

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

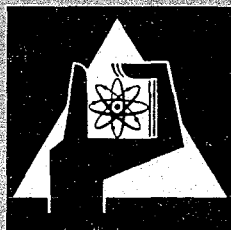
Juli 1966

KFK 478

Institut für Material- und Festkörperforschung

Abhängigkeit des Bestrahlungsverhaltens einer aushärtbaren
Ni-Cr-Fe-Legierung vom Ausscheidungszustand

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



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

ABHÄNGIGKEIT DES BESTRAHLUNGSVERHALTENS EINER AUSHÄRTBAREN Ni-Cr-Fe-LEGIERUNG VOM AUSSCHIEDUNGSZUSTAND†

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

Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Deutschland

Eingegangen am 14. März 1966

Es wurde der Einfluss einer Neutronenbestrahlung ($1,4 \times 10^{21}$ n/cm², $E > 100$ keV) auf die mechanischen Eigenschaften einer aushärtbaren Ni-Cr-Legierung in verschiedenen Entmischungszuständen bei Raumtemperatur untersucht.

Die Ergebnisse zeigen dabei folgendes:

1. Die Streckgrenzenerhöhung infolge Bestrahlung ist vom Ausscheidungszustand weitgehend unabhängig. Sie liegt zwischen 35 und 45 kgf/mm².
2. Die Bruchdehnung wird in allen Ausscheidungs-zuständen auf unter 4 % erniedrigt, d.h. die starke Bestrahlungsversprödung dieser Legierung ist nicht merklich vom Entmischungszustand abhängig.
3. Die Verfestigung $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ wird durch die Bestrahlung umso stärker erniedrigt, je höher die Verfestigung der unbestrahlten Probe ist.
4. Die Zugfestigkeit zeigt in einigen Fällen eine Erhöhung, in anderen Fällen eine Erniedrigung durch Bestrahlung, ohne dass ein eindeutiger Zusammenhang zwischen Richtungsänderung und Entmischungszustand festzustellen ist.

The influence of neutron irradiation ($1,4 \times 10^{21}$ n/cm², $E > 100$ keV) on the mechanical properties of a precipitation hardenable Ni-Cr base alloy was investigated for various initial states of precipitation.

The results established that:

1. The rise in flow stress due to irradiation is in large measure independent of the state of precipitation. The rise is in the range 35-45 kgf/mm².
2. Irrespective of the state of precipitation, the strain to fracture is reduced below 4 %, i.e. the marked

radiation-embrittlement of this alloy is not noticeably dependent on the state of precipitation.

3. The work-hardening rate $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ is reduced by irradiation, the more so, the greater the work-hardening rate of the unirradiated material.
4. The tensile strength in some instances, is raised by irradiation, lowered in others; the direction of this change is not correlated in any simple way with the state of precipitation.

L'influence d'une irradiation par neutrons ($1,4 \times 10^{21}$ n/cm², $E > 100$ keV) sur les propriétés mécaniques d'un alliage durcissable Ni-Cr fut étudiée à la température ambiante pour différents états de décomposition de l'alliage.

Les résultats sont les suivants:

1. L'élévation de la limite élastique due à l'irradiation dépend essentiellement de l'état de précipitation. Elle se situe entre 35 et 45 kg/mm².
2. L'allongement de rupture est dans tous les états de précipitation abaissé en dessous de 4 %, c'est-à-dire que l'importante fragilité de cet alliage ne dépend pas sensiblement de l'état de décomposition de l'alliage.
3. La consolidation $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ est d'autant plus fortement abaissée par l'irradiation que la consolidation de l'alliage non irradié est plus forte.
4. La résistance à la rupture montre dans quelques cas un accroissement et dans d'autres cas une diminution sous l'effet de l'irradiation sans qu'il soit possible d'établir une relation univoque entre le sens de cette variation et l'état de précipitation.

1. Einführung

Die mechanischen Eigenschaften der durch Al- und Ti-Zusatz aushärtbaren Ni-Cr-Legierungen nach Neutronenbestrahlung sind bereits

mehrfach untersucht worden, und zwar sowohl im Bereich der Tieftemperatur- als auch im Gebiet der sog. Hochtemperaturversprödung. Das Interesse, das dieser Legierungsgruppe entgegengebracht wird, bezieht sich auf den

† Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.

Gegensatz zwischen den sehr guten mechanischen Eigenschaften im unbestrahlten Zustand und der starken Versprödung nach Bestrahlung, die einen Einsatz dieser Legierungen im Reaktorbau einschränkt.

Die bisher vorliegenden Untersuchungen wurden fast ausschliesslich an vollausgehärtetem, d.h. auf optimale Festigkeitseigenschaften behandeltem Material durchgeführt. Hierbei zeigt sich, dass eine Neutronenbestrahlung die mechanischen Eigenschaften bei Raumtemperatur in der Weise beeinflusst, dass die Streckgrenze stark erhöht, die Dehnung auf sehr niedrige Werte reduziert und die Zufestigkeit zumindest bei Dosen im Bereich von 10^{20} – 10^{21} n/cm² herabgesetzt wird¹⁾. Die Herabsetzung der Zugfestigkeit nach Bestrahlung ist bisher ausschliesslich an ausgehärteten Legierungen beobachtet worden. Im homogenisierten Zustand zeigen die aushärtbaren Ni-Legierungen dagegen eine deutliche Erhöhung der Zugfestigkeit infolge Bestrahlung²⁾. Broomfield³⁾ hat eine Fe-Ni-Cr-Legierung in verschiedenen Zuständen (normal, ausgehärtet, überaltert, mit ausscheidungsfreien Korngrenzensäumen) nach Dosen $1,5 \times 10^{20}$ therm. Neutr./cm² und 5×10^{19} schnellen Neutr./cm² untersucht und festgestellt, dass kein entscheidender Unterschied im Bestrahlungsverhalten zwischen den verschiedenen Zuständen vorliegt. Bei Raumtemperatur wird in allen Fällen eine geringe Erniedrigung der Zugfestigkeit durch die Bestrahlung beobachtet, während oberhalb $\approx 300^\circ\text{C}$ keine Änderung der Zugfestigkeit mehr vorliegt. Die Streckgrenzenerhöhung infolge Bestrahlung wird dagegen erst oberhalb $\approx 500^\circ\text{C}$ rückgängig gemacht.

In der Untersuchung, über die im folgenden berichtet wird, sollte das Bestrahlungsverhalten einer Legierung vom Typ Inconel X-750 in verschiedenen Entmischungszuständen über die gesamte Auslagerungskurve verfolgt werden, um Aussagen über den Zusammenhang zwischen Entmischungszustand und Strahlenschädigung und damit auch Hinweise auf den für eine Anwendung im Reaktorbau günstigsten Aushärtungszustand zu erhalten.

2. Versuchsdurchführung

Die Untersuchungen wurden an einer Legierung folgender Zusammensetzung (Gew. %) durchgeführt:

Ni	Cr	Fe	Ti	Al	Co	Cu
Rest	15,1	6,45	2,75	0,9	0,03	0,005

Alle Proben wurden vor der Auslagerung 2 Stunden bei 1150°C homogenisiert. Im einzelnen wurde das Bestrahlungsverhalten der Legierung in folgenden Zuständen untersucht:

1)	2h	1150°C /Wasserabschreckung
2–5)	2h	$1150^\circ\text{C}/\text{H}_2\text{O} + 15$ min, 1, 4 bzw. 50h Auslagerung bei 850°C
6–9)	2h	$1150^\circ\text{C}/\text{H}_2\text{O} + 1, 8, 25$ bzw. 140h Auslagerung bei 700°C
10)	2h	$1150^\circ\text{C} \rightarrow 2\text{h } 1050^\circ \rightarrow 2\text{h } 1000^\circ \rightarrow 8\text{h } 950^\circ$
11)	2h	1150°C /Luftabkühlung
12)	2h	1150°C /Luftabkühlung + 15 min 850°C

Die Zustände 1 bis 5 und 6 bis 9 entsprechen einem steigenden Entmischungsgrad und kennzeichnen bestimmte Punkte auf der jeweiligen Aushärtungskurve. Die stufenweise Abkühlung unter 10) führt zu einer starken Überalterung, d.h. einer vollständigen Ausscheidung bei niedriger Streckgrenze. Die beiden letztgenannten Behandlungen, insbesondere die unter 12) aufgeführte, führen zu einer relativ niedrigen Streckgrenze bei geringem Entmischungsgrad.

Zur genaueren Kennzeichnung des Entmischungszustandes wurden an unbestrahlten Proben elektronenmikroskopische Untersuchungen nach dem Abdruckverfahren durchgeführt. Jeweils 2 Zugproben mit 3 mm \varnothing in den verschiedenen Aushärtungszuständen wurden bei etwa 50°C im BR-2-Reaktor in Mol/Belgien bis zu einer Dosis von $1,4 \times 10^{21}$ n/cm² bestrahlt. Die Proben wurden anschliessend auf einer hydraulischen Zugprüfmaschine mit einer Verformungsgeschwindigkeit von 20 %/min zerissen.

3. Versuchsergebnisse

In den Fig. 1 und 2 sind die $\sigma_{0,2}$ -Grenze, die Zugfestigkeit und die Bruchdehnung für die bei 700 und 850° C ausgelagerten Proben im unbestrahlten und im bestrahlten Zustand aufgetragen. Der Verlauf der mechanischen Eigenschaften der unbestrahlten Proben in Abhängigkeit von der Auslagerungszeit deckt sich mit den bekannten Ergebnissen. Eine Abschätzung der Teilchengröße der $Ni_3(Al, Ti)$ -Ausscheidungen auf Grund von Ergebnissen von Mitchell⁴) konnte durch eigene elektronenmikroskopische Untersuchungen bestätigt werden. Danach liegt die Teilchengröße nach der hier vorgenommenen Auslagerung bei 700° C zwischen $\approx 50 \text{ \AA}$ (1h) und $\approx 270 \text{ \AA}$ (140h), nach der Auslagerung bei 850° dagegen zwischen $\approx 200 \text{ \AA}$ (15 min) und $\approx 1500 \text{ \AA}$ (50h). Nach Angaben von Mitchell liegt das Aushärtungsmaximum bei Teilchengrößen von 300–600 \AA , was sich mit den in Fig. 1 und 2 wiedergegebenen $\sigma_{0,2}$ -Werten gut deckt.

Die Bestrahlung macht sich, wie die Bilder zeigen, in bekannter Weise durch eine deutliche Erhöhung der $\sigma_{0,2}$ -Grenze und eine starke Erniedrigung der Bruchdehnung bemerkbar. Abgesehen von den 15 min bei 850° ausgelagerten

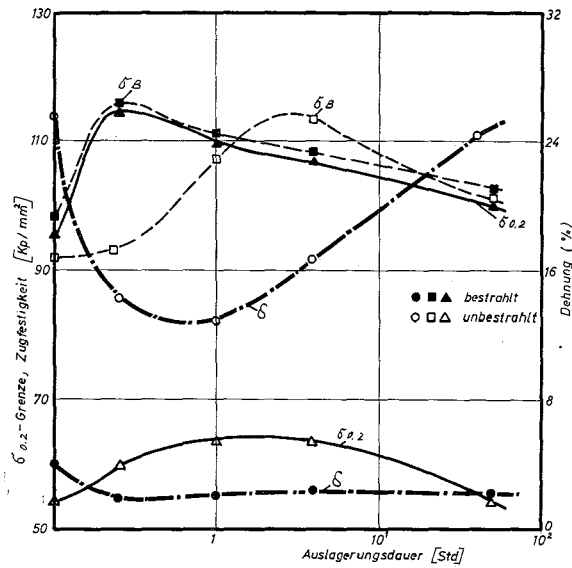


Fig. 2. Mechanische Eigenschaften von Inconel-X in Abhängigkeit von der Auslagerungsdauer vor und nach der Bestrahlung (Auslag.-Temp. 850° C).

Proben ist die absolute Erhöhung der $\sigma_{0,2}$ -Grenze durch Bestrahlung für alle Aushärtungszustände annähernd konstant und beträgt etwa 35–45 kgf/mm^2 . Besonders deutlich wird dies in Fig. 1 sowie in Fig. 3, in der die $\sigma_{0,2}$ -Werte der unbestrahlten und der bestrahlten Proben

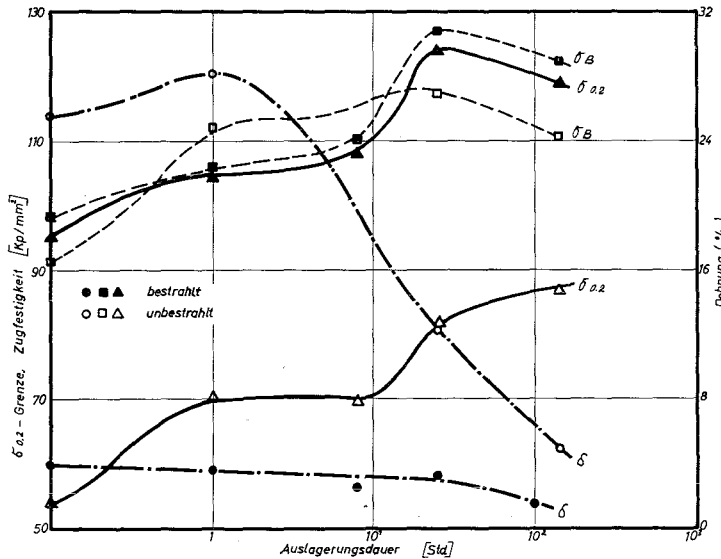


Fig. 1. Mechanische Eigenschaften von Inconel-X in Abhängigkeit von der Auslagerungsdauer vor und nach der Bestrahlung (Auslag.-Temp. 700° C). $\sigma_{0,2}$ -0,2 % Streckgrenze; σ_B -Zugfestigkeit; δ -Bruchdehnung.

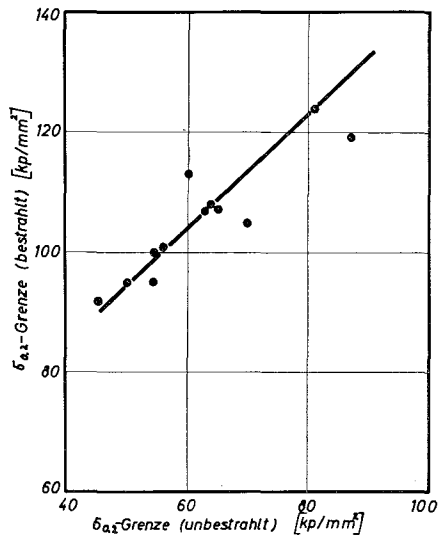


Fig. 3. Einfluss der Bestrahlung auf die $\sigma_{0,2}$ -Grenze von Inconel-X in verschiedenen Aushärtungszuständen.

für alle untersuchten Ausscheidungszustände aufgetragen sind. Im Gegensatz dazu wurde an anderen ausscheidungshärtenden Legierungen beobachtet, dass die Härte- bzw. Streckgrenzen-erhöhung durch Bestrahlung im vollausgehärteten Zustand geringer ist als im homogenisierten Zustand⁵⁻⁷).

Während die Bruchdehnung der unbestrahlten Proben eine starke Abhängigkeit von der Auslagerung aufweist, ist bei den bestrahlten Proben ein Einfluss der unterschiedlichen Behandlung praktisch nicht mehr zu erkennen, wenn man von der etwas höheren Bruchdehnung der bestrahlten homogenisierten Proben absieht. Für alle Ausscheidungszustände liegt die Bruchdehnung der bestrahlten Proben unter 4%.

Nicht so einheitlich wie die $\sigma_{0,2}$ -Grenze und Bruchdehnung verhält sich die Zugfestigkeit, wie Fig. 1 und 2 zeigen. Die starke Bestrahlungsverprödung hat zur Folge, dass die Zugfestigkeit nur knapp oberhalb der $\sigma_{0,2}$ -Grenze liegt und somit auch den gleichen Verlauf wie die Streckgrenze zeigt. Bei beiden Auslagerungsreihen (700° und 850°) beobachtet man je nach Ausscheidungszustand eine Erhöhung oder eine Erniedrigung der Zugfestigkeit infolge Bestrahlung, ohne dass die Ergebnisse eine klare

Systematik erkennen lassen. Bei der Besprechung der Versuchsergebnisse wird hierauf näher eingegangen.

Neben den bisher genannten mechanischen Eigenschaften ist für die Beurteilung des Bestrahlungsverhaltens noch die Verfestigung $d\sigma/d\varepsilon$ von erheblicher Bedeutung, da sie in gewissem Umfang Aussagen über die Vorgänge bei der plastischen Verformung zulässt. Die geringe Bruchdehnung der bestrahlten Proben machte es erforderlich, die Verfestigung bei einer sehr kleinen plastischen Verformung zu ermitteln. Gewählt wurde der Punkt des Spannungs-Dehnungsdiagramms, bei dem die plastische Verformung 0,2% beträgt, d.h. die im folgenden aufgeführte Verfestigung $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ bezieht sich stets auf diesen Punkt. Es ist nicht ohne weiteres zulässig, aus der hier ermittelten Verfestigung auf das Verfestigungsverhalten bei höheren Verformungsgraden zu schliessen.

In Fig. 4 ist für die 700°-Auslagerung die Verfestigung $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ der unbestrahlten und der bestrahlten Proben in Abhängigkeit von der Auslagerungsdauer aufgetragen. Während die Verfestigung der unbestrahlten Proben mit der Auslagerungsdauer deutlich zunimmt, zeigen die bestrahlten Proben nur einen sehr geringen Anstieg, d.h. die Bestrahlung führt bei höheren Verfestigungen zu einer erheblichen Abnahme von $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$. Dieser Befund wird durch Fig. 5 bestätigt, in dem für alle untersuchten Proben im unbestrahlten und bestrahlten Zustand die Verfestigung über der $\sigma_{0,2}$ -Grenze aufgetragen

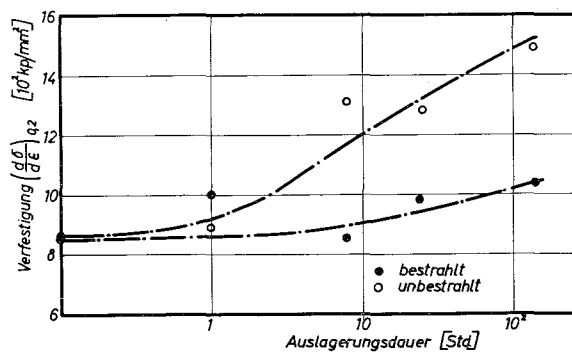


Fig. 4. Verfestigung von Inconel-X in Abhängigkeit von der Auslagerungsdauer vor und nach der Bestrahlung (Auslag.-Temp. 700° C).

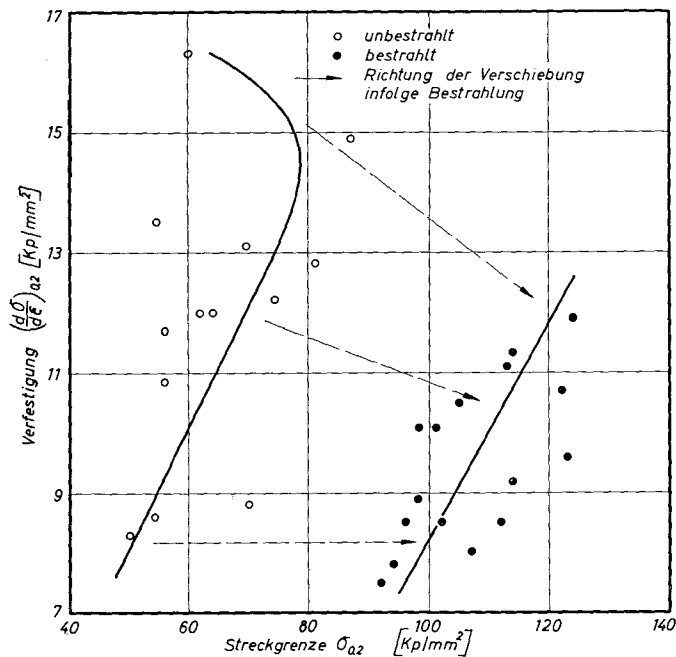


Fig. 5. Verfestigung $(d\sigma/d\varepsilon)_{0,2}$ in Abhängigkeit von der Streckgrenze für unbestrahlte und bestrahlte Proben aus Inconel-X.

ist. Die für die Werte der unbestrahlten Proben eingezeichnete Kurve entspricht dem theoretischen Verlauf. Verbindet man die zusammengehörigen Wertepaare (bestrahlt-unbestrahlt) miteinander, so kommt man zu der in Fig. 5 schematisch angedeuteten Verschiebung infolge Bestrahlung.

4. Besprechung der Versuchsergebnisse

Versucht man die Änderung der mechanischen Eigenschaften durch Bestrahlung bei aushärtbaren Legierungen zu interpretieren, so muss man zunächst als mögliche Ursache der Änderung neben den durch Stossprozesse mit schnellen Neutronen eingebrachten "Defektcluster" auch die Änderung des Entmischungszustandes in Betracht ziehen. Eine Beeinflussung des Entmischungszustandes durch Bestrahlung als Ursache der genannten Änderungen ist im vorliegenden Fall jedoch wenig wahrscheinlich, da die Beweglichkeit der durch Bestrahlung erzeugten Leerstellen bei 50° zu gering ist, um bei dieser Temperatur diffusionsgesteuerte Vorgänge in merklichen

Umfang ablaufen zu lassen. Die Ausheilung der Änderung der mechanischen Eigenschaften durch eine Glühung bei 700° C¹⁾ spricht ebenfalls gegen eine Beeinflussung des Entmischungszustandes während der Bestrahlung. Die starke Erhöhung der Streckgrenze der hier untersuchten Legierung in allen Ausscheidungszuständen führt demnach zu dem Schluss, dass die zum Überwinden der durch Neutronenbestrahlung eingebrachten Hindernisse (Defektcluster) durch Versetzungen erforderliche Spannung etwa gleich hoch liegt wie die zum Überwinden der Ausscheidungen, so dass sich beide Gruppen von Versetzungshindernissen gleichwertig überlagern, solange die Streckgrenze etwa proportional der Zahl der Hindernisse ist. Ein Gegenbeispiel liefern aushärtbare Al-Legierungen, bei denen eine Bestrahlung im ausgehärteten Zustand zu einer sehr geringen, in manchen Fällen sogar vernachlässigbaren Streckgrenzenerhöhung führt^{5, 7)}. In diesem Fall muss man annehmen, dass die zur Überwindung der Bestrahlungsdefekte notwendige Spannung deutlich kleiner ist, als die

zur Überwindung der Entmischungszonen bzw. Ausscheidungsteilchen notwendige Spannung.

Die Tatsache, dass die Verfestigung durch Bestrahlung desto stärker herabgesetzt wird, je höher die Verfestigung der unbestrahlten Proben ist, lässt sich befriedigend durch die Eigenschaft der durch Bestrahlung erzeugten Gitterdefekte erklären. Die zur Erhöhung der Streckgrenze beitragenden Leerstellencluster werden von den Versetzungen geschnitten. Derartige "Schneidprozesse", wie sie in analoger Weise bei kohärenten Entmischungszonen auftreten, bewirken wohl eine Streckgrenzenerhöhung, sie liefern jedoch keinen wesentlichen Beitrag zur Verfestigung. In bestrahlten ausgehärteten Legierungen liegen also mit den Leerstellenclustern und den Ausscheidungen zwei Arten von Hindernissen vor, die beide die Streckgrenze erhöhen, aber nur die Ausscheidungen (oberhalb einer bestimmten Grösse) bewirken eine im Vergleich zur homogenen Legierung stärkere Verfestigung.

Die Erhöhung der Streckgrenze durch Bestrahlung bedeutet, dass die nachfolgende plastische Verformung bei wesentlich höheren Spannungen abläuft als bei unbestrahlten ausgehärteten Legierungen. Nimmt man an, dass die durch die Ausscheidungen bewirkte zusätzliche Verfestigung mit steigender absoluter Grösse der anliegenden Spannung abnimmt, so wird die beobachtete Erniedrigung der Verfestigung verständlich.

Weitaus uneinheitlicher und deshalb unübersichtlicher ist die Änderung der Zugfestigkeit durch Bestrahlung. Eine Interpretation ist nicht zuletzt deshalb so schwierig, weil die Zugfestigkeit eine komplexe Grösse ist, in die nicht nur Streckgrenze und Verfestigung sondern insbesondere die schwer zu erfassenden Bruchvorgänge eingehen. Die Fig. 1 und 2 lassen zunächst deutlich erkennen, dass die beiden verschiedenen Fälle, Erniedrigung und Erhöhung der Zugfestigkeit, nicht auf einen bestimmten Entmischungszustand beschränkt sind. So wird die Zugfestigkeit sowohl bei kleinem als auch bei hohem Ausscheidungsgrad erhöht, der Erniedrigung von σ_B lässt sich

ebenfalls kein — etwa durch die Teilchengrösse bestimmter — Entmischungszustand zuordnen.

Das Verhalten der Zugfestigkeit bei den aushärtbaren Ni-Legierungen wird zweifellos durch die Bestrahlungsversprödung dieser Legierungen, d.h. die starke Erniedrigung der Bruchdehnung bestimmt. Zusammen mit der durch Bestrahlung ebenfalls erniedrigten Verfestigung hat diese zur Folge, dass die Zugfestigkeit der bestrahlten Proben im Mittel nur etwa 1–3 kgf/mm² über der jeweiligen Streckgrenze liegt. Da die Streckgrenzenerhöhung durch Bestrahlung näherungsweise konstant ist, wird auch die Zugfestigkeit der bestrahlten Proben um einem vom Entmischungszustand der Legierung weitgehend unabhängigen Betrag ($\Delta\sigma_{\text{Bestr.}}$) oberhalb der Streckgrenze der zugehörigen unbestrahlten Probe liegen. Die Änderungsrichtung der Zugfestigkeit durch Bestrahlung hängt somit davon ab, ob die Differenz zwischen Zugfestigkeit und Streckgrenze der unbestrahlten Proben grösser oder kleiner als $\Delta\sigma_{\text{Bestr.}}$ ist.

Nun liegt $\sigma_B - \sigma_{0,2}$ im gleichen Bereich wie $\Delta\sigma_{\text{Bestr.}}$, d.h. bei ≈ 40 kgf/mm², zeigt jedoch systematische Änderungen mit dem Entmischungszustand, so dass in einigen Fällen $\sigma_B - \sigma_{0,2} < \Delta\sigma_{\text{Bestr.}}$ und in anderen Fällen $> \Delta\sigma_{\text{Bestr.}}$ ist. Da eine quantitative Erklärung des Zusammenhanges von σ_B und $\sigma_{0,2}$ in Abhängigkeit vom Entmischungszustand derzeit noch nicht möglich ist, lässt sich auch nicht exakt vorher sagen, unter welchen Entmischungsbedingungen eine Bestrahlung zu einer Verminderung der Zugfestigkeit führt.

Die vorliegenden Ergebnisse haben gezeigt, dass die Bruchdehnung nach Bestrahlung bei allen untersuchten Entmischungszuständen sehr klein ist, d.h. die Versprödung durch Änderung des Aushärtungszustandes praktisch nicht beeinflusst werden kann. Die besonders starke Strahlenversprödung ausscheidungsgehärteter Ni-Legierungen ist also nicht auf den Ausscheidungszustand zurückzuführen. Im Hinblick auf die Anwendung der Legierung Inconel-X im Reaktorbau ergibt sich aus den vorliegenden Untersuchungen, dass das Bestrah-

ungsverhalten bei tiefen Temperaturen durch die hier durchgeführten Wärmebehandlungen nur in sehr geringem Umfang zu beeinflussen ist.

Literatur

- 1) H. Böhm, W. Dienst, H. Hauck und H. J. Laue, J. Nucl. Mat. 18 (1966) 337
- 2) C. R. Cupp, Atomic Energy of Canada Report AECL-948 (1959)
- 3) G. H. Broomfield, UKAEA (Harwell) Report AERE-R4913 (1965)
- 4) W. I. Mitchell, Vortrag Aushärtungsausschuss Deutsche Ges. für Metallkunde, Frankfurt/Main (Okt. 1965)
- 5) R. v. Steel und W. P. Wallace, USAEC-Report LRL-145 (1954)
- 6) D. S. Billington und S. Siegel, Met. Progr. 58 (1950) 847
- 7) H. Böhm und W. Dienst, unveröffentlichte Untersuchungen