

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

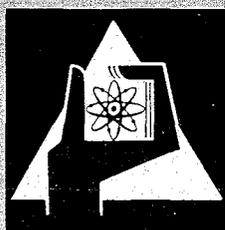
November 1967

KFK 712

Institut für Material- und Festkörperforschung

Untersuchungen über die Hochtemperaturversprödung nach  
Neutronenbestrahlung von 16/13-CrNi-Stählen

H. Böhm, H. Hauck, G. Hess



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



## UNTERSUCHUNGEN ÜBER DIE HOCHTEMPERATURVERSPRÖDUNG NACH NEUTRONENBESTRAHLUNG VON 16/13-CrNi-STÄHLEN

H. BÖHM, H. HAUCK und G. HESS \*

*Institut für Material- und Festkörperforschung, Kernforschungszentrum, Karlsruhe, Deutschland*

Eingegangen am 16. Juli 1967

An austenitischen Stählen vom Typ 16/13-CrNi wurde der Einfluss des Bor- und Kohlenstoffgehaltes sowie der Einfluss einer kombinierten Verformungs-Wärmebehandlung auf die nach Neutronenbestrahlung auftretende Hochtemperaturversprödung im Warmzugversuch bei 750° untersucht.

Dabei zeigt sich, dass keine Abhängigkeit der Versprödung vom Borgehalt (im untersuchten Konzentrationsbereich von 15-85 ppm) besteht. Mit steigendem C-Gehalt kann infolge zunehmender Karbid-ausscheidung eine Verminderung der Versprödung erreicht werden.

Die Untersuchungen am Stahl X8CrNiMoVNb 1613 ergaben, dass die Hochtemperaturversprödung durch eine kombinierte Verformung,wärmebehandlung beeinflusst werden kann.

Eine starke Kaltverformung vor der Glühung hat eine Erhöhung der Duktilität nach Bestrahlung zur Folge, wobei als Ursache die feinere Verteilung der Karbidteilchen angesehen werden kann.

The influence of B-content, C-content and a combined mechanical-heat-treatment, on the high-temperature embrittlement of austenitic 16/13 CrNi-steels after neutron irradiation was investigated.

The results established that the tensile ductilities of the irradiated specimens are independent of the boron content (in the studied concentration range)

### 1. Einführung

Unter den Werkstoffen, die als Hüllmaterialien für Brennelemente in einem natriumgekühlten schnellen Brüter in Betracht kommen, gilt der Stahl X8CrNiMoVNb 1613 wegen seiner guten Zeitstandfestigkeit als aussichtsreich. Gegenüber dem einfachen Niob-stabilisiertem CrNi-

whereas an increasing carbon-content improves the post-irradiation ductility due to increasing carbide precipitation.

It is further shown that the high-temperature embrittlement of the steel X8CrNiMoVNb 1613 can be influenced by a combined mechanical-heat-treatment. The post-irradiation ductility is improved by heavy cold-working prior to annealing.

This effect may be related to the increased numbers of fine dispersed carbide particles.

L'influence de la teneur en bore, de la teneur en carbone et d'un traitement thermique-mécanique combiné sur la fragilité à haute température d'aciers austénitiques CrNi 16/13 après irradiation neutronique a été étudiée. Les résultats établirent que la ductilité à la traction des échantillons irradiés est indépendante de la teneur en bore (dans le domaine de concentration étudiée) tandis qu'une teneur croissante en carbone améliore la ductilité après irradiation en raison de la précipitation croissante de carbure.

Il est montré en outre que la fragilisation à haute température de l'acier 16/13 X8CrNiMoVNb peut être influencé par un traitement mécanique-thermique combiné. La ductilité postérieure à l'irradiation est améliorée par un écrouissage à froid important effectué avant recuit.

Cet effet peut être relié au nombre accru de particules de carbure finement dispersées.

Stahl unterscheidet er sich durch die Zusätze von Molybdän, Vanadin und Stickstoff, die das Kriechverhalten stark verbessern<sup>1)</sup>, die Versprödungsneigung jedoch erhöhen. Über das Zeitstand- und Kriechverhalten dieses Stahles sowie den Einfluss der Wärmebehandlung und der Warmformgebung auf die mechanischen

\* 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.

Eigenschaften liegen umfangreiche Versuchsergebnisse vor<sup>2, 3)</sup>, so dass man das mechanische Verhalten dieses Stahles im unbestrahlten Zustand als weitgehend bekannt ansehen kann.

Demgegenüber existieren bisher keine Untersuchungen über das Verhalten des Stahles X8CrNiMoVNb 1613 unter oder nach einer Neutronenbestrahlung, doch liefern Ergebnisse über das Bestrahlungsverhalten des Stahles X8CrNiNb 1613<sup>4, 5)</sup>, sowie der austenitischen Stähle 316 und 316 L<sup>6-12)</sup> erste Hinweise über den Einfluss der Bestrahlung auf die mechanischen Eigenschaften bei höheren Temperaturen. Wie bei allen bisher untersuchten austenitischen Stählen, so zeigen auch die oben genannten Typen die durch (n,  $\alpha$ )-Reaktionen hervorgerufene sog. Hochtemperaturversprödung<sup>12)</sup>, die sich im Zugversuch und im Zeitstandversuch in einer Abnahme der Bruchdehnung und Standzeit bemerkbar macht.

Die Ergebnisse<sup>4)</sup> von Untersuchungen an zwei Stählen vom Typ X8CrNiNb 1613, die sich im Gehalt an NbC unterscheiden (0,1% C und 1,04% Nb sowie 0,017% C und 0,2% Nb), zeigen, dass nach einer Bestrahlung von  $4 \times 10^{20}$  nvt (thermisch) und  $3 \times 10^{20}$  nvt ( $> 100$  keV) bei 70° C die prozentuale Erniedrigung der Bruchdehnung bei 750° C in etwa gleich ist, wenn auch die absolute Höhe des Dehnungsabfalles in dem C-ärmeren Stahl bei wesentlich höherer Ausgangsdehnung grösser ist.

Die Stähle vom Typ AISI 316 bzw. 316 L unterscheiden sich vom X8CrNiMoVNb 1613, abgesehen von geringen Unterschieden im Chrom- und Nickelgehalt durch das Fehlen von Niob, Vanadin und Stickstoff, während der Molybdängehalt etwas höher liegt. Über diese Stähle, die gegenüber dem niob-stabilisierten Stahl AISI 347 den Vorteil der besseren Schweissbarkeit haben, liegen eine Reihe von Bestrahlungsergebnissen vor.

So finden Comprelli et al.<sup>6)</sup> an AISI 316 nach einer Bestrahlung von  $6 \times 10^{19}$  nvt ( $> 1$  MeV) einen Abfall der Bruchdehnung im Zugversuch bei 600° C von 35 auf etwa 22%. Bell, Stranding und Pfeil<sup>8)</sup> beobachteten an

dem gleichen Stahl im lösungsgeglühten Zustand eine Abnahme der Bruchdehnung bei 700° nach einer Bestrahlung von  $3,6 \times 10^{22}$  nvt von 40 auf etwa 20%. Unter den gleichen Bedingungen wird die Bruchdehnung von Proben, die 17% kaltverformt waren, von etwa 35 auf 10-15% erniedrigt, wobei die Bruchdehnung in beiden Fällen etwa linear mit dem Logarithmus der Dosis abnimmt. Bei einem Stahl FV 548, der dem Stahl AISI 316 entspricht, jedoch niob-stabilisiert ist und damit dem X8CrNiMoVNb 1613 näher kommt, finden die gleichen Autoren an 20% kaltverformten Proben erst bei 750° eine merkliche Reduktion der Bruchdehnung (nach  $3,8 \times 10^{22}$  nvt bei 250-350° Bestrahlungstemperatur), die zudem noch deutlich geringer ist als beim AISI 316. Das wesentlich bessere Verhalten dieses Stahles wird auf die NbC-Ausscheidungen zurückgeführt, die über eine Erschwerung des Korngrenzgleitens die Neigung zum interkristallinen Bruch und damit zur Hochtemperaturversprödung verringern. Auch bei anderen Stählen hat sich die gezielte Ausscheidung stabiler Karbide als eine Möglichkeit zur Verbesserung der Duktilität bei hohen Temperaturen nach Bestrahlung erwiesen<sup>13)</sup>.

Bei der Untersuchung des Zeitstandverhaltens bestrahlter Proben bei 650° C haben Pfeil und Harries<sup>9)</sup> einen Unterschied im Verhalten von AISI 316 und AISI 316 L beobachtet. Während der Stahl AISI 316 nach der Bestrahlung [ $1,2 \times 10^{19}$  nvt (thermisch) und  $7 \times 10^{18}$  nvt (schnell)] bei 50° C eine Standzeiterniedrigung um den Faktor 40 aufweist bei gleichzeitiger Verringerung der Bruchdehnung und Erhöhung der minimalen Kriechgeschwindigkeit zeigten die Proben aus AISI 316 L zwar auch eine Erniedrigung der Bruchdehnung nach Bestrahlung, jedoch wird die Standzeit leicht erhöht und die minimale Kriechgeschwindigkeit erniedrigt. Man sollte aus diesen Ergebnissen schliessen, dass der Kohlenstoffgehalt, der beim AISI 316 L deutlich niedriger ist, einen entscheidenden Einfluss auf die Versprödung nach Bestrahlung ausübt, sofern die Borgehalte in beiden Werkstoffen ungefähr gleich waren.

Bei Zeitstandversuchen an bestrahlten Rohren

unter Innendruck ist der Unterschied zwischen AISI 316 und 316 L nicht mehr so deutlich. Allerdings erschweren die unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen einen Vergleich der entsprechenden Ergebnisse. Beim Stahl AISI 316 bewirkt eine Bestrahlung von  $3,6 \times 10^{19}$  nvt (thermisch) bei  $75^\circ\text{C}$  eine Erniedrigung der Standzeit bei  $650^\circ\text{C}$  um den Faktor 20 bei gleichzeitiger Abnahme der Dehnung von 13 auf 1%. Bei Rohren aus AISI 316 L zeigt sich nach  $1,36 \times 10^{22}$  nvt (schnell) (Bestrahlungstemperatur  $320^\circ\text{C}$ ) beim Rohrrinnendruckversuch bei  $650^\circ\text{C}$  eine Verringerung der Standzeit<sup>11)</sup> um den Faktor 8–10. Ein Vergleich dieser Werte ist in gewisser Weise zulässig, da die über schnelle ( $n, \alpha$ )-Reaktionen bzw. über die thermische  $^{10}\text{B} (n, \alpha)^7\text{Li}$ -Reaktion gebildeten und als Ursache der Versprödung anzusehenden He-Mengen in beiden Fällen etwa gleich sind. Auch diese Ergebnisse weisen damit auf eine etwas geringere Bestrahlungsversprödung beim 316 L hin, der allerdings auch die niedrigere Festigkeit aufweist.

Eine wichtige Rolle im Festigkeitsverhalten des Stahles spielt auch der Borgehalt. Einerseits verbessert das Bor in Konzentrationen bis etwa 100 ppm die Warmfestigkeit des Stahls, andererseits führt die im thermischen und epithermischen Neutronenspektrum ablaufende ( $n, \alpha$ )-Reaktion des  $^{10}\text{B}$ -Isotops zur He-Bildung und damit zur Hochtemperaturversprödung. Wenn der letzte Punkt für eine Anwendung des Stahls in einem schnellen Reaktor auch weniger ins Gewicht fällt als bei der Verwendung in

thermischen Reaktoren, so ist es doch wichtig zu wissen, welche der gegenläufigen Einflüsse des Bors überwiegt. Roberts und Harries<sup>14)</sup> haben an einem niobstabilisiertem 18/10-CrNi-Stahl gezeigt, dass bei  $750^\circ\text{C}$  die Bruchdehnung bestrahlter Proben im lösungsgeglühten Zustand bei Borkonzentrationen zwischen 10 und 100 ppm vom Borgehalt unabhängig ist, d.h. dass sich die beiden Einflüsse gerade kompensieren. Nach einer Auslagerung bei  $750^\circ\text{C}$ , die zur Ausscheidung von NbC und  $\text{Me}_{23}\text{C}_6$  führt und die Hochtemperaturversprödung allgemein verringert, ist bei Borgehalten bis etwa 50 ppm eine geringe Abnahme der Bruchdehnung mit steigender Borkonzentration festzustellen.

Aufbauend auf den eben zitierten Ergebnissen erschien es zweckmässig, den Einfluss einiger Parameter auf die Hochtemperaturversprödung von Stählen des Typs 16/13-CrNi nach Bestrahlung näher zu untersuchen. Im folgenden wird über die Ergebnisse dieser Versuche berichtet, bei denen 1. an unstabilisierten, molybdän- und vanadinfreien Stählen der Einfluss des Kohlenstoff- und des Borgehaltes bestimmt; 2. am kommerziellen Stahl X8-CrNiMoVNb 1613 der Einfluss einer Kaltverformung und nachfolgenden Auslagerung auf die Hochtemperaturversprödung ermittelt wurde.

## 2. Versuchsdurchführung

Die Zusammensetzung der sieben untersuchten Stähle vom Typ 16/13-CrNi ist in Tabelle 1 wiedergegeben. Bei den Stählen 1–3

TABELLE I  
Zusammensetzung der untersuchten Stähle.

Stahl-Nr.	C (%)	Si (%)	Mn (%)	Ph (%)	S (%)	Cr (%)	Ni (%)	Mo (%)	V (%)	Nb (%)	B (ppm)	N <sub>2</sub> (%)
1	0.004	0.22	0.92	0.002	0.007	16.6	13.5	—	—	—	1	—
2	0.028	0.32	0.95	0.003	0.009	17.0	13.4	—	—	—	1	—
3	0.10	0.34	0.93	0.003	0.012	17.2	13.3	—	—	—	1	—
4	0.045	0.34	0.98	0.003	0.012	17.2	13.4	—	—	—	15	—
5	0.060	0.30	1.01	0.003	0.012	17.3	13.2	—	—	—	60	—
6	0.066	0.28	1.02	0.003	0.012	17.3	13.2	—	—	—	85	—
7	0.061	0.44	1.28	0.022	0.005	16.7	13.2	1.39	0.82	1.20	1	0.11

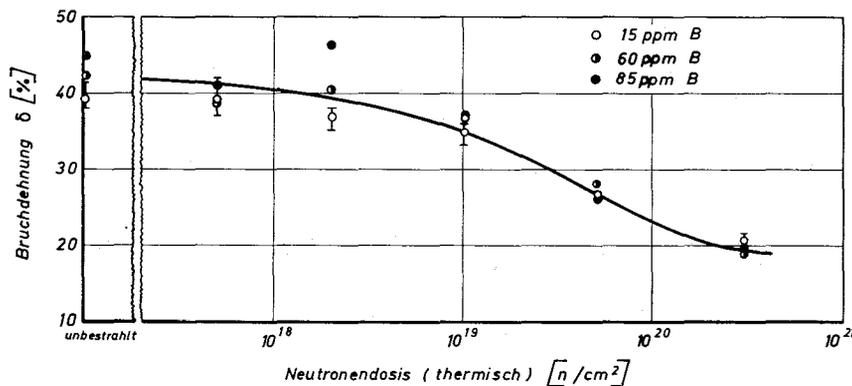


Fig. 1. Bruchdehnung bei 750° C in Abhängigkeit von der Neutronendosis für 16/13-CrNi-Stähle mit verschiedenen B-Gehalten.

ist nur der Kohlenstoffgehalt geändert, bei den Stählen 4–6 der Borgehalt während es sich beim Stahl 7 um den kommerziellen Stahl X8CrNiMoVNb 1613 handelt.

Die Stähle mit unterschiedlichem Kohlenstoffgehalt wurden in zwei Zuständen untersucht und zwar im lösungsgeglühten Zustand (1 h 1050°/Luft) und nach einer 100-stündigen Glühung bei 800°. Die Stähle Nr. 4–6, an denen der Boreinfluss ermittelt wurde, lagen im homogenisierten Zustand vor.

An dem kommerziellen Stahl X8CrNiMoVNb 1613 sollte über eine kombinierte Verformungs- und Glühbehandlung der Einfluss der Verformung sowie der Karbidausscheidung auf die Hochtemperaturversprödung untersucht werden.

Hierzu wurden homogenisierte Proben um 12,6, 27,9, 53,6 und 73,9% durch Rundhämmern verformt und anschliessend zusammen mit unverformten Proben 170 Stunden bei 700° ausgelagert.

Die Proben der verschiedenen Legierungen (Gewindekopfproben mit 3 mm Durchmesser und 40 mm Messlänge) wurden bei Temperaturen von etwa 50° C im FR2-Reaktor in Karlsruhe mit Dosen von  $5 \times 10^{17}$  bis  $3 \times 10^{20}$  thermischen Neutronen/cm<sup>2</sup> und etwa  $2 \times 10^{16}$  bis  $1 \times 10^{19}$  schnellen Neutronen/cm<sup>2</sup> (> 1 MeV) bestrahlt. Daran anschliessend wurden auf einer Zerreißmaschine bei 750° C mit einer Dehnungsgeschwindigkeit von 0,1/min das Spannungs-Dehnungs-Diagramm aufgenommen.

Zur Kennzeichnung des Gefügestandes wurde eine metallographische Untersuchung der unbestrahlten Proben durchgeführt.

### 3. Versuchsergebnisse

#### 3.1. EINFLUSS DES BORGEHALTES

In Fig. 1 ist die Bruchdehnung der Legierungen mit unterschiedlichem B-Gehalt in Abhängigkeit von der thermischen Neutronendosis wiedergegeben. Bei den angegebenen Werten handelt es sich um Mittelwerte aus je 4 Messungen, wobei nur für die Legierung mit 15 ppm B die Streubreite angegeben ist, um das Bild nicht zu unübersichtlich zu gestalten. Der Streubereich bei den beiden anderen Stählen ist etwa gleich. Aus dem Bild ist klar zu erkennen, dass der Borgehalt innerhalb des untersuchten Bereiches von 15 bis 85 ppm keinen Einfluss auf das Ausmass der Hochtemperaturversprödung im Zugversuch hat, was die bereits erwähnten Ergebnisse von Roberts und Harries<sup>14)</sup> bestätigt. In Übereinstimmung mit zahlreichen Untersuchungen über die Hochtemperaturversprödung zeigen die Streckgrenze und Zugfestigkeit keine Änderung infolge Bestrahlung.

#### 3.2. EINFLUSS DES KOHLENSTOFFGEHALTES

Der Einfluss des Kohlenstoffgehaltes auf die Hochtemperaturversprödung nichtstabilisierter 16/13-CrNi-Stähle ist aus den Fig. 2a, b zu erkennen, in denen die Bruchdehnung bei

750° C der drei Stähle mit verschiedenem C-Gehalt in den beiden Wärmebehandlungszuständen in Abhängigkeit von der Neutronendosis wiedergegeben ist.

Die Ergebnisse an den beiden Stählen mit den niedrigen C-Gehalten, die in Fig. 2a zusammengefasst sind, lassen keinen Einfluss des C-Gehaltes, weder im homogenisierten noch im ausgelagerten Zustand erkennen. Dass die Auslagerung auch keine Änderung der mechanischen Eigenschaften im unbestrahlten Zustand zur Folge hat, weist darauf hin, dass bei den genannten C-Gehalten noch keine nennenswerte Karbidausscheidung auftritt, was durch die metallographische Untersuchung bestätigt wurde.

Deutlich wird ein Einfluss des C-Gehaltes auf die Hochtemperaturversprödung erst bei dem Stahl mit einem C-Gehalt von 0,1%, wie Fig. 2b zeigt. Durch die Auslagerung wird die

Bruchdehnung im unbestrahlten Zustand infolge der Karbidausscheidung leicht verringert. Die Kurven im Fig. 2b lassen erkennen, dass die Abnahme der Bruchdehnung mit der Neutronendosis bei den ausgelagerten Proben geringer ist als im lösungsgeglühten Zustand, so dass trotz der geringeren Ausgangsdehnung nach einer Dosis von  $3 \times 10^{20}$  nvt etwa gleiche Bruchdehnungswerte erreicht werden. Diese Werte liegen deutlich über denjenigen der Legierungen mit niedrigeren C-Gehalten, so dass diese Ergebnisse darauf hindeuten, dass das Ausmass der Hochtemperaturversprödung im Zugversuch durch höhere C-Gehalte abnimmt, während die Festigkeit leicht steigt. Dieser Befund steht nicht in Übereinstimmung mit den bereits genannten Ergebnissen der Untersuchungen an Stählen vom Typ 316 und 316 L, die auf einen negativen Einfluss eines höheren Kohlenstoffgehaltes hinweisen.

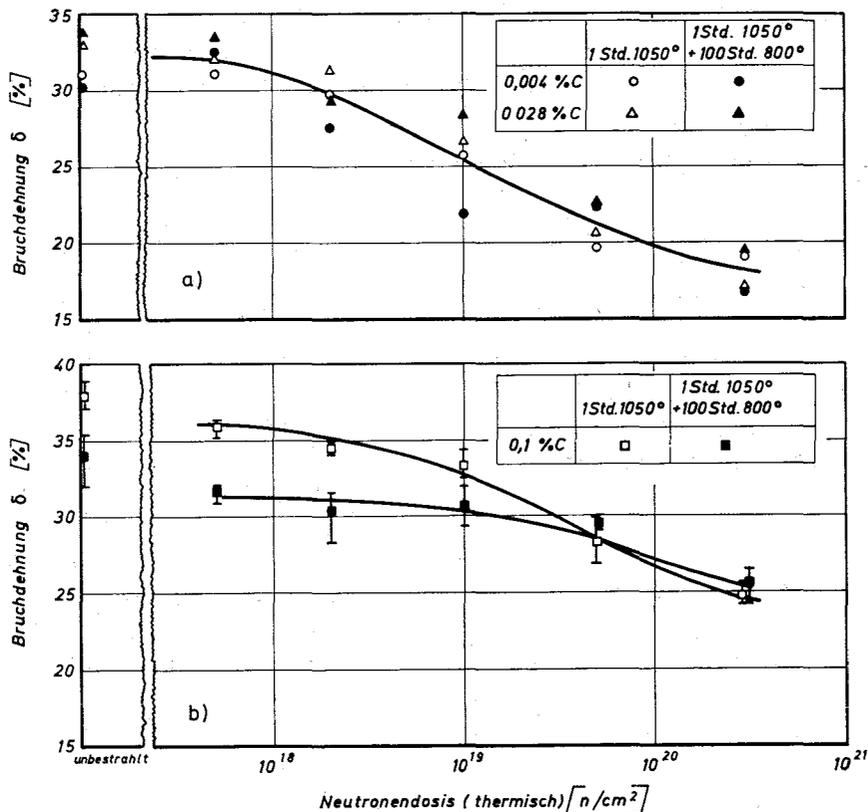


Fig. 2. Bruchdehnung bei 750° C in Abhängigkeit von der Neutronendosis für 16/13-Cr-Ni-Stähle mit verschiedenen Kohlenstoffgehalten.

### 3.3. EINFLUSS EINER VERFORMUNG UND WÄRMEBEHANDLUNG

Im dritten Teil der vorliegenden Arbeit wurde an Proben aus dem Stahl X8CrNiMoVNb 1613 der Einfluss einer kombinierten Verformungs- und Wärmebehandlung auf die Hochtemperaturversprödung untersucht, um Hinweise auf eine mögliche Verbesserung des Bestrahlungsverhaltens zu erhalten.

Durch die kombinierte Behandlung wird einmal die Festigkeit der Legierung infolge Verfestigung bzw. Rekristallisation verändert, zum anderen wird die Verteilung der Karbidausscheidung beeinflusst, die ihrerseits neben einer geringen Festigkeitsänderung unter Umständen einen Einfluss auf das Ausmass der Bestrahlungsversprödung ausübt.

Die durch die Kaltverformung und anschließende 170-stündige Glühung bei 700° hervorgerufenen Änderungen der Streckgrenze und Zugfestigkeit bei 750° C sind aus Fig. 3 zu entnehmen, in der neben den Werten der unbestrahlten Proben auch die der bestrahlten Proben ( $3 \times 10^{20} n_{\text{therm}}/\text{cm}^2$ ) eingezeichnet sind.

Der Festigkeitsanstieg der um 12,6 bzw. 27,9% verformten Proben zeigt, dass während der nachfolgenden Glühung noch keine Rekristallisation abgelaufen ist, wohl jedoch bei den

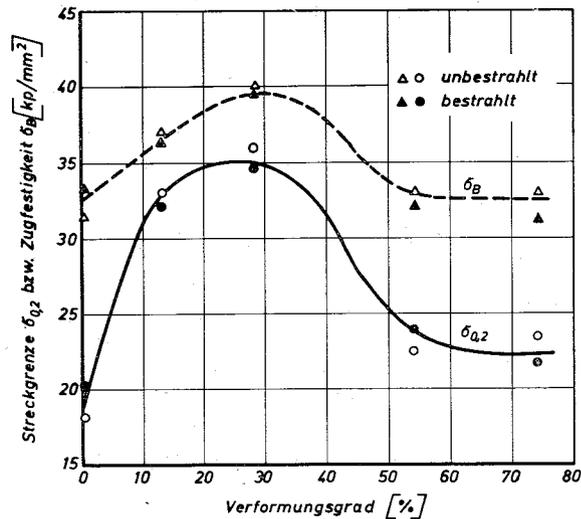
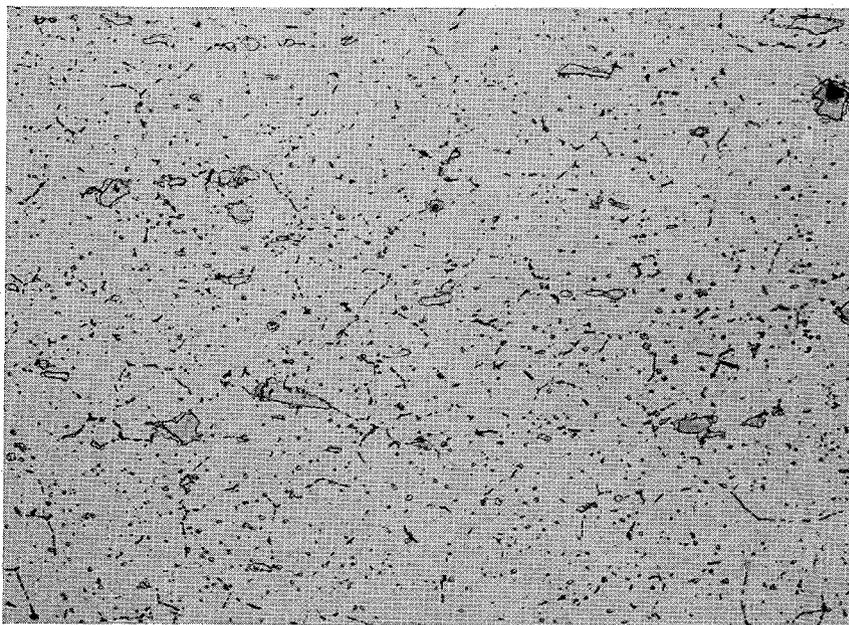


Fig. 3. Streckgrenze und Zugfestigkeit unbestrahlter und bestrahlter Proben aus X8CrNiMoVNb 1613 in Abhängigkeit vom Verformungsgrad. (Alle Proben sind nach der Verformung 170 Std bei 700° C geglüht). Bestrahlungsdosis  $3 \times 10^{20} n_{\text{th}}/\text{cm}^2$ .

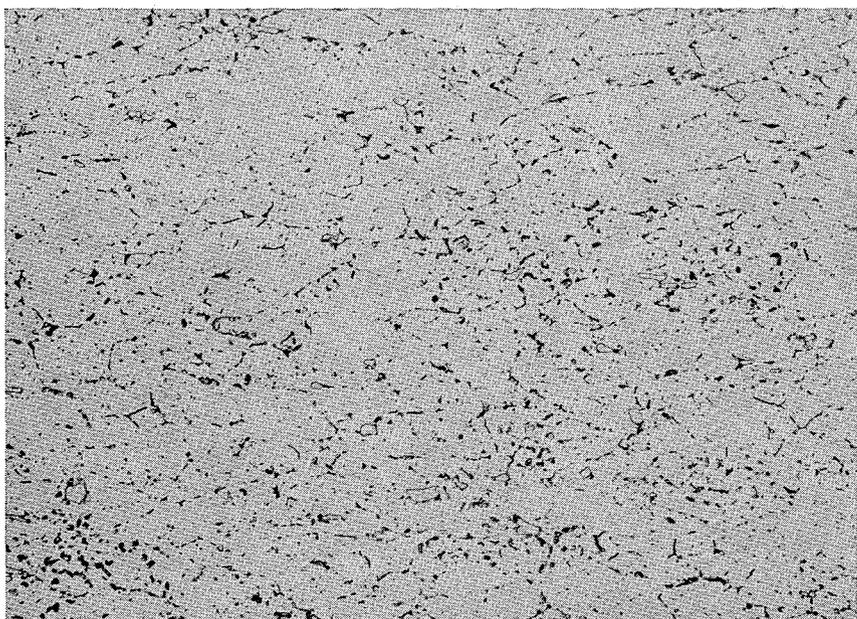


(a)

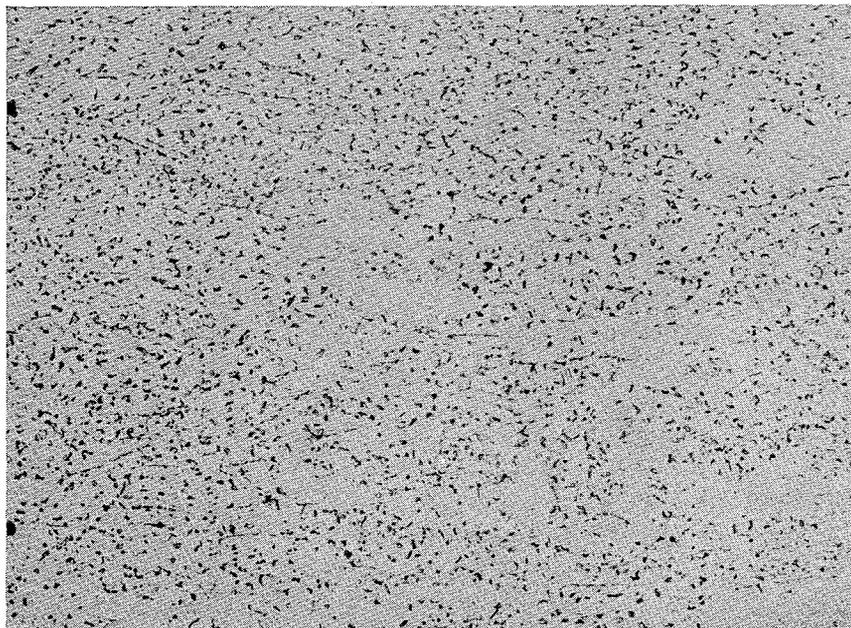
Fig. 4. Gefüge der unverformten und verformten Proben nach einer Glühung von 170 h bei 700° C ( $\times 500$ ). a) unverformt; b) 12,6% verformt; c) 27,5% verformt; d) 53,6% verformt; e) 73% verformt.



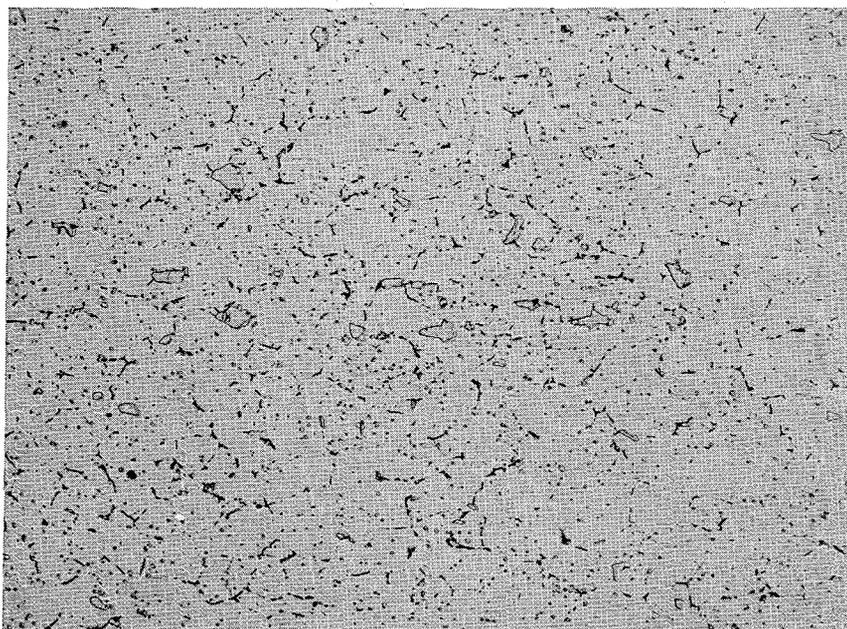
(b)



(c)



(d)



(e)

höherverformten Proben, wie am Festigkeitsabfall klar ersichtlich ist. In Fig. 4 sind die Gefüge der verschiedenen Proben wiedergegeben. Man sieht, dass die Zahl der Karbidteilchen mit steigendem Verformungsgrad zunimmt und dass darüberhinaus die auf Grund der hohen Verformung rekristallisierten Proben eine wesentlich gleichmässige Karbidverteilung aufweisen als die anderen Proben.

Aus Fig. 3 ist weiter zu entnehmen, dass, wie in zahlreichen anderen Beispielen der Hochtemperaturversprödung, Streckgrenze und Zugfestigkeit bei 750°C durch die Bestrahlung nicht verändert werden. Auskunft über den Betrag der Hochtemperaturversprödung gibt Fig. 5, in der neben der Gesamtdehnung der Proben bei 750°C auch die Gleichmass- sowie Einschnürdehnung eingezeichnet sind und zwar für unbestrahlte und bestrahlte Proben. Der Verlauf der Dehnung über der Verformung für die unbestrahlten Proben entspricht dem in Fig. 3 wiedergegebenen Festigkeitsverlauf. Nimmt man die Erniedrigung der Bruchdehnung als Mass für die Versprödung, so zeigt sich ein deutlicher Einfluss der Probenvorbehandlung in der Weise, dass die Versprödung mit abnehmender Ausgangsdehnung geringer wird und bei den um 30% verformten Proben überhaupt nicht in Erscheinung tritt. Wie die Werte der um 73,9% verformten Proben jedoch erkennen lassen, besteht nicht allein ein Zusammenhang zwischen Ausgangsdehnung und Versprödung, da bei den genannten Proben trotz hoher Ausgangsdehnung eine relativ geringe Versprödung auftritt. Es ist zu vermuten, dass die sehr feine Karbidverteilung Ursache des besseren Bestrahlungsverhaltens ist, was durch die Ergebnisse anderer Untersuchungen bestätigt wird.

Der Zusammenhang zwischen der Ausgangsdehnung und der Hochtemperaturversprödung wird besonders deutlich aus Fig. 6, in der die Dehnungserniedrigung durch die "Vorbestrahlungs-Behandlung" (Verformung und Glühung) gegen die Dehnungserniedrigung durch Bestrahlung aufgetragen ist. Abgesehen von der um 73,9% verformten Probe, deren Be-

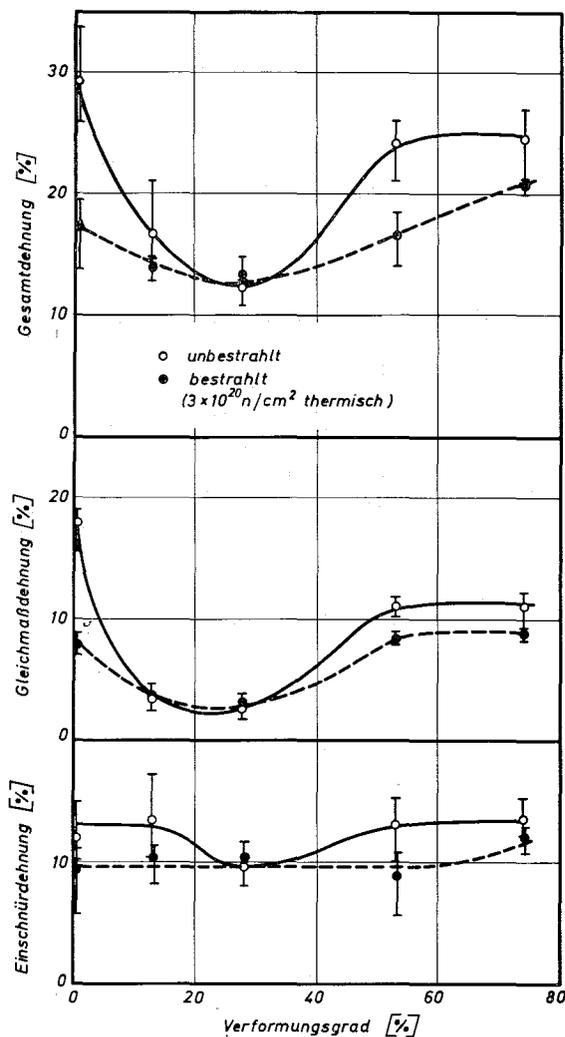


Fig. 5. Dehnung unbestrahlter und bestrahlter Proben aus X8CrNiMoVNb 1613 bei 750°C in Abhängigkeit vom Verformungsgrad (Wärmebehandlung nach der Verformung 170 Std bei 700°C).

strahlungsverhalten durch die sehr feine Karbidausscheidung mitbestimmt wird, lassen die Werte der anderen Probe deutlich einen Zusammenhang zwischen der Bruchdehnungserniedrigung durch die Vorbehandlung und der durch Bestrahlung erkennen.

Betrachtet man die beiden Anteile an der Gesamtdehnung, d.h. Gleichmass- und Einschnürdehnung, so zeigt sich als erstes, dass beide Dehnungsanteile durch die Bestrahlung beeinflusst werden, wenn auch in unterschiedlicher Weise. Während die Gleichmassdehnung

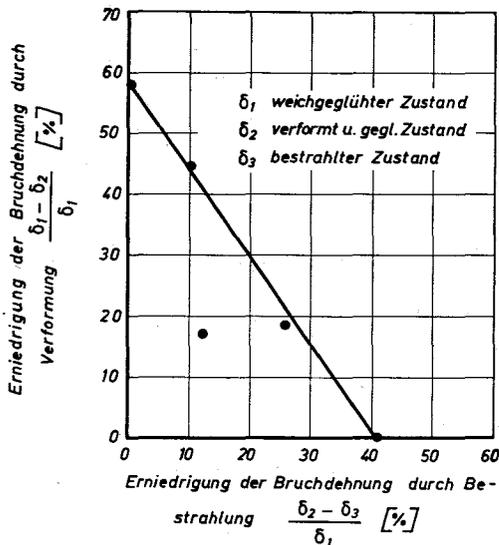


Fig. 6. Zusammenhang zwischen Dehnungserniedrigung durch Verformung und durch Bestrahlung.

in ihrem Verlauf die Gesamtdehnung wieder spiegelt und ihre Erniedrigung mit steigender Dehnung zunimmt, ist die Einschnürdehnung ziemlich konstant und auch die Erniedrigung durch Bestrahlung weist zumindest im grossen und ganzen nur geringe Unterschiede auf. Keine Erniedrigung der Einschnürdehnung wird bei der am stärksten verfestigten Probe beobachtet, eine relativ geringe Erniedrigung bei der Probe mit der feinsten Karbidverteilung.

#### 4. Diskussion der Versuchsergebnisse

##### 4.1. EINFLUSS DES BORGEHALTES

Die Ergebnisse an den 16/13-CrNi-Stählen mit verschiedenen Borgehalten bestätigen die von Roberts und Harries<sup>14)</sup> an 18/10 CrNi-Stählen beobachteten Resultate, wonach der Borgehalt über 10 ppm in lösungsgeglühten Proben keinen nennenswerten Einfluss auf das Ausmass der Hochtemperaturversprödung ausübt. Für dieses Verhalten lässt sich derzeit nur eine qualitative Erklärung geben. Es ist bekannt, dass bei B-Gehalten bis 100 ppm die Zeitstandfestigkeit unbestrahlter Stähle und Ni-Legierungen mit steigendem B-Gehalt verbessert wird und zwar in Verbindung mit einer abnehmenden Neigung der Legierungen zur

Ausbildung interkristalliner Risse vom „Wedge-Typ“. Dieser verbessernde Einfluss des Bors wird auch in bestrahlten Werkstoffen bestehen bleiben, da etwa 80% des natürlichen Bors aus <sup>11</sup>B besteht, das durch die Bestrahlung unverändert bleibt. Dem entgegen wirkt das durch <sup>10</sup>B-Abbrand gebildete Helium, das die Neigung zum interkristallinen Bruch verstärkt. Die vom B-Gehalt weitgehend unabhängige Bruchdehnung nach Bestrahlung weist daraufhin, dass sich beide Einflüsse gerade kompensieren ohne dass über die Vorgänge im einzelnen etwas ausgesagt werden kann.

##### 4.2. EINFLUSS DES KOHLENSTOFFGEHALTES

Bei der Beurteilung der Ergebnisse über den Einfluss des Kohlenstoffgehaltes muss man unterscheiden zwischen dem im Mischkristall gelösten und dem in Form von Karbiden heterogen vorliegenden Kohlenstoff.

Hinsichtlich des gelösten Anteils zeigen die Ergebnisse an den beiden Stählen mit relativ niedrigem C-Gehalt, dass dieser keinen Einfluss auf die Hochtemperaturversprödung im Zugversuch ausübt.

Zum gleichen Ergebnis kommen auch Martin und Weir<sup>15)</sup> bei der Untersuchung von Stählen vom Typ 304 mit C-Gehalten zwischen 0,02 und 0,06%. Ein deutlicher Einfluss ist erst bei höheren C-Gehalten festzustellen, bei denen eine Karbidausscheidung erfolgt, so dass die Änderung der Hochtemperaturversprödung durch den C-Gehalt auf Karbidausscheidungen zurückzuführen ist. Dies gilt sicherlich auch für die im homogenisierten Zustand untersuchten Proben des Stahls mit 0,1% C (Fig. 2), da während des Warmzugversuches bei 750° bereits eine Karbidausscheidung erfolgt.

Die geringere Bruchdehnungserniedrigung durch Bestrahlung bei dem ausgelagerten Stahl mit hohem C-Gehalt ist sehr wahrscheinlich auf die verstärkte Karbidausscheidung zurückzuführen, was Ergebnisse von Martin und Weir<sup>15)</sup> am Stahl AISI 304 bestätigt. Die positive Wirkung einer Korngrenzenkarbidausscheidung hinsichtlich der Hochtemperaturversprödung beruht nach den derzeitigen Vorstellungen ins-

besondere auf einer Erhöhung der zur Bildung eines interkristallinen Risses erforderlichen Spannung<sup>13)</sup> infolge Erniedrigung der freien Korngrenzengleitlänge. Auch die im Korn gebildeten Karbidausscheidungen können eine verbesserte Wirkung ausüben und zwar durch eine gleichmässigeren Verteilung des Bors<sup>14)</sup> [wichtig für die Versprödung über  $^{10}\text{B}$  ( $n, \alpha$ ) $^7\text{Li}$ ] und über ihre Eigenschaft als Senken für Heblasen.

Für das Langzeitverhalten eines Stahls unter Bestrahlung ist neben Form und Verteilung der Karbide auch ihre thermische Stabilität d.h. insbesondere ihre Neigung zur Koagulation ausschlaggebend. Im vorliegenden Fall darf man annehmen, dass Form und Verteilung der bei der 100-stündigen 800°-Auslagerung gebildeten Karbidteilchen ( $\text{M}_{23}\text{C}_6$ ) auch während eines mehrere tausend Stunden dauernden Zeitstandversuches bei z.B. 700° nicht so stark verändert werden, dass die im Warmzugversuch bei 750° beobachtete günstige Wirkung der Karbidausscheidungen ganz verloren ginge.

Es ist anzunehmen, dass Ausscheidungen von Ti- bzw. Niobkarbid noch wirksamer sind, einmal wegen ihrer grösseren Stabilität, möglicherweise auch wegen einer besseren Verteilung auf den Korngrenzen.

#### 4.3. EINFLUSS EINER KALTVERFORMUNG UND WÄRMEBEHANDLUNG

Eine genaue Interpretation der Ergebnisse dieses Abschnittes der Arbeit setzt eigentlich voraus, dass man die durch Verformung und Rekristallisation einerseits und durch Karbidausscheidung andererseits bewirkten Änderungen im Bestrahlungsverhalten klar trennen kann. Da dies an Hand der durchgeführten Versuche jedoch nur sehr schwer möglich ist (in zur Zeit laufenden Untersuchungen werden einzelne Parameter genauer erfasst), wird man sich in manchen Fällen mit Hinweisen begnügen müssen.

Recht konkrete Vorstellungen bestehen, wie bereits erwähnt über den Einfluss der Karbidausscheidungen auf das Ausmass der Hochtemperaturversprödung. Sie lassen sich ver-

wenden zur Erklärung der relativ geringen Hochtemperaturversprödung der am stärksten verformten Proben, da diese während der Glühung rekristallisierten und sich vom Ausgangszustand im wesentlichen durch die Karbidverteilung, weniger durch die Korngrösse unterscheiden. Man darf insbesondere bei den um 74% verformten Proben demnach annehmen, dass die durch die Verformung hervorgerufene feine und gleichmässige Verteilung der Karbide aus den im Abschnitt 4.2. bereits behandelten Gründen das Ausmass der Hochtemperaturversprödung herabsetzen. Die relativ grosse Einschnürung dieser Proben im bestrahlten Zustand und die sich daraus ergebende hohe wahre Bruchspannung weisen auf eine geringe Neigung zum interkristallinen Bruch hin. Es muss jedoch als fraglich angesehen werden, ob Form und Verteilung der während der 700°-Auslagerung gebildeten Karbide auch über längere Zeiten bei höheren Temperaturen stabil bleiben.

Sehr viel schwerer zu übersehen und zu interpretieren sind die Verhältnisse bei niedrigeren Verformungsgraden, bei denen die nachfolgende Glühung keine vollständige Rekristallisation bewirkt hat. Auffallendstes Ergebnis hier ist die Abhängigkeit der Dehnungs-erniedrigung infolge Bestrahlung von der Ausgangsbruchdehnung, die am besten in Fig. 6 deutlich wird. In vereinfachter Form besagt dieses Ergebnis, dass die Hochtemperaturversprödung umso geringer ist, je stärker die Bruchdehnung durch Kaltverformung erniedrigt wurde, d.h. die gesamte Bruchdehnungs-erniedrigung aus Kaltverformung und Bestrahlung ist etwa konstant. Die Parallele, die damit zur Tieftemperaturversprödung infolge Neutronenbestrahlung vorliegt, ist zweifellos zufällig, da die Ursachen der Versprödung sehr unterschiedlich sind. Es lässt sich keineswegs sagen, ob der gefundene Zusammenhang zwischen Kaltverformung und Hochtemperaturversprödung für alle Legierungen zutrifft. Der Einfluss der Kaltverformung ist wahrscheinlich auf eine verstärkte Bildung von Korngrenzenrissen infolge starker Verfestigung im Korn zurückzuführen<sup>16)</sup>, d.h. bereits durch die Kalt-

verformung wird die Neigung zum interkristallinen Bruch so verstärkt, dass der Einfluss der Bestrahlung auf die Rissbildung zurücktritt.

### 5. Zusammenfassung

An austenitischen Stählen vom Typ 16/13-CrNi wurde der Einfluss des Borgehaltes und des Kohlenstoffgehaltes sowie der Einfluss einer kombinierten Verformungs-Wärmebehandlung auf die nach Neutronenbestrahlung auftretende Hochtemperaturversprödung im Warmzugversuch bei 750° untersucht.

Die Ergebnisse der Untersuchungen an nicht-stabilisierten Stählen zeigen, dass bei B-Konzentrationen zwischen 15 und 85 ppm keine Abhängigkeit der Versprödung (gekennzeichnet durch die Bruchdehnung) vom B-Gehalt vorliegt.

Hinsichtlich des C-Gehaltes weisen die Versuche daraufhin, dass der gelöste Kohlenstoff das Ausmass der Versprödung nicht beeinflusst, bei C-Gehalten, die zur Karbidausscheidung führen, jedoch eine Verminderung der Versprödung auftritt.

Die an Nb-stabilisiertem Stahl vorgenommene Untersuchung über den Einfluss einer kombinierten Verformungs-Wärmebehandlung auf das Bestrahlungsverhalten hat ergeben, dass in den Fällen, in denen die Wärmebehandlung zur Rekristallisation geführt hat, dem mit steigendem Verformungsgrad zunehmenden Dispersitätsgrad der Karbidteilchen eine Verminderung der Versprödung infolge Bestrahlung parallel geht. Bei Verformungsgraden bis 30%, bei denen die nachfolgende Wärmebehandlung

keine Rekristallisation bewirkt, steigt die Gesamtversprödung mit dem Verformungsgrad an, wobei jedoch die allein durch Bestrahlung hervorgerufene Versprödung abnimmt und sogar Null wird.

### Literatur

- 1) M. M. Shteynberg, V. K. Farafanov, E. C. Tretyakova und D. A. Mirzoyev, *Fiz. metal. metallorod.* **19** (1965) 411
- 2) S. und H. R. Kautz, H.-F. Klärner und E. Schmidtman, *Arch. Eisenhütt.* **36** (1965) 571
- 3) A. von den Steinen, *Arch. Eisenhütt.* **33** (1962) 49
- 4) H. Böhm, W. Dienst, H. Hauck und H. J. Laue, *J. Nucl. Mat.* **19** (1966) 59
- 5) H. Böhm, W. Dienst und H. Hauck, *Z. Metallk.* **57** (1966) 352
- 6) F. A. Coprelli, C. N. Spalaris, H. I. Busboom und A. Beaudreau, GEAP-4754
- 7) "Steels Data Manual", TRG-Report 840 (R) (UKAEA)
- 8) J. P. Bell, J. Standring und P. C. L. Pfeil, no. 65 ASTM-Conf. (Atlantic City, 1966)
- 9) P. C. L. Pfeil und D. R. Harries, Flow and fracture of metals and alloys in nuclear environments, ASTM STP-380 (1964) 202
- 10) A. L. Bement, BNWL-SA-492 (1966)
- 11) I. P. Bell, I. Standring, P. C. L. Pfeil, G. H. Broomfield, K. Q. Bagley and A. S. Fraser, Paper no. 65, ASTM-Conf. (Atlantic City, 1966)
- 12) Zusammenfassende Darstellung, siehe D. R. Harries, *J. Brit. Nucl. Energ. Soc.* (1966) 74
- 13) W. R. Martin und J. R. Weir, Paper no. 70, ASTM-Conf. (Atlantic City 1966)
- 14) A. C. Roberts und D. R. Harries, Paper no. 66, ASTM-Conf. (Atlantic City, 1966)
- 15) W. R. Martin und J. R. Weir, ORNL contribution to US/Euratom exchange on nuclear fuels (Brussels, 1966)
- 16) Eigene unveröffentlichte Untersuchungen