wesentlichen Belang. Noch eindeutiger korreliert, aber von geringerer technischer Bedeutung, sind die ähnlichen Einflüsse von Teilchenbestrahlung und erhöhter Temperatur auf Diffusionsvorgänge. Hier treten jeweils vermehrt Kristallgitter-Leerstellen auf, von deren Konzentration der Diffusionskoeffizient proportional abhängig ist. Ein gewisses technisches Interesse gilt dabei weniger der Fremddiffusion als vielmehr der Selbstdiffusion unter Bestrahlung, besonders im Hinblick auf bestrahlungsbedingte Kriechvorgänge. Es kommt aber anscheinend auch zur bestrahlungsbedingten Bildung sehr feiner Ausscheidungen aus übersättigten Legierungsmischkristallen bei ziemlich niedriger Temperatur, die einen beträchtlichen Versprödungseffekt haben können. Im üblichen metallkundlichen Sprachgebrauch wäre das eine Alterung unter Bestrahlung.

Die Betrachtung ähnlicher Eigenschaftsänderungen durch Kristallgitter- und Gefügefehler, die nach Bestrahlung oder im Herstellungsprozess verbleiben, beschränkt sich auf nichtmetallische Werkstoffe. Hier ist vor allem die Verminderung der von Phononen getragenen Wärmeleitfähigkeit durch Punktdefekte im Kristallgitter von technischer Bedeutung (Abb.). Dabei handelt es sich hinsichtlich des Herstellungsprozesses in erster Linie um Verunreinigungs-Fremdatome,

hinsichtlich des Bestrahlungseffekts dagegen um Leerstellen. Letztere sind allerdings meistens viel wirksamer, weil sie eine größere lokale Massenänderung verursachen, außer wenn die Einlagerung von Fremdatomen in Ionenkristallen zwangsläufig mit der Bildung von Leerstellen zum elektrischen Ladungsausgleich verbunden ist. Eine qualitativ ähnliche Verschlechterung wie für die Wärmeleitfähigkeit kann sich in ionisch gebundenen Isolatormaterialien hinsichtlich des dielektrischen Verlustes ergeben. Da die Bruchfestigkeit keramischer Materialien durch vorhandene Gefügefehler und inneren Spannungen bestimmt ist, die zur Rißbildung führen, können sich auch Bestrahlungsdefektaggregate (z.B. in Form von Versetzungsschleifen) konkurrierend auswirken und eine Festigkeitsverminderung verursachen.

Bei den eingangs erwähnten Besonderheiten bestrahlungsbedingter Eigenschaftsänderungen handelt es sich um außerordentliche Abweichungen vom thermodynamischen Gleichgewichtszustand, die durch Wärmebehandlung nicht bewirkt werden können. Am auffälligsten ist diesbezüglich die Volumenvergrößerung im %-Bereich, die durch die Aggregation von bestrahlungsbedingten Leerstellen bis hin zur Bildung isometrischer Poren verursacht wird. Dieser Vorgang wird oft als Schwellung unter Bestrahlung bezeichnet und stellt geradezu eine Umkehrung des Sinterprozesses dar. Bei nichtmetallischen Verbindungen kommt auch eine Fehlordnung durch Atomaustausch zwischen den Kristallteilgittern in Betracht, die durch Defektaggregation unter Bestrahlung den Charakter einer partiellen Zersetzung im festen Zustand annehmen kann. Die Auswirkung auf die Materialeigenschaften könnte derjenigen der Leerstellenaggregation ähnlich sein.

Eine Sonderstellung nimmt die Zersetzung von Polymerwerkstoffen unter Bestrahlung ein. Sie kann nicht nur durch Teilchenstrahlung sondern durch jegliche Art energiereicher ionisierender Strahlung ausgelöst werden und wird durch Abgabe gasförmiger Zersetzungsprodukte gefördert.

Diese Einleitung sollte gezeigt haben, daß die Darstellung der Bestrahlungseinflüsse auf das Materialverhalten als Hauptgegenstand reizvoll und angemessen erscheint. Der technische Bezug wird bei der Vorstellung betreffender Materialien in Abschnitt 3 deutlich und betrifft ganz überwiegend kerntechnische Anwendungen.

2. Strahlungsarten

2.1 Elektromagnetische Strahlung

Bei der Darstellung der Bestrahlungswirkung auf Materialien soll die bloße Erwärmung durch intensive elektromagnetische Strahlung, wie z.B. in der Laser-Bearbeitungstechnik, außer Betracht bleiben. Eigentlichen Bestrahlungseffekten liegt die Auflösung interatomarer Bindungen, zumindest aber ein Ionisierungsprozess zugrunde. Daher erfordert sie eine Teilchen- bzw. Quantenenergie von mindestens einigen eV.

Sichtbares Licht scheidet damit im wesentlichen aus, weil erst bei einer Wellenlänge von 410 nm eine Quantenenergie von 3 eV erreicht wird. Auch der zu kürzeren Wellenlängen anschließende UV-Bereich ist von relativ geringer Bedeutung, und zwar in erster Linie wegen der sehr kleinen Eindringtiefe in den meisten Materialien. In UV-lichtdurchlässigen Materialien kann es allerdings zu beträchtlichen Bestrahlungseffekten kommen, die auch von technischer Bedeutung sind. Hierher gehört die Versprödung von Polymerwerkstoffen sowie die Trübung von Gläsern durch Umlagerung von interatomaren Bindungen. Andererseits werden ähnliche Effekte zur Erzeugung vorgegebener Ätzstrukturen in dünnen Materialschichten genutzt, die nach Bestrahlung hinter entsprechenden Masken lokal anätzbar werden.

Im Prinzip unterscheidet sich die Wirkung der UV-Strahlung jedoch nicht von derjenigen der Röntgenstrahlung, abgesehen von gleichartigen Sekundäreffekten durch charakteristische Röntgenstrahlung und Photoelektronen im bestrahlten Material, die sich aufgrund der viel größeren Röntgen-Quantenenergie ergeben. Das technische Interesse wird aber vor allem durch die mit der Quantenenergie steigende Eindringtiefe der Strahlung bestimmt. Für Graphit (Dichte 2,0 g/cm³) beträgt die Halbwertsdicke 1 mm bei etwa 10 keV, 10 mm bei etwa 25 keV. Die entsprechenden Quantenenergien für Aluminium liegen bei etwa 20 bzw. 60 keV, für Kupfer bei etwa 80 bzw. 600 keV. Für das Verhalten von Bauteilen sind also nur hohe Quantenenergien > 10 keV von Belang.

In diesen Bereich gehört besonders die bei Kernreaktionen auftretende γ-Strahlung, meistens mit sehr hohen Quantenenergien von 100 keV bis 2 MeV, die durch die im Vergleich zur Elektronenhülle sehr hohen Bindungskräfte im Atomkern bedingt sind. Diese "harte" Röntgenstrahlung wirkt vor allem mittels der Auslösung bzw. Erzeugung von Elektronen mit hoher kinetischer Energie durch Photoeffekt, Compton-Streuung und Elektron-Positron-Paarbildung (diese durch

Quanten > 1 MeV) auf das Material ein. Der Sekundäreffekt dieser Elektronen entspricht dann einer direkten Elektronenbestrahlung (s. Abschnitt 2.2), aber mit der viel größeren Eindringtiefe der γ-Strahlung.

Wegen ihrer kerntechnische Bedeutung verdient die γ-Strahlung besondere Beachtung. Dabei geht es nicht zuletzt auch um den Schutz vor selbststrahlenden Materialien, die beim Einsatz in Kernreaktoren radioaktiv geworden sind (s. Abschnitt 7.2). Hierzu ist die Halbwertsdicke verschiedener Materialien für die Auslegung von Abschirmungen von Interesse. Sie beträgt bei der Schwächung von 1 bis 2 MeV-γ-Strahlung in Wasser etwa 100 mm, in Beton und Aluminium 50 mm, in Eisen 15 mm und in Blei 10 mm.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, daß die γ-Strahlung geeigneter Radioisotope auch für nützliche technische Zwecke herangezogen werden kann, wie zur Vergütung von Polymerwerkstoffen (s. Abschnitt 4.1.2).

2.2 Elektronenstrahlung

Auf weniger vielfältige Weise, nämlich nur durch Elektron-Elektron-Streuprozesse, wirkt Elektronenstrahlung auf die interatomaren Bindungen in bestrahlten Materialien ein. Nur in vernachlässigbar geringem Maß können Stöße hochenergetischer Elektronen auch zur Verlagerung einzelner Atome führen (s.a. Abschnitt 2.4). Da es sich hier um die Wechselwirkung elektrisch geladener Teilchen handelt, die durch weitreichende Coulomb-Kräfte bestimmt ist, ergibt sich eine hohe Streuwahrscheinlichkeit mit entsprechend geringer Eindringtiefe. Die Halbwertsdicke für die Strahlungsintensität beträgt z.B. bei der schon recht hohen Elektronenenergie von 1 MeV in Aluminium etwa 1 mm (Abb. 1), in Polymerwerkstoffen einige mm.

Bei Kernreaktionen werden neben γ -Quanten (s.o.) auch hochenergetische Elektronen emittiert, die als β -Strahlung bezeichnet werden. Ihre Teilchenenergie liegt meistens im Bereich von etwa 200 keV bis 2 MeV. Wegen der oben erwähnten geringen Eindringtiefe sogar in leichtatomigen Materialien bereitet die schützende Abschirmung hier kaum Probleme, besonders im Vergleich zur γ -Strahlung. Dasselbe gilt hinsichtlich der Strahlenschädigung von Bauteilen.

Andererseits sind für die technische Nutzung von Elektronenstrahlung, die wie bei der γ-Strahlung besonders die Vergütung von Polymerwerkstoffen betrifft, sehr hohe Elektronenenergien bis zu etwa 10 MeV erforderlich, um die gewünschten

Materialdicken durchstrahlen zu können. Dieser Energiebereich wird mit Linearbeschleunigern erreicht, die hinsichtlich der Strahlführung und -steuerung sowie des erforderlichen Strahlenschutzes günstigere Bedingungen bieten als Röntgenoder γ-Strahlungsquellen für vergleichbare technische Anwendungen.

2.3 Neutronenstrahlung

Am wichtigsten für bestrahlungsbedingte Eigenschaftsänderungen in kristallinen Materialien ist die Bestrahlung mit hochenergetischen Neutronen. Es handelt sich um elektrisch neutrale Kernteilchen der Massenzahl 1 (= Protonenmasse), die bei Kernreaktionen freigesetzt werden, besonders bei der Spaltung von Uran- und Plutonium-Atomen in Kernreaktoren sowie bei der Verschmelzung von Wasserstoffkernen in künftigen Kernfusionsanlagen. Die Wechselwirkung der ungeladenen Neutronen mit den Atomen des bestrahlten Materials beschränkt sich auf Kernstöße. Die betreffenden Stoßquerschnitte und damit die Wechselwirkungswahrscheinlichkeit sind vergleichsweise gering. Die freie Weglänge bis zum nächsten Kernstoß beträgt meistens einige cm, so daß die Eindringtiefe der Neutronenstrahlung in bestrahltem Material praktisch unbegrenzt ist.

Die Materialeigenschaftsänderungen aufgrund der Kernstöße ergeben sich durch die Verlagerung von Stoßatomen im Kristallgitter, bei der primär Leerstellen und Zwischengitteratome entstehen, die auch als Frenkel-Paare bezeichnet werden. Die Mindestenergie für die Erzeugung eines Frenkel-Paares beträgt meistens etwa 100 eV. Die Energie von Spaltungsneutronen liegt aber im Bereich von etwa 0,5 - 7 MeV mit maximaler Häufigkeit bei 2 MeV, diejenige von Fusionsneutronen aus der Deuterium-Tritium-Fusion sogar bei 14 MeV. Durch die Abbremsung (sogenannte Moderation) der Neutronen bei Kernstößen können auch beliebig niedrigere Energien auftreten. Jedenfalls kann aber durch einen Primäratomstoß eine ganze Kaskade von Sekundärstößen ausgelöst werden, die zur Erzeugung einer Vielzahl von Frenkel-Paaren führt. Die Energieübertragung beim Primärstoß erfolgt überwiegend mit der Gesetzmäßigkeit des elastischen Stoßes (s. Abschnitt 5.1). Das betreffende Atom wird allerdings infolge des Stoßes ionisiert und kann daher seine Energie nicht nur in Sekundärstößen weitergeben sondern zum beträchtlichen Teil auch durch Ionisierungsprozesse verlieren, die aber für das Materialverhalten bei Neutronenbestrahlung eine untergeordnete Rolle spielen.

Neutronenstrahlung mit Energien im MeV-Bereich kann auch zu Atomumwandlungen durch Reaktion von Neutronen mit gewissen Atomkernen führen, die für die Materialeigenschaften von erheblicher Bedeutung sind. Es handelt sich um sogenannte (n,p)- und (n,α)-Reaktionen, bei denen nach Aufnahme des energiereichen Neutrons vom stark angeregten Atomkern ein Wasserstoff- bzw. Heliumkern (Proton bzw. α-Teilchen) emittiert wird. Die schließlich im bestrahlten Material verbleibenden H- bzw. He-Atome, besonders die letzteren, können beträchtlich zur bestrahlungsbedingten Volumenzunahme (Schwellung) der Materialien und zur Versprödung metallischer Werkstoffe beitragen. Der Beitrag von Atomumwandlungen ist besonders für Fusionsneutronen wegen ihrer sehr hohen Energie (s.o.) zu beachten. Die Untersuchung spezifischer Effekte der Fusionsneutronen, die auch Besonderheiten der Stoßkaskaden-Defektstruktur im Kristallgitter betreffen könnte, ist durch das Fehlen entsprechender Bestrahlungseinrichtungen stark behindert, trotz langjähriger internationaler Bemühungen um Auslegung und Finanzierung einer 14 MeV-Neutronenquelle hinreichender Stärke. Dagegen stehen Kernreaktoren, im besonderen Versuchsreaktoren, zur Bestrahlung mit Spaltungsneutronen ausreichend zur Verfügung.

Für Strahlenschutzzwecke wird die Abschirmung von Neutronenstrahlung vorzugsweise durch leichtatomige Materialien erreicht, weil sie eine möglichst hohe Energieabgabe der Neutronen je Atomstoß gewährleisten. Es kommen dafür vor allem Wasser und Beton in Betracht, für spezielle Anordnungen auch Paraffinblöcke.

2.4 Ionenstrahlung

Die Bestrahlung mit - zwecks elektrischer Beschleunigung ionisierten - Atomen ist hier nur im Hinblick auf Experimente zur Simulation von Strahlenschäden unter Neutronenbestrahlung von Bedeutung. Durch die sehr starke Coulomb-Wechselwirkung mit den Atomen des bestrahlten Materials ist die Eindringtiefe noch viel geringer als für Elektronenstrahlen. Das hat andererseits den Vorteil, daß in der durchstrahlten, dünnen Materialschicht sehr hohe Erzeugungsraten für die zu untersuchenden Strahlenschäden erzielt werden können, die evtl. eine entscheidende Verkürzung der Bestrahlungsdauer ermöglichen. Um dennoch möglichst dicke Proben einsetzen zu können, werden sehr hohe Ionenenergien, oft von 50 - 100 MeV, verwendet, die mit Zyklotron-Beschleunigern erreicht werden. Mit H- und He-Ionen, die vorzugsweise zur Simulation von Neutronenbestrahlungseffekten einschließlich (n,α) -Kernreaktionen herangezogen werden, sind dann Probendicken von ≥ 1 mm durchstrahlbar (Tab. 1, aus [1]).

Die Energie der eindringenden Ionen wird zwar zum großen Teil durch Ionisierungsprozesse verbraucht, aber der für die Eigenschaftsänderungen des bestrahlten Materials entscheidende Energietransfer erfolgt in Atomstößen. Der dabei übertragene Anteil der aktuellen Ionenenergie bestimmt sich mit ähnlicher Gesetzmäßigkeit wie bei Kernstößen durch Neutronen (s. Abschnitt 2.3). Da die Wechselwirkung der Stoßpartner hier aber durch Coulomb-Kräfte bedingt ist, hängt auch die Stoßwahrscheinlichkeit - bezeichnet durch den Radius des Stoßquerschnitts - in gesetzmäßiger Weise von der Ordnungs- und Massenzahl der beteiligten Atome bzw. Ionen sowie von der Energie des stoßenden Ions ab.

He-Kerne werden auch von natürlichen radioaktiven Isotopen mit hoher Energie, meistens 4 - 5 MeV, emittiert. Diese Art von Ionenstrahlung ist als α-Strahlung bezeichnet worden. Ihre Reichweite in Materialien beträgt nur 10 - 100 µm. Sie ist daher nur für die Schädigung durch innere α-Strahlung, besonders in Plutoniumhaltigen Kernbrennstoffen von einiger Bedeutung. Technisch viel wichtiger ist aber die innere Ionenstrahlung durch die Kernspaltungsprozesse in Kernbrennstoffen. Die Spaltprodukte werden als Ionen mit mittlerer Massenzahl (Abb. 2), hoher Ionenladung (+ 10 bis 20) und sehr hoher Energie (50 - 100 MeV) emittiert. Ihre Reichweite im Kernbrennstoff, gegebenenfalls auch in umhüllendem Material beträgt nur etwa 10 µm. Ihre Energie wird auf diesem Weg ganz überwiegend durch Ionisierung sehr hoher Dichte verbraucht, die zu starker lokaler Erhitzung ("thermal spike") führt. Dieser Effekt ist maßgebend für die technische Funktion und gleichzeitig für das Bestrahlungsverhalten von Kernbrennstoffen. Die anteilig geringe Energieübertragung durch Atomstoßprozesse spielt hier eine untergeordnete Rolle. Wichtig sind aber Sekundäreffekte, die sich durch das Verbleiben der Spaltprodukte als Fremdatome im betreffenden Material ergeben. Es handelt sich dabei vor allem um die Vergrößerung des spezifischen Volumens ("Schwellung") und um die Erhöhung der chemischen Reaktivität (s. Abschnitt 7).

Schließlich ist noch zu erwähnen, daß in Kernfusionsanlagen Plasma- (vor allem Wasserstoff- und Helium-) Ionen mit Energien bis zu etwa 100 eV auf Wandkomponenten fallen können. Dadurch werden Verlagerungsprozesse in den oberflächlichen Atomlagen der betreffenden Materialien bewirkt, die zu beachtlichen Erosionseffekten führen können.

2.5 Bestrahlungsdosis

Zur Quantifizierung der Strahlungseinwirkung auf Materialien werden verschiedene Maßeinheiten verwendet, je nach dem vorherrschenden Mechanismus für die bestrahlungsbedingten Eigenschaftsänderungen. Soweit nur Ionisierungsprozesse in Betracht zu ziehen sind, ist einfach die Angabe der absorbierten Strahlungsenergie ausreichend. Sie wird in der spezifischen Einheit Gray (Gy) = J/kg angegeben (1 J = $6,24\cdot10^{12}$ MeV). Eine entsprechende ältere Einheit ist rad (rd) = 100 erg/g = 0,01 Gy. Die Einheit Gy wird im allgemeinen für Röntgen-, γ - und Elektronenstrahlung verwendet, auf dem Gebiet des Strahlenschutzes mit dem speziellen Bezug auf die Schädigung der menschlichen Körpersubstanz sogar für alle Strahlungsarten. Im letzteren Fall ist aber die absorbierte spezifische Energie noch mit einem Faktor für die relative biologische Wirksamkeit (RBW) der betreffenden Strahlung zu multiplizieren: für Röntgen-, γ - und Elektronenstrahlung x 1, für Neutronen-, Protonen- und α -Strahlung x 10. Die sogenannte Äquivalentdosis wird dann in Sievert (Sv) = RBW x Gy angegeben.

Während akute biologische Schäden schon bei etwa 1 Sv eintreten, werden wesentliche Änderungen von Materialeigenschaften erst oberhalb von 104 Gy beobachtet. Die Bestrahlungsleistung in der Brennelement-Zone von Kernreaktoren liegt bei etwa 104 Gy/s. Mit technischen Strahlungsquellen, im besonderen in Elektronenbestrahlungsanlagen werden in einem vergleichsweise kleinen Volumen maximal etwa 104 Gy/s erreicht. Bei der Handhabung hochradioaktiven Materials nach Neutronenbestrahlung in Kernreaktoren (s. Abschnitt 7.2.1) ist mit maximal etwa 100 Gy/s zu rechnen.

Wenn bei der Einwirkung von Teilchenstrahlung die Eigenschaftsänderungen des bestrahlten Materials überwiegend durch Atomverlagerungen infolge atomarer Stoßprozesse verursacht werden, ist die Strahlungsdosis am besten durch die Zahl der Verlagerungen pro Atom (displacements per atom, "dpa") zu beschreiben. Wegen der großen Eindringtiefe und der untereinander ähnlichen Teilchenenergiespektren im Bereich der eigentlich wirksamen "schnellen" Neutronen (mit $E_n \geq 0,1$ MeV) (Abb. 3) besteht bei Neutronenbestrahlungen eine relativ einfache Beziehung zwischen der dpa-Dosis und der Neutronenfluenz (über die Bestrahlungszeit integrierter Neutronenfluß) oberhalb einer bestimmten Teilchenenergieschwelle (s. Abschnitt 5.1). Daher bietet die Angabe der Neutronenfluenz in Neutronen (n)/m² (evtl. einfach als Neutronenfluß x Bestrahlungsdauer) für Neutronenenergien > 0,1 oder 1,0 MeV einen meistens ausreichenden Vergleichswert für die Bestrahlungsdosis.

Bei Bestrahlung mit Ionen kann zunächst überhaupt nur die Teilchenenergie und die Teilchenfluenz an der Probenoberfläche angegeben werden, weil sich die dpa-Dosis wegen der geringen Eindringtiefe der Ionen über der Probendicke sehr stark ändert. Das dpa-Profil muß durch approximierende Berechnung der Ionenenergieverluste durch Ionisierungs- und Atomstoßprozesse ermittelt werden. Auf der Basis derartiger Berechnungen kann andererseits durch angepaßte zeitliche Variation der Ionenenergie im Bestrahlungsexperiment eine Homogenisierung der dpa-Dosis in den bestrahlten Proben erreicht werden, die dann allein als Bestrahlungsdosis in Betracht kommt.

3. Materialien der Kerntechnik

Auch wenn hier erklärtermaßen das Bestrahlungsverhalten von Materialien an sich und allgemein dargestellt werden soll, so betrifft die technische Bezugnahme doch ganz überwiegend den Bereich der Kerntechnik. Hier kommt in erster Linie das Verhalten von Bauteilen in den zahlreich betriebenen Kernspaltungsreaktoren in Betracht, im Hinblick auf die künftige Entwicklung aber auch die Materialauswahl für Kernfusionsreaktoren, ferner Materialprobleme für spezielle Strahlungsquellen wie Teilchenbeschleuniger, aber auch für Untersuchungs- und Lagereinrichtungen für hochradioaktive Proben bzw. Komponenten. Überwiegend sind metallische und keramische Werkstoffe betroffen, aber eine gewisse Rolle spielen auch Gläser für Beobachtungsfenster und -geräte und Polymerwerkstoffe für Dichtungen, Staub- und Korrosionsschutzbehälter bzw. -schichten sowie zur elektrischen Isolation. Bei den Polymerwerkstoffen gibt es neben den Gesichtspunkten der Schädigung auch solche der Vergütung unter Bestrahlung (s. Abschnitt 4.1.2).

Im folgenden soll die Palette der betreffenden metallischen und keramischen Materialien näher dargestellt werden.

3.1 Metallische Werkstoffe

Die Auswahl metallischer Werkstoffe für Kernreaktoren orientiert sich in erster Linie an der Neutronenökonomie. Die nötige nukleare Reaktivität wird am kostengünstigsten erreicht, wenn die Werkstoffe in der Brennelementzone möglichst wenig Neutronen absorbieren, die dann als Auslöser weiterer Kernspaltungen im Uran (und evtl. Plutonium) -Brennstoff verloren gehen. Tabelle 2 zeigt die Wirkungsquerschnitte je Atom bzw. je cm³ ("makroskopisch"), in deren Bereich ein eindringendes Neutron von einem Atomkern absorbiert wird. In "thermischen" Reaktoren, wie sie heute fast ausschließlich in Kernkraftwerken zu finden sind, werden die Neutronen zur Verbesserung der U,Pu-Spaltungsausbeute auf die relativ geringe Geschwindigkeit der Wärmebewegung abgebremst, meistens durch Atomstöße im Kühlwasser als "Moderator". In diesem Fall ist der Absorptionsquerschnitt bei der Neutronenenergie von 0,025 eV maßgebend. Für die Verhältnisse in "schnellen" Reaktoren, die mit gering moderierten Spaltungsneutronen funktionieren, soll dagegen der Absorptionsquerschnitt bei 100 keV bezeichnend sein. In Abb. 3 findet man die angegebenen Neutronenenergien in der Nähe des Neutronenflußmaximums entsprechender Versuchsreaktorspektren (HFIR bzw. EBR II).

In den wassergekühlten Reaktoren von Kernkraftwerken wird von den Metallen mit niedrigem Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen fast ausschließlich Zirkonium als Strukturwerkstoff für die Brennelemente verwendet, im besonderen für die Hüllrohre der (U,Pu)O₂-Brennstoffstäbe (Abb. 4). Zr zeichnet sich durch seinen vergleichsweise hohen Schmelzpunkt (1850 °C) bei befriedigenden Verformungseigenschaften (besonders im Gegensatz zu Beryllium, Schmelzpunkt 1285 °C) und gutem Korrosionsverhalten in sehr heißem Wasser (bis etwa 400 °C) aus. Der letzte Punkt ist entscheidend durch Legierungszusätze bestimmt. Im technischen Einsatz befinden sich vor allem Zr-Legierungen mit etwa 1,5 Gew.-% Sn ("Zircaloy"), aber auch mit etwa 2,5 Gew.-% Nb. Aluminium-Legierungen werden dagegen in wassergekühlten Versuchsreaktoren bei relativ niedriger Kühlmitteltemperatur (≤ 150 °C) verwendet.

Tabelle 2 zeigt, daß Zr für Reaktoren mit schnellen Neutronen, im besonderen für sogenannte Schnelle Brüter, wegen des relativ hohen Absorptionsquerschnitts für 100 keV-Neutronen wenig geeignet erscheint. Austenitische, hochwarmfeste und oxidationsbeständige Cr-Ni-Stähle mit 15 - 17 % Cr und 13 - 16 % Ni sind hier in jeder Beziehung überlegen und werden für alle Strukturteile in den Brennelementen (ähnlich Abb. 4) und in ihrer Umgebung verwendet. Für die Kühlmittelführungskästen der Brennstabbündel werden im Hinblick auf bessere Formbeständigkeit unter Neutronenbestrahlung (s. Abschnitt 6.2.1) auch martensitische 9 - 12 % Cr-Stähle in Erwägung gezogen. Als Kühlmittel in Reaktoren mit schnellen Neutronen wird allgemein flüssiges Natrium verwendet. Die Betriebstemperaturen der Brennstabhüllrohre können dadurch bis etwa 600 °C reichen. Beson-

ders hoch oxidationsbeständige austenitische Stähle mit 20 % Cr und 25 % Ni werden in den CO₂-gekühlten AGR-Reaktoren (Advanced Gas-cooled Reactor) verwendet. Diese arbeiten zwar mit thermischen Neutronen, erreichen aber Brennstabhüllrohr-Temperaturen bis zu etwa 700 °C, die mit Zr-Legierungen bei weitem nicht beherrscht werden können.

In Kernfusionsreaktoren bestehen an der Wand der Brennkammer und in den dahinter liegenden Strukturen ähnliche Bedingungen der Neutronenbestrahlung wie in Schnellbrüter-Kernspaltungsreaktoren. Bei der Fusionsreaktion ²H+³H → ⁴He+n werden zwar Neutronen mit der sehr hohen Energie von 14 MeV emittiert, aber die Klassifizierung der Metalle hinsichtlich der Absorption schneller Neutronen wird dadurch nicht verändert. Daher sind die oben erwähnten hochlegierten Stähle als Strukturwerkstoffe auch für Fusionsreaktoren favorisiert. Tabelle zeigt aber, daß das hochschmelzende Metall Vanadium (Schmelzpunkt 1890 °C) hinsichtlich geringer Absorption schneller Neutronen mit solchen Stählen konkurrieren kann. V-Legierungen werden tatsächlich als Werkstoff für die Brennkammerwand in Fusionsreaktoren in Erwägung gezogen, wobei jedoch weniger die Neutronenabsorption als vielmehr die potentiell niedrigere Radioaktivierung der entscheidende Gesichtspunkt ist (s. Abschnitt 7.2.2).

Für den zusätzlichen Erosionsschutz der Brennkammerwand zur Vermeidung unzulässiger Verunreinigung des Fusionsplasmas durch schwere Atome sollen Schichten oder Platten aus Beryllium (wegen seines sehr niedrigen Atomgewichts) oder Wolfram (wegen seiner extrem geringen Zerstäubungsrate durch einfallende Plasmateilchen) eingesetzt werden. Einem besonders starken Erosionsabtrag sind die Prallplatten der sogenannten Divertoren ausgesetzt, die die aus dem Fusionsplasma gezielt ausgesteuerten Verunreinigungs-lonen auffangen sollen. Hier treten auch extrem hohe thermische Belastungen auf, so daß unter anderem an zwangsgekühlte, monolithische Bauteile aus dem gut wärmeleitenden, hochschmelzenden Metall Molybdän (Schmelzpunkt 2625 °C) gedacht wird. Eine problematischere Alternative ist die Kombination von oxiddispersionsgehärtetem Kupfer mit dicken Platten aus einem Kohlenstoffwerkstoff (s. Abschnitt 3.2) als Erosionsschutz und Temperaturpuffer. Beryllium spielt schließlich noch eine wichtige Rolle als "Funktionsmaterial" zur Neutronenvervielfachung in der Brutzone von Fusionsreaktoren mittels der Kernreaktion 9Be (n,2n) 24He.

Neben den bisher erwähnten außergewöhnlichen bzw. hochqualifizierten metallischen Werkstoffen haben auch niedrig legierte Stähle (mit einigen 0,1 % Cr, Mn, Mo, Ni) eine beträchtliche kerntechnische Bedeutung, und zwar als Druckbehäl-

terwerkstoff für die heutigen Kernkraftwerke, die größtenteils mit Wasser bzw. Wasserdampf unter hohen Drücken von etwa 70 - 160 bar gekühlt werden. Die ickwandigen Druckbehälter sind noch einem erheblichen Neutronenfluß aus dem Brennelementbereich ausgesetzt.

3.2 Graphit und faserverstärkter Kohlenstoff

Graphit wird in allgemein werkstoffkundlichen Darstellungen oft dem Bereich der keramischen Werkstoffe zugeordnet. Wegen ihrer besonderen kerntechnischen Bedeutung soll den Werkstoffen auf Kohlenstoffbasis hier aber ein eigener Abschnitt gewidmet werden. Kohlenstoff hat den extrem niedrigen Absorptionsquerschnitt $\sigma_a=0,0034$ barn für thermische Neutronen. Sein niedriges Atomgewicht ist noch ziemlich günstig für die Abbremsung schneller Neutronen durch entsprechend hohe Energieübertragung in Kernstößen (s.a. Abschnitt 5.1). Außerdem weisen Kohlenstoffwerkstoffe, im besonderen Graphit, eine gute Wärmeleitfähigkeit und auch eine hohe Temperaturbeständigkeit auf, soweit sie in nichtoxydierender Umgebung eingesetzt werden.

Aufgrund dieser Eigenschaften wurde Graphit schon sehr früh als Moderatormaterial in Kernreaktoren eingesetzt, im besonderen auch für CO₂-gasgekühlte Kernkraftwerke. In Helium-gekühlten, sogenannten Hochtemperaturreaktoren, von denen einige Versuchstypen betrieben wurden, ist auch die gesamte Brennelementstruktur aus Graphit gefertigt, so daß sehr hohe Betriebstemperaturen von 750 bis vielleicht 1000 °C erreichbar sind.

Für Kernfusionsreaktoren sind Kohlenstoffwerkstoffe vor allem wegen ihres geringen Atomgewichts interessant, das die Plasmaverunreinigung bei Erosion von Brennkammerwandkomponenten durch einfallende Plasmateilchen auf einem tragbaren Niveau hält. Für Wandschutzplatten kommt Graphit in Betracht, während für die thermisch viel höher belasteten Divertorplatten (s.a. Abschnitt 3.1) kohlenstoffaserverstärkter Kohlenstoff (CFC = Carbon Fibre-reinforced Carbon) vorgesehen ist. Das Fasergewebe dient dabei weniger zur Erhöhung der Festigkeit als vielmehr des Widerstands gegen Fragmentierung, d.h. der effektiven Bruchzähigkeit, sowie - so hofft man - zur Verbesserung der thermischen Leitfähigkeit. Der letzte Punkt erfordert im Hinblick auf die gegenseitige Orientierung von Temperaturgradient und thermischen Spannungen eine 3-dimensionale Faserverstärkung. CFC als sogenannter Kombinationswerkstoff (Composite) ist hier insofern besonders zu beachten, als das differentielle Bestrahlungsverhalten von

Fasern und Matrix im Material eine beträchtliche Rolle für die integralen Eigenschaftsänderungen spielen kann.

3.3 Keramische Materialien

Als keramischer Strukturwerkstoff der Kerntechnik ist nur SiC erwähnenswert, das als Alternativmaterial zu Graphit für Wandschutzplatten in Fusionsreaktoren in Betracht gezogen wurde. Dabei ist neben der großen Wärmebelastbarkeit, die auf hohen Werten des Schmelzpunktes, der Wärmeleitfähigkeit und der Bruchfestigkeit beruht, das noch ziemlich niedrige Atomgewicht der Komponenten im Hinblick auf die Plasmaverunreinigung durch Wanderosion von entscheidender Bedeutung (s.a. Abschnitt 3.2). Unter ähnlichen Gesichtspunkten wie für CFC-Werkstoffe wurde auch SiC-faserverstärktes SiC entwickelt, dessen Einsatz im besonderen für die gesamte Wandkonstruktion der Brennkammer von Fusionsreaktoren mit sehr hoher Kühlmitteltemperatur erwogen wurde. Dabei zeigte sich, daß die erforderliche Vakuumdichtheit ein erhebliches spezielles Problem darstellt.

Oxidkeramische Materialien, vor allem verschiedenen Al₂O₃-Qualitäten, sind von Interesse für Isolatorkomponenten in Fusionsreaktoren. Es handelt sich dabei um vakuumdichte Fenster sowie Träger und Abstandshalter für Antennen bzw. Hohlleiter in Hochfrequenzheizsystemen für das Fusionsplasma, um Wirbelstromunterbrecher zwischen den Segmenten der metallischen Brennkammerwand und evtl. um Isolierschichten in plasmanahen Magnetspulen. Neben Al₂O₃ wurden auch MgAl₂O₄ und AlN auf ihre Brauchbarkeit für Isolatoren unter Fusionsreaktorbedingungen untersucht, AlN besonders wegen seiner vergleichsweise hohen Wärmeleitfähigkeit.

Eine sehr spezielle Funktion haben oxidkeramische Materialien als hochtemperaturbeständige Brenn- und Brutstoffe für Kernreaktoren. In UO_2 und $(U,Pu)O_2$ finden durch Neutroneneinfang induzierte U- bzw. Pu-Kernspaltungen in zwei mittelschwere Spaltprodukte statt, z.B. in der Kernreaktion $92^{235}U$ (n, 3n) $39^{95}Y + 53^{138}J$. Die daraus resultierende Spaltungsneutronen- bzw. Spaltproduktstrahlung wurde bereits in Abschnitt 2 angesprochen. In Li-Verbindungen wie Li₂O, Li₄SiO₄ und Li₂ZrO₃ wird durch die Kernreaktion ⁶Li (n, α) ³H neuer Tritium-Brennstoff für Fusionsreaktoren erbrütet. Die resultierende Teilchenemission ent-

spricht der in Abschnitt 2.4 behandelten α - und Protonen-Strahlung mit hier 2,1 bzw. 2,7 MeV.

Schließlich ist noch B_4C als Neutronenabsorbermaterial zur Steuerung von Kernspaltungsreaktoren zu erwähnen, dessen Funktion auf der Kernreaktion ^{10}B (n, α) ^{7}Li beruht. Die α -Emission erfolgt hier mit einer Energie von 1,8 MeV.

4. Bestrahlungsverhalten von nichtkristallinen Materialien

Der Bestrahlungseinfluß auf die im Abschnitt 3 erwähnten wichtigen Materialien der Kerntechnik beruht ganz überwiegend auf Atomverlagerungen durch Stoßprozesse unter Teilchenstrahlung und nur in Ausnahmefällen auf der Auswirkung von Ionisierungsprozessen, wie bei der bestrahlungsbedingten elektrischen Leitfähigkeit von keramischen Isolatoren. Es gibt aber Materialgruppen deren Eigenschaften schon durch Ionisierungsprozesse bleibend verändert werden, die dadurch besonders strahlungsempfindlich sind, und die daher für Abschnitt 3 nicht in Betracht kamen. Es handelt sich hier um die Gesamtheit der Polymerwerkstoffe sowie um Glasmaterialien, um die letzteren aber im wesentlichen nur hinsichtlich ihrer Lichtdurchlässigkeit. Da die Änderung von Halbleitereigenschaften durch vergleichsweise sehr niedrige Dosen ionisierender Strahlung ein spezielles, in sich geschlossenes Gebiet der Festkörperphysik betrifft [1], sollen die betreffenden Materialien hier ausgeschlossen bleiben.

Der nur integral beschreibbare Bestrahlungseinfluß auf Polymerwerkstoffe und Glas soll hier vor der komplexeren Darstellung des Bestrahlungsverhaltens kristalliner Materialien behandelt werden, das ganz überwiegend durch atomare Stoßprozesse und ihre Folgen bestimmt ist.

4.1 Polymerwerkstoffe

4.1.1 Bestrahlungsbedingte Reaktionen

Die wesentliche Einwirkung von Strahlung mit hoher Quanten- bzw. Teilchenenergie auf Polymerwerkstoffe besteht letztlich in der Auslagerung von Valenzelektronen. Dadurch kommt es zur Bildung von Radikalen (z.B. H, Cl, CH₃) und andererseits Ionen, deren Folgereaktionen permanente Veränderungen der Polymermoleküle hinterlassen (z.B. H₂, HCl, CH₄-Abspaltung). Die primäre Wechselwirkung mit Valenzelektronen ist nur von der Elektronendichte im Material abhängig und daher im wesentlichen unspezifisch im Hinblick auf verschiedene Atome und Atomgruppen.

Als Bestrahlungsdosis wird einfach die absorbierte Energie je Masseneinheit angegeben: 1 Gy (Gray) = 1 J/kg = 100 rad (alte Einheit). Die Beziehung zum Umfang der chemischen Änderung des bestrahlten Materials wird durch den sogenannten G-Wert hergestellt, der die Anzahl der Reaktionsereignisse je 100 eV absorbierter Energie angibt (1 eV = $1,6\cdot10^{-19}$ J): Reaktionsausbeute = spezifische Energieabsorption·G. G liegt meistens im Bereich von 1 bis 10 und ist näherungsweise unabhängig von der Strahlungsart. Für die besonders wichtige Gasentwicklung unter Zersetzung des bestrahlten Materials ("Radiolyse") bedeutet G = 10 einen Produktionseffekt von 1 μ Mol/J, der als alternative strahlenchemische Kenngrößen-Einheit in Betracht kommt. Diese läßt sich auch durch 1 μ Mol/g·MGy ausdrücken. Tab. 3 zeigt eine Zusammenstellung von typischen G-Werten, die auch die Bestrahlungsempfindlichkeit der verschiedenen Materialien bzw. Stoffe charakterisieren.

Im Gegensatz zur primären Strahlungsenergieabsorption können die chemischen Folgereaktionen durchaus spezifisch sein, d.h. bevorzugt bestimmte Komponenten der Polymermoleküle betreffen. Das beruht auf dem Transport absorbierter Energie entlang der Moleküle, aber in spezieller Weise auch auf dem Transfer von aus C-H-Bindungen abgelösten H-Atomen über eine Folge von verschiedenen Radikalen und Ionen mit entsprechenden Platzwechseln. Eine besonders wichtige Rolle spielt dabei die Bildung von bzw. Reaktion mit C = C-Doppelbindungen. Das gilt übrigens auch für die gelegentlich angewendete Auslösung des Polymerisationsprozesses durch Bestrahlung von Monomeren.

Die wichtigsten molekularen Veränderungen unter Bestrahlung sind die Spaltung und andererseits die Querverkettung von Polymermolekülen. Die in jedem Fall schädliche Molekülspaltung kann durch Zutritt von Sauerstoff zusätzlich gefördert werden; wegen der Bildung von Zwischenprodukten kann dieser Effekt noch nach der Bestrahlung fortschreiten. Von Wichtigkeit ist im besonderen die Abspaltung von Gasmolekülen wie H₂, HCl, CO, CO₂, CH₄, abhängig von der Zusammensetzung des Polymers. Sie können im Polymermaterial eingeschlossen bleiben und hohe innere Spannungen verursachen, die nach Bestrahlung allmählich zur lokalen Lockerung der Polymerstruktur ("crazing") und schließlich zur Rißbildung führen können. Bei Überschreiten der Glasübergangstemperatur amorpher

Polymermaterialien, evtl. durch die Aufheizung unter Bestrahlung, kann es zur Aufblähung durch Gasblasen kommen.

4.1.2 <u>Technische Nutzung</u>, <u>Eigenschaftsänderung</u>

Bei Abwägung der Bedeutung des Bestrahlungseinflusses für die Eigenschaften von Polymermaterialien scheint die Nutzung zur Vergütung gegenüber der Schädigung an Boden zu gewinnen. Bei der Nutzung handelt es sich um eine "Härtung" im weitesten Sinn, wie die Polymerisation von Monomerlackschichten oder Monomerimprägnierungen (von Holz, Beton) oder die Vernetzung von Thermoplasten (Pseudovulkanisation von Schläuchen, Rohren, Platten, Kabelisolierungen). Dabei wird eine Verbesserung der Festigkeit, im besonderen der Abriebfestigkeit, der Wärmeformbeständigkeit sowie der chemischen Beständigkeit angestrebt. Die Härtung von Thermoplasten kann eine beträchtliche Verbilligung gegenüber der Verwendung von Duroplasten bringen, die vor allem viel schwierigere Formungsbedingungen stellen. Eine Teilhärtung kann das Einbringen von Metallstützen in thermoplastische Komponenten ersparen. Bei Kautschukwerkstoffen ist evtl. eine homogenere Vulkanisation erzielbar.

Eine typische Vergütungsdosis beträgt etwa 10⁵ Gy. Die Dosisleistung der in Bestrahlungsanlagen verwendeten Elektronenbeschleuniger liegt bei etwa 10⁴ Gy/s (mit 0,5 - 5 MeV Teilchenenergie). An ⁶⁰Co-γ-Quellen werden maximal 10² Gy/s erreicht (mit 1,2 und 1,3 MeV Quantenenergie).

Für die Verwendung von Polymerwerkstoffen unter Bestrahlung ist die Verschlechterung ihrer Eigenschaften bei höheren Bestrahlungsdosen maßgebend [1,2], die neben einer "Überhärtung" bei extremer Vernetzung besonders durch C-Kettenbruch der Polymermoleküle bestimmt ist. Diese Effekte führen zu einem Verlust an Duktilität und Bruchfestigkeit, der allgemeiner als Versprödung bezeichnet wird. Die Bestrahlungsbeständigkeit von Polymerwerkstoffen wird oft an der Strahlungsdosis gemessen, bei der ein beträchtlicher Versprödungseffekt beobachtet wird. Sie liegt bei gewisser Abhängigkeit vom Verwendungszweck für die verschiedenen Polymerwerkstofftypen in den folgenden Bereichen (in Gy):

Kautschuksorten (Elaste)

3.104 - 3.106

Polyäthylen (auch PVC)

3.105 - 3.106

Teflon (PTFÄ)

≤ 104

Plexiglas (PMMA) 104 - 105 Polystyrol 107 - 108

Harzsorten (Duroplaste) 105 (Phenol) - 107 (Epoxyd)

Butylkautschuk, Teflon und Plexiglas sowie auch Zellulose leiden besonders unter C-Kettenbruch und zeigen daher eine ziemlich schlechte Bestrahlungsbeständigkeit. PVC (Polyvinylchlorid) und Teflon (Polytetrafluoräthylen) kommen übrigens wegen der Abspaltung von HCl bzw. HF für einen technischen Einsatz unter Bestrahlung von vornherein nicht in Frage. Die hohe Bestrahlungsbeständigkeit von Polystyrol (Polyvinylbenzol) ist durch die substituierten Benzolringe bedingt, die durch viele Elektronen-Energie-Niveaus die dispergierende Umsetzung der absorbierten Strahlungsenergie in Anregungs- statt Ionisierungsprozessen begünstigen. Die hohe Bestrahlungsbeständigkeit gilt ggfs. auch für die Lichtdurchlässigkeit von Polystyrol und ist diesbezüglich vergleichbar mit derjenigen von Glasfasern. Eine relativ hohe Toleranzdosis von 107 - 108 Gy weisen auch Polymide, Polyurethane und Silikone auf.

Der elektrische Widerstand von Polymerwerkstoffen, die als Isolatormaterial verwendet werden, ist während der Bestrahlung durch Anregung von ausgelagerten Elektronen zu Leitungselektronen zwar vermindert, aber in wesentlichem Ausmaß nur bei sehr hoher Strahlungsdosisleistung, die für Polymerwerkstoffe ohnehin auszuschließen ist (Abb. 5). Die permanente, d.h. auch nach Bestrahlung verbleibende Verminderung des elektrischen Widerstandes und der elektrischen Durchschlagsfestigkeit wird anscheinend durch dieselben Strahlenschäden in der Polymerstruktur verursacht wie die Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften. Jedenfalls tritt eine wesentliche Beeinträchtigung der elektrischen Isolation unter Bestrahlung nicht früher auf als diejenige der Verformbarkeit bzw. Festigkeit, so daß die mechanischen Eigenschaften als allgemeines Kriterium zur Bestimmung der Bestrahlungsbeständigkeit, d.h. zur Ermittlung der maximal zulässigen Bestrahlungsdosis auch für Polymer-Isolatormaterialien dienen können [2].

Abschließend soll darauf hingewiesen werden, daß eine starke Bestrahlungsschädigung durch Spaltung von Polymermolekülen auch technisch nutzbar sein kann. Das trifft für das Verfahren der "Röntgenlithographie" zu, bei dem eine örtlich stark beschleunigte chemische Auflösung der geschädigten Polymerstruktur nach Bestrahlung angestrebt wird. Durch Bestrahlung mit möglichst parallelen Röntgenstrahlen hinter einer geeignet strukturierten Maske lassen sich anschließend

ungewöhnlich gestaltete Polymerformteile ausätzen, im besonderen für die Mikrotechnik, die auch für eine folgende Abformung geeignet sind.

4.2 Glasmaterialien

Auch in Silikatgläsern und im besonderen in Quarzglas kann es wegen des speziellen Charakters der Si-O-Bindung und der SiO₂-Vernetzung zu Änderungen der Atomanordnung allein durch Ionisierungsprozesse unter Bestrahlung kommen, selbstverständlich aber in viel höherem Maß durch atomare Stoßprozesse unter Teilchenbestrahlung. Da die vergleichsweise lockere, nichtkristalline Glasstruktur vom thermodynamischen Gleichgewichtszustand weit abweicht, führen Atomverlagerungen unter Bestrahlung meistens zur Verdichtung, d.h. zu einer Volumenverminderung. Diese wurde vor allem an Quarzglas untersucht; sie tritt schon bei ziemlich niedriger Bestrahlungsdosis auf und ist oberhalb von 109 Gy bzw. 10²² n/m² als erheblich anzusehen (Abb. 6). Bei dieser Art der Strahlenschädigung ist eine Verminderung der mechanischen Festigkeit nicht zu erwarten, zumal gegebenenfalls sogar mit einem bestrahlungsinduzierten Abbau innerer Spannungen im Glas zu rechnen ist. Eine Ausnahme können inhomogene, wie teilkristalline oder glaskeramische Glasmaterialien machen, in den durch differentielle Volumenänderung unter Bestrahlung innere Spannungen aufgebaut werden. Im übrigen bleibt die Volumenänderung als Bestrahlungseffekt an sich zu beachten, insofern sie Probleme beim technischen Einsatz von Glaskomponenten aufwirft, wie besonders bei der mechanischen Einpassung (Dichtung) und optischen Anpassung (Durchlässigkeit) von Fenstern.

Der Hauptgesichtspunkt für das Bestrahlungsverhalten von Glasmaterialien ist aber die Verschlechterung der Lichtdurchlässigkeit. Diese wird durch das Auftreten zusätzlicher Elektronenenergieniveaus aufgrund von Atomverlagerungen bzw. -bindungsänderungen unter Bestrahlung verursacht. Im wesentlichen ist dabei die Fehlordnung von O-Atomen betroffen sowie die Erzeugung von Elektron/Loch-Paaren (Energiebedarf in SiO₂: 18 eV je Paar) mit anschließendem Elektron- bzw. Loch-Einfang an atomaren Defekten der SiO₂-Netzstruktur. Diese Bildung elektronischer Defekte wird durch vorgegebene Störungen der SiO₂-Vernetzung durch Zusätze zum SiO₂ gefördert, wie Al, P (Doping) und besonders Alkali- und Erdalkali-Metalle (Netzunterbrecher). Dabei spielt die Existenz von freistehenden ("non-bridging") Si-O-Gruppen eine wichtige Rolle.

Elektronen sind damit in kleineren Energiestufen als im unbestrahlten Material anregbar, wodurch sich neue Absorptionsbanden im Bereich des nahen UV und des sichtbaren Lichtes ergeben. Die vom UV her fortschreitende Verminderung der Lichtdurchlässigkeit (Abb. 7) führt zum Eindruck einer Bräunung des Glases. Sie kann schon bei 10² - 10⁴ Gy weit fortgeschritten sein, läßt sich aber mit einer Cer-"Stabilisierung" bis etwa 10⁷ Gy erträglich halten (s. Abb. 7), in erster Linie aber durch Verwendung von reinem Quarzglas. Der Zusatz von 1 - 2 Gew.-% Cer wirkt wegen der komplexen Elektronenstruktur des Cer-Atoms als "Getter" für bestrahlungsbedingte Elektronenstrukturdefekt im Silikatglas.

5. Kristallgitterschäden unter Bestrahlung

Bestrahlungsbedingte Kristallgitterschäden in Werkstoffen werden durch Atomverlagerungen verursacht, die primär zur paarweisen Erzeugung von Leerstellen und Zwischengitteratomen führen. Die Defektpaare werden oft als Frenkel-Paare bezeichnet. Die ursächlichen Atomverlagerungen werden durch atomare Stoßprozesse bewirkt, für die im wesentlichen Bestrahlung mit energiereichen Neutronen oder Ionen in Betracht kommt. Es kann zwar auch unter Elektronenstrahlung zu Atomverlagerungen durch Stoßprozesse kommen, die aber wegen der extrem verschiedenen Masse der Stoßpartner eine verhältnismäßig sehr geringe Ausbeute haben (s.u.). Elektronenbestrahlung ist nur für Forschungsarbeiten interessant, bei denen die Erzeugung jeweils einzelner Frenkelpaare erwünscht ist, im Gegensatz zu den Defektkaskaden, die infolge von Neutronen- oder Ionenstößen auftreten.

Die Basis für die Einschätzung und Analyse der Kristallgitterschädigung ergibt sich durch Berechnung der anteiligen Frenkelpaarerzeugung in "displacements per atom" (dpa), zunächst unabhängig vom weiteren Verbleib der atomaren Kristallgitterdefekte, die allgemein als Punktdefekte bezeichnet werden.

5.1 Berechnung der Punktdefekterzeugung

5.1.1 Auswirkung von Kernstößen durch Neutronen

Der allgemeine Ausdruck für die Konzentration der je Zeiteinheit verlagerten (displaced) Atome lautet:

$$c_{d} = \iint \phi(E) \cdot \sigma(E, E_{p}) \cdot v(E_{p}) dE_{p} dE$$

Hier bedeutet bei Neutronenbestrahlung

- φ (E) dE Neutronenfluß (in n/m²·s) im Intervall dE bei der Neutronenenergie E
- σ (E,E_p) dE_p Stoßquerschnitt der betr. Atomkerne für die Neutronenenergie E und die Erzeugung eines "Primärstoßatoms" der Energie E_p im Intervall dE_p
- v (E_p) Gesamtzahl der Atomverlagerungen in der Defektkaskade eines Primärstoßatoms der Energie E_p

 φ (E) ergibt sich aus dem Spektrum der verwendeten Neutronenquelle, d.h. meistens einer bestimmten Position in einem Kernspaltungsreaktor, neuerdings evtl. auch in einem Kernfusionsreaktor. Da die betr. Neutronenspektren oft nicht hinreichend genau bekannt sind, kann die \dot{c}_d -Berechnung nur für Standardspektren exakt durchgeführt werden. Das Ergebnis wird dann auf vermutlich ähnliche Neutronenspektren mit nur integral gemessenen Neutronenflüssen übertragen (s.u.).

 σ (E,E_p) und v (E_p) sind spezifisch für die Atome der im Werkstoff enthaltenen chemischen Elemente bzw. für seine Kristallstruktur. Es handelt sich also um Materialkenngrößen. σ (E,E_p) ist meistens nicht in voller E_p-Abhängigkeit bekannt und wird daher in der Form

$$\sigma(E,E_p) = \sigma_{total}(E) f(E,E_p)$$

verwendet, in der das Stoßenergiespektrum f von Stoßquerschnitt getrennt ist. σ_{total} wird in dieser engeren Bedeutung meistens als σ (E) bezeichnet und ist für alle chemischen Elemente und in Betracht kommende Neutronenenergien bekannt und tabelliert [5]. Die σ -Werte liegen im wesentlichen im Bereich von 1 - 10

barn (10-24 cm²) und werden mit steigendem Atomgewicht größer. Tab. 4 zeigt einige beispielhafte Werte.

Damit kann man nun einfacher schreiben

$$c_d = \int \phi(E) \cdot \sigma(E) \cdot v(E) dE$$

mit

$$v(E) = \int f(E, E_p) v(E_p) dE_p$$

Zur Bestimmung von v (E) werden die Gesetzmäßigkeiten der Energieübertragung beim elastischen Stoß zugrundegelegt. Der maximale Wert von E_p beträgt dann $4mME/(m+M)^2$, wenn m und M die Massen der Stoßpartner sind. Mit M=A = Atomgewicht der betr. Atome ist m=1 (Atomgewicht des Neutrons); E ist die Neutronenergie. Für die Neutronenergien in Kernspaltungsreaktoren gilt die Annahme isotroper Neutronenstreuung beim Kernstoß als brauchbare Näherung. Dann ist

$$v(E) = \frac{1}{2}v(E_{p,max}),$$

weil v (Ep) proportional zu Ep ist; denn es gilt

$$v(E_p) = \frac{E_p}{k \cdot E_d}, k = 2 - 3$$

 E_d ist die Mindestenergie für die Verlagerung eines Atoms in einen benachbarten Zwischengitterplatz, die aber noch kein stabiles Frenkelpaar ergibt, weil eine spontane Rekombination mit der erzeugten Leerstelle erfolgt. Das Frenkelpaar kann nur durch die Verlagerung eines weiteren Atoms bleibend getrennt werden. Da noch eine überschüssige Energie < E_d aus dem Verlagerungsprozeß verbleibt, ergibt sich der oben eingeführte Faktor 2 - 3. E_d beträgt in Metallen meistens 20 - 40 eV, in keramischen Materialien etwa 50 eV. Einige Werte sind in Tab. 5 zusammengestellt.

Nach diesen Ausführungen ergibt sich

$$c_d = \frac{1}{2.5 E_d} \int \phi(E) \cdot \sigma(E) \frac{2 A}{(A+1)^2} E dE$$

Da Neutronen hoher Energie aber bevorzugt in Vorwärtsrichtung gestreut werden, ergibt die Annahme isotroper Streuung ($\overline{E_p}=1/2~E_{p,max}$) eine gewisse Überschätzung von c_d . In Tab. 6 (aus [6]) sind für einige Elemente entsprechende Korrekturfaktoren bei Spaltungsneutronen-Streuung angegeben. Sie erscheinen nicht besonders gravierend, wenn die Ungenauigkeiten von ϕ (E), σ (E) und E_d in Betracht gezogen werden. Für Fusionsneutronen mit ihrer viel höheren Energie von ursprünglich 14 MeV dürfte die Abweichung von der isotropen Streuung aber gravierend sein, so daß dann das Stoßenergiespektrum f (E, E_p) einer genaueren Betrachtung bedarf.

Für manche Zwecke ist eine grobe Abschätzung von c_d ausreichend, bei der in der obigen Beziehung für E und σ (E) Mittelwerte eingesetzt werden, so daß dann nur der integrale schnelle Neutronenfluß

$$\int_{E_{min}}^{\infty} \phi(E) dE$$

bekannt sein muß. Die Atomverlagerungsrate für E < E_{min} wird als vernachlässigbar angesehen. Meistens wird E_{min} = 100 keV verwendet. Mit E_{min} = 1 MeV wird die Vernachlässigung zu groß, so daß eine Korrektur zur Anpassung an c_d -Werte erfolgen sollte, die mit E_{min} = 100 keV bestimmt werden (s.u.). Der Neutronenfluß in Bestrahlungsexperimenten wird meistens durch zeitintegrierte Messung der sogenannten Neutronenfluenz

$$\int \int_{E_{min}}^{\infty} \phi(E) dE dt$$

ermittelt (schnelle Neutronen/ m^2), die in die Abschätzung von c_d zur unmittelbaren Bestimmung von c_d (in dpa) eingesetzt werden kann.

5.1.2 Einfluß von Ionisierungsprozessen

Ein wichtiger Gesichtspunkt für die Bestimmung von c_d bzw. c_d ist bisher noch nicht erwähnt worden: Die durch einen Neutronenstoß übertragene Energie E_p wird nicht vollständig in Atomverlagerungen umgesetzt. Bei hohem $E_p > A$ keV (A = Atomgewicht des Primärstoßatoms) erfolgt die Abbremsung des Primärstoßatoms zunächst überwiegend durch Ionisierungsprozesse, die fast nur Wärmeproduktion zur Folge haben. Die angegebene Energieschwelle entspricht etwa der Übereinstimmung von Primärstoßatom- und Valenzelektronenumlauf-Geschwindigkeit. Offenbar ist die Berücksichtigung des Ionisierungsenergieverlustes besonders wichtig für leichtatomige, i.b. keramische Materialien (Neutronen-Schwellenergie $E_{lonis.} \approx E_{p,lonis.} \cdot A/2$ (s.o.) = $A^2/2$) und andererseits auch für Fusionsneutronen wegen ihrer sehr hohen Energie. Gegebenenfalls muß für die Berechnung von c_d das Verhältnis der Energieverluste je Weglänge des Primärstoßatoms ("Bremskraft") durch Atomstöße bzw. durch Ionisierungsprozesse bekannt sein. Dann ergibt sich

$$E_{p,Sto\beta} = \int_0^{E_p} \frac{(dE/dx)_{Sto\beta}}{(dE/dx)_{Sto\beta} + (dE/dx)_{Ionis}}$$

Abb. 8 zeigt betreffende Daten für Graphit, die über Atomgewichts- und Ordnungszahl-Korrelationen auch für andere leichtatomige Materialien nutzbar gemacht werden können (s.u.). Für mittlere und hohe Atomgewichte reicht meistens eine Näherungsbeziehung der Form

$$\dot{c}_{d} = \frac{1}{2.5 E_{d}} \left\{ \int_{E_{min.}}^{E \ lonis.} ... (s.o.) ... dE + \frac{2 A}{(1+A)^{2}} E_{lonis.} \int_{E_{lonis.}}^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE \right\}$$

5.1.3 Atomverlagerungsrate in keramischen Werkstoffen

Für metallische Werkstoffe ist eine derartige Beziehung zur Berechnung der Atomverlagerungsrate unter Neutronenbestrahlung ohne weiteres anwendbar. Für keramische Materialien ergibt sich - abgesehen von dem höheren Ionisierungsenergieverlust wegen niedriger Atomgewichte (s.o.) - die zusätzliche Schwierigkeit, daß es sich im allgemeinen um Verbindungen mehrerer Atomarten handelt. Dadurch würde bei exakter Berechnung eine detaillierte Behandlung

der Sekundärstoßfolgen erforderlich, die jedoch bisher nirgends erfolgt ist. Man hat sich auf die Anwendung des oben dargestellten Berechnungsverfahrens mit gemittelten Stoßquerschnitten, Atomgewichten und Verlagerungsenergien beschränkt, oder man hat die mit verschiedenen Atomarten besetzten Teilgitter des Verbindungskristalls vollständig getrennt behandelt. Die nach dem letztgenannten Verfahren berechnete Atomverlagerungsrate (in dpa/ 10^{25} nm- 2) in C (Graphit), Al₂O₃ und SiC ist in Tab. 7 für zwei verschiedene Reaktorneutronenspektren (s. Abb. 3) mit verschiedenen E_{min} -Grenzen angegeben. Diese sind der Energiegruppenstruktur des verwendeten σ (E)-Datensatzes angepaßt. Es zeigt sich, daß das Ergebnis nur mäßig von der Modifikation des Neutronenspektrums abhängt, aber sehr empfindlich gegen eine Erhöhung von $E_{min} > 100$ keV ist. Die dpa-Rate liegt für $E_{min} = 1$ MeV etwa um einen Faktor 2 höher als für $E_{min} = 0.1$ MeV. Das ist wichtig für den Vergleich von Bestrahlungsversuchsergebnissen bei Neutronenfluenz-Angaben mit verschiedenen E_{min} .

5.1.4 <u>Ionenbestrahlung</u>

Im Fall der Bestrahlung mit Ionen gelten für die Stoßenergieübertragung die gleichen Gesetzmäßigkeiten wie beim Neutronenstoß. Der Radius des Stoßquerschnitts ergibt sich als

$$r_{StoB} = \frac{(m+M)z \cdot Z \cdot e^2}{M \cdot E}$$

mit den Massen m, M und Ordnungszahlen z, Z des einfallenden Ions bzw. des gestoßenen Atoms, der Ionenenergie E und der elektrischen Elementarladung e. Wegen der im Vergleich zu Primärstoßatomen bei Neutronenbestrahlung viel höheren Ionenenergie ist aber der durch Ionisierungsprozesse verbrauchte Energieanteil viel größer. Die Ermittlung des Stoßenergieanteils muß daher für die jeweils betreffende Ion/Materialatom-Kombination auf einer ähnlichen Datenbasis erfolgen, wie sie in Abb. 8 für Primästoßatome in Graphit dargestellt ist, meistens für erheblich höhere Anfangsenergie. Wegen der hohen Bremskraft dE/dx, die sich durch die starke Coulomb-Wechselwirkung der Ionen ergibt, ist die Eindringtiefe der Strahlung vergleichsweise gering (s. Abschnitt 2.4). Wegen der gegenläufigen Energieabhängigkeit von (dE/dx)_{Ionis} und (dE/dx)_{Stoß} ergibt sich eine ausgeprägt inhomogene Verteilung der Atomverlagerungsrate über der Probentiefe. Die in Bestrahlungsversuchen meistens erwünschte homogene Verteilung

kann durch Modulation der Anfangsenergie der Ionen in Teilchenbeschleuniger und damit der Eindringtiefe im bestrahlten Material erreicht werden.

5.2 Folgen der Punktdefekterzeugung

5.2.1 Atomplatzwechsel

Atomverlagerungen unter Bestrahlung führen in jedem Fall, d.h. auch bei spontaner Rekombination von Leerstellen mit Zwischengitteratomen, zu bleibenden Atomplatzwechseln. Da die meisten verlagerten Atome nur um wenige Atomdurchmesser verschoben (Abb. 9) und durch Rekombinationsvorgänge sogar partiell rückverlagert werden, kann für eine grobe Abschätzung angenommen werden, daß die Platzwechselhäufigkeit (P, für benachbarte Atome) der Verlagerungsrate entspricht: $P \approx c_d$. Die Atomplatzwechsel verursachen einen bestrahlungsbedingten Diffusionseffekt. Im kubischen Kristallgitter mit Atomabstand dergibt sich der Diffusionskoeffizient $D_P = 1/6$ d 2 P $\approx 1/6$ d 2 c 4 . Für einen technisch relevanten schnellen Neutronenfluß von 10^{15} n/cm 2 ·s (Schnellbrüter- oder Fusionsreaktor) ist $c_d \approx 10^{-6}$ s (s. Tabelle) und damit $D_P \approx 10^{-22}$ cm 2 /s (1/6 d $^2 \approx 10^{-16}$ cm 2). Technisch beachtliche Diffusionsgeschwindigkeiten (z.B. für Kriechoder Rekristallisationsvorgänge) ergeben sich aber erst bei $D \geq 10^{-18}$ cm 2 /s, so daß rein bestrahlungsbedingte Atomplatzwechsel diesbezüglich vernachlässigt werden können.

5.2.2 Permanente Kristalldefekte

Die durch Atomverlagerungen unter Bestrahlung erzeugten Punktdefekte, d.h. Leerstellen und Zwischengitteratome, verschwinden größtenteils sofort wieder durch spontane Leerstellen + Zwischengitteratom-Rekombination. Das ist angesichts der lokalen Defekthäufungen (s. Abb. 9) verständlich und betrifft grob geschätzt etwa 90 % der Erzeugungsrate. Die verbleibenden Punktdefekte haben zwei wichtige Auswirkungen: 1) die Erhöhung der Leerstellenkonzentration gegenüber derjenigen im thermischen Gleichgewicht, 2) die Kondensation von Zwischengitteratomen bzw. Leerstellen zu Defektaggregaten.

Die bestrahlungsbedingte Leerstellenkonzentration c_{LS} stellt sich im dynamischen Gleichgewicht zwischen Erzeugung und diffusionsgesteuerter Ausheilung ein. Erfolgt die Ausheilung durch Rekombination mit Zwischengitteratomen, so gilt c_{LS}

 $=\sqrt{\dot{c}_d/v}$, worin v die Sprunghäufigkeit der Zwischengitteratome ist ($v \propto exp$ (-a/T)). Erfolgt die Ausheilung dagegen durch Anlagerung von Leerstellen an "Senken", bei denen es sich meistens um Versetzungen im Kristallgitter handelt, so gilt $c_{LS}=\dot{c}_d/1/6$ d 2 α v_{LS} , worin d der Atomabstand (im kubischen Gitter), α die Senken- bzw. Versetzungsdichte und v_{LS} die Sprunghäufigkeit der Leerstellen ist ($v_{LS} \propto exp$ (- b/T)). Die technische Bedeutung der erhöhten Leerstellenkonzentration liegt in der entsprechenden Beschleunigung von Diffusionsvorgängen, die unter Nutzung vorhandener Leerstellen ablaufen. Der Diffusionskoeffizient ist dann bestimmt durch die Beziehung

$$D = \frac{1}{6} d^2 \cdot c_{LS} \cdot v_{LS}, = c_{d}/\alpha$$

im Fall der Senkenausheilung. Sie ist maßgebend für die in Abb. 10 dargestellt Erhöhung des Diffusionskoeffizienten unter Bestrahlung im Vergleich zur thermischen Diffusion.

Die Bildung von ebenen Leerstellen- oder Zwischengitteratome-Aggregaten in bzw. zwischen den Kristallgitterebenen führt zur Erzeugung von Versetzungsringen, deren Dichte dann gemäß der obigen Beziehung auch auf c_{LS} zurückwirkt. Im wesentlichen liegt ihre Bedeutung aber in der Beeinflussung der Festigkeitseigenschaften bestrahlter Werkstoffe. Es ist übrigens nicht auszuschließen, daß in dieser Hinsicht auch schon ungeordnete Ansammlungen, sogenannte Cluster von Punktdefekten wirksam sind. Leerstellen können schließlich auch räumliche Aggregate, d.h. Poren bilden, die zu beträchtlicher Volumenvergrößerung ("Schwellung") führen können (Abb. 11).

5.2.3 Kristallographische Merkmale von Bestrahlungsdefekten

Durch die Einlagerung von Zwischengitteratomen erfährt das Kristallgitter eine Aufweitung, die sich durch genaue Messung der entsprechenden Gitterkonstanten-Vergrößerung (in der Größenordnung von 10^{-4} bis 10^{-3}) bestimmen läßt (Abb. 12). Sie ist mit einer gleichwertigen Volumenzunahme verbunden, die prozentual etwa mit dem 2-fachen der Zwischengitteratom-Konzentration übereinstimmt. Die Sättigung der Volumenzunahme durch bestrahlungsbedingte Punktdefekte liegt meistens im Bereich von $\delta V = 2 \cdot 10^{-3} - 2 \cdot 10^{-2}$. Nur im hexagonalen Graphit-Schichtgitter werden wegen der anisotropen Einlagerung von Zwischengitteratomen extrem große Gitteraufweitungen in c-Richtung bis zu $\delta c \approx$

5·10-2 erreicht. Dem entspricht eine ungewöhnlich hohe Energiespeicherung in den Gitterdefekten ("Wigner-Energie"), die bei Raumtemperatur bis zu 2,5 kJ/g betragen kann und in frühen graphitmoderierten, luftgekühlten Kernreaktoren bei unkontrollierter Freisetzung zur Brandursache werden konnte. In anderen Materialien ist die spezifische Energiespeicherung durch Strahlenschäden viel geringer und hat daher wenig Interesse gefunden. Sie gibt allerdings den Antrieb zur Ausheilung der Gitterdefekte bei hinreichend hoher Temperatur (s.u.).

Im Zusammenhang mit der Messung der Gitterebenenabstände durch Röntgenstrahlenbeugung kann auch die "Gitterverzerrung" als Schwankung der Ebenenabstände ermittelt werden. Sie gibt einen halbquantitativen Aufschluß über die Bildung von Defektaggregaten, weil Punktdefekte keine wesentliche Gitterverzerrung verursachen.

Die äußere Volumenzunahme von bestrahlten Proben kann mit ähnlicher Empfindlichkeit gemessen werden wie die Gitteraufweitung. Sie ergibt jedoch keinen unmittelbaren Aufschluß über die bestrahlungsbedingte Kristalldefektstruktur, weil sich die Beiträge von Zwischengitteratomen, Leerstellen (Konzentrationszunahme auch noch nach Beginn der Zwischengitteratom-Aggregation) und Defektaggregaten (im besonderen Leerstellen-Poren) überlappen, evtl. sogar noch mit der Auswirkung von Mikrorissen durch anisotrope Gitteraufweitung in nichtmetallischen Materialien. Daher wird die Messung der Volumenvergrößerung in erster Linie zur Untersuchung ausgeprägter Poren-Schwellung herangezogen (s. Abschnitt 6,2,1).

Die durch Defektaggregation entstandenen Häufungen (Cluster), Versetzungringe und Poren können durch hochvergrößernde Transmissionselektronenmikroskopie direkt sichtbar gemacht werden. Ihre räumliche Belegungsdichte erreicht maximal etwa 10¹⁷/cm³, und entspricht ggfs. einer Versetzungsdichte von 10¹¹ - 10¹²/cm².

5.2.4 Thermische Ausheilung von Bestrahlungsdefekten

Mit zunehmender Temperatur kann sich die Konzentration permanenter Bestrahlungsdefekte sowohl unter als auch nach Bestrahlung vermindern. Diffundierende Punktdefekte rekombinieren (Zwischengitteratome mit Leerstellen), sammeln sich zu Aggregaten oder verschwinden an vorhandenen Senken wie Versetzun-

gen, Versetzungszellwänden, Korngrenzen und Poren. Diese Punktdefektausheilung findet im allgemeinen etwa im Temperaturbereich von 0,2 - 0,4 T_s (T_s = Schmelzpunkt in K) statt, in dessen unterem und oberem Teil die durch Bestrahlung entstandenen Zwischengitteratome bzw. Leerstellen beträchtliche thermische Beweglichkeit erreichen. Die Abnahme der Zwischengitteratom-Konzentration läßt sich ziemlich deutlich am Rückgang der entsprechenden bestrahlungsbedingten Kristallgitteraufweitung erkennen (Abb. 13), die Abnahme der Leerstellen-Konzentration in günstigen Fällen am Rückgang des entsprechenden Anteils der bestrahlungsbedingten Volumenzunahme.

Die durch Defektaggregation unter Bestrahlung entstandenen stabileren Gitterdefekte, wie Versetzungsstrukturen oder Porenpopulationen, können erst durch normale thermische Diffusion ausheilen, bei der nicht nur die Punktdefektbewegung sondern auch die Bildung von Leerstellen thermisch aktiviert wird. Diesbezüglich beträchtliche Diffusionsgeschwindigkeiten werden erst im Temperaturbereich $\geq 0.5~T_S$ erreicht. In einer ersten Erholungsphase der Defektstruktur kann die Restrukturierung zunächst sogar zu verstärkter Auswirkung auf manche Materialeigenschaften führen. Das gilt im besonderen für die Porenschwellung unter Bestrahlung, die durch das Wachstum großer Poren anstelle zahlreicherer kleiner Poren erheblich vergrößert werden kann.

6. Eigenschaftsänderungen kristalliner Materialien unter Bestrahlung

6.1 Amorphisierung

Prinzipiell ist zu erwarten, daß die Punktdefekt-Konzentration in Kristallen unter Bestrahlung nicht beliebig hoch werden kann. Wenn unter geeigneten Bedingungen die bestrahlungsbedingte Kristallgitterdehnung mit der Schmelzdehnung bzw. die bestrahlungsbedingte Leerstellen-Konzentration mit derjenigen am Schmelzpunkt vergleichbar wird, d.h. bei einer Punktdefekt-Konzentration in der Größenordnung von 10-2, ist mit einem Übergang von der kristallinen zur amorphen Struktur zu rechnen. Meistens wird dieses Defektniveau nicht erreicht, weil die Tendenz zur Rückordnung im Kristall überwiegt.

Es ist aber bekannt, daß es Materialien und Bestrahlungsbedingungen gibt, bei denen eine Amorphisierung stattfinden kann. Eine entsprechende Umwandlung wurde schon früher in Uranmineralien gefunden, die einer natürlichen inneren Bestrahlung mit α-Teilchen ausgesetzt waren, und wurde dort als "Metamiktisierung" bezeichnet. Unter den technisch genutzten Materialien hat sich kristallines SiO₂ (Quarz) als besonders empfindlich gegen Amorphisierung unter Bestrahlung erwiesen. Schon bei der relativ niedrigen Schadensdosis von einigen 0,1 dpa unter Neutronenbestrahlung geht Quarz in einen glasartigen Zustand über, dessen Dichte nur wenig oberhalb derjenigen von Quarzglas liegt (s. Abb. 6). Für diese Umwandlung dürfte die Neigung der stabilen SiO₄-Baugruppen zur Vernetzung in unspezifischer Orientierung die entscheidende Rolle spielen, wie auch für die Glasbildung im allgemeinen. Sie müßte mit entsprechenden Eigenschaftsänderungen wie Festigkeitsabnahme, Verminderung der Wärmeleitfähigkeit und Beschleunigung von Diffusionsprozessen verbunden sein, die bisher aber in diesem Zusammenhang noch nicht untersucht worden sind.

Ein beschleunigter Diffusionstransport wäre von besonderem technischen Interesse für die erwünschte schnelle Freisetzung von Tritium aus Lithiumsilikat-Brutstoff in Kernfusionsreaktoren (s. Abschnitt 3,3). Es gibt Hinweise auf einen Amorphisierungseffekt in Lithiumsilikat unter Neutronenbestrahlung. Dieser ist aber keineswegs zwangsläufig für Silikate in ähnlicher Auswirkung zu erwarten, wie er für reines SiO₂ bekannt ist.

Nur unter Bestrahlungsbedingungen, bei denen die Rückordnung des defekten Kristallgitters besonders schwierig ist, wurde eine Amorphisierung auch in nichtsilikatischen Verbindungen beobachtet. Solche Bedingungen liegen bei sehr hoher Defekterzeugungsrate, wie unter Ionenbestrahlung in entsprechend dünnen Proben (s. Abschnitt 2.4), und niedriger Bestrahlungstemperatur vor. So fand in SiC eine Amorphisierung unter Cr, Al oder N-Ionen-Bestrahlung bis zu einer Schadensdosis von 0,3 dpa bei Raumtemperatur statt, während in Al₂O₃ ähnliches erst im Tieftemperaturbereich (~ 77 K) beobachtet wurde. Die überwiegenden Bindungsarten (kovalent bzw. ionar) sind wahrscheinlich maßgebend für die verschiedene Empfindlichkeit gegen diese "Zwangsamorphisierung", die zwar prinzipiell interessant ist, aber keine technische Bedeutung hat.

6.2 Volumenänderung

6.2.1 Porenschwellung

Bei der kontinuierlichen Ausheilung von Punktdefekten unter Bestrahlung ergibt sich ein geringer Unterschuß der Anlagerung von Leerstellen an Versetzungen (als "Senken") im Vergleich zu derjenigen von Zwischengitteratomen. Die entsprechend überschüssige Leerstellenkonzentration führt bei hoher Schadensdosis (≥ 10 dpa) zur Bildung von Poren als "Leerstellen-Ausscheidungen" (s. Abb. 11). Im Vergleich zum Anstieg der Punktdefektkonzentration und der Versetzungsdichte entwickelt sich diese Porosität stark verzögert. Sie kann dann aber zu einer beträchtlichen Volumenvergrößerung im %-Bereich führen, die evtl. auch technische Probleme aufwirft.

Die Porenschwellung unter Neutronen- oder Ionenbestrahlung ist zwar allgemeiner Natur, wurde aber vorzugsweise an metallischen Werkstoffen untersucht. In Abb. 14 ist die Parameterabhängigkeit der betr. Volumenzunahme von hochwarmfesten austenitischen Cr-Ni-Stählen dargestellt, die als Kernstrukturmaterialien für Schnellbrüter-Kernreaktoren in Betracht kommen. Es zeigt sich, daß es zu Volumenvergrößerungen > 10 % mit starker Neutronendosis (bzw. dpa) - und Temperaturabhängigkeit kommen kann. Dadurch ergeben sich technische Probleme der Kühlkanalverengung sowie der Brennstab- und Hüllkastenverbiegung in Schnellbrüter-Brennelementen, aber auch Probleme der Wandverformung in der Fusionsreaktor-Plasmakammer, meistens aufgrund inhomogener Schwellung in Neutronenfluß- und Temperaturgradienten.

Der zwangsläufige Temperatureinfluß folgt den Gesetzmäßigkeiten der Leerstellendiffusion. Die durch Bestrahlung erzeugten Leerstellen werden erst bei Temperaturen $\geq 0.35 \, T_s \, (T_s = Schmelzpunkt in K)$ so beweglich, daß sie sich zu Poren

sammeln können. Andererseits kann ein ausheilender Abbau der Porosität erst durch rein thermische Diffusion (einschließlich thermischer Leerstellenerzeugung) erfolgen, die erst im Temperaturbereich $> 0.5 T_s$ hinreichend wirksam ist.

Der ebenfalls zwangsläufige Einfluß der Neutronendosis φ t entspricht im allgemeinen einer Beziehung $\delta V \propto (\varphi t)^n$ mit n=1,3 - 2,0, d.h. wenn es erst einmal zur Porenkeimbildung gekommen ist, schreitet die Porenschwellung selbstverstärkend fort. Experimentell bedingt konnte über die prinzipiell zu erwartende Sättigung der Porenschwellung bisher keine Klarheit geschaffen werden. Es wurden aber Möglichkeiten gefunden, die Schwellrate auf vergleichsweise niedrigem Niveau zu halten. Wie Abb. 14 zeigt, wurde sie in erster Linie durch Kaltverformung der Stähle stark vermindert, weil die dabei erzeugten Versetzungen als Leerstellen-Senken der Porenbildung entgegenwirken. Auch gewissen Verschiebungen im Cr, Ni- und Si-Gehalt der Stähle schienen eine Verminderung der Schwellrate zu versprechen. Besonders viel verspricht aber der Übergang zum Einsatz von ferritisch-martensitischen Cr-Stählen, soweit das die Betriebstemperatur der betreffenden Kernreaktorkomponenten zuläßt. Im ferritischen Kristallgitter scheint die Porenbildung prinzipiell schwieriger zu sein als im austenitischen.

Porenbildung unter Bestrahlung wurde auch in nichtmetallischen Materialien, z.B. in Al_2O_3 beobachtet. Sie wurde aber nicht in unmittelbare Beziehung zur Volumenvergrößerung gebracht, die hier - im Gegensatz zu Metallen - weitgehend durch Punktdefekte im Kristall bestimmt ist (s. Abschnitt 5.2.3). Es ist zu vermuten, daß bei relativ großer Volumenzunahme (>1 %) in Materialien mit ionarer Atombindung, wie besonders in Al_2O_3 , unter Bestrahlung die Porenbildung eine beträchtliche Rolle spielt.

6.2.2 <u>Graphit-Schrumpfung und -Schwellung</u>

Die Volumenänderung von Graphit-Werkstoffen unter Bestrahlung bedarf einer besonderen Betrachtung wegen der sehr spezifischen Graphit-Mikrostruktur. Hier findet zunächst eine beträchtliche Schrumpfung von einigen % (linear) statt, ehe erst bei einer ziemlich hohen Schadensdosis von etwa 10 dpa die allgemein zu erwartende Volumenzunahme durch Bestrahlung überwiegt (Abb.). Die anfängliche Schrumpfung ist durch beträchtliche Anteile von amorphem Kohlenstoff in Graphit-Werkstoffen bedingt, die unter Bestrahlung eine fortschreitende, verdichtende Graphitierung erfahren, d.h. eine Vernetzung von C-Ringen, die sich der Graphit-Schichtstruktur nähert. Es liegt hier eine gewisse Ähnlichkeit mit

der Vernetzung von Polymermolekülen in Thermoplasten vor (s. Abschnitt 4.1), andererseits auch mit der Schrumpfung von Quarzglas unter Bestrahlung (s. Abschnitt 4.2). Es ist nicht auszuschließen, daß für die anfängliche Dichtezunahme von Graphit-Werkstoffen auch bestrahlungsbedingte Sinterung eine Rolle spielt, d.h. ein gerichteter Materietransportprozeß, der durch die hohe Beweglichkeit von bestrahlungsinduzierten Zwischengitteratomen im Graphit-Schichtgitter ermöglicht wird.

Die bei hoher Bestrahlungsdosis überwiegende Volumenvergrößerung wird, wie auch bei anderen Nichtmetallen, durch eine relativ hohe Konzentration von Punktdefekten im Kristallgitter verursacht. In Abschnitt 5.2.3 wurde bereits darauf hingewiesen, daß der betreffende Effekt durch ausgeprägt anisotrope Einlagerung von Zwischengitteratomen im Graphit-Schichtgitter besonders groß ist. Abb. 16 zeigt, daß sich die Gitterdehnung mit steigender Temperatur bis etwa 1000 °C beschleunigt, wahrscheinlich wegen der zunehmenden Beweglichkeit der Zwischengitteratome. Bei höherer Temperatur wird das Verhältnis von Dehnungs- zu Schrumpfungsrate wieder kleiner. Hier kann die einsetzende thermische Bewegung von Leerstellen zu einer häufigeren Rekombination mit Zwischengitteratomen führen; möglicherweise wird andererseits die bestrahlungsbedingte Graphitierung bzw. Sinterung (s.o.) durch thermische Aktivierung unterstützt.

Da die Auslegung von Kernreaktorkomponenten aus Graphitwerkstoffen in erster Linie auf die unvermeidliche Schrumpfung Rücksicht nehmen muß, wird der Nulldurchgang der Dehnung oft zur Festlegung der "Lebensdauer"-Neutronenfluenz für die betreffenden Graphitwerkstoffe und Betriebstemperaturen herangezogen.

6.2.3 Graphit-Abtragung durch Ionenstöße

Es erscheint passend in diesem Zusammenhang auch einen sehr spezifischen Bestrahlungseffekt vorzustellen, der an Graphitwerkstoffen im Hinblick auf den Einsatz in Kernfusionsreaktoren beobachtet und untersucht wurde. Dort werden Schutzplatten aus Graphit oder CFC (s. Abschnitt 3.3) von erheblichen Teilchenströmen mit relativ niedrigen Teilchenenergien ≤ 1 keV getroffen. Es handelt sich dabei um Deuterium, Tritium und Helium-Ionen (evtl. auch Neutralatome), die aus der Randzone des Fusionsplasmas entweichen bzw. ausgesteuert werden.

Die höchste derartige Belastung tritt an den dafür speziell vorgesehenen Divertor-Prallplatten auf.

Die Teilchen können nicht in das Innere der Platten eindringen. Ihre Energie ist aber ausreichend, um C-Atome aus der Oberflächenschicht durch Stoßprozesse abzulösen oder in Zwischengitterpositionen zu verlagern. Im ersten Fall kommt es zu einem verdampfungsähnlichen "Zerstäubungs"-Prozeß, im zweiten Fall kann wegen der besonders schwachen Bindung und hohen Beweglichkeit der Zwischengitteratome die thermische Verdampfung beträchtlich erleichtert werden. Abb. 17 zeigt die Zerstäubungsausbeute (sputtering yield) in C-Atom je auffalendes D-, T- bzw. He-Ion in Abhängigkeit von der Temperatur. Bei niedriger Temperatur (≤ 500 K) wird der reine Zerstäubungseffekt angezeigt, bei hoher Temperatur (> 1000 - 1300 K) die mit der Temperatur stark ansteigende bestrahlungsbeschleunigte Verdampfung. Das zwischenliegende Maximum beruht auf der Methan (CH₄)-Bildung mit den D- und T-Ionen und zeigt somit keinen eigentlichen Bestrahlungseffekt.

Die bestrahlungsbeschleunigte Verdampfung bei hoher Betriebstemperatur der Divertorschutzplatten könnte nach diesen Ergebnissen von Laborversuchen zu einem unzulässig schnellen Abtrag der Plattendicke führen, so daß für die Divertorauslegung vorsorglich eine maximale Plattentemperatur von etwa 1000 °C festgelegt wurde.

6.3 Eigenschaftsänderungen keramischer Werkstoffe

Beim Einsatz keramischer Werkstoffe spielt oft die thermische Belastbarkeit hinsichtlich des Widerstandes gegen Rißbildung durch thermische Spannungen eine entscheidende Rolle. Dieser "Thermoschockwiderstand" wird im wesentlichen beschrieben durch die Beziehung

$$R = \frac{\lambda \cdot \sigma_B}{\alpha \cdot E} \text{ , in } W/m$$

mit der Wärmeleitfähigkeit λ , dem thermischen Ausdehnungskoeffizienten α , dem Elastizitätsmodul E und der Zugfestigkeit σ_B , die an keramischen Werkstoffen im allgemeinen als Biegebruchfestigkeit gemessen wird. Hier interessiert also in erster Linie die Änderung dieser Eigenschaften unter Bestrahlung. Allerdings besteht wohl allgemein die Ansicht, daß α von vornherein als strahlungsunemp-

findlich anzusehen ist, soweit nicht gravierende Änderungen der Atombindungen oder der Kristallstruktur auftreten, wie Zersetzungs- oder Vernetzungsprozesse sowie Umwandlungen kristallin \leftrightarrows amorph, evtl. sogar Mikrorißbildung. Normale Kristallgitterdefekte unter Bestrahlung haben keinen wesentlichen Einfluß auf den anharmonischen Anteil der Gitterbindungen bzw. Gitterschwingungen, der für die thermische Ausdehnung maßgebend ist.

6.3.1 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit von keramischen Werkstoffen, die festkörperphysikalisch zu den Isolatoren gehören, ist sehr empfindlich gegen Kristallgitterdefekte. Im Gegensatz zu Metallen, in denen der Wärmetransport von den Leitungselektronen übernommen wird, erfolgt er in Isolatoren durch Gitterschwingungen, deren Quanten als Phononen bezeichnet werden. Unter dem Gesichtspunkt des Bestrahlungseinflusses hängt die Wärmeleitfähigkeit dann im wesentlichen von der mittleren freien Weglänge I der Phononen zwischen hemmenden Wechselwirkungsprozessen ab:

$$\lambda = \frac{1}{3} c_p \cdot \rho \cdot v \cdot I$$

c_p ist die spezifische Wärme, ρ die Dichte, v die Schallgeschwindigkeit.

Bei hohen Temperaturen, d.h. bei hoher Phononendichte ist I durch Phonon-Phonon-Wechselwirkung bestimmt, und zwar durch sogenannte Phonon-Phonon-Umklappprozesse, die zu einer Umkehrung der Ausbreitungsrichtung betreffender Phononen führen können. λ folgt dann einer 1/T-Abhängigkeit. Durch Streuung der Phononen an Kristallgitterdefekten ergibt sich ein zusätzlicher, weniger temperaturabhängiger Wechselwirkungsprozeß, der sich mit abnehmender Temperatur maßgebend bemerkbar macht. Die Wärmeleitfähigkeit wird kleiner bei flacherer Temperaturabhängigkeit (Abb. 18). Die theoretische Behandlung der Phononenstreuung an Punktdefekten [14] ergibt die Beziehung

$$\lambda = a \cdot T - 1/2$$

Die Streuung an ausgedehnten Defektaggregaten, die nach Sättigung der Punktdefektkonzentration entstehen, führt zu einer weiteren Verringerung der Wärmeleitfähigkeit und Abflachung ihrer Temperaturabhängigkeit, die sich durch eine Beziehung der Form

$$\lambda = a T^{-1/2} \left(1 - \frac{b}{T} \right)$$

beschreiben läßt. Abb. 19 zeigt $\lambda = f(T)$ -Kurven, die tatsächlich viel flacher als $T^{-1/2}$ verlaufen.

Die Erholung der verschiedenen Defekttypen macht sich bei den in Abschnitt 5.2.4 angegebenen "homologen" (jeweils im Verhältnis zum Schmelzpunkt angegebenen) Temperaturen bemerkbar. Abb. 20 demonstriert für Al₂O₃ den Einfluß der Punktdefektausheilung auf die Verminderung der Wärmeleitfähigkeit unter Bestrahlung. Sie zeigt, daß Punktdefekte viel wirksamer sind als Defektaggregate und schon bei sehr niedriger Schadensdosis zur Sättigung der Wärmeleitfähigkeitsabnahme führen. Andererseits bringen Defektaggregate, wenn auch bei langsamerer Entwicklung, einen ähnlich großen Effekt, der dann erst bei angemessen hoher Temperatur (> 0,5 T_s) ausheilbar ist.

Bei sehr tiefen Temperaturen unterhalb der Raumtemperatur führt die mit der Phononendichte abnehmende Phonon-Phonon-Wechselwirkung zunächst zu extrem hoher Wärmeleitfähigkeit, ehe dann der Abfall der Phononendichte in der Auswirkung auf die spezifische Wärme (c \propto T³, $\lambda \propto$ c, s.o.) maßgebend wird. Abb. 21 zeigt das betreffende hohe Maximum der Wärmeleitfähigkeit von Al₂O₃ und SiO₂-Einkristallen (Saphir bzw. Quarz). Es ist klar, daß sich in diesem Temperaturbereich die bestrahlungsbedingten Punktdefekte im Kristallgitter durch die vergleichsweise geringe Temperaturabhängigkeit ihrer Auswirkung auf den Phononentransport besonders stark bemerkbar machen. Schon bei einer Schadensdosis von 0,01 dpa (≈ 10²³ n/m²) ist der Wärmeleitfähigkeits-Peak vollständig abgebaut. Dieser Effekt ist nicht nur grundsätzlich sondern auch technisch interessant, und zwar für die Auslegung von vakuumdichten Fenstern in Hochleistungs-Millimeterwellen-Heizsystemen für das Fusionsplasma in Kernfusionsreaktoren. Solche Fenster unterliegen einer so starken dielektrischen Heizung, daß sie zur Nutzung der maximalen Wärmeleitfähigkeit (und übrigens auch der starken Verminderung des dielektrischen Verlustes, s. Abschnitt 6.3.2.2) im Tieftemperaturbereich gekühlt werden sollen. Offenbar muß dann auch für ihre hinreichende Abschirmung vor der Neutronenstrahlung aus dem Fusionsplasma gesorgt werden. Es bleibt noch anzumerken, daß die Situation für metallische Komponenten im Tieftemperaturbereich ähnlich ist, weil dort die elektronische Wärmeleitung entfällt.

Graphit-Werkstoffe verhalten sich hinsichtlich ihrer Wärmeleitfähigkeit und deren Bestrahlungsempfindlichkeit im Prinzip ähnlich wie keramische Materialien, weil der Wärmetransport im Graphit-Schichtkristallgitter im wesentlichen durch Phononen in den dicht gepackten Schichten geleistet wird.

6.3.2 Elektrische Eigenschaften

6.3.2.1 Leitfähigkeit

Die in Materialien unter Bestrahlung absorbierte Energie wird zum großen Teil in Ionisierungsprozessen umgesetzt, die schließlich zur Elektronenanregung führen können, d.h. zur Anhebung von Elektronen in normalerweise unbesetzte Energieniveaus. In Isolatoren ergibt sich damit eine bestrahlungsinduzierte Besetzung von Leitungsbändern mit entsprechender Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit. Abb. 22 zeigt diesen Effekte für Al₂O₃ unter Bestrahlung. Im allgemeinen ergibt sich näherungsweise eine Proportionalität zwischen bestrahlungsinduzierter Leitfähigkeit und Bestrahlungsdosisleistung (Gy/s). Für eine technisch beachtliche Leitfähigkeit (bzw. Verminderung des spezifischen elektrischen Widerstands) in keramischen Isolatoren hoher Qualität ist eine Bestrahlungsdosisleistung in der Größenordnung von 1000 Gy/s erforderlich, die in relevanten kerntechnischen Komponenten nur selten erreicht wird und jedenfalls ohne Probleme vermieden werden kann. Es handelt sich hier übrigens um eine transiente Eigenschaftsänderung, die auf einem dynamischen Gleichgewicht von Elektron/Loch-Paar-Erzeugung und -Rekombination beruht und bei Ausfall der Erzeugung nach Bestrahlungsende schnell verschwindet.

Es gibt aber auch Hinweise auf eine permanente Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit von keramischen Isolatoren unter Bestrahlung, die nach einer ziemlich niedrigen Inkubationsdosis (< 0,01 dpa) in Erscheinung tritt und dann kontinuierlich fortschreitet (Abb. 23). Dieser Effekt tritt unter Einwirkung eines hinreichend starken elektrischen Feldes während der Bestrahlung bei mittleren Temperaturen auf, z.B. in Al₂O₃ mit ca. 100 V/mm bei 400 - 500 °C. Es wird vermutet, daß er durch die Bildung eines Metallkolloids aus dem Kationenanteil von Ionenkristallen aufgrund der gerichteten Diffusion von bestrahlungsbedingten Punktdefekten hervorgerufen wird. Wie Abb. 23 zeigt, kann die permanente Leitfähigkeitszunahme viel größer sein als die transiente während der Bestrahlung und hat daher auch größere technische Bedeutung.

6.3.2.2 Dielektrischer Verlust

Unter der Einwirkung von Höchstfrequenzwellen sehr hoher Leistungsdichte, wie sie zur zusätzlichen Heizung des Fusionsplasmas in Kernfusionsreaktoren zur Anwendung kommen können, kann auch die dielektrische Verlustleistung in keramischen Isolatorkomponenten eine kritische Rolle spielen. Sie ergibt sich durch die eng begrenzte, periodische Verschiebung elektrischer Ladungen im atomaren Bereich, besonders von Ionenkristallen, und ist proportional zur Frequenz des elektromagnetischen Wechselfeldes. Die anteilige Verlustleistung ergibt sich aus der Beziehung

$$\Delta P/P_0 = \frac{2\pi v}{c} \sqrt{\varepsilon_r} \, tg \, \delta \cdot d$$

mit der Frequenz v, der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum c, der relativen Dielektrizitätskonstante ϵ_r , dem Verlustwinkel δ (zusätzliche Phasendifferenz zwischen dielektrischem Verschiebungsstrom und Spannung) und der Materialdicke d.

Am problematischsten ist der dielektrische Verlust bei der höchsten in Betracht zu ziehenden Frequenz. Sie liegt für die sogenannte Electron Cyclotron Resonance (ECR)-Heizung des Fusionsplasmas bei etwa 150 GHz, d.h. es handelt sich dabei um mm-Wellen. tg δ ist die maßgebende Materialkenngröße für den zulässigen Leistungsdurchsatz an Isolatorkomponenten, im besonderen an den Fenstern für den Eintritt der mm-Wellen in die Fusionskammer. Die vorgesehene Leistung je Fenster erfordert einen sehr niedrigen "Verlusttangens" tg $\delta < 10^{-4}$, um eine bruchauslösende Materialerwärmung zu vermeiden.

Dieses Verlustniveau ist mit ausgewählten Al_2O_3 -Qualitäten, im besonderen mit einkristallinem Al_2O_3 (Saphir), erreichbar und läßt sich im Tieftemperaturbereich sogar weit unterschreiten (Abb. 24). Aber unter Neutronenbestrahlung ergibt sich schon bei sehr niedriger Schadensdosis (< 0,01 dpa) eine starke Erhöhung von tg δ , die im Tieftemperaturbereich besonders deutlich wird. Die Empfindlichkeit gegen Bestrahlung erscheint demnach ähnlich zu derjenigen der Wärmeleitfähigkeit. Für die Verschlechterung beider Eigenschaften ist die Störung der Kristallgitterschwingungen durch bestrahlungsinduzierte Punktdefekte verantwortlich, beim dielektrischen Verlust allerdings weniger direkt als beim Wärmetransport durch Phononen. Hier führt die Verbreiterung von Gitterresonanzen zur ver-

stärkten Wechselwirkung von Gitterschwingungen mit elektromagnetischen Wellen etwas niedrigerer Frequenz.

6.3.3 Mechanische Eigenschaften

6.3.3.1 E-Modul

Der E-Modul eines Materials beschreibt die durchschnittliche Stärke der interatomaren Bindungskräfte. Diese wird durch die niedrige Konzentration bestrahlungsinduzierter Punktdefekte (s. Abschnitt 5.2) nur wenig vermindert. Versetzungen, die durch Defektaggregation entstehen, haben keinen wesentlichen Einfluß auf den E-Modul, wie vom Verhalten plastisch verformter Werkstoffe bekannt ist. Somit bleibt die Änderung des E-Moduls unter Bestrahlung im Vergleich zu derjenigen der Bruchfestigkeit gering und wurde folglich in Veröffentlichungen nur selten erwähnt.

Abb. 25 zeigt den Versuch zu einer Korrelation der relativen Verminderung des E-Moduls verschiedener keramischer Werkstoffe mit der prozentualen Volumenvergrößerung unter Neutronenbestrahlung. Die betreffenden Wertepaare liegen größtenteils innerhalb eines Bandes, das von den bekannten Beziehungen für die Porositätsabhängigkeit des E-Moduls aufgespannt wird. Sie liegen zwischen $E = E_0 (1 - 2,3 P)$ und $E = E_0 (1 - 1,5 P2/3)$, wenn P der Volumenanteil der Poren ist. Anscheinend folgt die Schwächung der elastischen Bindung durch atomare Leerstellen einer ähnlichen Gesetzmäßigkeit wie diejenige durch größere Hohlräume, womit ein hilfreicher Parameterbezug für den E-Modul unter Bestrahlung gegeben wäre. Dieser gilt jedoch nur für einphasige, kristalline Materialien ohne besondere Gefüge-Schwachstellen an Phasengrenzen oder Korngrenzen. So könnte die ausnahmsweise große E-Modul-Verminderung von isostatisch heißgepreßtem AIN (AIN-HIP in Abb. 25) durch die hohe Sauerstoffverunreinigung (ca. 5 % Al₂O₃) in diesem Material verursacht sein.

6.3.3.2 Bruchfestigkeit

Keramische Werkstoffe versagen durch Rißbildung und -ausbreitung unter im wesentlichen elastischer Verformung. Ihre Bruchfestigkeit unter Zugspannung wird im allgemeinen im Biegebruchversuch gemessen. Unter Neutronenbestrahlung wird die Biegebruchfestigkeit beträchtlich vermindert (Abb. 26), wobei der Festigkeitsabfall meistens erst bei Schadensdosen ≥ 1 dpa (entspr. ≥ 1·10²⁵ n/m²) klar erkennbar wird. Da die Sättigung der bestrahlungsbedingten Punktdefektkonzentration bereits in der Größenordnung von 0,1 dpa erreicht ist, wird die später einsetzende Festigkeitsabnahme wahrscheinlich durch Defektaggregate verursacht. Keramische Werkstoffe mit verzögertem oder fehlendem Festigkeitsabfall unter Bestrahlung (SiC bzw. MgAl₂O₄) sollten demnach vergleichsweise wenig empfindlich für Defektaggregation sein.

Während die Auswirkung von bestrahlungsinduzierten Versetzungen auf die Festigkeit von Metallen (s. Abschnitt 6.4.1) prinzipiell leicht zu verstehen ist, kann über die entsprechende Rolle von Defektaggregaten in keramischen Werkstoffen nur spekuliert werden. Die bruchmechanische Beziehung $\sigma_B \propto K_{lc}/\sqrt{a}$ für die Zugfestigkeit σ_B mit der Rißzähigkeit K_{lc} und der maßgebenden Größe des Gefügefehlers (z.B. Anrißtiefe) a, der zur Rißausbreitung führt, lenkt die Aufmerksamkeit zunächst auf die Rißzähigkeit. Denn es gibt keine Hinweise darauf, daß Gefügedefekte relevanter Größe (a $\approx 100~\mu m$) durch Bestrahlungseffekte nennenswert verändert oder in ihrem Einfluß übertroffen werden. Nach Bestrahlung bei einer Temperatur von etwa $100~^{\circ}$ C, bei der Punktdefekte in den keramischen Probenmaterialien noch keine nennenswerte thermische Beweglichkeit hatten, wurde tatsächlich eine Verminderung der Rißzähigkeit gemessen, die allein die Festigkeitsabnahme erklären kann. Vielleicht sind ungeordnete Leerstellencluster als Verursacher anzusehen.

Bei höheren Bestrahlungstemperaturen, bei denen mit der Bildung von geordneten Defektaggregaten, im besonderen von Versetzungsstrukturen, zu rechnen ist, war dagegen die relative Verminderung der Rißzähigkeit viel geringer als diejenige der Biegebruchfestigkeit; in speziellen Fällen war die Änderung sogar gegenläufig. Daraus ist zu schließen, daß die Rißinitiierung, d.h. die Bildung eines bruchmechanisch ausbreitungsfähigen Anrisses aufgrund vorhandener Gefügedefekte und innerer Spannungen erst unter Belastung erfolgt, womit sie durch zuvor gebildete Bestrahlungsdefekte maßgeblich beeinflußt werden kann. Die Erleichterung der Rißinitiierung unter Bestrahlung erscheint insgesamt gesehen sogar wichtiger als diejenige der Rißausbreitung. Die Rißinitiierung wird viel-

leicht schon bei ungewöhnlich niedriger Bestrahlungsdosis erleichtert, wenn keramische Werkstoffe besonders bestrahlungsempfindliche Zweitphasen, im besonderen Glasphasen, enthalten.

6.3.3.3 Spezielles Verhalten von Graphit-Werkstoffen

Die mechanischen Eigenschaften von Graphit- oder, besser gesagt, Kohlenstoff-Werkstoffen sind maßgeblich durch die amorphen Bereiche zwischen den Graphit-Nanokristalliten innerhalb der Gefügekörner bestimmt. Das gilt im besonderen für den extrem niedrigen E-Modul von etwa 10 GPa bei monolithischen, d.h. nicht faserverstärkten Materialien. In Abschnitt 6.2.2 wurde gezeigt bzw. erwähnt, daß unter Neutronenbestrahlung zunächst eine Dichtezunahme beobachtet wird, die mit einer fortschreitenden Kristallisation (Graphitierung) der amorphen Bereiche verbunden ist. Es erscheint ohne weiteres verständlich, daß dieser Abbau einer relativ weichen Matrix im Gefüge zu einer beträchtlichen Erhöhung der Festigkeit führt. Diese kommt in erster Linie in einer Vermehrfachung des E-Moduls zum Ausdruck (Abb. 27). Bei steigender Temperatur macht sich der gegenläufige Einfluß der Kristallgitterdehnung durch zunehmende Zwischengitteratom-Einlagerung bemerkbar, die zur Schwächung der intrakristallinen Bindungskräfte führt. Der E-Modul wird dann weniger erhöht. Bei großer Schadensdosis (≥ 10 dpa) überwiegt schließlich dieser Schädigungseffekt, und es kommt zum Wiederabfall des E-Moduls.

Die Zugfestigkeit von Graphit-Werkstoffen zeigt unter Bestrahlung einen ähnlichen Verlauf wie der E-Modul, aber mit viel kleinerer relativer Änderung.

6.3.3.4 Kriechen unter Bestrahlung

In Abschnitt 5.2.2 wurde darauf hingewiesen, daß die bestrahlungsinduzierte Leerstellenkonzentration zu einer quantifizierbaren Bestrahlungsdiffusion führen kann. Das betrifft in dieser Form nur die Fremddiffusion, dagegen nicht die Selbstdiffusion, die für Rekristallisations- und Kriechprozesse maßgebend ist. Denn hier liegt eine Diffusion von Leerstellen vor, deren Konzentrationsgefälle und Beweglichkeit durch die Punktdefekterzeugung unter Bestrahlung nicht beeinflußt wird. Das Bild ändert sich aber, wenn in erster Linie nicht die Erzeugung sondern die Ausheilung der Punktdefekte in Betracht gezogen wird. Unter mechanischer Spannung im bestrahlten Material ist die Wirksamkeit von Punktde-

fektsenken, im besonderen Versetzungen, von ihrer Orientierung zur Spannungsrichtung abhängig. Es kommt dadurch zu einer für Leerstellen- und Zwischengitteratome verschieden orientierten "Strömung" zu energetisch günstigen Senken, die letztlich zu einem bestrahlungsinduzierten Verformungsvorgang vom Typ des Diffusionskriechen führt (Abb. 28). Die Kriechgeschwindigkeit ist proportional zur mechanischen Spannung und zur Bestrahlungsdosisrate.

Bei den keramischen Materialien wurde nur für keramische Kernbrennstoffe, im besonderen UO₂ und (U,Pu)O₂, über beträchtliches bestrahlungsinduziertes Kriechen unter Neutronenbestrahlung berichtet (Abb. 29). Es beruht hier auf der außerordentlich hohen Leistungsdichte der inneren Bestrahlung mit Spaltfragmenten als Sekundärstrahlung. Zur quantitativen Erklärung der gemessenen Kriechgeschwindigkeit müssen auch lokale thermische Effekt entlang der Spaltfragmentbahnen ("thermal rods") in Erwägung gezogen werden.

Bestrahlungskriechen komplexer Art wurde an Graphit-Werkstoffen beobachtet. Hier sind die spezifisch ausgeprägten, aus verschiedenen Gründen erfolgenden permanenten Atomverlagerungen (s. Abschnitt 5.2.3 und 6.2.2) Ursache für technisch erhebliche Kriechgeschwindigkeiten, weil sie unter mechanischer Spannung im Material ebenfalls Vorzugsorientierungen entwickeln, die auf einen Spannungabbau hinwirken.

6.4 Eigenschaftsänderungen metallischer Werkstoffe

Die Betrachtung metallischer Werkstoffe steht im Vergleich zu keramischen Materialien wegen des viel größeren technischen Interesses im allgemeinen im Vordergrund. Unter den grundsätzlichen Aspekten des Bestrahlungsverhaltens weisen sie jedoch eine geringere Vielfalt und meistens eine weniger problematische Deutung der beobachteten Effekte auf. Das liegt an der spezifischen Art ihrer interatomaren Bindung mit frei beweglichen Elektronen, die Elektronenanregung, transiente Ionisierung sowie nennenswerte Beeinflussung von elektrischen und thermischen Leitungseigenschaften unter Bestrahlung von vornherein ausschließt. Es bleibt im wesentlichen bei der Behandlung mechanischer Eigenschaften, wobei die Deutung der Festigkeitsänderungen im Hinblick auf die plastische Verformbarkeit durch Versetzungstransport wesentlich erleichtert ist. Hinsichtlich des E-Moduls könnte Ähnliches gelten, wie in Abschnitt 6.3.3.1 dargestellt,

besonders im Hinblick auf die u.U. beträchtliche Porenschwellung metallischer Werkstoffe (s. Abschnitt 6.2.1).

6.4.1 Zugfestigkeit

Es erscheint fast selbstverständlich, daß die durch Aggregation von Bestrahlungsdefekten erzeugten Versetzungsstrukturen zur Hemmung von Gleitversetzungen und damit zur Erhöhung der Streckgrenze metallischer Werkstoffe führen (Abb. 30). Andererseits ergibt sich eine Verminderung der Duktilität, d.h. der Bruchdehnung (s. Abb. 30), wobei besonders die uniforme Dehnung vor Beginn der Einschnürung betroffen ist. Während die Streckgrenze um mehr als 100 % erhöht werden kann, bleibt die Erhöhung der Zugfestigkeit vergleichsweise gering (s. Abb. 30). Insgesamt ähnelt der Einfluß der Neutronenbestrahlung demjenigen einer Kaltverformung mit entsprechender Verformungsverfestigung. Es besteht insofern eine Konkurrenz beider Einflüsse, als kaltverformte Werkstoffe eine ihrer Verfestigung entsprechend geringere Streckgrenzenerhöhung unter Bestrahlung erfahren. In besonderen Fällen kann dann sogar eine kleine Entfestigung unter Bestrahlung erfolgen. Allgemein, d.h. auch im Hinblick auf gehärtete Legierungen eines bestimmten Basismetalls gilt, daß die prozentuale Festigkeitserhöhung unter Bestrahlung desto geringer wird, je höher die Festigkeit des unbestrahlten Materials liegt, d.h. je weiter die Hemmung des Versetzungsgleitens bereits getrieben wurde (s. z. B. Abb. 30, Inconel X750).

Die für die Festigkeitserhöhung unter Bestrahlung ursächliche Defektaggregation hat eingesetzt, wenn für die Punktdefektkonzentration eine Sättigungstendenz erkennbar wird, d.h. bei Schadensdosen in der Größenordnung von 0,01 dpa (entspr. 10²³ n/m², s. Mo in Abb. 12). In diesem Dosisbereich, und damit deutlich früher als in keramischen Werkstoffen, wird tatsächlich eine beträchtliche Festigkeitsänderung beobachtet, die bei der Größenordnung von 0,1 dpa (entspr. 10²⁴ n/m²) bereits zur Sättigung neigt (s. Abb. 30), die aber erst bei etwa 10 dpa (entspr. 10²⁶ n/m²) voll erreicht wird.

Hinsichtlich der Temperaturabhängigkeit der Bestrahlungsverfestigung kann man näherungsweise feststellen, daß sich unterhalb von etwa $0.35~T_s~(T_s=Schmelzpunkt~in~K)$ ziemlich kleine Defektansammlungen (einige nm Durchmesser) in hoher räumlicher Dichte bilden, die eine sehr starke Hemmung des Versetzunggleitens bewirken. In diesem Temperaturbereich haben von den Punktdefekten nur die Zwischengitteratome eine erhebliche thermische Beweglichkeit.

Im Temperaturbereich von etwa $0.35 - 0.55 \, T_s$ (für Stähle ca. $325 - 650 \, ^{\circ}$ C) wird bei zunehmender Leerstellenbeweglichkeit ein gröberes Versetzungsnetzwerk gebildet, das eine geringere Bestrahlungsverfestigung verursacht. Oberhalb $0.55 \, T_s$ tritt eine vollständige Ausheilung der Bestrahlungsdefekte durch thermische Diffusion ein, so daß dort mit keiner wesentlichen Festigkeitsänderung unter Bestrahlung zu rechnen ist.

6.4.2 Versprödung

Die Festigkeitserhöhung metallischer Werkstoffe unter Bestrahlung gibt natürlich keinerlei Anlaß zu besonderen Bedenken. Dagegen kann die laufende Verminderung der Bruchdehnung ein gravierendes Problem darstellen, zumal sie im Gegensatz zur Festigkeitserhöhung keine - in diesem Fall wohltätige - Sättigung zu erreichen scheint. Abb. 31 zeigt die restliche uniforme Dehnung nach hoher Bestrahlungsdosis am Beispiel eines hochwarmfesten Cr-Ni-Stahls. Im niedrigen Temperaturbereich höchster Bestrahlungsverfestigung (s.o.) verbleiben nur noch Werte ≤ 1 %. Mit abnehmender Verfestigung bei steigender Temperatur geht auch die Versprödung zurück. Die extreme Reduktion der uniformen Dehnung bei dieser "Tieftemperaturversprödung" ("Hochtemperaturversprödung" s.u.) ist von besonderer Bedeutung bei der Belastung von Bauteilen mit mehrachsigen Spannungen, besonders von Rohren unter hohem Innendruck, wie z.B. in Hüllrohren von Kernreaktor-Brennstäben mit aus dem Kernbrennstoff freigesetzten Spaltgasen.

Eine sehr wichtige Rolle spielt die Bestrahlungsversprödung für ferritischmartensitische Stähle, wie sie für Druckbehälter von wassergekühlten Kernreaktoren eingesetzt und für die Plasmakammerwand von Fusionsreaktoren in Erwägung gezogen werden, und zwar im Hinblick auf ihre Neigung zum Sprödbruch durch schlagartige Beanspruchung bei tiefen Temperaturen. Unter Neutronenbestrahlung verschiebt sich die Duktil/Spröd-Übergangstemperatur, die üblicherweise im Kerbschlagversuch gemessen wird, zu höheren Temperaturen und kann damit in den Bereich schneller Betriebstemperaturwechsel (mit entspr. Wechsel thermischer Spannungen) in den betreffenden Reaktorkomponenten kommen. Abb. 32 zeigt die betreffende Änderung der Kerbschlagzähigkeit eines typischen niedriglegierten und martensitvergüteten Reaktordruckbehälterstahls nach einer relevanten Neutronendosis bei verschiedenen Bestrahlungstemperaturen.

Abb. 31 zeigt für hohe Temperaturen etwa bei $T \ge 0.5 T_s$ ($T_s = Schmelzpunkt$ in K), einen Wiederabfall der Bruchdehnung nach Neutronenbestrahlung, der ebenfalls zu einer ausgeprägten Bestrahlungsversprödung führen kann. Diese "Hochtemperaturversprödung" wird aber durch einen andersartigen Schädigungsmechanismus verursacht, der sich speziell in austenitischen Stählen und Nickellegierungen auswirkt. Wahrscheinlich liegt dafür deren besondere Empfindlichkeit für Korngrenzenrisse bei hohen Temperaturen zugrunde. Anscheinend findet unter Zugbelastung während oder nach Bestrahlung ein bevorzugter Diffusionstransport bestrahlungsinduzierter Leerstellen zu Korngrenzen statt, die senkrecht zur Zugspannungsrichtung verlaufen und damit guer gedehnt werden. Es kommt dann zur Poren-Keimbildung an solchen Korngrenzen, die durch keimstabilisie-He-Atome aus (n,α) -Kernreaktionen, besonders ${}^{10}B(n,\alpha){}^{7}Li$ ⁵⁸Ni(n,α)⁵⁵Fe, beträchtlich gefördert wird. Bei hinreichend hoher Temperatur wachsen diese Porenkeime durch Zustrom von thermisch erzeugten Leerstellen zu einer Porenbelegung, die schließlich durch entsprechende Schwächung der betreffenden Korngrenzen zum interkristallinen Bruch führt. Abb. 33 zeigt die angesprochenen Tendenzen, Erscheinungen bzw. Prozesse der Hochtemperaturversprödung im Zusammenhang.

6.4.3 Kriechen unter Bestrahlung

Das Bestrahlungskriechen wurde prinzipiell bereits im Abschnitt 6.3.3.4 vorgestellt. Es wurde für die als Brennstabhüllmaterial in Kernspaltungsreaktoren verwendeten Zirkoniumlegierungen schon ziemlich früh in Betracht gezogen, speziell im Hinblick auf die diesbezüglich beschleunigend wirkende hexagonale, d.h. anisotrope Kristallstruktur. In anderen metallischen Strukturmaterialien, im besonderen hochlegierten Stählen, ist erst bei hohen Fluenzen schneller Neutronen, wie sie in Schnellbrüter-Reaktoren und vergleichbaren Versuchsreaktoren erreicht werden, mit nennenswerter bestrahlungsbedingter Kriechverformung zu rechnen. Abb. zeigt entsprechende Meßergebnisse.

Für Metalle ist die Proportionalität des Bestrahlungskriechens mit der ursächlichen mechanischen Spannung besonders bemerkenswert, weil ihr thermisches Kriechen im allgemeinen durch eine hohe Potenz der Spannung bestimmt ist. In diesem Fall ist als Verformungsmechanismus das Klettern von Gleitversetzungen maßgebend, deren Dichte ihrerseits wieder von der Spannung abhängt. Diese Vielfachabhängigkeit entfällt beim Bestrahlungskriechen weil die Entwicklung

der Versetzungsstruktur durch Punktdefektaggregation im Prinzip spannungsunabhängig ist und keine Vorzugsorientierung wie in Gleitsystemen aufweist.

Für austenitische Cr-Ni-Stähle, die als Strukturmaterial für Schnellbrüter-Reaktoren hinsichtlich ihres Verhaltens bei hohen Fluenzen schneller Neutronen umfassend untersucht worden sind, hat sich eine Korrelation des Bestrahlungskriechens mit der Porenschwellung (s. Abschnitt 6.2.1) ergeben. Der betreffende Beitrag wird in der Beziehung für die Kriechverformung ϵ_{Kr} folgendermaßen berücksichtigt:

$$\varepsilon_{Kr} = \sigma (c_1 \phi t + c_2 \delta V_{PS})$$

mit der Spannung σ , der Neutronenfluenz ϕ t (bei näherungsweise konstantem Neutronenfluß ϕ) und der prozentualen Volumenvergrößerung durch Porenschwellung δV_{PS} . Diese Erhöhung der Kriechverformung erscheint verständlich, weil die Porenbildung auf einem Überschuß der Zwischengitteratom-Ausheilung durch Anlagerung an Versetzungen beruht. Dieser steht zusätzlich für den Kriechmechanismus der spannungsorientierten Puntkdefektausheilung zur Verfügung, der offenbar vorzugsweise von den Zwischengitteratomen getragen wird.

Technische Bedeutung gewinnt das Bestrahlungskriechen vor allem durch den inhärenten Abbau von mechanischen Spannungen, die aufgrund ungleichmäßiger Porenschwellung in Schnellbrüter-Kernkomponenten entstehen. Speziell in Kernbrennstäben kann für das Bestrahlungskriechen und die Spaltgasschwellung (s. Abschnitt 7) des keramischen Brennstoffs eine ähnliche Wechselbeziehung gegeben sein.

7. Einfluß von Atomumwandlungsvorgängen

7.1 Transmutation unter Neutronenbestrahlung

Neutronen können nicht nur Atomverlagerungen durch Kernstöße sondern auch Atomumwandlungen durch Anlagerung an Atomkerne verursachen. Während die Stoßprozesse nur bei hoher Neutronenenergie wirksam werden, wie im Vorangehenden näher beschrieben, treten die Absorptionsprozesse nach Abbremsung (Moderation) der Neutronen auf niedrige Energie, letztlich zu "thermi-

schen" Neutronen, in den Vordergrund. Meistens handelt es sich dabei um (n,γ) -Reaktionen, bei denen unter γ -Abstrahlung von Anregungsenergie das nächstschwerere Isotop des betreffenden Elements erzeugt wird. Wenn dieses Isotop stabil ist, tritt überhaupt keine stoffliche Veränderung ein. Manchmal ist es aber instabil und geht unter Abgabe eines β -Teilchens und γ -Abstrahlung (sog. β - γ -Zerfall) aus dem Atomkern in das gleichschwere Isotop des Elements mit der nächsthöheren Ordnungszahl über.

Da die Absorptionsquerschnitte der Strukturmaterialien in Kernreaktoren relativ klein sind (s. Abschnitt 3.1) und zudem die benachbarten Elemente oft chemisch ähnlich sind, ergeben sich durch die Atomumwandlungen infolge von (n,γ) -Reaktionen keine beträchtlichen stofflichen Veränderungen. Die einzige überhaupt nennenswerte Umwandlung ist $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{28}\text{Si}$, die bei hohen Neutronenfluenzen zu einem Si-Anteil von etwa 1 % führen kann. Dieser könnte in Al-Legierungen allenfalls eine geringfügige Härtung, in Al_2O_3 aber eine beträchtliche Verschlechterung dielektrischer oder optischer Eigenschaften verursachen.

Ansonsten ist die Erzeugung von Helium-Atomen bei (n,α) -Reaktionen von beträchtlicher Bedeutung, die zur Bildung von He-Blasen bzw. zur Förderung der Porenbildung unter Bestrahlung führen kann (s. Abschnitt 6.2.1). In Strukturmaterialien und in Beryllium als Neutronenvervielfacher (s. Abschnitt 3.1), sind (n,α) -Reaktionen vor allem bei hoher Neutronenenergie zu beachten. Bei niedriger Neutronenenergie sind sie auf kernphysikalische Funktionsmaterialien beschränkt, wie 6 Li $(n,\alpha)^3$ H und 10 B $(n,\alpha)^7$ Li in Fusionsreaktorbrutstoffen bzw. 10 B $(n,\alpha)^7$ Li in Fusionsreaktorbrutstoffen bzw.

Die Besonderheit einer gezielt genutzten Transmutation durch (n, γ)-Prozesse mit nachfolgenden β - γ -Zerfällen liegt beim "Erbrüten" spaltbarer Atome in Kernspaltungsreaktoren vor, wie ²³⁸U \rightarrow ²³⁹Pu oder ²³²Th \rightarrow ²³³U.

7.2 Radioaktivierung

Wie in Abschnitt 7.1. erwähnt, werden durch (n,γ) -Reaktionen evtl. instabile Isotope erzeugt, die einem nachfolgenden $\beta-\gamma$ -Zerfall unterliegen. Die bestrahlten Materialien bzw. Bauteile weisen damit eine Radioaktivität auf, die zu beträchtlichen Einschränkungen ihrer Handhabbarkeit und Verarbeitbarkeit führen kann.

7.2.1 Starke Radioaktivierung (i.b. von Stählen)

In erster Linie sind hier Elemente zu beachten, die unter Neutronenbestrahlung relativ schnell, d.h. mit großem Wirkungsquerschnitt radioaktive Isotope mit energiereicher γ-Strahlung langer Halbwertszeit bilden. Es handelt sich dabei um Kobalt und Tantal, die im thermischen Neutronenfluß folgendermaßen radioaktiv werden:

59
Co(n,γ) 60 Co $\xrightarrow{\beta,\gamma}$ Ni60, mit $\sigma_a=37$ b, $E_{\gamma}=1,17$ und 1,33 MeV, $t_{1/2}=5,27$ Jahre 181 Ta(n,γ) 182 Ta $\xrightarrow{\beta,\gamma}$ 182 W, mit $\sigma_a=21$ b, $E_{\gamma}=1,12$ und 1,22 MeV, $t_{1/2}=115$ Tage

Von besonderer Bedeutung ist hier die Radioaktivierung von Stählen, die Co und Ta als Legierungszusätze oder Verunreinigung enthalten. Bei Bestrahlung von Stählen mit schnellen Neutronen ist diesbezüglich auch die Radioaktivierung des Eisens durch folgende Kernreaktion zu beachten:

$$^{54}Fe(n,p)^{54}Mn\xrightarrow{\epsilon_{r}Y}$$
 $^{54}Cr,$ mit $\sigma_{a}=0,07$ b (für Spaltungsneutronen), $E_{Y}=0,84$ MeV, $t_{1/2}=312$ Tage

ε bedeutet den Einfang eines Hüllelektrons durch den Atomkern. Das Isotop ⁵⁴Fe ist in Eisen zu 5,8 % enthalten. Hinsichtlich des niedrigen Absorptionsquerschnittes ist anzumerken, daß die Neutronenflüsse in Kernreaktoren mit maßgeblich schnellen Neutronen um 1 -2 Größenordnungen höher sind als in Kernreaktoren mit thermischen Neutronen.

Wie in Abschnitt 4.1.2 erwähnt, wird das radioaktive Isotop ⁶⁰Co bei der Auslegung von γ-Bestrahlungseinrichtungen als Strahlungsquelle genutzt. In diesem Zusammenhang ist auch das radioaktive Cäsium-Isotop ¹³⁴Cs zu erwähnen:

133
Cs(n, γ) 134 Cs $\xrightarrow{\beta,\gamma}$ 134 Ba, mit $\sigma_a=29$ b (für thermische Neutronen), $E_{\gamma}=0,61$ und 0,8 MeV, $t_{1/2}=2,08$ Jahre;

desgleichen das Iridium-Isotop 1921r:

191
Ir(n, γ) 192 Ir $\xrightarrow{\beta_{.}\gamma}$ 192 Pt, mit $\sigma_a=430$ b (für thermische Neutronen), $E_{\gamma}=0.3$ bis 0.47 MeV, $t_{1/2}=74$ d.

7.2.2 "Low activation materials (LAM)"

Das Vorhandensein hoch radioaktivierbarer Elemente in Materialien mit kommerziell üblichen Gehalten bestimmt vor allem die Strahlenschutzmaßnahmen bei der kurzzeitigen Wartung, Handhabung und Untersuchung sowie beim Transport von neutronenbestrahlten Kernreaktorkomponenten oder Materialproben. Die Schutzerfordernisse für die schließliche Entsorgung, im besonderen die langzeitige Lagerung der Komponenten von Kernreaktoren werden dagegen in Kernspaltungsreaktoren durch die radioaktiven Isotope im Kernbrennstoff der Brennelemente bestimmt. Es handelt sich dabei einerseits um β - γ -strahlende Spaltprodukte, andererseits um α -strahlende Spaltstoffe, wie vor allem 239 Pu.

Aber in Kernfusionsreaktoren gibt es keine großen Massen radioaktiven Brennstoffs sondern jeweils nur geringe Mengen von 3 H-Gas, dessen β -Strahlung (ohne γ) kein vergleichbares Problem darstellt. Deshalb kommt dort der Radioaktivierung von Strukturmaterialien eine viel größere Bedeutung zu. Es wäre eine entscheidende Stufe zur Erhöhung der nuklearen Sicherheit, besonders im Hinblick auf die Entsorgung der Reaktoren, wenn Strukturmaterialien mit vernachlässigbarer Radioaktivierung eingesetzt werden könnten, sogenannte low activation materials (LAM). Es ist das Ziel betreffender Forschungsarbeiten, Materialien zu entwickeln, die nach technisch tragbaren Abklingzeiten für ihre Radioaktivität vollständig frei, d.h. ohne Schutzmaßnahmen gehandhabt werden können. Dabei müssen im besonderen auch radioaktive Isotope berücksichtigt werden, die durch eine Folge von (n,γ) -Reaktionen entstehen und dann zwar in sehr geringer Menge, aber mit beträchtlicher spezifischer Radioaktivität einen nennenswerten Beitrag liefern können.

Es geht hinsichtlich der Materialzusammensetzung um die folgenden Punkte: 1) Verwendung eines Basismaterials mit vernachlässigbarer Langzeit-Radioaktivität; Abb. 34 zeigt, daß für metallische Legierungen Fe und V (übrigens auch Ti) in Betracht kommen, und daß Cr jedenfalls als Legierungsbestandteil unbedenklich ist. 2) Vermeidung von Legierungsbestandteilen mit schwacher Radioaktivierung, aber langer Halbwertszeit; hier ist vor allem Ni als Bestandteil hochlegierter Stähle betroffen, dessen Auswirkung in Abb. 34 an der Abklingkurve des austenitischen Cr-Ni-Stahl 316L erkennbar ist. 3) Vermeidung kleiner Legierungszusätze mit mäßiger Langzeit-Radioaktivität, wie Nb und Mo in Stählen. 4) Ausschaltung auch geringster Verunreinigungen von langzeitig hoch radioaktivierbaren Elementen; das betrifft vor allem Ag, Bi und Co, aber auch Pt- und SE-Metalle. Da

unter dem letzten Punkt im allgemeinen Gewichtsanteile < 1 ppm betroffen sind, ergeben sich hier auch extreme chemisch-analytische Anforderungen.

Eine spezielle LAM-Entwicklung hat sich auf keramisches SiC-Material, im besonderen mit SiC-Faserverstärkung, für die Fusionskammerwand konzentriert. Die Langzeit-Radioaktivität von Si bleibt zwar etwas oberhalb des "Hands-on-level", aber der vergleichsweise schnelle Radioaktivitätsabfall bei kurzen Abklingzeiten ≤ 1 Jahr (Abb. 35) könnte beträchtliche Vorteile hinsichtlich der Strahlenschutzerfordernisse bei betrieblicher Wartung und Handhabung bieten.

7.3 Gasblasenbildung und Spaltprodukteinlagerung

Im Vorangehenden wurde bereits erwähnt, daß durch (n,α) -Kernreaktionen im Material Helium-Atome eingelagert werden, und daß diese fördernd zur Porenbildung durch bestrahlungsbedingte Leerstellen beitragen können (s. Abschnitt 6.2.1 und 6.4.2). Falls der (n,α) -Wirkungsquerschnitt relativ groß ist, kann es sogar zu beträchtlicher He-Blasenbildung kommen, allerdings im wesentlichen Ausmaß erst bei Temperaturen > 0,5 T_s $(T_s = Schmelzpunkt$ in K) durch hinreichend schnelle thermische Diffusion. Besonders die Bildung von Korngrenzenblasen kann zu Festigkeitsverminderung und beträchtlicher Volumenvergrößerung führen.

Die betreffende Festigkeitsverminderung hat vor allem für SiC als Fusionsreaktor-Strukturmaterial Aufmerksamkeit gefunden. Dort ist eine besonders hohe He-Erzeugungsrate von etwa 0,3 At.-% je Betriebsjahr durch die Kernreaktion 12 C(n,n' α)2 α aufgrund der sehr hohen Neutronenenergie zu erwarten. Dagegen ist die betreffende Volumenvergrößerung (Schwellung) von maßgebender Bedeutung für Beryllium als Neutronenvervielfacher im Fusionsreaktor-Brutblanket mit der Kernreaktion 9 Be(n,2n)2 4 He(= 2 α), für Li-Brutstoffe für Fusionsreaktoren (s. Abschnitt 3.3) mit der Kernreaktion 6 Li(n, α) 3 H und für B $_{4}$ C als Neutronenabsorber in Spaltungsreaktoren mit der Kernreaktion 10 B(n, α) 7 Li. In den beiden letzten Fällen sind die bestimmungsgemäß großen Wirkungsquerschnitte, auch für thermische Neutronen, verantwortlich für eine hohe He-Erzeugungsrate.

Eine extrem hohe Gasblasenschwellung kann im Brennstoff von Kernspaltungsreaktoren auftreten, hier verursacht durch das Edelgas Xenon, das als Spaltprodukt mit hoher Ausbeute von etwa 0,25 Gasatomen (einschließlich etwas Krypton) je U,Pu-Spaltung erzeugt wird. Bei sehr hohen Temperaturen, wie sie im inneren Be-

reich der Brennstofftabletten während des Reaktorbetriebs auftreten, kann die lokale Volumenvergrößerung bis zu etwa 25 Vol.-% gehen (Abb. 36). Oberhalb dieser Grenze verbinden sich die verantwortlichen Korngrenzenporen (Abb. 37) wahrscheinlich zu offener Porosität. Bei niedrigeren Temperaturen ($< 0.5 \, T_s$) unterscheidet sich der Volumenbedarf der Spaltgasatome (in intrakristallinen Blasen mit extrem hohem Innendruck) nicht sehr von demjenigen der Atome fester Spaltprodukte.

Trotzdem tritt eine beträchtliche Spaltproduktschwellung des Brennstoffs auf, weil bei jeder Kernspaltung zwei Spaltproduktatome entstehen, die jeweils einen ähnlichen Volumenbedarf haben wie die U,Pu-Spaltstoffatome. Die Schwellrate beträgt damit etwa 1 Vol.-% je % U,Pu-Spaltung (s. Abb. 36). Auf diese Brennstoff-Volumenvergrößerung muß bei der Brennstabauslegung speziell für hohen U,Pu-Abbrand (> 5 %) Rücksicht genommen werden, während die oben erwähnte starke Spaltgasschwellung bei sehr hoher Brennstofftemperatur durch die entsprechend hohe plastische Verformbarkeit des Brennstoffs aufgefangen wird.

Etwas außerhalb des Zusammenhanges soll hier noch erwähnt werden, daß der große Anteil von in Spaltprodukte umgewandelten Atomen in Kernbrennstoffen auch zu einer beträchtlichen Änderung des chemischen Verhaltens führt. Das beruht auch wesentlich darauf, daß die Spaltprodukt-Elemente, im Gegensatz zu (n,γ)-Reaktionsprodukten, im Periodischen System der Elemente zum Teil von den Spaltstoffen U, Pu weit entfernt sind. Wegen ihrer im Durchschnitt schwächeren Sauerstoffbindung kommt es zu einem steigenden Oxidationspotential des (U,Pu)O₂-Brennstoffs, das eine stärkere Oxidation an der Innenseite von metallischen Brennstabhüllrohren verursachen kann. Die Beteiligung der leichtflüchtigen, reaktiven Spaltprodukte Tellur, Jod und Cäsium, die aus dem Brennstoff an die Hüllinnenseite transportiert werden, führt zu einem forcierten Oxidationsangriff vom Typ der sogenannten Heißkorrosion, der unter ungünstigen Bedingungen eine kritische Schwächung des Hüllrohrs ergeben kann (Abb. 38).

Literatur

- [1] A. Holmes-Siedle, L. Adams, Handbook of Radiation Effects, Oxford University Press, Oxford, 1993
- [2] G. Hartwig und W. Maurer, Bericht IAEA-TECDOC-417 (1987), S. 119-215
- [3] E. Lell, N.J. Kreidel, J.R. Heusler in: Progress in Ceramic Science, Vol. 4, Ed. J.E. Burke, Pergamon Press, New York, 1966, S. 1
- [4] W. Jahn, Atompraxis 6 (1960) 82 u. 168
- [5] U. Fischer, KfK, 1985, persönliche Mitteilung
- [6] B.M. Ma, Nuclear Reactor Materials and Applications, Van Nostrand Reinhold Company, New York London, 1983
- [7] M.W. Thompson, S.B. Wrigth, J. Nucl. Mater. 16 (1965) 146
- [8] J. Brinkman, Am. J. Phys. 24 (1956) 246
- [9] U.E. Wolff, A. Withop, T.A. Lauritzen, Trans. ANS 12 (1969) 114
- [10] T.T. Claudson, Atomwirtschaft 16 (1971) 132 und Proc. Int. Meeting Fast Reactor Fuel and Fuel Elements, GfK, Karlsruhe, 1970, S. 637-670
- [11] W. Delle, K. Koizlik, H. Nickel, Graphitische Werkstoffe für den Einsatz in Kernreaktoren, Teil 2: Polykristalliner Graphit und Brennelement-Matrix, Thiemig-Taschenbücher, Band 82, Karl Thiemig AG, München, 1983
- [12] J. Roth, J. Bohdansky, K.L. Wilson, J. Nucl. Mater. 111-112 (1982) 775
- [13] M. Rohde, B. Schulz, J. Nucl. Mater. 173 (1990) 289
- [14] P.G. Klemens, Nucl. Instr. Methods in Physics Res. B1 (1984) 204
- [15] M. Rohde, J. Nucl. Mater. 182 (1991) 87
- [16] M. Rohde, KfK, 1991, persönliche Mitteilung
- [17] B. Salce, A.M. de Goer, Int. Conf. Defects in Insulating Crystals, Parma, August 29 September 2, 1988, Paper TH-P65
- [18] G.P. Pells, Radiat. Eff. 97 (1986) 199
- [19] E. R. Hodgson, Cryst. Lattice Defects Amorphous Mater. 18 (1989) 169
- [20] R. Heidinger, J. Nucl. Mater. 173 (1990) 243
- [21] J.E. Brocklehurst, Chemistry and Physics of Carbon 13 (1977) 145
- [22] Ch. Wassilew, K. Ehrlich, H.-J. Bergmann, ASTM Spec. Techn. Publ. 956 (1988) 30
- [23] K. Ehrlich, KfK, 1975, persönliche Mitteilung

- [24] K. Ehrlich u.a., in: Kernfusion Forschung und Entwicklung, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1991, S. 31
- [25] H.W. Scholz, M. Zucchetti, 3rd Int. Symp. Fusion Nuclear Technology, June 27 July 1, 1994, Los Angeles

Tab. 1: Reichweite von Protonen in Aluminium in Abhängigkeit von der Teilchenenergie (aus [1]).

Energie (MeV)	Reichweite		
	g cm ⁻²	mm	
0,1	0,00019	0,0007	
0,3	0,00073	0,0027	
0,5	0,00143	0,0053	
1	0,0039	0,0145	
3	0,021	0,078	
5	0,049	0,182	
10	0,163	0,604	
30	1,13	4,187	
50	2,80	10,37	
100	9,20	34,09	

Tab. 2: Absorption thermischer und schneller Neutronen in verschiedenen Metallen.

Metall	σ _a bei E _n = 0,025 eV barn	Makroskopischer Absorptions- querschnitt Σ _a cm ⁻¹	σ _a bei E _n = 100 keV mbarn
Beryllium	0,01	0,0012	
Magnesium	0,06	0,0026	1,2
Zirkonium	0,18	0,0076	21
Aluminium	0,23	0,013	3,3
Niob	1,15	0,060	207
Molybdän	2,7	0,15	122
Eisen	2,5	0,21	9,3
Chrom	3,1	0,23	12
Kupfer	3,8	0,30	66
Nickel	4,6	0,41	28
Vanadin	5,0	0,33	12
Titan	5,8	0,31	14
Mangan	13,2	1,01	77
Wolfram	19	1,21	340
Tantal	21	1,17	850
Kobalt	37	3,2	56

 Tab. 3:
 Gasfreigabe unter Bestrahlung.

Stoff	10-4 Mol/g⋅MGy		
3(0)1	G (H ₂)	G (CH ₄)	
H ₂ O in wässr. Lösg.	0,5 - 1,3		
Butan	4	4	
Na-Azetat	0,6	0,7	
Polyäthylen	3		
PMMA (Plexiglas)	> 1		
Epoxyd-Harze	0,01 - 0,1		
Polystyrol	0,01		

Tab. 4: Wirkungsquerschnitt elastischer Kernstöße mit Neutronen (in barn = 10^{-24} cm²) für einige Elemente und Neutronenenergie-Gruppen ($E_{n,max} \approx 2$ $E_{n,min}$, nach [5]).

E _{n,max} MeV	0,05	0,1	0,4	1,4	4
С	4,6	4,5	3,9	3,4	2,0
0	3,7	3,7	3,8	4,0	1,9
Al	6,5	5,5	4,1	3,4	2,2
Si	1,4	1,7	5,8	3,8	1,9
Cr	2,8	6,2	2,8	2,9	2,6
Fe	12,5	4,8	3,0	2,2	2,4
Ni	9,5	7,4	5,3	3,1	2,0
Zr	9,3	9,3	9,1	6,7	2,8
Мо	8,3	8,5	9,0	5,8	2,2
W	12	9,7	6,7	4,3	4,3

Tab. 5: Schwellenergie E_d für Atomverlagerungen durch Teilchenstöße in verschiedenen Materialien.

Material	Element	E _d , eV
Ge, Si		13
Al		16
V		26
Fe		24
Cu		25
Nb		36
Мо		37
C (Graphit)		25
Al ₂ O ₃	Al O	20 65
MgAl ₂ O ₄	Mg, Al O	30 60

Tab. 6: Korrekturfaktor für Ep wegen anisotroper Streuung von Spaltungsneutronen (aus [6]).

Element	Korrekturfaktor	
Ве	0,56	
С	0,84	
Al	0,58	
Cr	0,57	
Fe	0,57	
Ni	0,64	
Cu	0,60	

Tab. 7: Näherungsweise berechnetes Verhältnis von Atomverlagerungsrate zu Neutronenfluenz in dpa/ 10^{26} n·m-2. $E_n=$ Neutronenenergie. Neutronenspektren s. Abb. 3.

Neutronen- spektrum	E _n , keV	Graphit	SiC	Al ₂ O ₃
HIFR	> 100	7,9	12,9	15,5
	> 800	15,2	24,8	29,8
EBR II	> 100	7,7	10,5	13,1

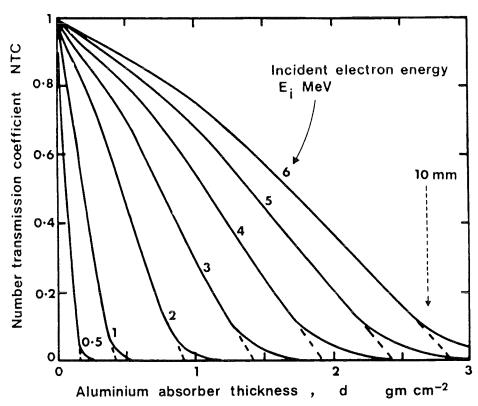


Abb. 1: Durchlässigkeit von Aluminium für Elektronen verschiedener Energie in Abhängigkeit von der Materialdicke (aus [1]).

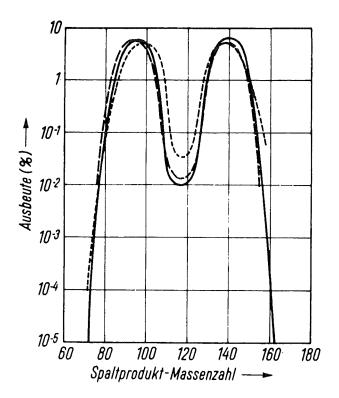


Abb. 2: Spaltproduktausbeute in Abhängigkeit von der Massenzahl für ²³³U, ²³⁵U und ²³⁹Pu.

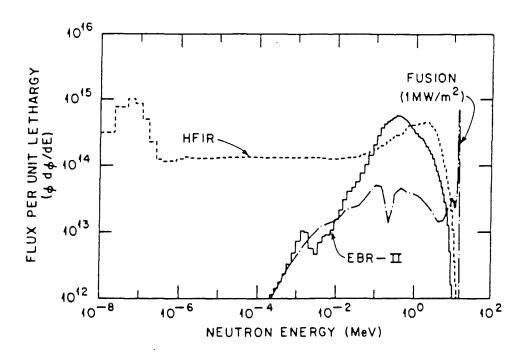


Abb. 3: Neutronenergiespektren von Versuchsreaktoren mit thermischen (HIFR) und schnellen Neutronen (EBR-II) sowie eines Fusionsreaktorkonzeptes.

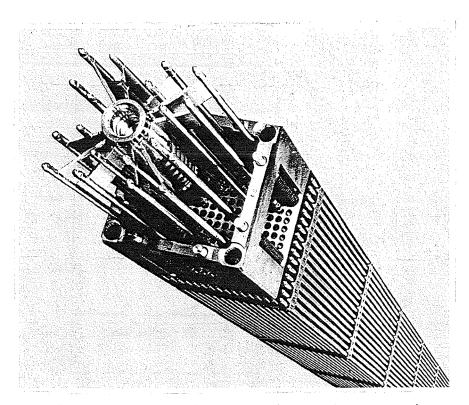


Abb. 4: Brennelement eines Druckwasserreaktors mit Brennstäben und Absorberstäben (oben herausstehend).

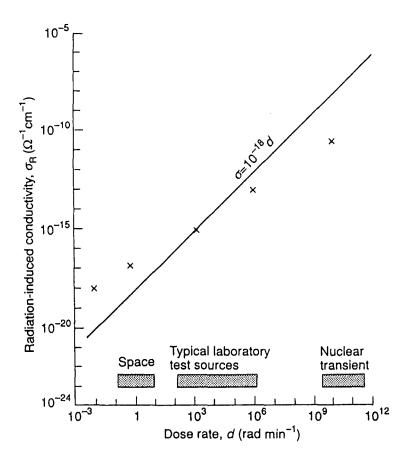


Abb. 5: Typische elektrische Leitfähigkeit von Polymermaterialien unter Bestrahlung, in Abhängigkeit von der Dosisrate (aus [1]). Die Kreuze markieren das abweichende Verhalten von Polyäthylen.

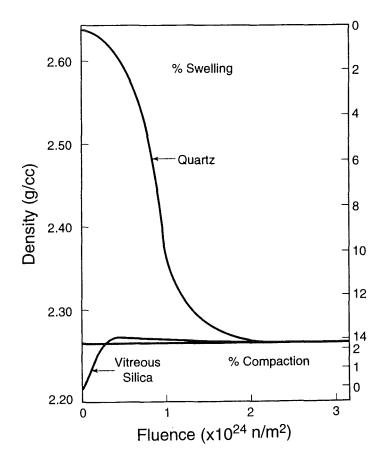
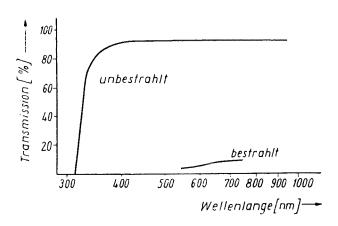


Abb. 6: Dichteänderung von kristallinem Quarz und von Quarzglas unter Neutronenbestrahlung (aus [3]).



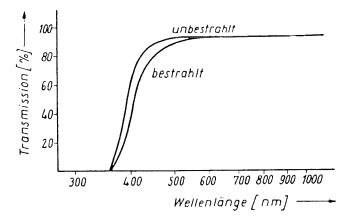


Abb. 7: Spektrale Lichtdurchlässigkeit eines optischen Glases (Dicke 10 mm) vor und nach Bestrahlung mit 10⁴ Gy (oben), desgl. für Cer-stabilisierte Modifikation (unten, alles aus [4]).

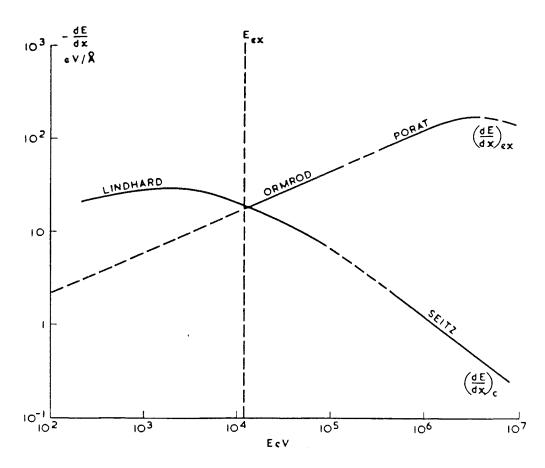


Abb. 8: Energieverlust dE/dx (Bremskraft) eines Graphit-Primärstoßatoms durch Atomstöße (c) bzw. durch Ionisierungsprozesse (ex) in Abhängigkeit von seiner Energie (aus [7]).

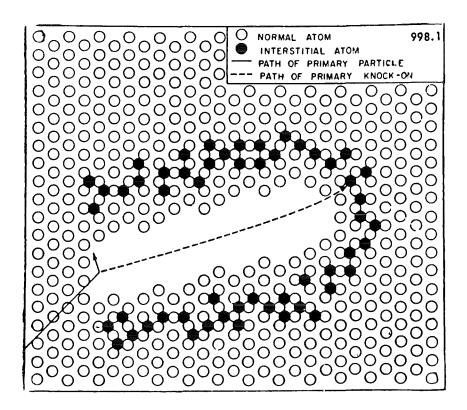


Abb. 9: Modellvorstellung einer Häufung von Atomverlagerungen am Ende einer Stoßatombahn (aus [8]).

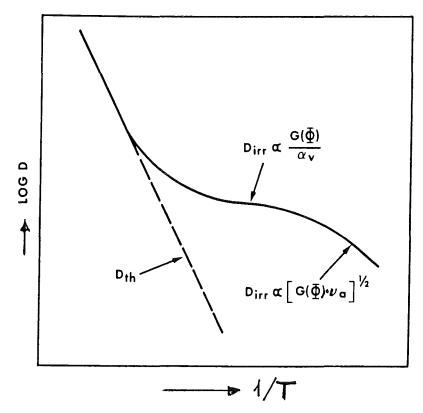


Abb. 10: Schematische Temperaturabhängigkeit des Diffusionskoeffizienten in kristallinen Materialien unter Teilchenbestrahlung (G (ϕ) = c_d).

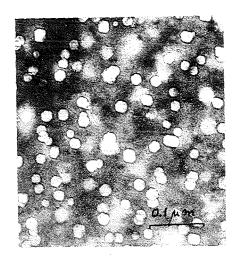


Abb. 11: Poren in Nickel nach Bestrahlung mit Ni-lonen (40 dpa bei 600 °C). Durchstrahlungs-Elektronenmikroskopie, ca 150000-fache Vergrößerung (aus [9])

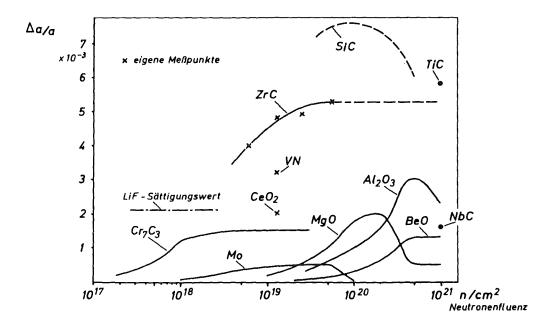


Abb. 12: Bestrahlungsbedingte Gitterkonstanten-Vergrößerung Δa/a von verschiedenen Materialien in Abhängigkeit von der Neutronenfluenz.

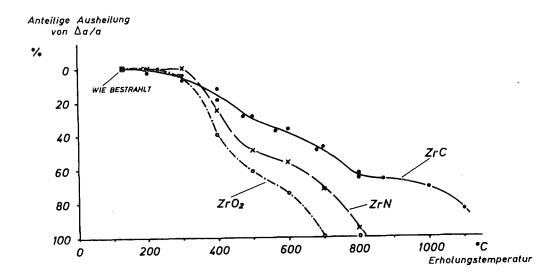


Abb. 13: Ausheilung der durch Neutronenbestrahlung verursachten Gitterkonstanten-Vergrößerung durch 2 h-Glühungen in Stufen von ca. 100 K. Die Schmelzpunkte von ZrO₂, ZrN und ZrC liegen bei 2715, 2980 bzw. 3540 °C.

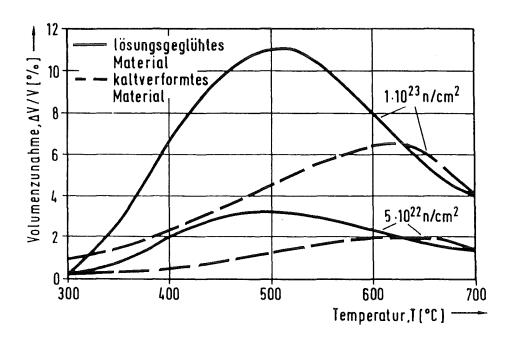


Abb. 14: Volumenzunahme von austenitischen Cr-Ni-Stählen unter Neutronenbestrahlung in Abhängigkeit von der Neutronenfluenz und der Bestrahlungstemperatur, sowie von der Vorbehandlung (nach [10]).

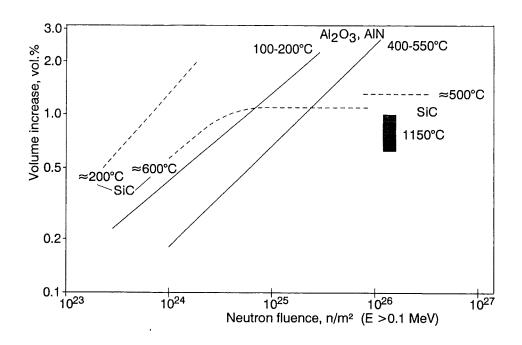


Abb. 15: Volumenzunahme von SiC und Al₂O₃ (ähnlich auch AlN) unter Neutronenbestrahlung. SiC zeigt Sättigung gemäß der Punktdefekt-Konzentration, Al₂O₃ dagegen nicht.

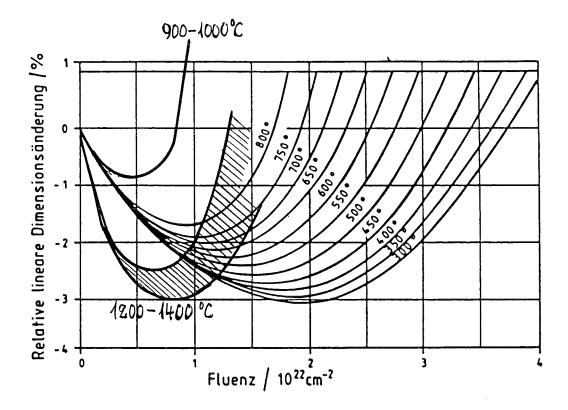


Abb. 16: Dimensionsänderung von Graphit unter Neutronenbestrahlung in Abhängigkeit von Neutronenfluenz und Bestrahlungstemperatur (aus [11]).

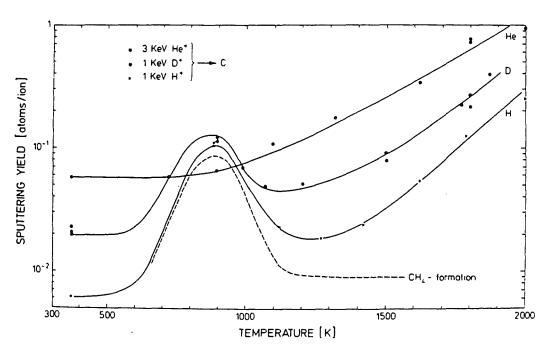


Abb. 17: Temperaturabhängigkeit der Zerstäubungsausbeute an Graphit unter Bestrahlung mit Wasserstoff- bzw. Helium-Ionen niedriger Energie (aus [12]).

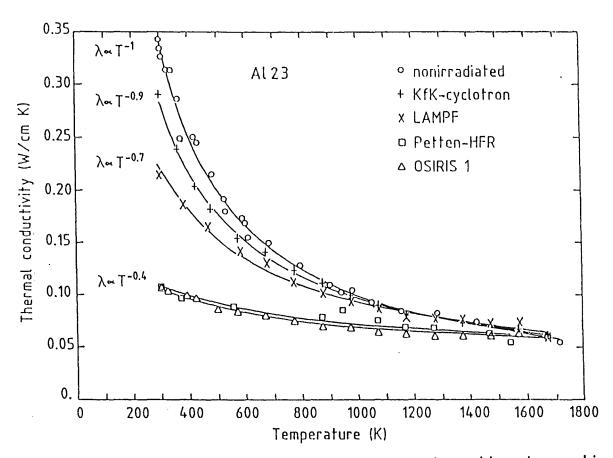


Abb. 18: Wärmeleitfähigkeit von Al $_2$ O $_3$ nach Neutronenbestrahlung in verschiedenen Experimenten: +=0,001 dpa, 400 °C, x=0,5 dpa, 330 °C, $\square=0,4$ dpa, 200 °C, $\triangle=5$ dpa, 550 °C (aus [13]).

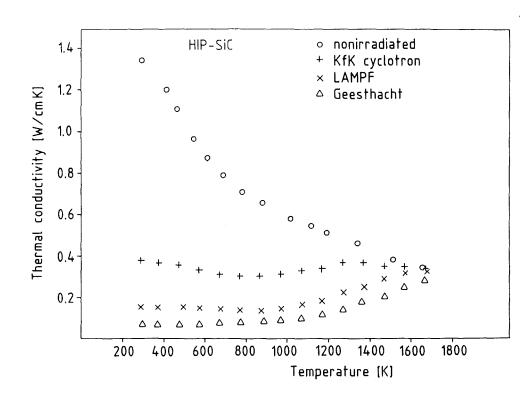


Abb. 19: Wärmeleitfähigkeit von SiC nach Neutronenbestrahlung in verschiedenen Experimenten: +=0,001 dpa, 430 °C, x=0,5 dpa, 330 °C, $\triangle=0,07$ dpa, 80 °C (aus [15]).

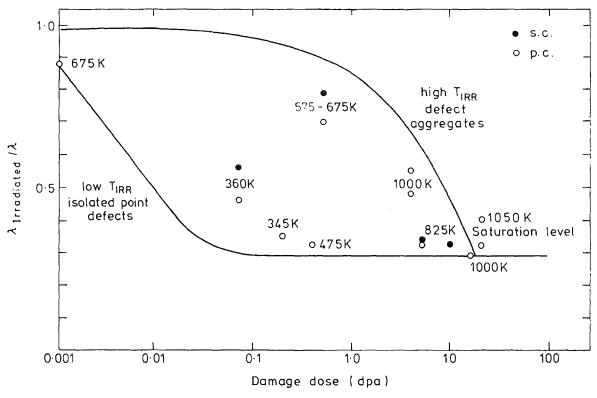


Abb. 20: Theoretisch berechnete Reduktion der Wärmeleitfähigkeit von Al₂O₃ in Abhängigkeit von der Schadensdosis (in dpa), verglichen mit experimentellen Ergebnissen (nach [16]).

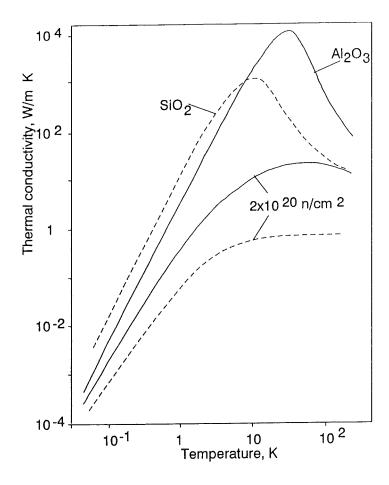


Abb. 21: Wärmeleitfähigkeit von Saphir (Al₂O₃) und Quarz (SiO₂) bei sehr tiefer Temperatur, unbestrahlt und nach Neutronenbestrahlung entspr. ca. 0,3 dpa (aus [17]).

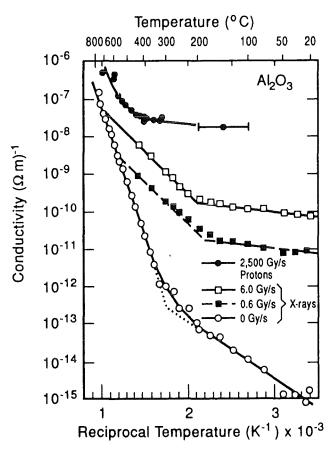


Abb. 22: Bestrahlungsbedingte elektrische Leitfähigkeit von Al₂O₃ in Abhängigkeit von der Dosisrate (aus [18]).

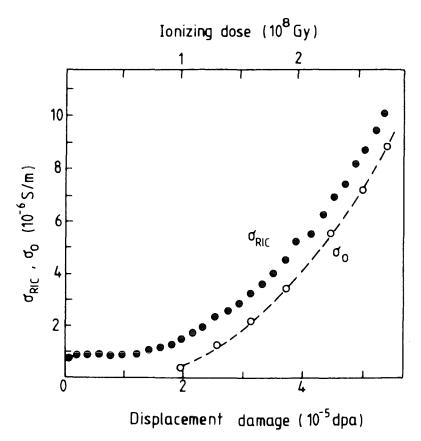


Abb. 23: Permanente Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit, σ_o , nach Elektronenbestrahlung von Al $_2O_3$ mit 2800 Gy/s bei 450 °C in einem starken elektrischen Feld von 130 V/mm, σ_{RIC} (aus [19]).

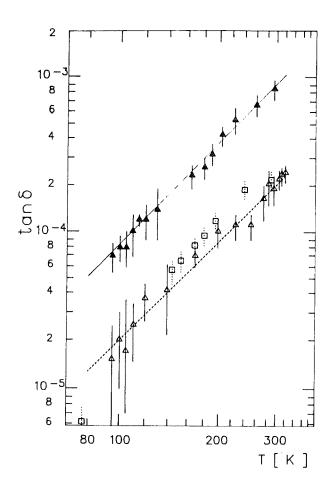


Abb. 24: Dielektrischer Verlustwinkel von Saphir (Al₂O₃) für etwa 150 GHz bei sehr tiefer Temperatur, unbestrahlt (offene Symbole) und nach geringer Neutronenbestrahlung mit 3,5·10²³ n/m² (gefüllte Dreiecke, alles aus [20]).

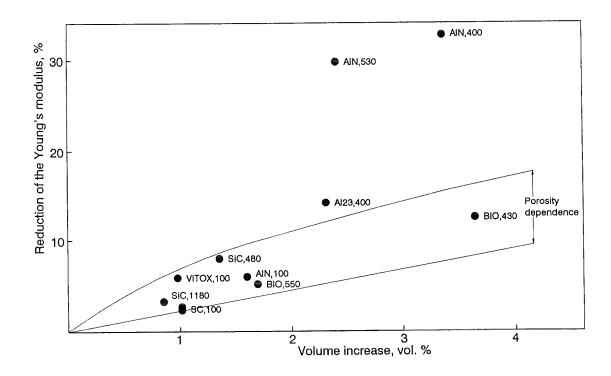


Abb. 25: Korrelation der Volumenvergrößerung mit der E-Modul-Verminderung verschiedener keramischer Werkstoffe unter Neutronenbestrahlung (Al₂O₃ ohne Stoffbezeichnung, die Zahlen sind Bestrahlungstemperaturen in °C).

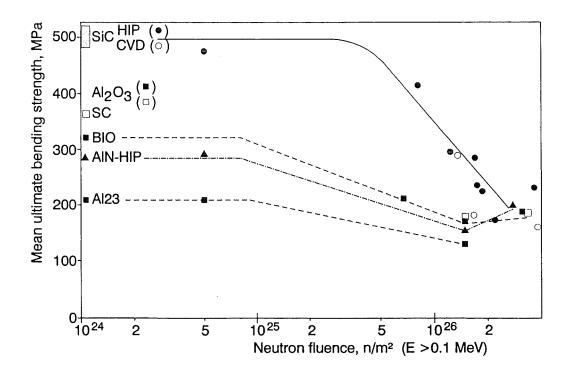
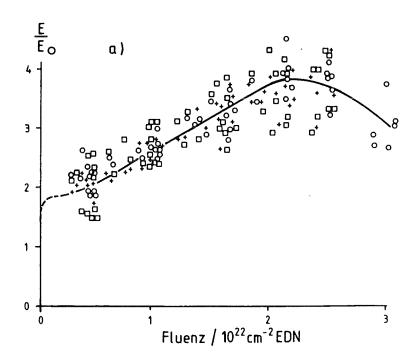


Abb. 26: Abnahme der Biegebruchfestigkeit verschiedener keramischer Werkstoffe unter Neutronenbestrahlung bei 400 - 600 °C.



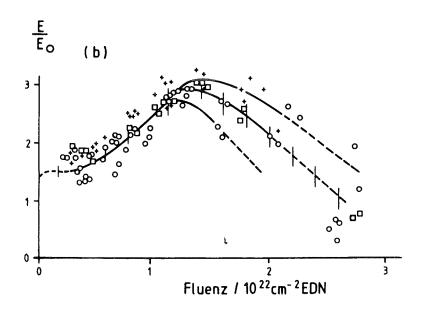


Abb. 27: Änderung des E-Moduls verschiedener Graphitsorten unter Neutronenbestrahlung bei 360 - 440 °C (a) bzw. 560 - 790 °C (b) (aus [21]).

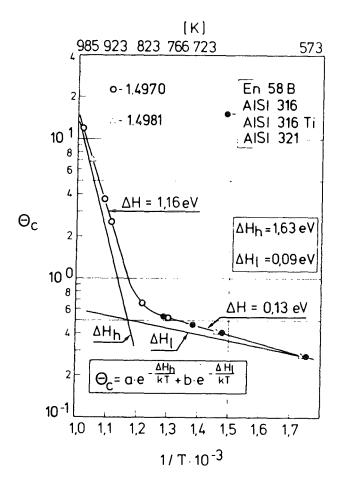


Abb. 28: Übergang vom thermischen zum bestrahlungsbedingten Kriechen bei austenitischen Cr-Ni-Stählen. θ_c ist eine bezüglich Bestrahlungsdosisrate (dpa/s) und Spannung normierte Kriechgeschwindigkeit (aus [22]).

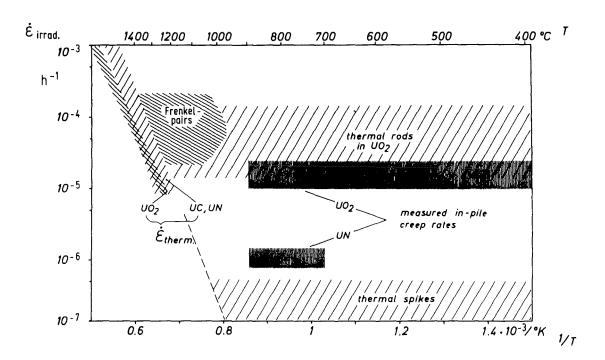


Abb. 29: Bestrahlungsbedingte Kriechgeschwindigkeit von UO₂ und UN bei einer Spaltungsrate von 2,5·10¹⁴ Sp./cm³s und einer Spannung von 20 MPa.

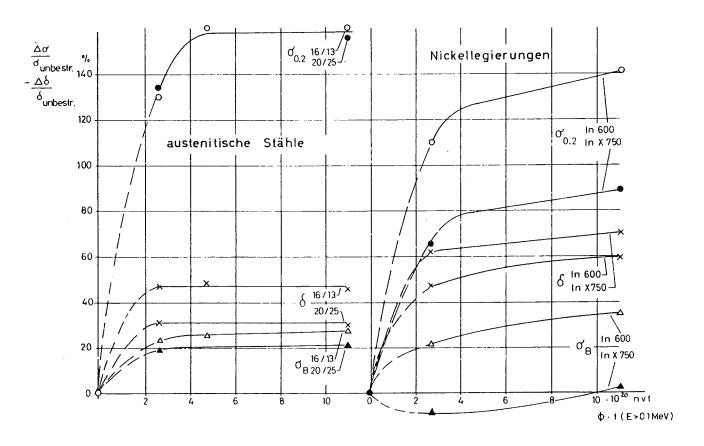


Abb. 30: Änderung der Streckgrenze $\sigma_{0.2}$, der Zugfestigkeit σ_B und der Bruchdehnung δ von warmfesten austenitischen Stählen (Cr/Ni in %) und von Nickellegierungen in Abhängigkeit von der Neutronenfluenz $\phi \cdot t$ (nvt = n/cm²).

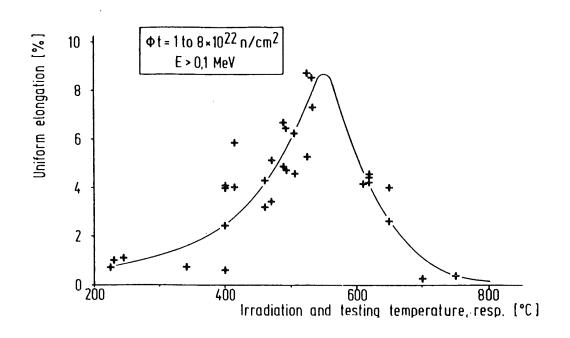


Abb. 31: Temperaturabhängigkeit der Gleichmaßdehnung eines 16 % Cr - 16 % Ni-Stahles nach Bestrahlung mit hohen Neutronenfluenzen φ·t.

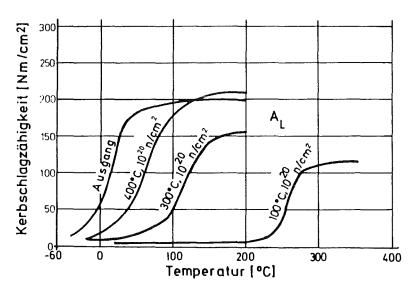


Abb. 32: Verschiebung der Duktil/Spröde-Übergangstemperatur der Kerbschlagzähigkeit eines niedriglegierten Reaktordruckbehälter-Stahls nach Neutronenbestrahlung mit 10^{20} n/cm² (E_n > 1 MeV) bei verschiedenen Temperaturen (nach H.J. Klaar u.a.).

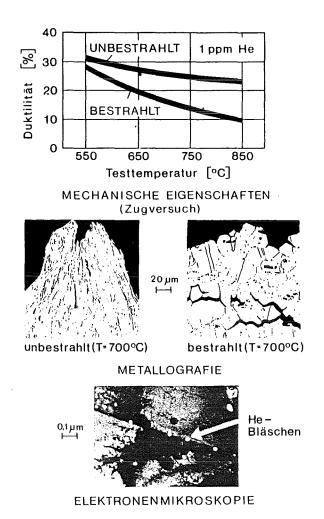


Abb. 33: Hochtemperaturversprödung eines austenitischen Cr-Ni-Stahls mit Anzeichen charakteristischer Korngrenzenschädigung (nach [23]).

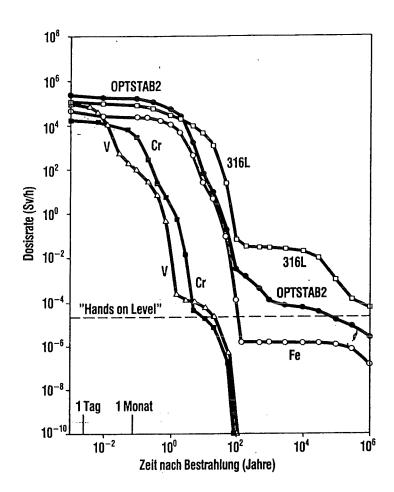


Abb. 34: Modellmäßig berechnete Abklingkurven der γ-Dosisrate an der Oberfläche der Brennkammerwand eines Kernfusionsreaktors für verschiedene Wandmaterialien. Hands on Level = Grenze unbedenklicher Handhabung, 316 L = 17 % Cr - 13 % Ni - 2 % Mo-Stahl, OPTSTAB2 = LAM-optimierter austenitischer Cr-Ni-Stahl (aus [24].

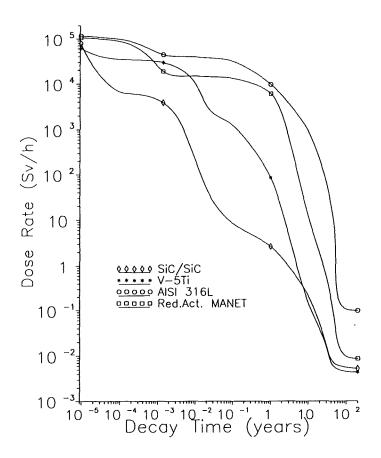


Abb. 35: Abklingkurve der γ-Dosisrate von Silizium nach Fusionsneutronenbestrahlung (aus [25]).

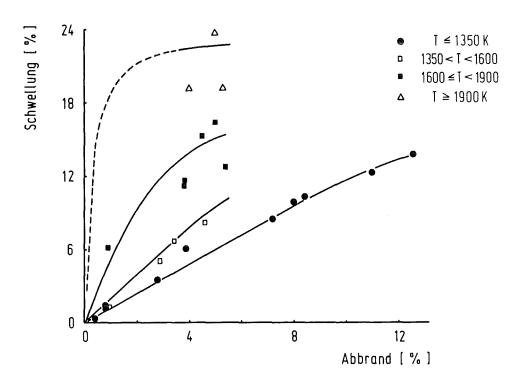


Abb. 36: Freie Schwellung (ohne Hüllrohr) von ${\sf UO_2}$ in Abhängigkeit vom Uran-Abbrand und von der Brennstofftemperatur.

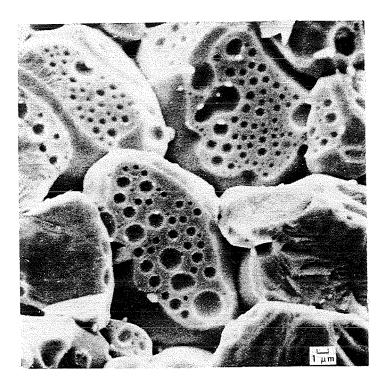


Abb. 37: Rasterelektronenmikroskopische Abbildung einer UO₂-Bruchfläche mit Spaltgasblasen.

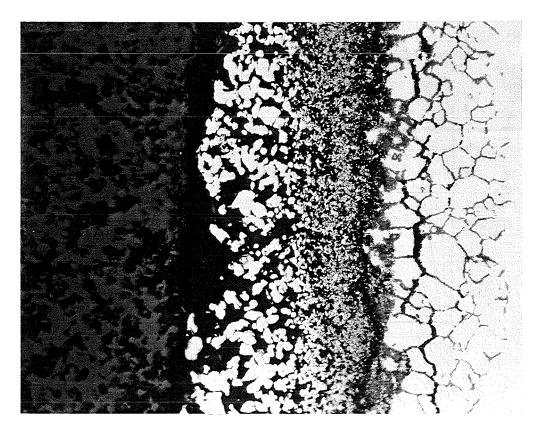


Abb. 38: Tiefer Korngrenzenangriff von UO₂-PuO₂-Brennstoff (links) auf das Cr-Ni-Stahlhüllrohr (rechts) nach beträchtlichem (U,Pu)-Abbrand (> 5 %). Vergrößerung 500x.