

Hauck

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

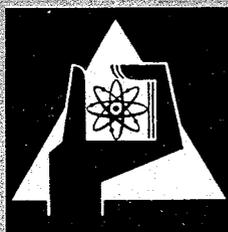
April 1966

KFK 446

Institut für Material- und Festkörperforschung
Abteilung Reaktorbetrieb

Untersuchungen über die Hochtemperatur-Versprödung
von austenitischen Chrom-Nickel-Stählen und Nickellegierungen
durch Neutronenbestrahlung

H. Böhm, W. Dienst, H. Hauck



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



UNTERSUCHUNGEN ÜBER DIE HOCHTEMPERATUR-VERSPRÖDUNG VON AUSTENITISCHEN CHROM-NICKEL-STÄHLEN UND NICKELLEGIERUNGEN DURCH NEUTRONENBESTRAHLUNG

H. BÖHM, W. DIENST und H.-J. HAUCK

Institut für Materialforschung und Reaktorbetriebsabteilung, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Deutschland

Eingegangen am 18. November 1965

Zur Untersuchung der Hochtemperaturversprödung durch Neutronenbestrahlung wurden Zugproben aus verschiedenen austenitischen Stählen und Nickellegierungen (16/13 CrNi, 20/25 CrNi, Inconel 600, Inconel 625, Inconel X750) mit integrierten thermischen Neutronenflüssen von 3×10^{15} bis $2,5 \times 10^{20}$ n/cm² bestrahlt und anschliessend in Zugversuchen bei 750° C geprüft. Das Versuchsprogramm ging von der Annahme aus, dass die Hochtemperaturversprödung durch die Bildung von Helium in der Reaktion $^{10}\text{B}(n, \alpha) ^7\text{Li}$ verursacht wird.

Die Streckgrenze und die Zugfestigkeit der untersuchten Proben zeigten keine systematische Änderung durch die Neutronenbestrahlung. Die Bruchdehnung wurde dagegen von einer gewissen Schwellneutronendosis an stark herabgesetzt. Die Schwelldosiswerte hängen vom Probenmaterial ab; sie liegen zwischen 10^{16} und 10^{18} n/cm² und deuten auf einen gesetzmässigen Zusammenhang mit der Festigkeit des Probenmaterials hin.

Die beobachtete Sättigung des Versprödungseffekts oberhalb von etwa 3×10^{20} n/cm² lässt sich durch den weit fortgeschrittenen ^{10}B -Abbrand im Probenmaterial erklären. Durch einen 2 mm-Kadmium-Schirm um die Bestrahlungskapsel wurde die Verminderung der Bruchdehnung auf Restwerte reduziert, die etwa dem Anteil epithermischer Neutronen an der $^{10}\text{B}(n, \alpha) ^7\text{Li}$ -Reaktion entsprechen.

Schliffbilder der Bruchflächenumgebung von Zugproben, die in früheren Versuchen nach Bestrahlung mit $1,3 \times 10^{21}$ thermischen Neutronen/cm² bei Prüftemperaturen von 500–750° C zerrissen wurden, zeigten eine verstärkte und bei tieferen Temperaturen einsetzende Korngrenzenrissbildung nach der Neutronenbestrahlung.

In order to study the high temperature embrittlement due to neutron irradiation, tensile specimens of different austenitic steels and Ni-alloys (16/13 CrNi, 20/25 CrNi, Inconel 600, Inconel 625, Inconel X750) were subjected to a thermal neutron dose of 3×10^{15} to $2,5 \times 10^{20}$ n/cm². The experimental programme was

based on the assumption that high temperature embrittlement is caused by the formation of helium in the reaction $^{10}\text{B}(n, \alpha) ^7\text{Li}$.

The yield strength and the ultimate tensile strength showed no systematic changes due to neutron irradiation. On the other hand, the elongation to fracture was lowered by considerable amount up a certain threshold-neutron dose. The threshold neutron doses depend on the materials; they lie between 10^{16} and 10^{18} n/cm² and tend to indicate a relationship with the tensile strength of the materials.

The observed saturation of the embrittlement effect above about 3×10^{20} n/cm² could be explained by the far advanced ^{10}B burn-up in the specimen. By means of a 2 mm Cd shield, the decrease in ductility was reduced to values which correspond to the amount of epithermal neutrons.

Metallographs of the fracture-area of tensile specimens which were subjected to tensile tests at temperatures of 500–750° C after irradiation with $1,3 \times 10^{21}$ thermal neutrons/cm², showed a stronger grain boundary crack formation starting at lower temperatures after neutron irradiation.

Afin d'étudier la fragilité à haute température due à l'irradiation par les neutrons, des éprouvettes de traction de divers aciers austénitiques et d'alliages de nickel (18/13 Cr-Ni, 20/25 Cr-Ni, Inconel 600, Inconel 625, Inconel X750) ont été soumis à une dose de neutrons thermiques de 3×10^{15} à $2,5 \times 10^{20}$ n/cm². Le programme expérimental était basé sur l'hypothèse que la fragilité à haute température est causée par la formation d'hélium suivant la réaction $^{10}\text{B}(n, \alpha) ^7\text{Li}$.

La limite élastique et la charge de rupture maximale ne subissaient pas de variations systématiques dues à l'irradiation neutronique. Par contre, l'allongement de rupture était abaissé d'une manière considérable pour une dose de neutrons critique. Les doses neutroniques critiques dépendent des matériaux: elles se situent entre 10^{16} et 10^{18} n/cm² et ont tendance à indiquer une relation avec la charge de rupture des matériaux.

La saturation observée pour l'effet de fragilisation pour une dose d'irradiation supérieure à 3×10^{20} n/cm² environ pourrait être expliquée par la combustion de ¹⁰B très avancée dans l'échantillon. Et grâce à un écran de cadmium de 2 mm, la diminution de ductilité fut réduite à des valeurs qui correspondent à la quantité de neutrons épithermiques.

1. Einführung

In einer vorangegangenen Veröffentlichung ¹⁾ wurde über eine Untersuchung der mechanischen Eigenschaften verschiedener austenitischer Chrom-Nickel-Stähle und Nickellegierungen nach Neutronenbestrahlung berichtet. Die dort dargestellten Ergebnisse umfassten auch die sogenannte Hochtemperaturversprödung, die sich vor allem in einer starken Erniedrigung der Bruchdehnung bei Temperaturen oberhalb von 500–600° C äussert. Für die Auswahl oder Entwicklung geeigneter Hüllmaterialien für Hochtemperaturreaktoren ist eine genauere Kenntnis des Mechanismus der Hochtemperaturversprödung von grosser Bedeutung. Daher wurden im Anschluss an die oben erwähnten Ergebnisse zusätzliche Untersuchungen unternommen, die zum Teil den Einfluss auf den Bruchmechanismus, überwiegend aber die Neutronendosisabhängigkeit der Hochtemperaturversprödung betrafen.

Vor der Wiedergabe und Diskussion der erzielten Ergebnisse sollen zunächst kurz die einschlägigen Angaben und Überlegungen in der Literatur behandelt werden.

2. Mechanismus der Hochtemperaturversprödung

Die Erscheinung der Hochtemperaturversprödung nach Neutronenbestrahlung wurde erst verhältnismässig spät beim Zugversuch in voller Klarheit beobachtet und beschrieben ²⁾, obwohl bereits wesentlich früher entsprechende Hinweise durch die Ergebnisse von Zeitstandsversuchen vorlagen, z.B. ³⁾. Der Umfang der veröffentlichten Versuchsergebnisse an austenitischen Chrom-Nickel-Stählen und Nickellegierungen nahm dann allerdings schnell zu ⁴⁻⁷⁾. Gleichzeitig machte die Aufklärung der Ursache

Les métallographies des surfaces de rupture des éprouvettes de traction soumises à des essais de traction à des températures de 500 à 750° C après irradiation par $1,3 \times 10^{21}$ neutrons thermiques révélaient une plus forte tendance à la formation de fissures intergranulaires s'amorçant aux plus basses températures après irradiation neutronique.

für die Hochtemperaturversprödung Fortschritte.

Die schon früh ³⁾ geäusserte Vermutung, dass die Bildung von Helium durch die Kernumwandlung ¹⁰B ($n_{\text{thermisch}}, \alpha$) ⁷Li zu einer versprödend wirkenden Gefügeschädigung im neutronenbestrahlten Material führt, fand mehrfache Unterstützung. So konnte durch Bestrahlungen mit sehr verschiedenen Neutronenspektren glaubhaft gemacht werden, dass die Hochtemperaturversprödung vorzugsweise durch thermische Neutronen verursacht wird ^{8,9)} – im Gegensatz zu den schon viel länger bekannten Strahlenschäden bei tieferen Temperaturen, die durch Stösse schneller Neutronen im Kristallgitter hervorgerufen werden. Es konnte zwar kein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Hochtemperaturversprödung und dem Borgehalt der bestrahlten Materialien (im allgemeinen in der Grössenordnung von 1 ppm) nachgewiesen werden, wohl aber eine sehr deutliche Abhängigkeit von dem Gehalt an ¹⁰B, Ref. ⁹⁾, das in natürlichem Bor nur zu etwa 20 % enthalten ist.

Darüber hinaus wurde in einer anderen Arbeit darauf hingewiesen, dass auch die Bildung von Wasserstoff durch die Kernumwandlung ⁵⁸Ni (n_{schnell}, p) ⁵⁸Co für die Hochtemperaturversprödung verantwortlich sein könnte ⁷⁾. Diese Vermutung stützte sich vor allem auf die Tatsache, dass die Hochtemperaturversprödung bisher überwiegend an nickelhaltigen Legierungen nachgewiesen worden ist. Sie liesse sich in die umfassende Aussage einbeziehen, dass der Hochtemperaturversprödung die Erzeugung von Gasen im Inneren des Gefüges zugrunde liegt.

Hinsichtlich des Mechanismus der Hochtemperaturversprödung nehmen mehrere Autoren an, dass Ansammlungen von Helium-Atomen im Gitter Keime für Ausscheidungen

bilden 4, 5, 10), die die beobachtete Erniedrigung der Bruchdehnung verursachen. Gegen diese Annahme sprechen die Ergebnisse von Erholungsglühungen, die zur Auflösung oder Vergrößerung derartiger Ausscheidungen führen müssten, die aber die Hochtemperaturversprödung nicht rückgängig machen konnten 4, 5, 7, 11).

Andere Autoren führen die Hochtemperaturversprödung auf eine Schwächung der Korngrenzen 11) durch Helium-Ansammlung 3) oder – mit schärferer Aussage – auf die Bildung von Gasblasen in Korngrenzen und Phasengrenzflächen zurück 7, 12, 13). Der Vorstellung, dass die Hochtemperaturversprödung auf einer Schwächung der Korngrenzen durch Gasblasen beruht, lassen sich sinnvoll Versuchsergebnisse zuordnen, nach denen der Versprödungseffekt mit abnehmender Verformungsgeschwindigkeit steigt 14); denn unter der Einwirkung von Zugspannungen können sich die Gasblasen durch Einwanderung von Leerstellen zu Poren wesentlich grösserer Ausdehnung erweitern.

In diesem Zusammenhang ist anzumerken, dass nach den vorangehenden Betrachtungen eine Hochtemperaturversprödung auch für andere Materialien als Chrom-Nickel-Stähle und Nickelbasislegierungen zu erwarten ist, wenn in ihnen durch Kernumwandlungen unter Neutronenbestrahlung Gase erzeugt werden. Sie ist auch tatsächlich an Beryllium und Magnesium-Lithium-Legierungen beobachtet und auf (n, α)-Kernreaktionen mit folgender Bildung von Helium-Blasen an Korngrenzen zurückgeführt worden 15, 16).

Die bisherigen Untersuchungsergebnisse legen es nahe, die eigenen Versuche auf der Annahme aufzubauen, dass die Hochtemperatur-

versprödung auf der Schwächung der Korngrenzen durch die Bildung von Gasblasen beruht. Diese Annahme sollte einerseits nach Möglichkeit anschaulich bestätigt und andererseits bezüglich der Gaserzeugung und der Blasenbildung einer quantitativen Prüfung unterzogen werden.

3. Untersuchung der Abhängigkeit der Hochtemperaturversprödung von der Neutronendosis

Die Untersuchung über den Mechanismus der Hochtemperaturversprödung musste sinnvollerweise von der Menge der sich an den Korngrenzen ansammelnden Gase ausgehen. Dabei erschienen die Mindestmenge, bei der Hochtemperaturversprödungseffekte nachweisbar werden, und die Menge, bei der die früher 1) beobachtete Sättigung dieser Effekte eintritt, von besonderem Interesse. Die Ermittlung dieser Gasmengen machte Bestrahlungen mit relativ niedrigen Neutronendosen erforderlich. Da es bereits als sehr wahrscheinlich gelten konnte, dass die Hochtemperaturversprödung durch Helium verursacht wird, das aus der Kernumwandlung $^{10}\text{B} (n, \alpha) \text{ } ^7\text{Li}$ durch thermische und epithermische Neutronen hervorgeht, wurden die Bestrahlungen im relativ weichen Neutronenspektrum des Reaktors FR2 in Karlsruhe durchgeführt.

3.1. VERSUCHSBEDINGUNGEN

Für die Bestrahlungsversuche fanden vor allem die in Tabelle 1 zusammengestellten Materialien Verwendung, die nur in einigen Fällen durch Inconel X750-Proben anderer Herkunft (z.T. mit wesentlich höheren Bor-

TABELLE 1
Zusammensetzung des Probenmaterials (in Gew.-%)

| Material | C | Fe | Ni | Cr | Mo | Nb | Ti | Al | B (ppm) |
|-------------------|-------|------|------|------|-----|------|------|-----|---------|
| 16/13 CrNi . . . | 0,017 | Rest | 13,0 | 16,9 | | 0,2 | | | 1 |
| 20/25 CrNi . . . | 0,017 | Rest | 24,7 | 19,9 | | | | | 0,5 |
| Inconel 600 . . . | 0,059 | 5,0 | Rest | 16,3 | | | | | 0,5 |
| Inconel X750 . . | 0,027 | 5,2 | Rest | 15,4 | | 1,24 | 2,58 | 1,1 | 2 |
| Inconel 625 . . . | 0,03 | 2,7 | Rest | 21,8 | 8,5 | 3,5 | | | 15 |

gehalten) ergänzt wurden. Diese Materialien wurden bei Temperaturen unterhalb von 60°C mit Neutronendosen von 3×10^{15} bis $2,5 \times 10^{20}$ thermischen Neutronen/cm² und etwa 1×10^{14} bis 8×10^{18} schnellen Neutronen/cm² ($E > 1\text{ MeV}$) bestrahlt. Die Neutronenflüsse lagen bei etwa 3×10^{13} bzw. 1×10^{12} n/cm²·sec. Für die Bestrahlungen mit sehr niedrigen Neutronendosen wurde die Rohrpostanlage am FR2-Reaktor verwendet.

Da auch der mögliche Einfluss des durchaus noch beachtlichen schnellen Neutronenflusses im FR2-Reaktor auf die Hochtemperaturversprödung abgeschätzt werden sollte, kamen Proben der Materialien in Tabelle 1 – mit Ausnahme von Inconel 625 – zusätzlich in Kadmium-Kapseln mit 2 mm Wanddicke zur Bestrahlung, die den thermischen Neutronenfluss etwa um den Faktor 10^{10} schwächten. Die Bestrahlungstemperatur dieser Proben blieb sicher unterhalb 350°C .

Die bestrahlten Zugproben (M5-Gewindekopf-Proben mit 3 mm Durchmesser und 40 mm Messlänge) wurden auf einer hydraulischen

Universalprüfmaschine mit einer Dehngeschwindigkeit von 0,2/min geprüft. Die Streckgrenze $\sigma_{0,2}$ und die Bruchdehnung δ_B wurden aus dem mit 10-facher Dehnungsvergrößerung registrierten Kraft-Dehnungsdiagramm entnommen. Als Prüftemperatur wurde 750°C gewählt, weil bei dieser Temperatur nach früheren Versuchsergebnissen¹⁾ für alle hier untersuchten Materialien mit einer vollen Ausbildung des Hochtemperaturversprödungseffekts zu rechnen war. Die Haltezeit in der engeren Umgebung der Versuchstemperatur betrug jeweils etwa 30 min.

3.2. VERSUCHSERGEBNISSE

Zur Darstellung der Versuchsergebnisse ist einleitend zu bemerken, dass die Streckgrenze und die Zugfestigkeit der untersuchten Materialien – mit Ausnahme von Inconel X750 – nach Bestrahlung mit thermischen Neutronendosen in der Größenordnung von 10^{20} n/cm² keine systematische Änderung zeigten. Als die gegen Neutronenbestrahlung weitaus empfindlichste mechanische Eigenschaft bei hohen

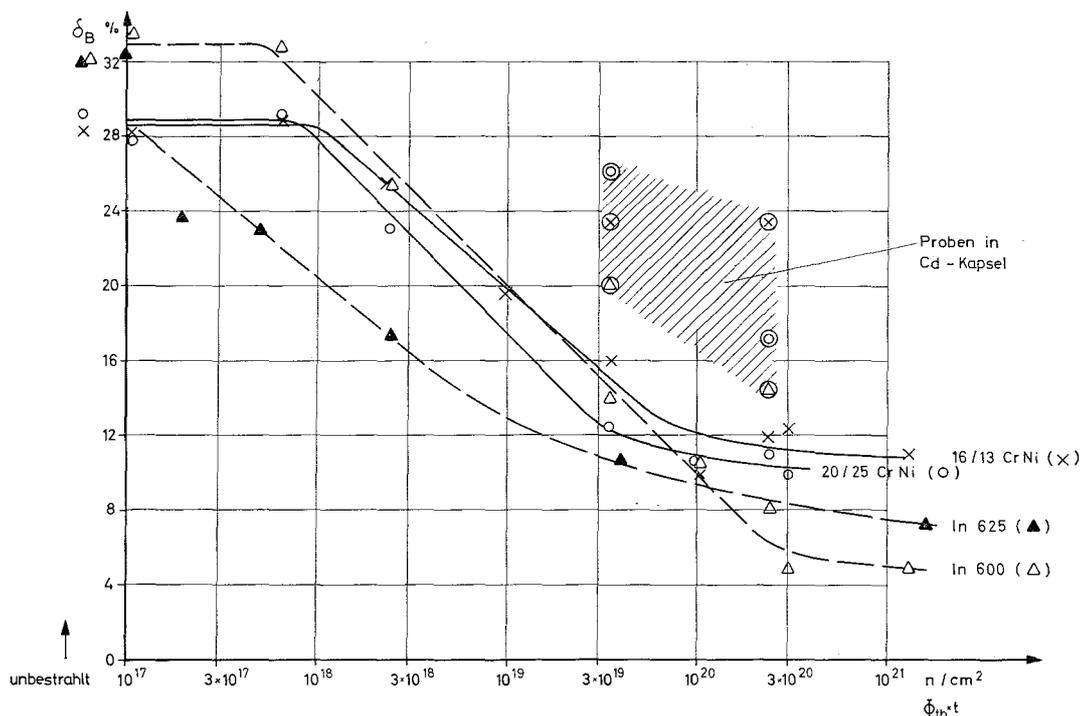


Fig. 1. Abhängigkeit der Bruchdehnung bei 750°C von der thermischen Neutronendosis.

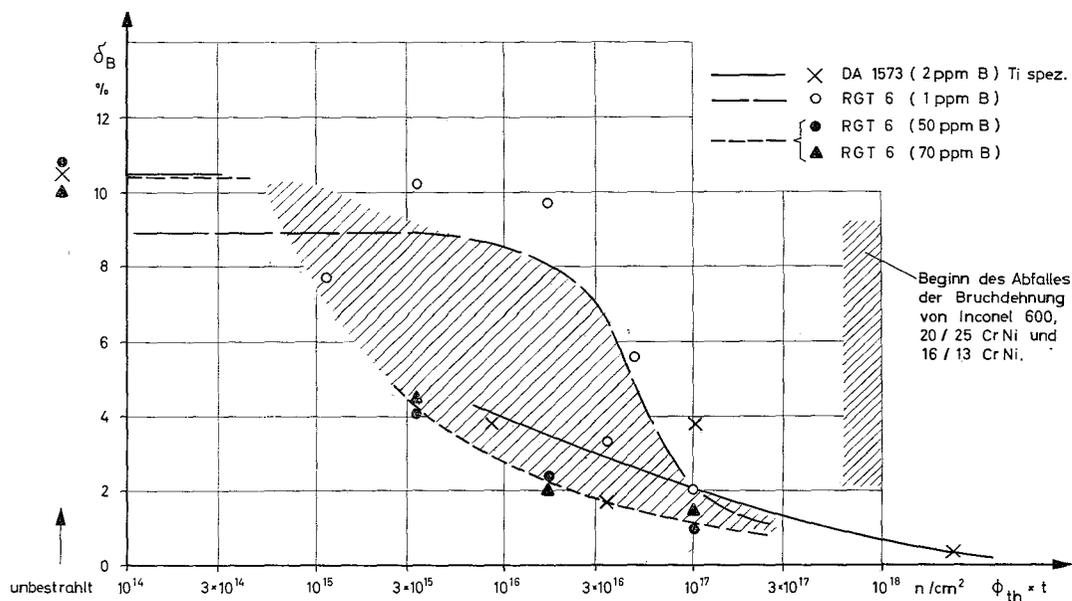


Fig. 2. Abhängigkeit der Bruchdehnung von Inconel X750 bei 750° C von der thermischen Neutronendosis.

Temperaturen erwies sich die Bruchdehnung. Ihre Abhängigkeit von der thermischen Neutronendosis ist in Fig. 1 und 2 dargestellt; in die Darstellung sind auch einige Messpunkte aus früheren Bestrahlungsversuchen mit besonders hohen Neutronendosen¹⁾ einbezogen worden. In Fig. 1 sind die entsprechenden Kurven für die nicht ausscheidungshärtenden Legierungen 16/13 CrNi, 20/25 CrNi, Inconel 600 und Inconel 625 zusammengestellt. Das Diagramm enthält auch die nach den zwei Bestrahlungen in Kadmium-Kapseln gemessenen Werte; sie sind bei den ausserhalb der Kadmium-Kapsel gemessenen Neutronendosen eingetragen. In Fig. 2 sind die Kurven für die ausscheidungsgehärteten Legierungen vom Typ Inconel X750 wiedergegeben.

Wie Fig. 1 zeigt, ist der Verlauf der Bruchdehnung mit der thermischen Neutronendosis für die vier nicht ausscheidungsgehärteten Legierungen recht übersichtlich und kann daher auch der Betrachtung der übrigen Ergebnisse zugrunde gelegt werden. Die Bruchdehnung beginnt für 16/13 CrNi und 20/25 CrNi, Inconel 600, Inconel 625 bei Schwelldosen von etwa 10^{18} , 8×10^{17} bzw. 5×10^{16} n/cm² deutlich abzunehmen, fällt bis etwa 5×10^{19} , 3×10^{20} bzw.

3×10^{19} n/cm² mit steigender Neutronendosis ab und zeigt oberhalb von etwa 3×10^{20} n/cm² eine Sättigung des Hochtemperaturversprödungseffekts an.

Die hinter Kadmium-Abschirmung bestrahlten Proben zeigten ebenfalls noch eine deutliche Hochtemperaturversprödung. Die wenigen entsprechenden Messpunkte gestatten hier keine klare Aussage über die Neutronendosisabhängigkeit, lassen aber doch den Schluss zu, dass die Verminderung der Bruchdehnung nach einer bestimmten thermischen Neutronendosis (ausserhalb der Kadmium-Kapsel) der Wirkung einer etwa um den Faktor 20 geringeren Dosis ohne Kadmiumabschirmung gleicht. Die Messwerte für Inconel X750 lassen keinen diesbezüglichen Schluss zu, weil sie jeweils einer vollständigen Versprödung ($\delta_B < 1\%$) entsprechen; sie ergeben jedoch — wie Fig. 2 zeigt — auch keinen Widerspruch.

Selbstverständlich zeigten die Proben aus Inconel X750 in dem in Fig. 1 dargestellten Neutronendosisbereich ohne Cd-Abschirmung erst recht vollständige Versprödung ($\delta_B < 1\%$). Der in Fig. 2 dargestellte Versprödungsbereich gestattet zwar keine genaue Angabe der Schwelldosis für die Versprödung, lässt aber doch

deutlich erkennen, dass die für einen bestimmten relativen Versprödungseffekt erforderlichen Neutronendosen hier etwa um den Faktor 100 niedriger liegen als bei den nicht ausscheidungs-härtenden Legierungen (Fig. 1).

4. Untersuchung der Neigung zur Korngrenzenrissbildung

Weiterhin wurde das Ziel angestrebt, in Schlifffbildern von zerrissenen Zugproben, die im Zugversuch eine Hochtemperaturversprödung gezeigt hatten, eine gegenüber unbestrahlten Proben verstärkte Neigung zur Korngrenzenrissbildung nachzuweisen. Diesen Nachweis ergab der Überblick über das umfangreiche Material von Schlifffbildern der Bruchflächenumgebung aller in Frage kommenden Proben mit befriedigender Deutlichkeit.

Die Frage, ob sich die Abhängigkeit der Korngrenzenrisshäufigkeit von der Versuchstemperatur durch Neutronenbestrahlung verändert, wird durch die Schlifffbilder von Proben der Nickellegierung Inconel 600 beantwortet. Zur besseren Verdeutlichung der inneren Risse werden hier Bilder ungeätzter Schliffe wiedergegeben. Die Fig. 3a bis 8a und 3b bis 8b zeigen die Bruchflächenumgebung von unbestrahlten bzw. bestrahlten Proben nach Zugversuchen bei Temperaturen zwischen 500 und 750° C.

Die bestrahlten Proben erlitten etwa von 550° C an deutlich erkennbare Korngrenzenrisse, deren Häufigkeit, Länge und Schärfe mit steigender Versuchstemperatur zunahm. Die unbestrahlten Proben zeigen erst von 700° C an eine erhebliche Zahl innerer Risse bei wesentlich stärkerer Verformung als in den bestrahlten Proben. Die Korngrenzenrissbildung setzt also nach Bestrahlung bei wesentlich tieferen Temperaturen ein, in deren Bereich auch der steile Abfall der Bruchdehnung durch die Hochtemperaturversprödung erfolgt. Bei dem 16/13 CrNi-Stahl führte die Schlifffbilduntersuchung zu analogen Ergebnissen.

Die Proben aus der ausscheidungsgehärteten Nickellegierung Inconel X750 liessen nur bei

einer Versuchstemperatur von 500° C eine durch Bestrahlung etwas verstärkte Neigung zur Korngrenzenrissbildung erkennen. Dagegen zeigten die bestrahlten Proben bei allen höheren Temperaturen keine inneren Korngrenzenrisse, während deren Zahl in den unbestrahlten Proben in bekannter Weise mit der Versuchstemperatur stieg. Dieses Ergebnis erscheint zunächst geradezu als Umkehrung des erwarteten Effekts. Es ist jedoch auf Grund der Tatsache zu verstehen, dass die ausgehärtete Legierung Inconel X750 durch Bestrahlung eine sehr weit gehende Hochtemperaturversprödung erleidet. Schon bei 550° C – und selbstverständlich auch bei höheren Temperaturen – zeigt sie nur noch eine Bruchdehnung $\delta_B \leq 2\%$. Es ist anzunehmen, dass diese sehr niedrige Verformbarkeit die deutliche Öffnung zahlreicher innerer Korngrenzenrisse nicht mehr gestattet, weil bereits die ersten grösseren Risse zum vollständigen Bruch führen.

5. Diskussion der Versuchsergebnisse

Der Temperaturbereich beginnender Hochtemperaturversprödung ist durch den Übergang vom transkristallinen zum interkristallinen Bruch gekennzeichnet. Bei tiefen Temperaturen liegt im allgemeinen die interkristalline Trennfestigkeit weit oberhalb der transkristallinen, so dass Brüche überwiegend im Korninneren verlaufen. Bei sehr hohen Temperaturen kehrt sich dieses Verhältnis um; dort überwiegen Korngrenzenbrüche. In einem bestimmten Temperaturbereich stimmen interkristalline und transkristalline Trennfestigkeit fast überein. Offenbar kann bei Temperaturen dicht unterhalb dieses Bereiches eine starke Herabsetzung der Korngrenzenfestigkeit zu einer Änderung des Bruchmechanismus führen, die als Ursache für das Einsetzen der Hochtemperaturversprödung in Frage kommt.

Die mikroskopischen Untersuchungen bestätigen, dass das Einsetzen der Korngrenzenrissbildung in bestrahlten Proben bei tieferen Temperaturen zu beobachten ist als in unbestrahlten Proben.

Fig. 3-8. Inconel 600, Korngrenzenrisse in der Umgebung der Bruchfläche bei verschiedenen Prüf-
temperaturen.



Fig. 3a. Unbestrahlt, 500° C. $\times 180$



Fig. 3b. Bestrahlt, 500° C. $\times 180$

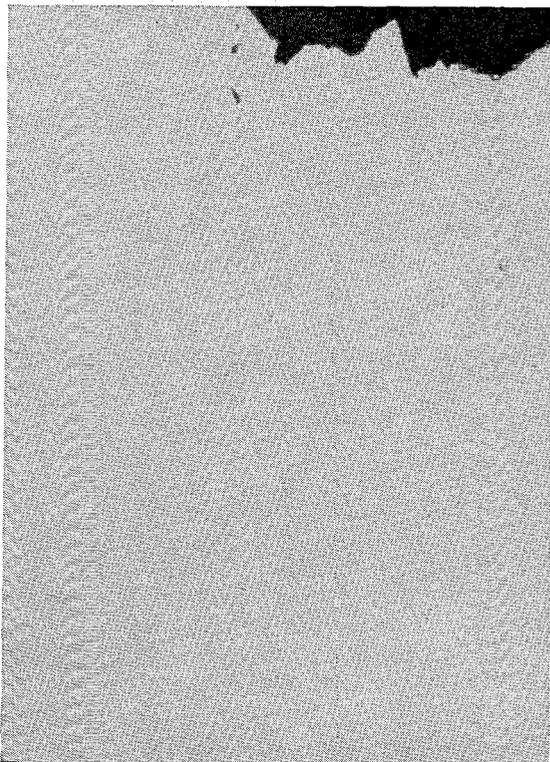


Fig. 4a. Unbestrahlt, 550° C. $\times 180$

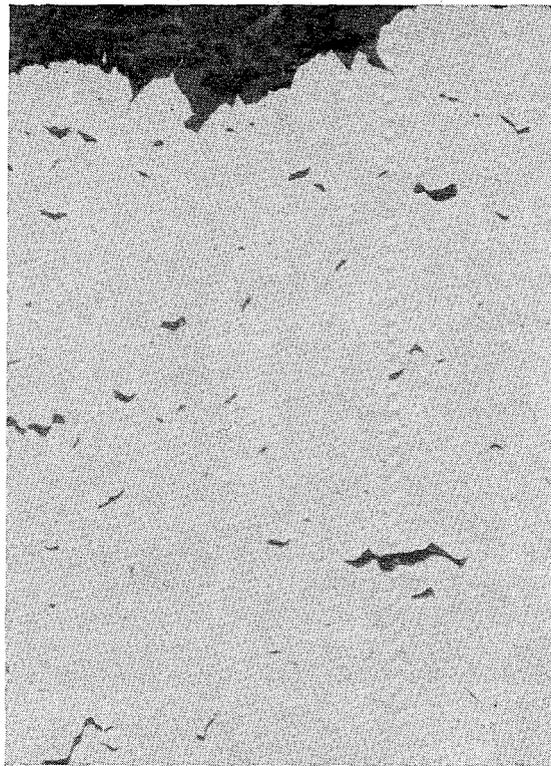
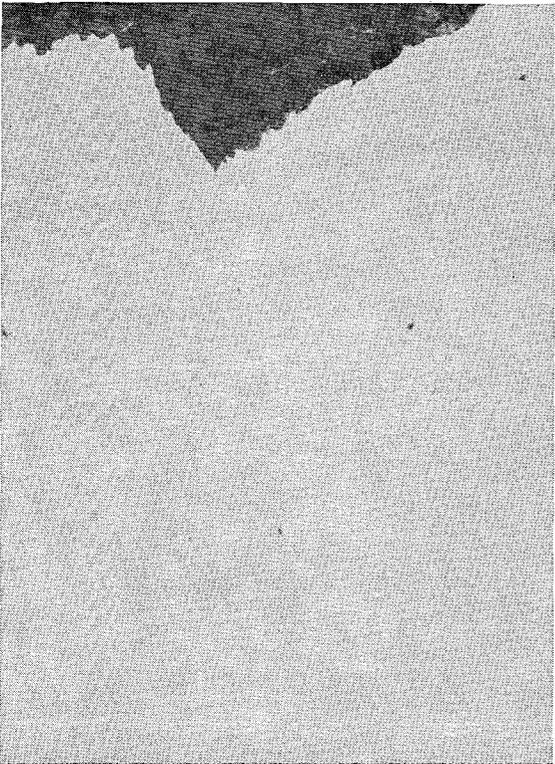
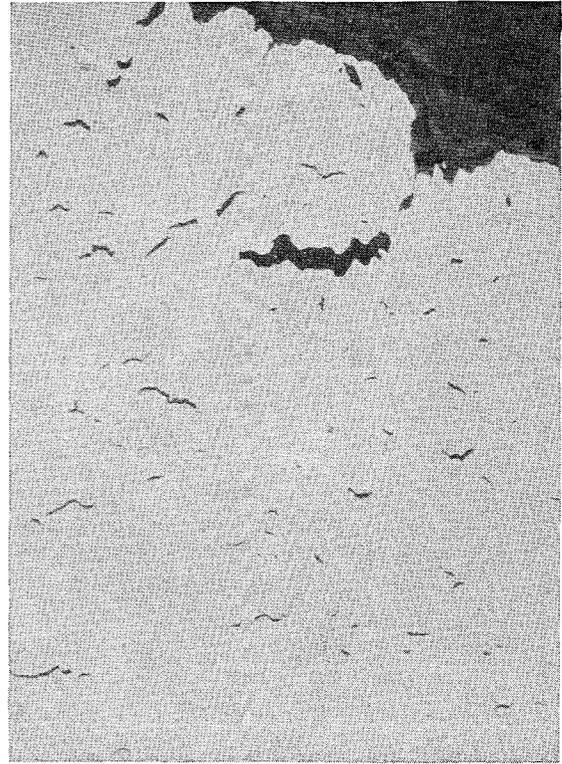


Fig. 4b. Bestrahlt, 550° C. $\times 180$

Fig. 5a. Unbestrahlt, 600° C. $\times 180$ Fig. 5b. Bestrahlt, 600° C. $\times 180$ Fig. 6a. Unbestrahlt, 650° C. $\times 180$ Fig. 6b. Bestrahlt, 650° C. $\times 180$

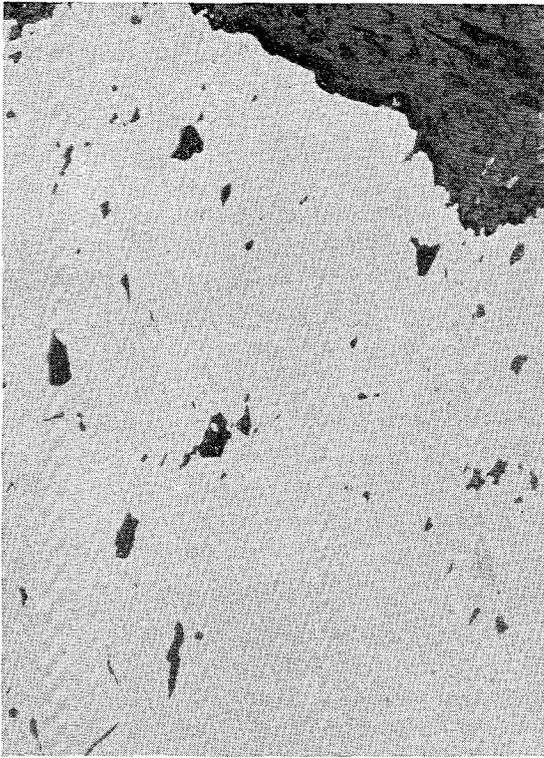


Fig. 7a. Unbestrahlt, 700° C. × 180

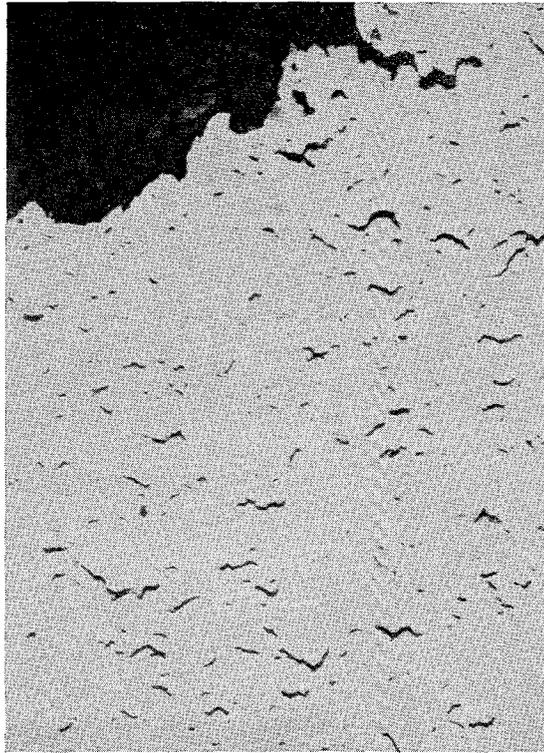


Fig. 7b. Bestrahlt, 700° C. × 180



Fig. 8a. Unbestrahlt, 750° C. × 180

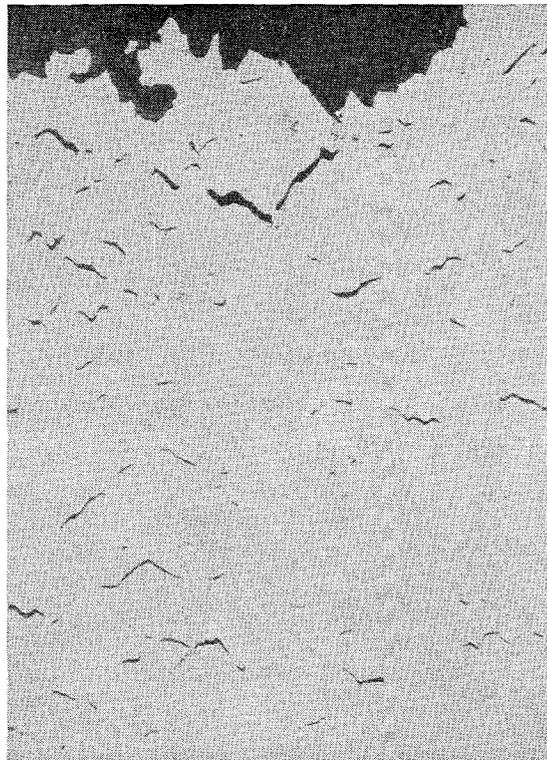


Fig. 8b. Bestrahlt, 750° C. × 180

Die weitere Diskussion bestätigt, dass dem Mechanismus der Korngrenzenschwächung die Bildung von Helium durch die Kernreaktion $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ zugrunde liegt, die im wesentlichen mit thermischen Neutronen erfolgt. Die im Rahmen dieser Untersuchung durchgeführten Bestrahlungen von Cd-abgeschirmten Proben haben erneut bewiesen¹²⁾, dass die Einwirkung schneller Neutronen in dem untersuchten Dosisbereich zur Hochtemperaturversprödung keinen wesentlichen Beitrag leistet; denn der Versprödungseffekt wurde durch die Cd-Abschirmung, die den thermischen Neutronenfluss praktisch vollständig zurückhält, den schnellen Neutronenfluss aber unverändert lässt, stark verringert. Es erscheint allerdings zunächst überraschend, dass trotz der Cd-Abschirmung noch eine erhebliche Versprödung der bestrahlten Proben nachgewiesen wurde. Diese restliche Versprödung ist jedoch durch den epithermischen Neutronenfluss zu erklären, der von der Cd-Abschirmung zu einem grossen Teil durchgelassen wird und noch wesentlich zur $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion beiträgt (Fig. 9). Der epithermische Neutronenfluss (je Lethargieintervall) beträgt in der verwendeten Bestrahlungsposition des FR2 etwa $\frac{1}{30}$ des thermischen Neutronenflusses. Daher kann die Reaktionsrate der $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion durch Cd-Abschirmung höchstens um den Faktor 70 herabgesetzt werden. Dieser Voraussetzung entspricht grössenordnungsmässig die Verschie-

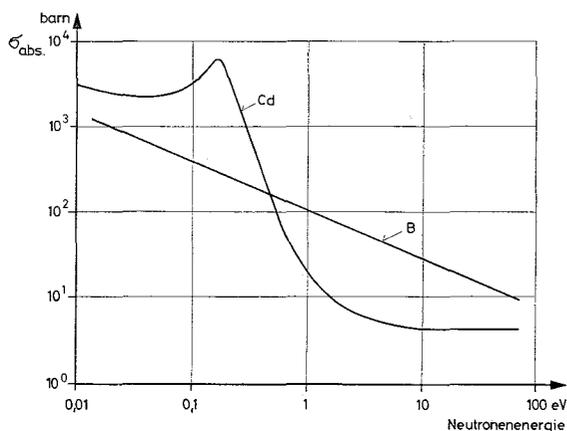


Fig. 9. Neutronenabsorptionsquerschnitte von Bor und Cadmium.

bung der Messpunkte für Cd-abgeschirmte Proben bezüglich der Neutronendosis in Fig. 1.

Einen weiteren recht überzeugenden Beweis dafür, dass die Hochtemperaturversprödung durch die $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion verursacht wird, liefert die Beobachtung einer oberen Schwelldosis für die Herabsetzung der Bruchdehnung. Diese liegt hier bei etwa 3×10^{20} thermischen Neutronen/cm². Durch diese Dosis wird das ^{10}B (Absorptionsquerschnitt für thermische Neutronen $\sigma = 4017 \times 10^{-24}$ cm²) bereits zu 70 % umgewandelt. Bei einer weiteren Steigerung der Dosis ist also tatsächlich keine wesentliche Verstärkung des Versprödungseffekts mehr zu erwarten. Eine Auffächerung der Schwelldosis für verschiedene Materialien kann durch eine von der Materialstruktur und dem Borgehalt abhängige Sättigung des Versprödungseffekts schon weit vor vollständigem Verbrauch der vorhandenen ^{10}B -Menge erklärt werden. Diese Deutung liesse sich auch auf niedrigere Schwelldosen bei höherem Borgehalt anwenden¹²⁾.

Eine weitaus umfangreichere Betrachtung erfordert die befriedigende Deutung der unteren Schwelldosen für die Hochtemperaturversprödung. Die hier vorliegenden relativ sehr niedrigen Werte ($5 \times 10^{16} - 1 \times 10^{18}$ thermische Neutronen/cm²) stimmen mit Literaturangaben überein, nach denen schon durch thermische Neutronendosen in der Grössenordnung von 10^{18} n/cm² eine deutliche Herabsetzung der Bruchdehnung verursacht wurde^{4, 12)}. Die Möglichkeit einer nachweisbaren Korngrenzenschwächung durch die sehr kleinen Heliummengen, die mit diesen Neutronendosen aus ^{10}B erzeugt werden, wird in einer weiteren Veröffentlichung¹⁷⁾ ausführlich behandelt. Hier soll nur der Hinweis vorweggenommen werden, dass die dortigen Betrachtungen sich auf einen Mechanismus beziehen, nach dem Heliumblasen unter Zugspannung zu wesentlich grösseren Poren erweitert werden.

Wie dort gezeigt werden wird, sollte dann die Neutronendosis, die bei einem festen Borgehalt zur Erzeugung einer bestimmten Porenverteilung erforderlich ist, dem Quadrat der an-

gelegten Zugspannung (und damit der Festigkeit des Probenmaterials) umgekehrt proportional sein. Die Staffelung der unteren Schwell Dosen der Hochtemperaturversprödung zu niedrigeren Werten in der Folge der beiden austenitischen Stähle und der Nickellegierungen Inconel 600 und Inconel 625 (Fig. 1) entspricht gut der obigen Folgerung, wenn die Unterschiede im Borgehalt dieser Materialien berücksichtigt werden.

Die etwa um den Faktor 100 niedrigere untere Schwelldosis für die Hochtemperaturversprödung der ausscheidungsgehärteten Nickellegierung Inconel X750 lässt sich noch befriedigend in gleicher Weise erklären. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass die Hochtemperaturversprödung dieses Materials auch durch das Vorhandensein von Ausscheidungen beeinflusst wird.

Abschliessend ist darauf hinzuweisen, dass die sehr niedrigen unteren Schwelldosen die Hochtemperaturversprödung von Strukturmaterialien — im besonderen von Brennstoffhüllmaterialien — in Kernreaktoren unvermeidlich erscheinen lassen. Denn eine entscheidende Verminderung des Versprödungseffekts wäre nach den vorliegenden Ergebnissen u.U. nur durch eine — mit praktisch untragbarem metallurgischen Aufwand verbundene — Senkung des Borgehalts auf grössenordnungsmässig 0,01 ppm zu erreichen. Weiterhin muss ein zusätzlicher Versprödungseffekt für diejenigen Metalle und ihre Legierungen erwartet werden, die einen nennenswerten Absorptionsquerschnitt für (n, α) -Kernreaktionen mit schnellen Neutronen aufweisen¹⁸⁾.

Die Entwicklung und Auswahl von metallischen Strukturmaterialien für Hochtemperaturreaktoren kann also nicht der vollständigen Vermeidung der Hochtemperaturversprödung, sondern nur der Suche nach solchen Metallen und Legierungen gelten, die strukturell eine

besonders geringe Empfindlichkeit gegen den Versprödungsmechanismus haben, oder deren Hochtemperaturversprödungsbereich oberhalb der Betriebstemperatur liegt.

Wir danken Herrn Diplomingenieur H.-L. Krautwedel für die Leitung der mikroskopischen Schlifffbilduntersuchung und Herrn H. D. Gottschalch für die Versuchsdurchführung.

Literatur

- 1) H. Böhm, W. Dienst, H.-J. Hauck und H. J. Laue, *J. Nucl. Mat.* **18** (1966) 337
- 2) A. N. Hughes und J. R. Caley, *J. Nucl. Mat.* **10** (1963) 60
- 3) C. G. Collins, G. L. Hammons, F. C. Robertshaw und W. H. Coutts, APEX-Report 676 (1961)
- 4) J. Fenell und A. C. Roberts, *J. Nucl. Mat.* **12** (1964) 159
- 5) D. R. Arkell und P. C. L. Pfeil, *J. Nucl. Mat.* **12** (1964) 167
- 6) T. T. Claudson und H. J. Pessl, HW-Report SA-3436 (1964)
- 7) E. V. Gusev, N. F. Pravdyuk *et al.*, 3rd Geneva Conf., A/CONF 28/P/339a
- 8) A. C. Roberts und D. R. Harries, *Nature* **200** (1963) 772
- 9) D. R. Harries *et al.*, 3rd Geneva Conf. A/CONF 28/P/162
- 10) R. B. Roy, AE-Report 186 (1965)
- 11) W. R. Martin und J. R. Weir, *Nature* **202** (1964) 997
- 12) G. H. Broomfield, D. R. Harries und A. C. Roberts, *J. Iron St. Inst.* **203** (1965) 502
- 13) R. S. Barnes, *Nature* **206** (1965) 1307
- 14) W. P. Chernock, R. M. Mayfield und J. R. Weir, 3rd Geneva Conf., A/CONF 28/P/255
- 15) E. D. Hyam und G. Sumner, Proc. IAEA Venice Conf. Radiation Damage in Solids 1 (IAEA, Wien, 1962) 323
- 16) D. W. Lillie, Proc. 2nd Geneva Conf. **6**, 226 (UN, Genf, 1958)
- 17) H. Böhm, W. Dienst und H.-J. Hauck, *Z. Metallkde*, demnächst
- 18) H. Alter und C. E. Weber, *J. Nucl. Mat.* **16** (1965) 68

