

KFK-423

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

März 1966

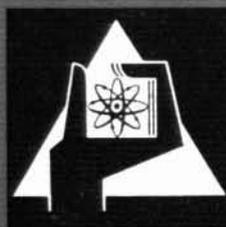
Forschungszentrum Karlsruhe GmbH  
in der Helmholtz-Gemeinschaft  
Hauptabteilung Bibliothek und Medien

KFK 423

Institut für Material- und Festkörperforschung

Änderung der mechanischen Eigenschaften von Chrom-Nickel-Stählen  
und Nickellegierungen durch Neutronenbestrahlung

H. Böhm, W. Dienst, H. Hauck, H. J. Laue



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

## ÄNDERUNG DER MECHANISCHEN EIGENSCHAFTEN VON CHROM-NICKEL-STÄHLEN UND NICKELLEGIERUNGEN DURCH NEUTRONENBESTRAHLUNG†

H. BÖHM, W. DIENST, H. HAUCK und H. J. LAUE

*Kernforschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, Deutschland*

Eingegangen am 25. Oktober 1965

Austenitische Chrom-Nickel-Stähle und Nickellegierungen wurden bei 70° C im Reaktor BR2 in Mol/ Belgien bestrahlt und die Änderungen der mechanischen Eigenschaften zwischen Raumtemperatur und 750° C untersucht. Die Werkstoffe zeigten bei Raumtemperatur die typische Versprödung durch Neutronenbestrahlung. Die Streckgrenze und die Zugfestigkeit stiegen an und die Bruchdehnung nahm ab. Eine Ausnahme bildete bei den ausscheidungsgeharteten Legierungen die Zugfestigkeit, die bei geringeren Neutronendosen leicht zurückging. Die Sättigung des Versprödungseffektes trat bei austenitischen Stählen nach einer Neutronendosis von  $3-5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 0.1$  MeV) ein, während die Nickellegierungen bis zu einer Dosis von  $1 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> noch eine deutliche Änderung der mechanischen Eigenschaften erkennen liessen. Die Erholung der mechanischen Eigenschaften setzte bei allen untersuchten Legierungen oberhalb 500° C ein. Glühungen bei 550° C führten nicht zur vollständigen Erholung. Die verbleibende Versprödung nimmt mit steigender Bestrahlungsdosis zu. Die Ausgangswerte der mechanischen Eigenschaften wurden erst nach einer 700° C-Glühlung erreicht.

Die Hochtemperaturversprödung, die sich vor allem in einer Erniedrigung der Bruchdehnung bemerkbar macht, setzte bei den Nickellegierungen bereits bei 550° C und bei den austenitischen Stählen erst oberhalb 600° C ein. Der Mechanismus der Hochtemperaturversprödung wird diskutiert.

Austenitic Cr-Ni steels and Ni-alloys were irradiated at 70° C in the reactor BR 2 in Mol/Belgium and the changes in the mechanical properties between room temperature and 750° C were studied. At room temperature the materials show the typical brittleness due to neutron irradiation. The yield strength and the tensile strength increase while the total elongation decreases. An exception are the values of the tensile strength of the precipitation hardened alloys which decrease when irradiated with small neutron doses. The changes in the mechanical properties seem to be

saturated after a neutron dose of  $3-5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> for the austenitic steels and after  $1 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> for the Ni-alloys. Recovery of the mechanical properties set in above 500° C in all the alloys studied. Annealing at 550° C did not lead to a full recovery. The brittleness remaining increases with increasing irradiation dose. The original values of the mechanical properties were reached first after annealing at 700° C.

High temperature embrittlement which is indicated by the decrease in ductility begins already at 550° C in the Ni-alloys and above 600° C in austenitic steels. The mechanism of high temperature embrittlement is discussed.

Des aciers Cr-Ni austénitiques et des alliages de nickel ont été irradiés à 70° C dans le réacteur BR2 de MOL en Belgique et les variations de propriétés mécaniques ont été étudiées entre la température ambiante et 750° C. A température ambiante les matériaux présentent la fragilité typique due à l'irradiation neutronique. La limite élastique et la charge de rupture augmentent tandis que l'allongement total diminue. Cependant les alliages durcis par précipitation constituent une exception en ce sens que leur résistance à la rupture diminue pour de faibles doses d'irradiation par les neutrons. Les variations de propriétés mécaniques semblent atteindre une limite après une dose d'irradiation de  $3-5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> pour les aciers austénitiques et après  $1 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> pour les alliages de nickel. La restauration des propriétés mécaniques se produit pour tous les alliages étudiés au-dessus de 500° C. Le recuit à 550° C ne conduisait pas à une restauration totale. La fragilité restante augmente avec la dose croissante d'irradiation. Les valeurs initiales des propriétés mécaniques étaient seulement atteintes après recuit à 700° C.

La fragilité à haute température qui est matérialisée par la diminution de la ductilité commence déjà à 550° C dans les alliages de nickel et au-dessus de 600° C dans les aciers austénitiques. Le mécanisme de cette fragilisation à haute température est discuté.

† Dieser Bericht wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren geschrieben.

## 1. Einführung

Im Rahmen einer Untersuchung über den Einsatz von hochwarmfesten Legierungen als Hüllwerkstoffe für Brennelemente eines Hochtemperaturreaktors wurden die Änderungen der mechanischen Eigenschaften verschiedener austenitischer Chrom-Nickel-Stähle und Nickellegierungen nach einer Neutronenbestrahlung bei 70° C verfolgt.

Nach den derzeitigen Kenntnissen über das Verhalten von austenitischen Stählen und Nickellegierungen unter Bestrahlung beeinflussen Neutronen sowohl durch Stossprozesse als auch durch Kernreaktionen die mechanischen Eigenschaften. Während jedoch die durch Stossprozesse eingebrachten Gitterfehlordnungen durch Wärmebehandlungen nach der Bestrahlung nahezu voll ausgeheilt werden, d.h. oberhalb einer bestimmten Temperatur die Eigenschaften nicht mehr beeinflussen, werden die durch Kernreaktionen erzeugten Gitterstörungen erst bei hohen Temperaturen wirksam. Die dadurch hervorgerufenen Änderungen der mechanischen Eigenschaften bezeichnet man als Hochtemperaturversprödung.

## 2. Literaturübersicht

### 2.1. EIGENSCHAFTEN BEI TIEFEN TEMPERATUREN

Die durch Stossprozesse mit schnellen Neutronen hervorgerufene Versprödung von austenitischen Stählen und Nickellegierungen führt bei niedrigen Temperaturen zu einer Erhöhung der Streckgrenze und Zugfestigkeit sowie zu einem Abfall der Bruchdehnung<sup>1-6</sup>). Je nach dem Legierungstyp, der Vorbehandlung und den Bestrahlungsbedingungen kann sich die Streckgrenze um 100–150 % erhöhen. Die Zugfestigkeit zeigt eine Zunahme von 20–50 %, die Dehnung verringert sich um 20–60 %. Diese Änderungen der mechanischen Eigenschaften können durch eine Wärmebehandlung nach der Bestrahlung wieder weitgehend rückgängig gemacht werden<sup>2, 3, 6, 7</sup>). Die angegebenen Erholungstemperaturen liegen zwischen 450° und 650° C.

### 2.2. EIGENSCHAFTEN BEI HOHEN TEMPERATUREN

Die bisher beschriebenen Eigenschaftsänderungen zeigen sich bei Bestrahlungs- und Prüftemperaturen bis zum Gebiet der Erholung. Oberhalb 500° bis 600° C wird die Hochtemperaturversprödung wirksam. Sowohl in diesem Hochtemperaturbereich, als auch im Tieftemperaturbereich bestrahlte Zugproben zeigen bei einer Prüfung bei hohen Temperaturen einen starken Rückgang der Dehnung<sup>2, 5, 7-10, 11, 13, 15</sup>). Bestrahlungen in verschiedenen Reaktoren mit einem unterschiedlichen Verhältnis von thermischem zu schnellem Neutronenfluss scheinen zu beweisen, dass die Hochtemperaturversprödung durch thermische Neutronen erzeugt wird<sup>11, 12</sup>). Zur Erklärung geht man von der Annahme aus, dass geringe Mengen Bor durch die thermische  $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion zu Lithium und Helium umgewandelt werden<sup>5, 7, 11</sup>). Die He-Atome scheiden sich in kleinen Gasblasen aus, die zur Schwächung der Korngrenzen führen oder aber keimbildend für Karbidausscheidungen wirken. Nach einer anderen Annahme sollen Ansammlungen von Wasserstoffatomen die werkstoffschädigende Funktion der He-Atome übernehmen. Diese H-Atome entstehen durch die "schnelle" Reaktion  $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ , Ref. 7).

### 2.3. VERHALTEN AUSSCHIEDUNGSGEHÄRTETER LEGIERUNGEN

Ein wesentlicher Unterschied zwischen austenitischen Cr-Ni-Stählen und Nickellegierungen bezüglich der Grösse der Eigenschaftsänderungen nach der Bestrahlung ist nicht zu erkennen.

Dagegen zeigen nicht ausscheidungsgehärtete und ausscheidungsgehärtete Legierungen verschiedenes Verhalten<sup>3, 15, 17</sup>). Während bei den nicht ausscheidungsgehärteten Cr-Ni-Stählen oder Nickellegierungen im Tieftemperaturbereich sowohl die Streckgrenze als auch die Zugfestigkeit stark ansteigen, fällt die Zugfestigkeit von ausscheidungsgehärteten Legierungen in einigen Fällen um 10–20 %, Ref. 14–16).

TABELLE 1  
Analyse der Materialien in Gew. %

Material	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Mo	V	Ti	Nb	Al	B	N <sub>2</sub>	Fe	Co	Cu	Zr
16/13 <sup>†</sup> CrNi	0.1	0.55	1.39	0.017	0.016	17.5	12.9				1.04	0.015		0.036	Rest			
16/13 CrNi	0.017	0.43	0.11	0.008	0.013	16.88	13.0				0.2		1 ppm		Rest	0.015	0.14	
15/25 CrNi	0.065	0.02	1.2	0.006	0.007	14.6	23.9	1.3	0.3	2.4		0.16	50	0.004	Rest			
20/25 CrNi	0.017	0.67	0.71	0.015	0.008	19.92	24.68			0.01	0.01	0.01	0.5 ppm	0.023	Rest	0.015	0.06	0.02
Inconel 600	0.059	0.43	1.16	0.01	0.004	16.33	Rest						0.5 ppm		5.0	0.005	0.01	
Inconel <sup>†</sup> X 750	0.06	0.32	0.61	0.004	0.008	15.3	70.3			2.9	1.33	0.9		0.018	7.7			
Inconel X 750	0.027	0.28	0.67	0.02	0.005	15.41	Rest			2.58	1.24	1.1	2 ppm		5.2	0.02	0.006	

<sup>†</sup> Diese Materialien wurden von der Fa. Röchling Saarstahl geliefert. Alle übrigen Werkstoffe stammen von Fa. Gussstahlwerk Witten.

### 3. Versuchsdurchführung

Als Probenmaterial wurden die austenitischen Chrom-Nickel-Stähle 16/13 Cr/Ni (Nb), 20/25 Cr/Ni, 15/25 Cr/Ni (Mo, Ti) und die Nickellegierungen Inconel 600 und Inconel X 750 ausgewählt. Die beiden Legierungen 15/25 Cr/Ni (Mo, Ti) und Inconel X 750 lagen im ausgehärteten Zustand vor, die anderen Legierungen waren weichgeglüht. Die Analysen des Probenmaterials sind in Tabelle 1 wiedergegeben.

Das Probenmaterial wurde in Form von kleinen Gewindekopfproben mit 3 mm Durchmesser und einer Gesamtlänge von 62 mm im Reaktor BR 2 in Mol/Belgien bei 70° C bestrahlt. Das gesamte Material wurde in 3 Beladungen eingesetzt, wobei jede Beladung entsprechend der Neutronenflussverteilung im Bestrahlungskanal in zwei Bereiche unterteilt werden kann, deren mittlere Flüsse sich etwa um den Faktor 2 unterscheiden. Da sich bei der Untersuchung aber keine eindeutig erkennbaren Abweichungen der gemessenen Eigenschaften zwischen den Proben beider Bereiche ergaben, werden diese im folgenden nicht unterschieden.

Für die mittleren integrierten Flüsse der drei Beladungen können folgende Werte angegeben werden:

Beladung A:	$\varphi_s (E > 0,1 \text{ MeV}) = 4.8 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_s (E > 1 \text{ MeV}) = 3.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_{th} = 5.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
Beladung B:	$\varphi_s (E > 0,1 \text{ MeV}) = 2.7 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_s (E > 1 \text{ MeV}) = 1.9 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_{th} = 3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
Beladung C:	$\varphi_s (E > 0,1 \text{ MeV}) = 1.1 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_s (E > 1 \text{ MeV}) = 7.8 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$
	$\varphi_{th} = 1.3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$

Die Zugversuche wurden auf einer 10 t-Universalprüfmaschine mit elektronischer Kraftmessung und mechanischer Dehnungsmessung durchgeführt. Die Verformungsgeschwindigkeit betrug 0.2 mm/mm·min.

### 4. Versuchsergebnisse

#### 4.1. ÄNDERUNG DER MECHANISCHEN EIGENSCHAFTEN BEI RAUMTEMPERATUR

Die Änderung der mechanischen Eigenschaften bei Raumtemperatur (Tabelle 2) entspricht den aus der Literatur zu entnehmenden

TABELLE 2

Mechanische Eigenschaften von unbestrahlten und bestrahlten austenitischen Stählen und Nickellegierungen: Bestrahlungstemperatur:  $\sim 70^\circ \text{C}$ , Pruftemperatur:  $20^\circ \text{C}$ . Mittelwerte aus mehreren Messungen

Be- ladung	Mittl. inte- grierter Fluss nvt. $10^{20}$ ( $E > 0.1 \text{ MeV}$ )	Material	Streckgrenze $\sigma_{0.2}$ (kp/mm <sup>2</sup> )		Zugfestigkeit $\sigma^B$ (kp/mm <sup>2</sup> )		Bruchdehnung (%)	
			un- bestrahlt	bestrahlt	un- bestrahlt	bestrahlt	un- bestrahlt	bestrahlt
A	4,8	16/13 CrNiNb	25,7	65,9	58,7	73,5	37,8	19,4
		15/25 CrNi	53,4	85,3	100,1	90,8	19,7	8,6
		Inconel X 750*	84,5	112,2	130,8	121,3	15,6	4,6
		Inconel X 750 <sup>†</sup>	70,4	103,7	117,0	109,7	15,0	4,3
B	2,7	16/13 CrNiNb	25,8	59,7	55,6	69,2	42,5	22,5
		20/25 CrNi	21,8	51,1	52,7	62,7	38,7	26,8
		Inconel 600	39,1	82,2	71,6	87,1	27,5	14,6
		Inconel X 750 <sup>†</sup>	59,7	86,1	115,2	105,0	21,0	7,9
C	11,0	16/13 CrNiNb	25,8	67,0	55,6	70,7	42,5	22,9
		20/25 CrNi	21,8	51,1	52,7	62,7	38,7	26,8
		Inconel 600	39,1	94,5	71,6	95,8	27,5	11,4
		Inconel X 750 <sup>†</sup>	59,7	113,1	115,2	117,3	21,0	6,6

\* Rochling Saarstahl GmbH. <sup>†</sup> Gussstahlwerk Witten, Anlieferung 1. <sup>‡</sup> Gussstahlwerk Witten, Anlieferung 2.

Daten für gleichartige Materialien. Für die nicht aushärtbaren Legierungen stiegen die Streckgrenze  $\sigma_{0.2}$  um 115–160 % und die Zugfestigkeit  $\sigma_B$  um 20–35 %, die Bruchdehnung  $\delta$  sank um 30–55 %. Für die ausgehärteten Legierungen stieg  $\sigma_{0.2}$  nur um 30–90 %. Die Zugfestigkeit  $\sigma_B$  zeigte bei den niedrigen Neutronendosen einen Abfall von 5–10 %. Bei der höchsten Neutronendosis ist dagegen ein geringer Anstieg festzustellen. Die Bruchdehnung  $\delta$  sank um 60–70 %.

4.2. SÄTTIGUNG DES BESTRAHLUNGSEFFEKTES

Die mittleren Neutronendosen für die Bestrahlungen A, B und C verhielten sich wie 1.8:1.0:4.1. Die entsprechenden Dosisunterschiede werden durch die Dosischwankung innerhalb einer Beladung nur knapp (zwischen A und B) oder bei weitem nicht (zwischen B und C) überlappt. Daher ist ein Vergleich der an Proben aus verschiedenen Bestrahlungen bei Raumtemperatur gemessenen Eigenschaftswerte durchaus noch geeignet, einen Überblick über die Sättigungstendenz der Bestrahlungseffekte zu geben (Fig. 1). Man erkennt, dass sich bei

den nicht aushärtbaren austenitischen Stählen die untersuchten Eigenschaften bereits nach einer Neutronendosis von  $3-5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $>0.1$  MeV) nicht mehr wesentlich ändern. Dagegen zeigen die Eigenschaften der Nickellegierungen im Intervall  $2.7-11 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $>0.1$  MeV) noch eine deutliche Änderung.

4.3. ERHOLUNG DER MECHANISCHEN EIGENSCHAFTEN NACH DER BESTRAHLUNG

Nach einstündigen Glühungen an Proben der Beladung A bei 300° bis 700° C (Fig. 2) zeigt sich, dass bei etwa 500° C eine deutliche Erholung der mechanischen Eigenschaften einsetzt und bei 700° C vollständige Erholung zu erreichen ist. Nach den Glühungen bei 300° C deutet sich dagegen teilweise noch eine weitere Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften an.

Im Verlauf von 0.5- bis 8-stündigen Erholungsglühungen an Proben der Beladung A bei 550° C. d.h. also im Temperaturbereich deutlicher Erholung, kam der Erholungsprozess nach wenigen Stunden zum Abschluss (Fig. 3), führte jedoch bei weitem nicht zur vollständigen

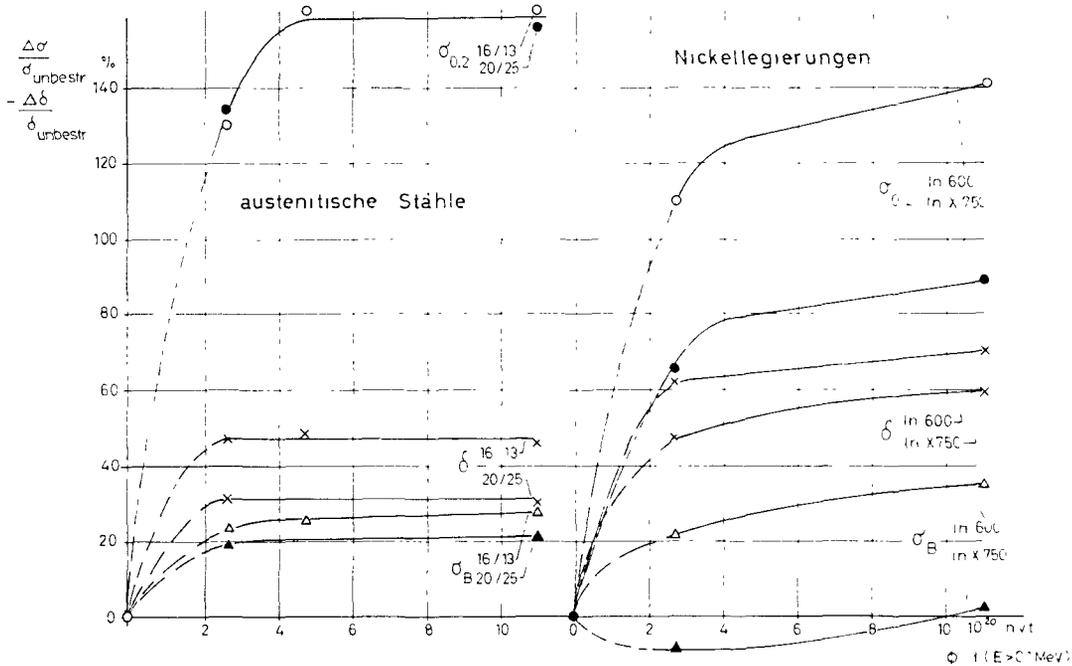


Fig. 1. Relative Änderung der mechanischen Eigenschaften nach verschiedenen Neutronendosen.

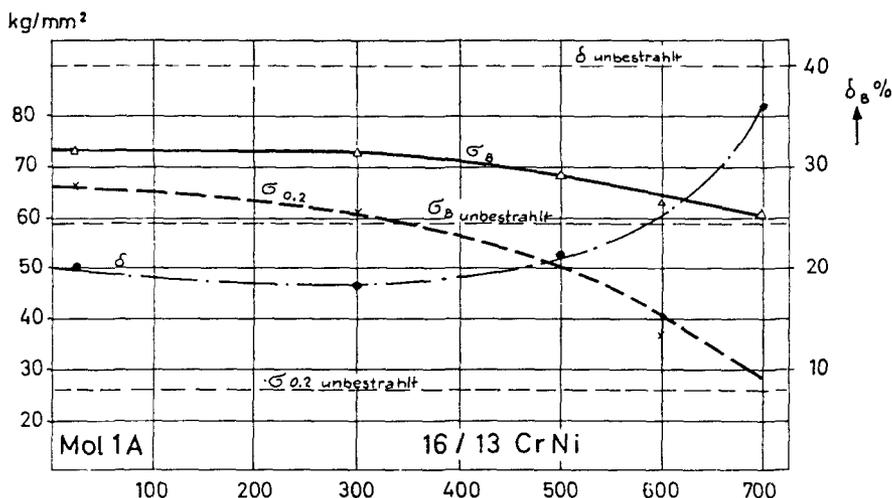


Fig. 2. Mechanische Eigenschaften bei RT. nach 1-stündiger Erholungsglühung.

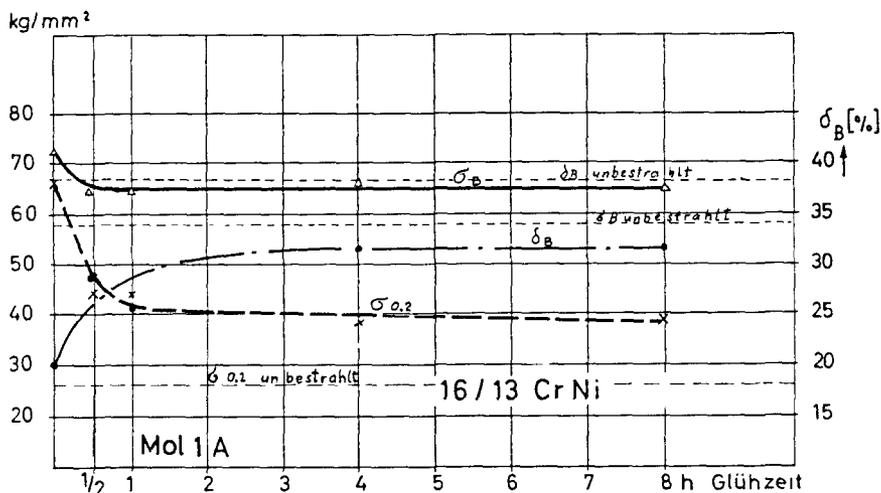


Fig. 3. Mechanische Eigenschaften bei RT. nach Erholungsglühung bei 550° C.

Erholung der mechanischen Eigenschaften; es wurden nur 50–70 % der Änderungen rückgängig gemacht. Die Erholung der Zugfestigkeit bei den ausgehärteten Legierungen zeigt kein einheitliches Bild und scheint stark vom Legierungstyp und Ausscheidungszustand abzuhängen, z.B. setzt sich für 15/25 Cr/Ni (Mo, Ti) die Abnahme der Zugfestigkeit durch Bestrahlung bei der 550° C-Erholungsglühung noch weiter fort.

Die mit einer wesentlich höheren Neutronendosis bestrahlten Proben der Beladung C zeigten nach gleicher Wärmebehandlung (0.5–8 h, 550° C) eine geringere Erholung ihrer

mechanischen Eigenschaften; sie erreichte nur 20–60 % der Änderungen nach der Bestrahlung (Fig. 4). Der Erholungsprozess war darüber hinaus nicht in allen Fällen nach 8 Stunden bei 550° C abgeschlossen.

#### 4.4. ÄNDERUNG DER MECHANISCHEN EIGENSCHAFTEN BEI HOHEN TEMPERATUREN

Warmzugversuche an bestrahlten Proben der Beladung C bei Temperaturen von 500° bis 700° C zeigten, dass die  $\sigma_{0.2}$ -Werte oberhalb von etwa 600° C annähernd mit denen von unbestrahlten Proben übereinstimmen. Dagegen war die Bruchdehnung der bestrahlten Proben

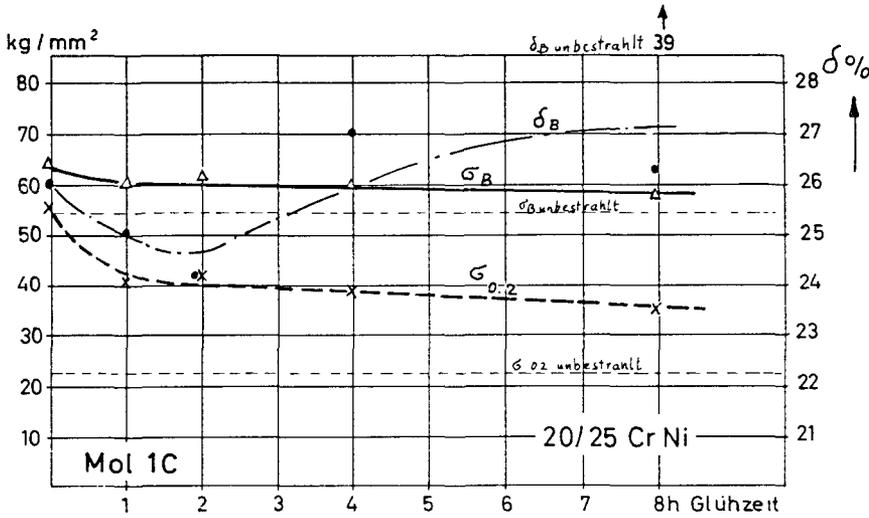


Fig. 4. Mechanische Eigenschaften bei RT. nach Erholungsglühung bei 550° C.

bei allen untersuchten Legierungen weit herabgesetzt (Fig. 5). Während sich die Hochtemperaturversprödung von austenitischen Stählen in der Bruchdehnung bei 600° C noch nicht bemerkbar macht, ist sie bei den Nickellegierungen schon oberhalb 500° C deutlich. Die Bruchdehnung liegt bei diesen Legierungen oberhalb 550° C in der Größenordnung 1-5 %.

Die Zugfestigkeit bei hohen Temperaturen war bei allen untersuchten Legierungen nach der Bestrahlung deutlich, aber in sehr verschiedenem Ausmass herabgesetzt. Während bei Nickellegierungen der Abfall der Zugfestigkeit bei 600° C den grössten Wert erreicht, verringert sie sich bei austenitischen Stählen erst oberhalb

700° C. Diese Ergebnisse wurden durch Warmzugversuche an bestrahlten Proben der Beladung A und B bei 600° C (nach 100-stündiger Glühung bei 600° C) und bei 750° C im wesentlichen bestätigt (Fig. 6, 7). Vergleichswerte zu den Messungen bei 750° C lassen sich für die bestrahlten Proben der Beladung C durch Extrapolation der Kurven in Fig. 6 gewinnen. Sie gestatten eine Prüfung der Neutronendosisabhängigkeit der Hochtemperaturversprödungseffekte bei 750° C. Es zeigt sich, dass im hier untersuchten Bereich von  $3-13 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  (thermisch) keine systematische Änderung der Verminderung der Zugfestigkeit und Bruchdehnung durch die Bestrahlung feststellbar ist.

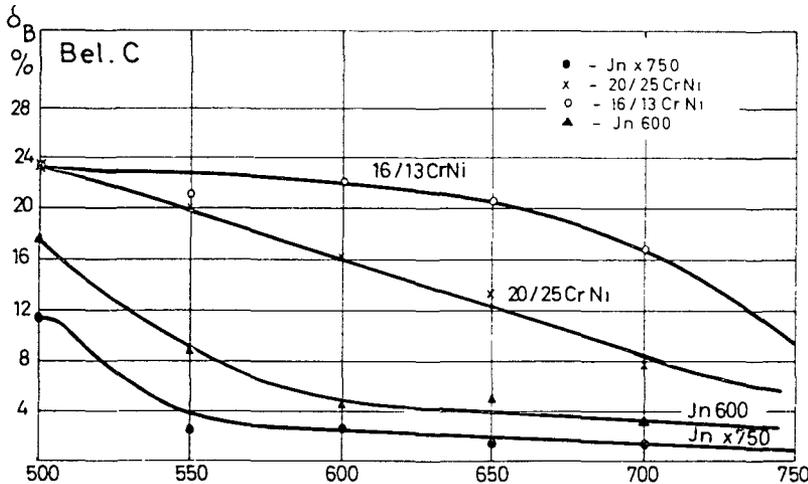


Fig. 5. Bruchdehnung nach Bestrahlung bei verschiedenen Prüftemperaturen.

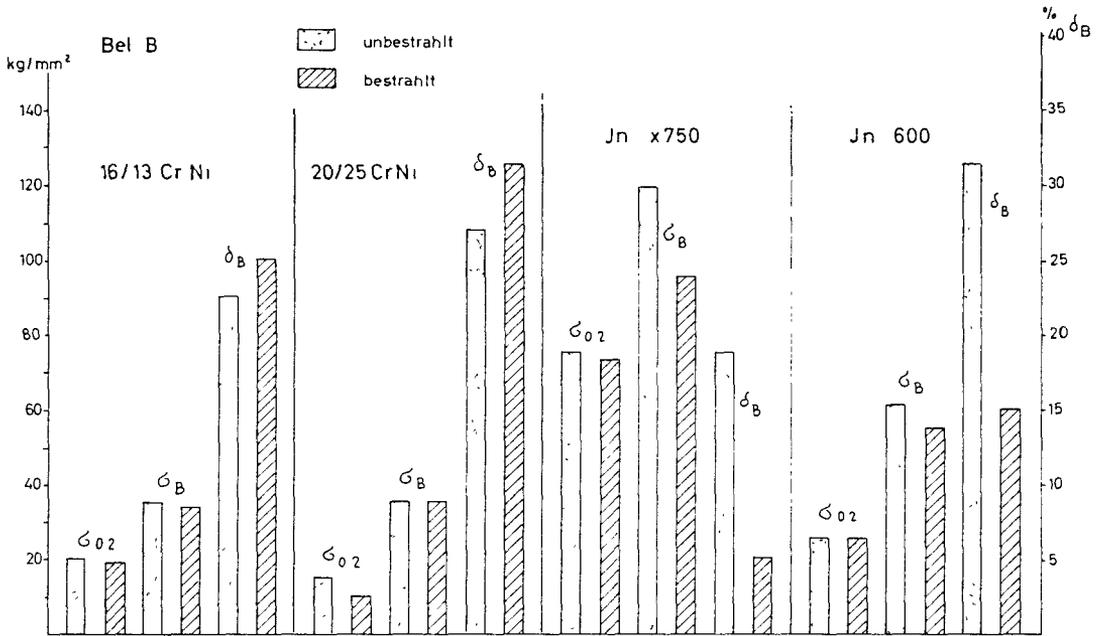


Fig. 6. Mechanische Eigenschaften bei 600° C nach einer 100-stündigen Glühung bei 600° C.

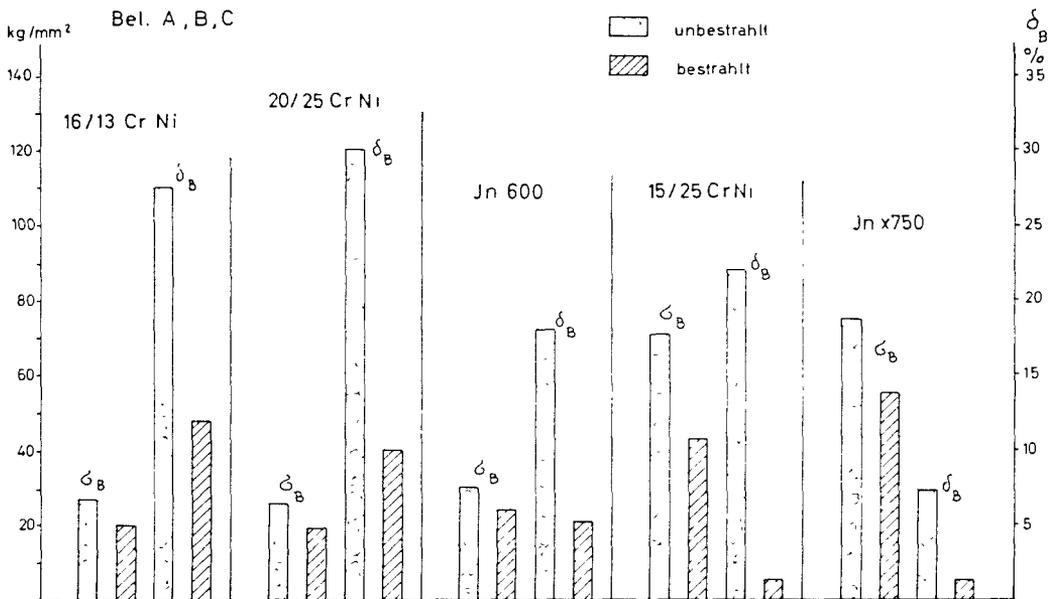


Fig. 7. Zugfestigkeit und Bruchdehnung bei 750° C.

5. Diskussion der Ergebnisse

Die von uns gemessenen prozentualen Festigkeitsänderungen bei Raumtemperatur nach einer Dosis von  $\geq 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> stimmen sehr gut mit Literaturwerten überein. Dies ist verständlich, da bereits mehrere Untersuchungen<sup>17, 18)</sup>

gezeigt haben, dass z.B. keine systematischen Unterschiede im Bestrahlungsverhalten austenitischer Stähle bestehen.

Die Veränderungen der mechanischen Eigenschaften bei Raumtemperatur werden auf die durch Stossprozesse mit schnellen Neutronen

erzeugten Fehlstellenagglomerate zurückgeführt, die im Gegensatz zu Einzelfehlstellen bis zu den Temperaturen merklicher Selbstdiffusion stabil sind, während die Einzelfehlstellen bereits bei wesentlich tieferen Temperaturen ausheilen. Bei nicht aushärtbaren Legierungen führen diese Fehlstellen zu einer Erhöhung der Streckgrenze und Zugfestigkeit und Erniedrigung der Dehnung, während bei ausscheidungsgehärteten Legierungen in einigen Fällen eine Abnahme der Zugfestigkeit<sup>5, 15)</sup> bei ansteigender  $\sigma_{0,2}$ -Grenze gefunden wurde. Man muss hier unterscheiden zwischen dem einfachen Fall, bei dem die Bestrahlungsversprödung so stark ist, dass ein Bruch vor Beginn der Einschnürung erfolgt und dem komplizierteren Fall, bei dem eine Erniedrigung der Zugfestigkeit bei erhöhter Streckgrenze nur infolge einer weit stärkeren Abnahme der Verfestigung  $d\sigma/d\varepsilon$  auftreten kann, als sie bei nicht ausscheidungsgehärteten Legierungen beobachtet wird. Bei allen untersuchten Proben traf die zweite Möglichkeit zu. Die Zugfestigkeit scheint in Abhängigkeit von der Neutronendosis ein Minimum zu durchlaufen, das bei  $\geq 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> (siehe auch Collins *et al.*<sup>14)</sup> liegt. Die Ursachen für dieses Verhalten des ausscheidungshärtenden Inconel X 750 bei Neutronenbestrahlung sind noch nicht geklärt.

Die Frage der Sättigung mit Strahlenschäden ist wichtig im Hinblick auf eine Extrapolation zu höheren Bestrahlungsdosen. Die Ausheilgeschwindigkeit nimmt mit steigender Fehlstellendichte zu, sodass selbst bei Raumtemperatur damit zu rechnen ist, dass sich ein dynamisches Gleichgewicht zwischen erzeugten und ausheilenden Fehlstellen einstellt, das zu einer Sättigung führt. Da die Ausheilgeschwindigkeit auch mit der Temperatur ansteigt, während die Bildungsgeschwindigkeit konstant bleibt, sollten sowohl der Sättigungswert als auch die Sättigungsdosis mit steigender Temperatur abnehmen. Dabei wird jedoch vorausgesetzt, dass die Art des erzeugten Gitterfehlers bei allen Bestrahlungstemperaturen gleich ist, was zumindest hinsichtlich der Grösse der Fehlstellenagglomerate nicht zutrifft. So gibt es Arbeiten<sup>4, 20, 23)</sup>, die darauf hinweisen, dass in

austenitischen Stählen bei Bestrahlungstemperaturen zwischen 300° C und 450° C eine stärkere Schädigung als bei Raumtemperaturbestrahlung eintritt und eine Sättigung selbst bei  $10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> noch nicht erreicht ist. Bei den von uns untersuchten austenitischen Stählen scheint eine Sättigung bei  $\geq 5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $> 1$  MeV) erreicht zu sein, was mit Literaturwerten gut übereinstimmt, wonach austenitische Stähle bei Raumtemperaturbestrahlung eine Sättigung bei  $> 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> zeigen<sup>21, 22)</sup>.

Die Verstärkung der Strahlenschädigung bei einer nachfolgenden 300° C-Glühung ist möglicherweise auf die Bildung stabiler Defekte infolge Diffusion zurückzuführen und kann somit ähnliche Ursache wie die stärkere Schädigung bei einer 300° C-Bestrahlung haben.

Hinsichtlich der Erholung der eingebrachten Gitterfehler haben unsere Untersuchungen ergeben, dass eine starke Erholung der mechanischen Eigenschaften bei allen untersuchten Legierungen erst oberhalb 500° C einsetzt und eine vollständige Erholung bei 700° C erreicht wird. Wertet man die Kurven hinsichtlich der Erholungskinetik aus, so zeigt sich, dass bei 550° zumindest für die nichtaushärtbaren Legierungen die für eine monomolekulare Reaktion gültige Beziehung,  $\ln \Delta\sigma$  bzw.  $\ln \Delta\delta \propto (t)$ , recht gut erfüllt ist, wobei  $\Delta\sigma$  und  $\Delta\delta$  die Festigkeits- bzw. Bruchdehnungsänderungen infolge Bestrahlung sind. Die geringere Ausheilgeschwindigkeit bei höherer Dosis (Beladung C), die besonders in der  $\ln\sigma$ -(t)-Auftragung deutlich wird, ist zunächst überraschend, da man mit zunehmender Zahl der Gitterfehler eine erhöhte Erholungsgeschwindigkeit erwarten sollte. Da jedoch bei höherer Dosis nicht nur die Erholungsgeschwindigkeit, sondern auch der Betrag der Erholung abnimmt, muss man annehmen, dass sich mit steigender Dosis stabilere Defekte bilden und der Anteil der weniger stabilen Defekte zurückgeht.

Die bei Prüftemperaturen oberhalb 500° bei den Nickellegierungen und oberhalb 600° bei den austenitischen Stählen auftretende Hochtemperaturversprödung, die sich in einer Verminderung der Zugfestigkeit und besonders der

Bruchdehnung bemerkbar macht, ist nach den derzeitigen Vorstellungen auf Kernumwandlungen, insbesondere auf die  $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion zurückzuführen<sup>5, 7, 12)</sup>. Das dabei gebildete Helium wird sich, nicht zuletzt wegen der starken Bor-Anreicherung in den Korngrenzen, in Form von Gasblasen in den Korngrenzen ansammeln.

Der Temperaturbereich einsetzender Hochtemperaturversprödung ist durch den Übergang von transkristallinen zu interkristallinen Bruch gekennzeichnet, der nicht nur von der Legierungszusammensetzung abhängig ist, sondern in starkem Masse auch von der Verformungsgeschwindigkeit. Die an den Korngrenzen gebildeten He-Blasen können durch Herabsetzung der Korngrenzenfestigkeit eine Verschiebung des Überganges vom transkristallinen zum interkristallinen Bruch zu tieferen Temperaturen bewirken. Damit ist eine Erniedrigung der Bruchdehnung verbunden.

Gegen die kürzlich geäußerte Ansicht<sup>9)</sup>, dass die Versprödung auf eine durch Bestrahlung veränderte Karbidausscheidung zurückzuführen ist, sprechen Ergebnisse, wonach die Versprödung auch nach einer langzeitigen Glühung bei 1150° C nicht rückgängig gemacht werden kann<sup>7)</sup>. Eine Versprödung durch Wasserstoff, der durch (n, p)-Reaktionen [z.B.  $^{58}\text{Ni}(\text{n}, \text{p})^{58}\text{Cr}$ ] gebildet wird, erscheint auf Grund der im Vergleich zu Helium grossen Löslichkeit des Wasserstoffs und insbesondere seiner hohen Diffusionsgeschwindigkeit unwahrscheinlich, so dass das durch die  $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion gebildete Helium als Ursache der Hochtemperaturversprödung anzusehen ist. Die beobachtete Abhängigkeit der Eigenschaftsänderung vom thermischen Fluss<sup>5, 24)</sup> spricht dafür, dass die thermische  $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion unter den in Frage kommenden Kernreaktionen hier den entscheidenden Beitrag zur Hochtemperaturversprödung liefert.

Bei austenitischen Stählen mit B-Gehalten zwischen 1 und 5 ppm hat sich gezeigt, dass die Versprödung bei  $5 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup> einsetzt<sup>5, 11)</sup>. Das entspricht einer abgebrannten  $^{10}\text{B}$ -Menge von maximal  $2 \times 10^{-2}$  ppm. Da bei einer

Neutronendosis von etwa  $5 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> das gesamte  $^{10}\text{B}$  weitgehend abgebrannt ist, ist es verständlich, dass in unseren Versuchen keine Abhängigkeit der Hochtemperaturversprödung von der Neutronendosis mehr vorliegt. Die geringe Zahl umgewandelter  $^{10}\text{B}$ -Atome, bei der erste Schädigungen auftreten, lässt die Schwierigkeiten erkennen, die mit der Hochtemperaturversprödung verbunden sind, da es sehr schwierig wird austenitische Stähle oder Nickellegierungen mit B-Gehalten unter 0.1 ppm herzustellen.

Die Untersuchungen wurden im Rahmen der Hüllmaterialentwicklung für den schnellen Brutreaktor Karlsruhe durchgeführt.

Die technischen Vorbereitungen der Versuche sowie die Bestrahlungen in Mol/Belgien lagen in den Händen von Dipl.-Ing. W. Kramer. Für die Vorbereitungen und Nachuntersuchungen der Proben danken wir den Herren M. Schirra und H. Leier.

#### Literatur

- 1) E. E. Baldwin und E. A. Dinerwan, KAPL-MEED-17 (1961)
- 2) W. P. Chernock, R. N. Mayfield und J. R. Weir, 3. Genfer Konf., A/Conf. 28/P/255 (1964)
- 3) C. R. Cupp, AECL-Report 948 (1959)
- 4) J. C. Tobin, M. S. Wechsler und A. D. Rossin, 3. Genfer Konf., A/Conf. 28/P/242 (1964)
- 5) G. H. Broomfield, D. R. Harries und A. C. Roberts, AERE-Report 4745 (1964)
- 6) S. H. Bush und J. C. Tobin, HW-SA-Report 3000 (1963)
- 7) E. V. Gusev, N. F. Pravdyuk *et al.*, 3. Genfer Konf. A/Conf. 28/P/339a (1964)
- 8) A. N. Hughes und J. R. Caley, J. Nucl. Mat. 10 (1963) 60
- 9) D. R. Arkell und P. C. L. Pfeil, J. Nucl. Mat. 12 (1964) 145
- 10) J. Fennell und A. C. Roberts, J. Nucl. Mat. 12 (1964) 167
- 11) D. R. Harries *et al.*, 3. Genfer Konf., A/Conf. 28/P/162 (1964)
- 12) A. C. Roberts und D. R. Harries, Nature 200 (1963) 772
- 13) W. R. Martin und J. R. Weir, Nature 202 (1964) 997
- 14) C. G. Collins, G. L. Hammons, F. C. Robertshaw und W. H. Coutts, APEX-Report 676 (1961)

- |   |  |
|---|--|
| <p>15) T. T. Claudson und H. J. Pessl, HW-SA-Report 3436 (Conf. 512-2) (1964)</p> <p>16) W. L. Kosiba, GAMD-Report 2363 (1961)</p> <p>17) J. C. Wilson und R. G. Berggren, Proc. ASTM 55 (1955) 689/707</p> <p>18) S. S. Ibragimov, V. S. Lyashchenko und A. J. Zayalov, Reactor Science and Techn. 16 (Jan. 1962)</p> <p>19) C. R. Cupp, AED-Conf. 1962-167-19</p> | <p>20) J. E. Irvin, A. L. Bement und R. G. Hoagland, HW-SA-Report 3221 (Conf. 512-1) (1964)</p> <p>21) M. H. Bartz, TID-Report 7515 (1956) 19</p> <p>22) Werkstoffe der Kerntechnik 3 (VEB, Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1963) 67</p> <p>23) S. S. Ibragimov, J. M. Woronin und A. S. Kruglov, Energie Atomique 15 (1963) 44</p> <p>24) H. Böhm, W. Dienst und H. Hauck, J. Nucl. Mat. demnachst</p> |
|---|--|