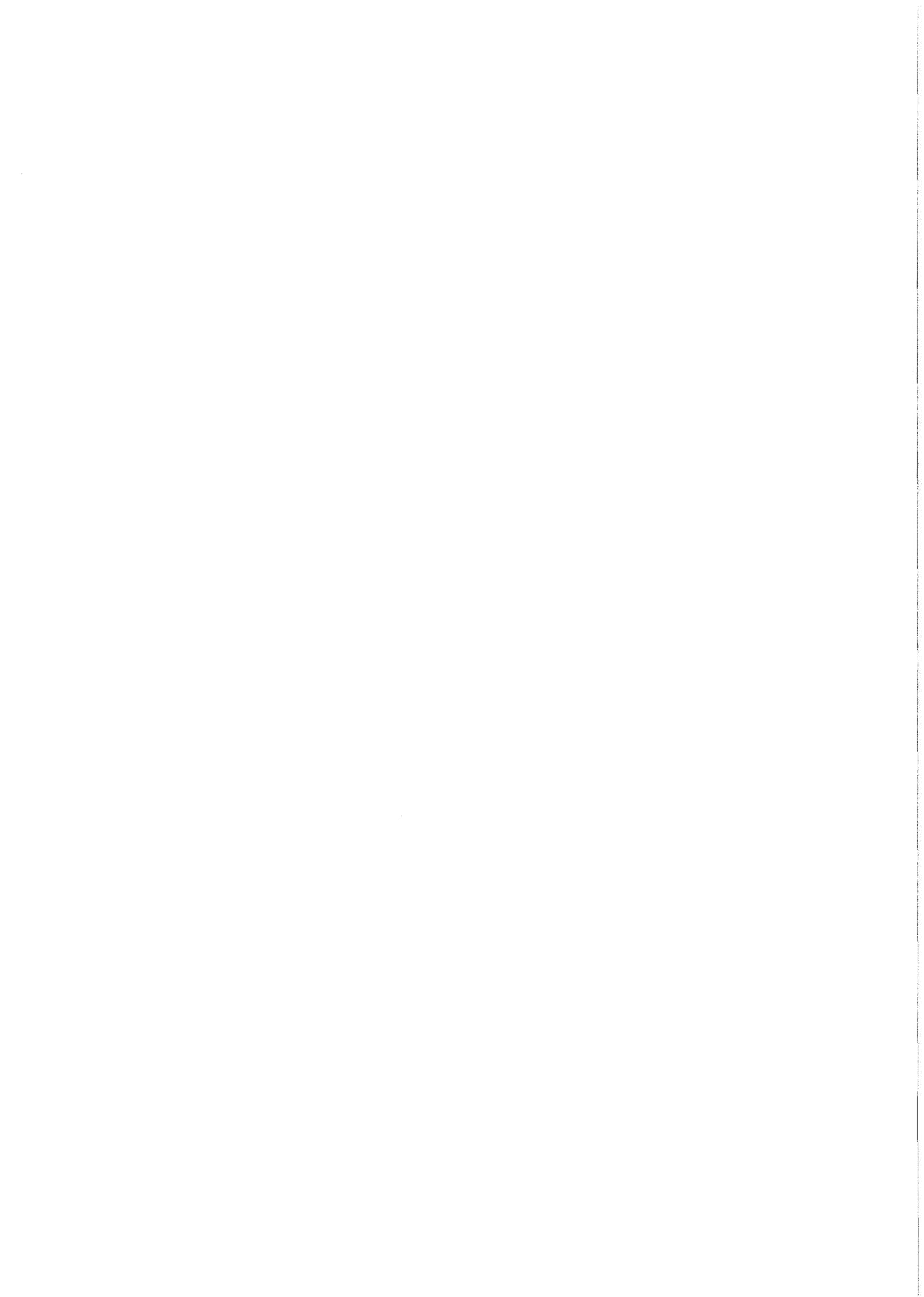


KfK 3469  
Oktober 1983

**Literaturübersicht  
mechanischer und  
physikalischer Eigenschaften  
von Hüllrohrwerkstoffen  
für Fortgeschrittene  
Druckwasserreaktoren (FDWR)  
bei hoher Temperatur**

C. Petersen  
Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Nukleare Sicherheit

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Institut für Material- und Festkörperforschung  
Projekt Nukleare Sicherheit

KfK 3469

---

Literaturübersicht mechanischer und physikalischer  
Eigenschaften von Hüllrohrwerkstoffen für Fortge-  
schrittene Druckwasserreaktoren (FDWR) bei hoher  
Temperatur

C. Petersen

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

K u r z f a s s u n g :

Nach einer vergleichenden Betrachtung der Hüllrohrwerkstoffalternativen (Austenite und Ferrite) für den FDWR zum DWR-Hüllmaterial Zircaloy-4 ergeben sich bei Betriebsbedingungen keine Probleme mit der Neutronenökonomie und der chemischen Verträglichkeit mit Brennstoff und Kühlmittel. Die Herstellungskosten sind für alle Materialien vergleichbar. Die Wiederaufarbeitung der Ferrite bereitet einige Schwierigkeiten. In der mechanischen Stabilität sind die Stähle dagegen überlegen. Bei den physikalischen Eigenschaften könnten Vorteile für die Stähle im Bereich hoher Temperaturen gefunden werden.

Die mechanischen Eigenschaften aus Kurzzeit- und Langzeitversuchen bei hohen Temperaturen ( $> 600$  °C) weisen die Stähle mit höheren Festigkeiten und geringeren Bruchdehnungen, wie beim Zircaloy gefunden, als überlegen aus. Die Neutronenbestrahlung verursacht besonders bei den Austeniten noch eine weitere Bruchdehnungsabsenkung, die für das Berstverhalten des Hüllrohres bei Störfällen von Vorteil ist. Daten aus temperaturtransienten Hochtemperaturkriechversuchen sollten zum Verständnis des Sicherheitsverhaltens der Stahlwerkstoffe vorrangig erarbeitet und in Modellvorstellungen eingebracht werden.

Literature Search on Mechanical and Physical Properties of Cladding  
Materials for Advanced Pressurized Water Reactors (APWR) at High  
Temperatures

A b s t r a c t :

A comparison of alternative cladding materials such as austenitic and ferritic stainless steels for APWR with Zircaloy -4 as PWR cladding material demonstrate that there are no problems with respect to neutron economy and chemical interaction with the coolant and fuel under reactor operating conditions. Fabrication costs of all materials are comparable. In reprocessing ferritic steels make difficulties. The mechanical stability of the steels is found to be better.

Better physical properties are found for steels compared with Zircaloy at high temperatures.

The mechanical properties determined in short term and long term tests at high temperatures ( $> 600$  °C) lead to a superiority of the steels in terms of higher strength and lower failure ductility compared to Zircaloy. Even neutron irradiation causes lower ductility in austenitic stainless steels - an advantage for the burst behavior of the cladding in an emergency accident. Data from temperature-transient high temperature creep tests should be evaluated to understand the safety behavior of steel cladding materials, and incorporated into model concepts.

<u>Inhalt:</u>	<u>Seiten</u>
1 Einleitung	1
2 Hüllmaterialauswahl	1
2.1 Einfluß des Hüllmaterials auf die Neutronenökonomie	2
2.2 Chemische Verträglichkeit des Hüllmaterials mit Wasser und Brennstoff	3
2.3 Mechanische Stabilität bei Betriebsbedingungen	4
2.3.1 Einfluß von Temperatur und Neutronenbestrahlung auf Festigkeit und Duktilität	5
2.3.2 Kriecheigenschaften	5
2.3.3 Dauerwechselfestigkeit	5
2.4 Verhalten des Hüllmaterials beim Wiederaufarbeitungs- prozeß	6
2.5 Herstellung und Kosten	6
3 Störfallbedingungen	7
4 Physikalische Eigenschaften	9
4.1 Elastizitätsmodul	9
4.2 Linearer Wärmeausdehnungskoeffizient	9
4.3 Wärmeleitfähigkeit	10
5 Mechanische Eigenschaften	10
5.1 Kurzzeiteigenschaften aus Zugversuchen	11
5.1.1 Streckgrenze	11
5.1.2 Zugfestigkeit	12
5.1.3 Gleichmaßdehnung	12
5.1.4 Bruchdehnung	13
5.1.5 Verformungsgeschwindigkeit	13

5.2	Langzeiteigenschaften aus Kriechversuchen	13
5.2.1	Standzeit	14
5.2.2	Minimale Kriechgeschwindigkeit	15
5.2.3	Bruchdehnung	16
5.2.4	Berstverhalten	17
5.3	Bestrahlungsverhalten	18
5.3.1	Mechanismen	18
5.3.2	Kurzzeiteigenschaften aus Zugversuchen	18
5.3.3	Langzeitverhalten aus Kriechversuchen	20
6	Zusammenfassung	22
7	Literatur	24
8	Tabellen	33
9	Abbildungen	36

## 1 Einleitung

Neben der Weiterentwicklung der modernen Leichtwasserreaktoren (LWR) z.B. der 1300 MWe-Klasse, die man als kommerziell bewährte Industrieanlagen bezeichnen kann, sind auch zeitweise Entwicklungsschritte nötig, um ein neues technologisches Konzept voranzutreiben. Ein solcher Entwicklungsschritt ist die Einführung eines Fortgeschrittenen Druckwasserreaktors (FDWR) mit dem Ziel eine Konversionsrate um 0,9 zu erreichen. Dieses würde gegenüber herkömmlichen LWR-Anlagen eine Verbesserung der Uranausnutzung um den Faktor 4-6 bedeuten. Neben den neutronenphysikalischen Untersuchungen und Berechnungen und dem Design der Brennstabanordnung stehen auch Materialfragen an, die sich besonders mit der Auswahl von geeignetem Hüllmaterial und dessen Verhalten bei Störfallbedingungen - z.B. des Kühlmittelverluststörfalles (KVS) - zu beschäftigen haben. In der vorliegenden Studie wird das aus der Literatur zugängliche Datenmaterial der in Frage kommenden austenitischen und ferritisch, martensitischen Stähle in erster Linie bezüglich des Hochtemperaturverhaltens gesichtet und mit dem des Zircaloy-4 verglichen.

## 2 Hüllmaterialauswahl

Alle bisherigen Entwürfe der Brennelemente für den FDWR gehen von einem Stabelementkonzept mit keramischer Brennstofffüllung aus. Die Spezifikationen liegen zwischen den Anforderungen für LWR's und denen für Schnelle Brutreaktoren (SBR) und so können auch für die Hüllrohrauswahl wichtige Kriterien aus beiden Konzepten verwendet werden /1/:

- Einfluß des Hüllmaterials auf die Neutronenökonomie
- Chemische Verträglichkeit des Hüllmaterials mit Wasser und Brennstoff
- Mechanische Stabilität bei Betriebsbedingungen
- Verhalten des Hüllmaterials beim Wiederaufarbeitungsprozeß
- Herstellung und Kosten

Die Werkstoffauswahl soll sich auf schon erprobte Werkstoffe konzentrieren. Aus den gegenwärtig betriebenen Druckwasserreaktoren sind es das Zircaloy-4 und bei anderen Leichtwasserreaktorkonzepten auch austenitische Cr-Ni-Stähle. Für den Schnellen Brüter sind stabilisierte austenitische Cr-Ni-Stähle im Einsatz und als Alternativwerkstoff ferritisch martensitische 12 % Cr-Stähle in der Untersuchungsphase. In Tabelle I sind die möglichen Werkstoffe aufgelistet und in Tabelle II deren chemische Zusammensetzung angegeben.

## 2.1 Einfluß des Hüllrohrmaterials auf die Neutronenökonomie

Die Neutronenökonomie wird im Reaktorcore unter anderem durch den parasitären Einfang des Hüllrohrmaterials stark beeinflusst.

Für wassermodierte Reaktoren bieten sich folgende Möglichkeiten einer Reduzierung dieser parasitären Einfänge:

- Spektrumshärtung durch Verwendung von engen Brennstabgittern, d.h. dichtere Packung der Stäbe
- Reduzierung der Hüllrohrwandstärken

In Abbildung 1 sind die gerechneten Reaktorspektren für DWR, FDWR und SBR dargestellt. Deutlich ist zu sehen, daß der thermische Anteil durch Spektrumshärtung verschwunden ist, und daß lediglich der epithermische und der schnelle Anteil in weitere Betrachtungen einzubeziehen sind. Dies hat für die Materialauswahl den Vorteil, auch Materialien mit hohen Einfangquerschnitten im thermischen Bereich zuzulassen. In Abbildung 2 sind die Einfangquerschnitte für die Elemente Cr, Fe, Ni und Zr gegen die Energie aufgetragen. Unterhalb 60 eV zeigt das Zr viel kleinere Einfangquerschnitte als die Stahlkomponenten Cr, Fe und Ni, oberhalb 100 eV hat Zr sogar vergleichsweise hohe Werte. Damit können Stähle für den FDWR ohne größere Nachteile als Hüllmaterialien in Betracht gezogen werden, zumal sie wegen höherer Festigkeiten im Bereich der Betriebstemperaturen mit kleineren Wandstärken eingesetzt werden können. Auch diese Möglichkeit geht in die Richtung der Reduzierung von parasitären Einfängen /2/.

## 2.2 Chemische Verträglichkeit des Hüllmaterials mit Wasser und Brennstoff

Der chemische Angriff kann i.a. auf zwei Arten stattfinden. Entweder über eine Oberflächenreaktion, die zu einer Änderung des tragenden Querschnittes führt oder über lokale Reaktionen, z.B. Korngrenzenangriffe, die tief in das Material eindringen und zu einer Minderung der Festigkeit und Duktilität führen.

Bei normalen Betriebsbedingungen eines DWR bildet sich auf dem gebräuchlichen Zircaloy-4 Hüllrohrmaterial innen und außen eine Oberflächenschicht durch Oxidation, die mit ca. 10 µm auch bei längerem Betrieb kein besonderes Problem aufwirft /3, 4/. Die Hydrierungen in Form von Plättchen in der Rohrwandung stellten früher gewisse Schwierigkeiten dar, weil sie, durch den Herstellungsprozeß in radialer Richtung angeordnet, Duktilitätsabsenkungen bis auf 1 % verursachten. Durch Einstellung einer geeigneten Textur gelang es diese Plättchen in tangentialer Richtung anzuordnen, wodurch ihr Einfluß unwirksam wurde /5, 6/.

Bei Stählen können Korrosions- bzw. Spannungsrißkorrosionsprobleme bei Anwesenheit von Sauerstoff, freien Alkalien, Wasserstoff und Halogeniden auftreten. Diese Gefahren sind durch die Kontrolle der Reinheit des Kühlwassers leicht zu vermeiden /7/.

Die Verträglichkeit des Zircaloy-4 mit dem Brennstoff bereitet bei Betriebsbedingungen keine Schwierigkeiten. Bei höheren Abbränden können die Spaltprodukte Jod und Cäsium (bei Partialdrucken über  $10^{-4}$  MPa) zur Spannungsrißkorrosion führen /8/. Eine Verschlechterung der Verträglichkeit kann eventuell bei höheren Pu-Gehalten (über 20 %) eintreten, der experimentelle Nachweis dafür steht aber noch aus. Stahl verträgt sich mit dem Brennstoff bei Betriebsbedingungen sehr gut. Denn dabei bleibt die Temperatur unter 500 °C, die bekanntlich als untere Grenze für Flächenkorrosionsbildung und Korngrenzenangriff gilt. Der zu erwartende beschleunigende Einfluß des Abbrandes auf chemische Reaktionen zwischen Brennstoff und Hülle ist in den bis jetzt durchgeführten Experimenten nicht eindeutig nachgewiesen worden.

### 2.3 Mechanische Stabilität bei Betriebsbedingungen

Durch die Vielseitigkeit der Beanspruchungen einerseits und die Veränderungen der Materialeigenschaften während ihres Einsatzes durch Temperatur, Umgebungsmedien und Bestrahlung andererseits, wird diese Problematik sehr komplex. Aus der ganzen Reihe von Beanspruchungen, denen die Hülle im Reaktor ohne Beschädigung und Veränderung der Abmessungen Stand halten muß, sind im folgenden die Wesentlichsten dargestellt:

- Druckanstieg der Füll- und Spaltgase im Inneren des Brennstabes
- Außendruck des Kühlmittels
- Radiale Druckkräfte verursacht durch die thermische Ausdehnung des Brennstoffes
- Radiale Spannungen in der Rohrwandung durch Temperaturgradienten
- Axiale Dehnkräfte verursacht durch die Brennstoffdehnung und Reibungskräfte zwischen Hülle und Brennstoff
- Zyklische Belastungen durch Kühlmitteldruckschwankungen
- Zyklische Belastung durch den instationären Reaktorbetrieb (An- und Abfahren)
- Schädigung durch Neutronenbestrahlung
- Wandstärkenschwächender Abtrag der Hülle durch Reibung an den Abstandshaltern

Daraus ergeben sich die Forderungen für die mechanischen Eigenschaften:

- Genügend hohe Streckgrenze und Bruchfestigkeit bis zu Temperaturen von 350 °C
- Ausreichende Gleichmaßdehnung (ca. 10 %) und keine oder geringe Neigung zur Versprödung
- Niedrige minimale Kriechgeschwindigkeit (ca.  $10^{-7}$  /h<sup>-1</sup>/)
- Ausreichende Dauerwechselfestigkeit (ca. 2000 Zyklen mit einer Spannung in Höhe der Streckgrenze)
- Ausreichende Beständigkeit gegenüber Neutronenschädigung, d.h. geringe Duktilitätsabnahme und kleine Schwellraten (< 0,6 % Volumenzunahme)

### 2.3.1 Einfluß von Temperatur- und Neutronenbestrahlung auf Festigkeit und Duktilität

Bis 400 °C nehmen bei allen betrachteten Werkstoffen die Streckgrenze und die Zugfestigkeit im unbestrahlten Zustand nur geringfügig ab /9, 10/. Die Duktilität nimmt unter denselben Bedingungen bei Zircaloy zu /11, 12, 13/ und bei den Stählen aber von hohen Raumtemperaturwerten auf ca. 30 % ab /10/. Die Werte von Zircaloy für Streckgrenze und Zugfestigkeit nach einer Bestrahlung liegen bei Flüssen oberhalb  $1 \cdot 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 1 MeV) höher und die der Duktilität niedriger /14/. Für austenitische Stähle ist in Abbildung 3 die Streckgrenze bei  $400 \pm 30$  °C in Abhängigkeit des Neutronenflusses dargestellt. Das Bild zeigt, daß in diesem Temperaturbereich mit einer Sättigung der Bestrahlungsverfestigung erst bei Flüssen von fast  $10^{23}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 0,1 MeV) zu rechnen ist. Die Duktilität der austenitischen Stähle wird durch Bestrahlung stark abgesenkt, kann aber durch thermo-mechanische Vorbehandlungen oberhalb 10 % eingestellt werden /15/.

### 2.3.2 Kriecheigenschaften

Die oben genannten Belastungsarten führen auch schon bei Betriebsbedingungen zu Kriecherscheinungen, d.h. plastischen Deformationen, die als Zuwachs des Hüllrohrdurchmessers meßbar sind. Aufgrund der vorgegebenen Geometrie müssen die tolerierbaren plastischen Dehnungen ähnlich wie beim Schnellen Brüter auf 0,2 % festgelegt werden, d.h. die Kriechgeschwindigkeiten dürfen  $10^{-7}$  h<sup>-1</sup> nicht überschreiten. Diese optimalen Werte sind bei den Stählen durch thermomechanische Vorbehandlungen und bei beiden Materialgruppen durch Kompensation der Außendrucke mit dem Füllgasdruck erreichbar /16/.

### 2.3.3 Dauerwechselfestigkeit

Die Hülle ist besonders bei Leistungsänderungen geringfügigen plastischen Verformungen ausgesetzt. Diese können durch geometrische Änderungen des Pellets hervorgerufen werden und zu einem "Bambusrohr"-Aussehen der Hülle führen. Auch bei Abschaltungen sind Verformungen möglich, wobei die Hülle

auf das Pellet aufkriecht /17/. Nach einer größeren Anzahl von Leistungsänderungen kann das Hüllrohr ohne größere Dehnungen durch Ermüdung versagen. In Abbildung 4 sind für verschiedene Dehnungsamplituden die erreichbaren Lastspielzahlen an Zircaloy-2 aus out-of-pile Ermüdungsversuchen dargestellt /18/. Die Anwesenheit von Jod erniedrigt, wegen der Erzeugung von Spannungsrißkorrosion, die Ermüdungslebensdauer. Eine Bestrahlung hat bei 300 °C keinen Einfluß auf die Lebensdauer bei Ermüdungsbelastung /19/. Vergleichende Untersuchungen des Ermüdungsverhaltens zum Kriechverhalten bei Zircaloy-4 und Stahl (Typ 304, Werkstoff-Nr. 1.4948) ergaben bei Temperaturen zwischen 400 und 850 °C teilweise eine Verkürzung (AISI 304, 600 °C), als auch eine Verlängerung der Standzeit (Zry-4, 600 °C und AISI 304, 850 °C) /20/. Wie am Stahl AISI 348 gezeigt wird (Abbildung 5) erhöht sich durch Bestrahlung bei hohen Dehnungsamplituden die Anzahl der Bruchlastspielzahlen um eine Größenordnung. Eine Erklärung wird in der durch Bestrahlung verursachten Erhöhung der Streckgrenze angegeben. Dadurch wird das Rißwachstum verlangsamt und die Ermüdungslebensdauer vergrößert /21, 22/.

#### 2.4 Verhalten des Hüllmaterials beim Wiederaufarbeitungsprozeß

Ein Ziel des FDWR ist die Erzeugung von neuem, für den eigenen Betrieb benötigten Spaltstoff. Dazu müssen die eingesetzten Materialien einem Wiederaufarbeitungsprozeß unterworfen werden. In der weiterhin als führend angesehenen PUREX-Methode mit mechanischer Eingangsstufe (Chop and Leach Process) werden die Brennstäbe zerkleinert und aus den 5 cm langen Stücken der Brennstoff herausgelöst. Frühere Extraktionsschwierigkeiten hoch abgebrannter Brennstäbe (> 30.000 MWd/t) sind durch verfahrenstechnische Mittel soweit behoben, daß bei Zircaloy und den Austeniten keine Schwierigkeiten auftreten sollten /23,24/. Anders bei den Ferriten wo ein starker Angriff durch die Salpetersäure beobachtet wurde /25/.

#### 2.5 Herstellung und Kosten

Die reinen Materialkosten sind bei den austenitischen Stählen günstiger als bei Zircaloy. Wegen der engen Spezifikation für Hüllrohre und der Kosten der häufigen Qualitätskontrollen bei der Herstellung, können die

eigentlichen Materialkostenunterschiede aber fast vernachlässigt werden /26/. Bei komplizierter Rohrgeometrie (z.B. Rippenrohre) ergäben sich Kostenvorteile für die Stähle, weil hierbei nicht, wie beim Zircaloy, auf die Einstellung einer bestimmten, für die Anordnung der plattenförmigen Hydridausscheidungen günstigen Textur zu achten wäre.

### 3 Störfallbedingungen

Alle dem Genehmigungsverfahren von DWR's zugrunde liegenden Störfälle sollten auch beim FDWR angenommen werden. Die für Kühlmittelverluststörfälle des DWR zu erfüllenden Notkühlkriterien gelten sinngemäß /27/:

- Maximale Hüllrohrtemperatur von  $1200^{\circ}\text{C}$  darf nicht überschritten werden
- Oxidationstiefe der Hülle muß kleiner als 17 % der Wandstärke bleiben
- Bei Einsatz von Zircaloy-Hüllrohren darf nur 1 % des Zirkons mit Wasser reagieren
- Geometrieänderungen des Reaktorkernes müssen so klein gehalten werden, daß eine ausreichende Kühlung des Reaktorkerns gesichert ist

Aber auch bei speziellen Transienten, verursacht durch kleinere Rohrbrüche mit Ausfall zusätzlicher Sicherheitseinrichtungen ( $T > 1200^{\circ}\text{C}$ ), kommen zusätzliche Sicherheits Gesichtspunkte hinzu:

- Oxidationsbeständigkeit und geringe Wasserstoffproduktion
- Hoher Schmelzpunkt
- Kühlbare Geometrie der Bruchstücke bei schwerer Kernschädigung

Abbildung 6 zeigt, daß auch beim Kühlmittelverluststörfall (engl.: LOCA = Loss of Coolant Accident) eines FDWR mit Brennstabbelastungen zu rechnen ist, die zu plastischer Deformation von Hüllrohren führt. Die dargestellten Kurven für die maximale Hüllrohrtemperatur wurden unter Verwendung der für den DWR gültigen Wärmeübergangsbeziehungen, während der einzelnen Phasen des Kühlmittelverluststörfalles berechnet. Aufgrund des kleineren Verhältnisses von Abstand zu Durchmesser ( $p/d$ ) und des höheren Druckverlustes eines FDWR-Brennelementes, ist jedoch dessen thermohydraulisches Verhalten

beim Störfall unterschiedlich zum DWR. Die dargestellten Temperaturkurven sind als Arbeitshypothese zu betrachten. Eine relativ hohe Hüllrohrtemperatur von etwa  $1000^{\circ}\text{C}$  kann jedoch für hoch belastete Brennstäbe nicht ausgeschlossen werden /28,29/. Aus Rechnungen und Experimenten des Institutes für Reaktorbauelemente, KfK, die in Abbildung 7 dargestellt sind, zeigt sich für kleine p/d-Verhältnisse von 1,1 und 1,2 bereits bei Umfangsdehnungen von 10-20 % eine Kühlkanalversperrung von 70 %. Der Bereich, der aus REBEKA-Bündelversuchen /30/ ermittelten Umfangsdehnungen von DWR-Hüllen in der Ebene der maximalen Kühlkanalversperrungen liegt aber um ca. 30 %. Inwieweit schon dieses Kriterium eine Verwendung von Zircaloy als Hüllrohrmaterial ausschließt ist noch ungewiß. Dies ist aber ein Grund mehr, Stähle als mögliche Hüllrohrwerkstoffe in die Überlegungen und Untersuchungen mit einzubeziehen.

Aufgrund dieser Störfallbedingungen kann ein Parameterfeld festgelegt werden, in dem Literaturwerte gefunden werden sollten, bzw. eigene Messungen durchzuführen sind. Dabei ist nicht nur an das Anlegen einer Datenbasis gedacht, sondern auch an eine Modellierung des Werkstoffverhaltens der Stäbe mit bestehenden Modellen, wie die Lebensdauervoraussage mit der Summenregel der Lebensanteile /31, 32/ für transiente und nicht stationäre Belastungsbedingungen und die Bruchdehnungsvoraussage mit der modifizierten Monkman Grant-Beziehung für temperaturtransiente Berstversuche /33, 34/.

In Abbildung 8 sind schematisch gegen eine Temperaturachse die Hüllrohr-Arbeitstemperaturen von DWR und FDWR ( $350^{\circ}\text{C}$  für die Hüllrohr-Außentemperatur und  $430^{\circ}\text{C}$  für dessen Innentemperatur) und der Untersuchungsbereich ( $600^{\circ}\text{C}$  bis  $1200^{\circ}\text{C}$ ) für Kühlmittelverluststörfalluntersuchungen (LOCA) angegeben. In den Materialspalten sind bei Zircaloy-4 das Zweiphasengebiet ( $\alpha$ - $\beta$ ) von  $820^{\circ}\text{C}$  bis  $960^{\circ}\text{C}$  eingetragen, das den Übergang von der hexagonalen  $\alpha$ -Phase zu der kubisch raumzentrierten  $\beta$ -Phase kennzeichnet, die exotherme Zr-H<sub>2</sub>O-Reaktion bei  $1150^{\circ}\text{C}$  und die Schmelztemperatur bei ca.  $1870^{\circ}\text{C}$ . Die Austenite durchlaufen von Raumtemperatur bis zu ihrem, von der Legierungszusammensetzung abhängigen, Schmelzbereich von  $1320$  bis  $1440^{\circ}\text{C}$  keine Umwandlung. Sie neigen aber je nach Behandlungs- und Legierungszustand stark zur Ausscheidungsbildung. Die Ferrite durchlaufen bei  $740^{\circ}\text{C}$  die sogenannte Curie-Temperatur, bei der der ferromagnetische in den paramagnetischen Zustand

umwandelt. Oberhalb 825 °C ändert sich die Kristallstruktur von der kubisch raumzentrierten  $\alpha$ -Phase in die kubisch flächenzentrierte  $\gamma$ -Phase. Diese Umwandlung ist bei 905 °C abgeschlossen. Der Schmelzbereich für ferritisch, martensitische Stähle liegt zwischen 1405 und 1480 °C.

Im folgenden werden die physikalischen und die mechanischen Eigenschaften der drei Materialgruppen dargestellt und gewertet.

#### 4 Physikalische Eigenschaften

Es wird über elastomechanische und thermische Eigenschaften von Zircaloy-4, den austenitischen Stählen und den ferritisch-martensitischen Stählen im Temperaturbereich zwischen Raumtemperatur bis ca. 1000 °C, soweit diese verfügbar sind, berichtet.

##### 4.1 Elastizitätsmodul

Bei erhöhten Temperaturen wird der Elastizitätsmodul wegen des eingeschränkten elastischen Bereiches nicht mehr im Zugversuch, sondern mittels dynamischer Resonanzfrequenzverfahren ermittelt, wobei die Eigenfrequenz gemessen und mit der Masse und den Abmessungen der Probe unter Zugrundelegung der Gesetze für elastische Schwingungen, der Elastizitätsmodul berechnet werden kann. Die Temperaturabhängigkeit des Elastizitätsmoduls ist für die drei Werkstoffgruppen in Abbildung 9 dargestellt. Die Stähle liegen auf einem wesentlich höheren Niveau als das Zircaloy-4. Die Temperaturabhängigkeit im gemessenen Bereich läßt sich annähernd durch lineare Funktionen beschreiben. Lediglich bei den ferritischen Stählen ist oberhalb der Curie-Temperatur (ca. 740 °C) eine starke Abnahme zu beobachten. Im Übergangsbereich gilt daher keine lineare Temperaturabhängigkeit mehr /35, 36/.

##### 4.2 Linearer Wärmeausdehnungskoeffizient

Bei der Erwärmung dehnen sich metallische und keramische Körper im allgemeinen aus. Für diese Ausdehnung kann ein werkstoff- und temperaturabhängiger Wärmeausdehnungskoeffizient ermittelt werden. Diese Messungen werden im allgemeinen in Hochtemperaturdilatomern durchgeführt.

In Abbildung 10 ist die Temperaturabhängigkeit der linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten für austenitische Stähle, ferritische Stähle, die Brennstoffe  $\text{PuO}_2$  und  $\text{UO}_2$  und das Zircaloy-4 eingezeichnet. Dabei zeigt sich deutlich der Vorteil der Stähle, deren Ausdehnungskoeffizienten über denen der Brennstoffe liegen und daher eine Wechselwirkung mechanischer Art zwischen Brennstoffpellet und Hülle bis zu hohen Temperaturen vermieden werden kann. Dies ist beim Zircaloy über den ganzen Temperaturbereich nicht der Fall, sondern es wird im Zweiphasengebiet sogar noch ein Abfall der Werte beobachtet. Auch der ferritische Stahl zeigt oberhalb der Curie-Temperatur einen leichten Abfall, der aber lediglich zu einem leichten Festkörperdruck mit dem Brennstoff führen würde /35, 37, 38/.

#### 4.3 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit der Stähle wurde indirekt aus dem spezifischen elektrischen Widerstand berechnet, die des Zircaloy-4 über den Wärmestrom. Die Ergebnisse sind in Abbildung 11 wiedergegeben. Der ferritische Stahl weist eine fast von der Temperatur unabhängige Wärmeleitfähigkeit auf. Die austenitischen Stähle und das Zircaloy-4 hingegen zeigen einen stärkeren Anstieg. Aber oberhalb  $900^\circ\text{C}$  verhalten sich die drei Werkstoffgruppen nahezu gleich /38, 39, 40/.

#### 5 Mechanische Eigenschaften

Hier sollen hauptsächlich die Kurzzeiteigenschaften aus Zugversuchen, wie Streckgrenze, Zugfestigkeit, Gleichmaßdehnung und Bruchdehnung in Abhängigkeit von der Temperatur berichtet werden. Die Langzeiteigenschaften über Standzeit, minimale Kriechgeschwindigkeit und Bruchdehnung werden aus Kriech- und Berstversuchen zusammengestellt. Zuletzt werden die Einflüsse der Bestrahlung auf Festigkeit und Dehnung aufgezeigt. Alle dargestellten Kurven wurden aus gemittelten experimentellen Daten der Literatur gezeichnet.

## 5.1 Kurzzeiteigenschaften aus Zugversuchen

In einachsigen isothermen Zugversuchen wurde die Streckgrenze, die Zugfestigkeit, die Gleichmaßdehnung und die Bruchdehnung für die drei betrachteten Werkstoffgruppen ermittelt. Dabei lagen die Werkstoffe in folgenden Zuständen vor:

- Die Austenite 1.4970 im optimierten "Industriezustand" (d.h. lösungsgeglüht bei 1100 °C/30 min, 15 % kaltverformt, 800 °C/2 Std. angelassen und an Luft abgekühlt) /41/ und AISI 304 wie auch AISI 316 im lösungsgeglühten Zustand /42, 43, 44/.
- Der Ferrit 1.4914 im "Standardzustand" (Austenitisierung 1075 °C/30 min, Vakuum, Luftabkühlung und Vergütung 700 °C/2 Std., Vakuum, mit anschließender Luftabkühlung) /45, 46/.
- Das Zircaloy im spannungsfreigelegten Zustand (540 °C/1 Std., Vakuum) /47, 12/.

### 5.1.1 Streckgrenze

In Abbildung 12 sind die Streckgrenzen in Abhängigkeit von der Versuchstemperatur aufgetragen. In allen Fällen nehmen sie mit zunehmender Temperatur ab.

- Beim 1.4970 wird bis 700 °C nur eine geringe Abnahme der Streckgrenze von 500 auf 350 MPa beobachtet. Der bei 700 °C erfolgende Knick der Kurve zu niedrigeren Spannungswerten zeigt den Übergang vom transkristallinen zum interkristallinen Bruchverhalten an. Der noch steilere Streckgrenzenabfall oberhalb 900 °C läßt sich mit dem hier stattfindenden Rekristallisationsbeginn erklären. Die Austenite AISI 304 und 316 zeigen wegen des lösungsgeglühten Zustandes bei niedrigen Temperaturen bis 400 °C kleinere Streckgrenzenwerte (250 - 150 MPa), die sich erst bei höheren Temperaturen durch eine verstärkte Ausscheidungsbildung stabilisieren.
- Der 1.4914 erreicht in diesem Vergleich von RT bis 500 °C die höchsten Streckgrenzenwerte (600 - 400 MPa), fällt dann aber unter die des 1.4970 ab und bei ca. 700 °C auch unter die Werte der lösungsgeglühten Austenite.

- Das Zircaloy zeigt bis 600 °C einen schnellen Abfall der Streckgrenze auf ca. 50 MPa, von RT-Werten bei 450 MPa. Dieses niedrige Spannungsniveau (50 MPa) kann aber wegen des höheren Schmelzpunktes dann, im Gegensatz zu den Stählen, bei geringer Abnahme der Streckgrenze bis zu sehr hohen Temperaturen (1200 °C) gehalten werden.

### 5.1.2 Zugfestigkeit

In Abbildung 13 sind die Zugfestigkeiten gegen die Versuchstemperatur aufgetragen. Bis ca. 600 °C zeigen alle drei Werkstoffgruppen eine starke Verfestigung und daher gegenüber der Streckgrenze noch weiter erhöhte Zugfestigkeitswerte. Besonders die lösungsgeglühten Austenite AISI 304 und 316 erbringen durch ihr verbessertes Ausscheidungsverhalten in diesem Temperaturbereich einen Zuwachs an Festigkeit. Oberhalb 600 °C sind die Tendenzen ähnlich, wie bei der Streckgrenze beobachtet wurde.

### 5.1.3 Gleichmaßdehnung

Abbildung 14 stellt die Temperaturabhängigkeit der Gleichmaßdehnung des Austenits 1.4970 und des Ferrits 1.4914 dar. Der 1.4970 zeigt bis 700 °C nur eine geringe Abhängigkeit der Gleichmaßdehnung von der Temperatur. In diesem Bereich ist der transkristalline Bruch die Versagensursache. Die zwischen 800 und 900 °C beobachtete Duktilitätsabnahme hängt mit dem Übergang in den interkristallinen Bruchvorgang zusammen. Die Zunahme der Gleichmaßdehnung oberhalb 900 °C kennzeichnet den Beginn der Rekristallisation.

Der 1.4914 zeigt bis 600 °C einen Abfall der Gleichmaßdehnung auf ca. 1,3 %. Mit zunehmender Temperatur erfolgt dann wieder ein langsamer Anstieg. Daten für Zircaloy liegen nicht vor.

#### 5.1.4 Bruchdehnung

In Abbildung 15 ist die Temperaturabhängigkeit der Bruchdehnung dargestellt. Bis 400 °C zeigt der Ferrit 1.4914 und bis 600 °C der Austenit 1.4970 die angestrebten kleinen Bruchdehnungen zwischen 10 und 20 %. Die nur im lösungsgeglühten Zustand vorliegenden austenitischen Stähle AISI 304 und 316 liegen in diesem Temperaturbereich bei 40-50 % Bruchdehnung. Oberhalb 600 °C nehmen bei allen drei Werkstoffgruppen die Bruchdehnungen zu, wobei das Zircaloy-4 im Temperaturbereich oberhalb 800 °C superplastisches Verhalten zeigt /47/.

#### 5.1.5 Verformungsgeschwindigkeit

Mit zunehmender Verformungsgeschwindigkeit nimmt bei den Austeniten die Zugfestigkeit zu, weil die während des Zugversuches ablaufenden Erholungsvorgänge zeitabhängig sind. Die Streckgrenze ist in diesen kubisch-flächenzentrierten Legierungen kaum von der Verformungsgeschwindigkeit abhängig. Die Gleichmaßdehnung der Austenite nimmt ebenfalls mit ansteigender Verformungsgeschwindigkeit zu, während die Bruchdehnung abnimmt. Diese Beeinflussung wird mit zunehmender Temperatur von der damit verbundenen Festigkeitsabnahme bzw. Dehnungszunahme überlagert /41/.

Das Zircaloy-4 zeigt dagegen eine Zunahme der Streckgrenze bei ansteigender Verformungsgeschwindigkeit, aber auch eine Abnahme der Bruchdehnung für schnellere Geschwindigkeiten. Der Temperatureinfluß ist entsprechend /47/.

#### 5.2 Langzeiteigenschaften aus Kriechversuchen

In einachsigen isothermen Kriechversuchen und Rohrberstversuchen wurde die Standzeit und die minimale Kriechgeschwindigkeit für die drei betrachteten Werkstoffgruppen ermittelt. Dabei lagen die Werkstoffe in folgenden Zuständen vor:

- Die Austenite 1.4970 im optimierten "Industriezustand" (d.h. lösungsgeglüht bei 1100 °C/30 min, 15 % kaltverformt, 800 °C/2 Std. angelassen

- und an Luft abgekühlt) /48/ und AISI 316 im lösungsgeglühten Zustand /43/.
- Der Ferrit 1.4914 - bei den Prüftemperaturen 550 °C und 600 °C - liegt im Standardzustand vor (Austenitisierung 1075 °C/30 min, Vakuum, Luftabkühlung und Vergütung 700 °C/2 Std. Vakuum mit anschließender Luftabkühlung) /49/. Die Daten bei 650 bis 800 °C wurden im Anlieferungszustand (d.h. Vergütung auf ca. 850 bis 900 MPa Raumtemperaturzugfestigkeit) ermittelt /50/.
  - Das Zircaloy-4 im spannungsfreigelegühten Zustand (540 °C/1 Std. Vakuum) /51/.

### 5.2.1 Standzeit

Die Standzeit kennzeichnet das Versagen eines Werkstoffes bei vorgegebener konstanter Temperatur unter einer konstanten Last. Bei Auftragen der, aus den vorgegebenen Lasten berechneten Anfangsspannungen gegen die Zeit erhält man für die untersuchte Temperatur die Zeitstandlinie des Werkstoffes.

In einem Vergleich bei 650 °C sind diese Zeitstandlinien der betrachteten Werkstoffe in Abbildung 16 dargestellt. Die besten Zeitstandfestigkeiten zeigen dabei die austenitischen Stähle, worunter sich der 1.4970 als der Kriechfestere erweist /52/. Der Ferrit 1.4914 liegt bei gleicher Spannung in der Standzeit schon um eine Größenordnung tiefer /49/. Das Zircaloy-4 erträgt bei gleicher Standzeit nur Anfangsspannungen die eine Größenordnung kleiner sind als bei den Austeniten /51/.

Im einzelnen ergeben sich folgende Zeitstandfestigkeitsabhängigkeiten für die betrachteten Werkstoffe:

- Die Zeitstandfestigkeitswerte des Austenites 1.4970 sind in Abbildung 17 für einen Temperaturbereich von 600 °C bis 750 °C dargestellt. Erst oberhalb 700 °C erfolgt mit zunehmender Standzeit eine stärkere Abnahme der Zeitstandfestigkeit /48/. Der Austenit AISI 316 liegt wegen des lösungsgeglühten Einsatzzustandes in dem in Abbildung 18 dargestellten Temperaturbereich (600-900 °C) bei etwas kleineren Zeitstandfestigkeitswerten, hat aber schon bei tieferen Temperaturen (600 °C) mit zunehmender Standzeit eine Zeitstandfestigkeitsabnahme /43/.

- Der Ferrit 1.4914 ist in seinem Zeitstandverhalten in Abbildung 19 zwischen 500 und 800 °C dargestellt. Obwohl die Zeitstandkurven für 550 und 600 °C aus Daten anderer Vorbehandlungszustände /49/ erhalten wurden, ergibt sich doch ein geschlossenes Bild, daß auch beim Ferrit erst oberhalb 700 °C mit zunehmender Standzeit eine stärkere Abnahme der Zeitstandfestigkeit erfolgt /50/.
- Das Zircaloy-4 liegt mit seinen Zeitstandfestigkeitswerten bei niedrigen Anfangsspannungen und kleinen Standzeiten (Abbildung 20). Auch hier wird ein rascher Zeitstandfestigkeitsabfall schon ab 600 °C mit zunehmender Standzeit beobachtet /51/.

### 5.2.2 Minimale Kriechgeschwindigkeit

Durch kontinuierliche Erfassung der Kriechdehnung ist eine sichere Bestimmung der minimalen Kriechgeschwindigkeit  $\dot{\epsilon}_{\min}$  möglich. Die doppellogarithmische Auftragung dieser Größe gegen die Ausgangsspannung führt im allgemeinen zu Geraden, deren Steigung der Spannungsexponent  $n$  ist.

- In Abbildung 21 ist die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des Austenits 1.4970 für verschiedene Temperaturen dargestellt. Die, der Tabelle III, Spalte 1 zu entnehmenden extrem hohen  $n$ -Werte für Temperaturen  $< 700^{\circ}\text{C}$  sind für diesen Stahl nach mechanisch-thermischer Vorbehandlung charakteristisch. Die bei 750 °C verstärkt auftretende Entfestigung der Matrix bewirkt auch bei der minimalen Kriechgeschwindigkeit eine Zunahme /48/.
- Der im lösungsgeglühten Zustand vorliegende AISI 316 (Abbildung 22) zeigt keine derart starke Änderung des Spannungsexponenten  $n$ . Der  $n$ -Wert beträgt im Temperaturbereich von ca. 750 bis 900 °C ungefähr 6 /43/.
- In Abbildung 23 ist die minimale Kriechgeschwindigkeit des 1.4914 in Abhängigkeit von der Anfangsspannung für den Temperaturbereich 550 °C bis 800 °C aufgetragen. Dabei sind wieder notwendigerweise zwei Zustände zu vergleichen, nämlich bei den Temperaturen 550 und 600 °C, die Werte für den Vergütungszustand (1075 °C/1 h, Vakuum/Luft + 700 °C/2 h, Vakuum/Luft) /49/ und im Temperaturbereich 650 bis 800 °C die Werte des An-

lieferungszustandes /50/. Wie aus der Auflistung der Tabelle III, Spalte 2 für diesen Werkstoff ersichtlich, sind die n-Werte für 600 °C und 650 °C etwa gleich groß. Dieser Sachverhalt weist den Anlieferungszustand in dem Temperaturbereich unterhalb 650 °C als den Kriechfesteren aus.

- Die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des Zircaloy-4 ist in Abbildung 24 in einem Temperaturbereich von 600 bis 900 °C dargestellt. Die Spannungsexponenten dazu in Tabelle III, Spalte 3 zeigen oberhalb 800 °C höhere Werte, was im Hochtemperaturbereich auf eine bessere Kriechfestigkeit schließen läßt /53/.

### 5.2.3 Bruchdehnung

Durch kontinuierliche Dehnungsmessung konnte die Bruchdehnung in allen drei Werkstoffgruppen sehr genau bestimmt werden. Trotzdem weisen die Bruchdehnungswerte starke Streuungen auf. So daß in den Diagrammen, die die Bruchdehnungsverläufe darstellen, nur die Tendenzen aufgezeigt sind.

- Der Austenit 1.4970 zeigt in Abbildung 25 bei 600 °C mit zunehmender Standzeit eine Abnahme der Bruchdehnung. Bei 650 °C ist sie nach starkem Abfall oberhalb ca. 60 Stunden unabhängig von der Standzeit. Dagegen ergibt sich für 700 und 750 °C eine Bruchdehnungszunahme mit der Standzeit. Wie metallografische Nachuntersuchungen der verformten Meßlänge zeigen werden erst oberhalb 700 °C mit zunehmender Standzeit transkristalline Risse beobachtet, die auch teilweise durch Verschiebung von kantigen Primärkarbiden in der Matrix entstehen und zu einer Bruchdehnungserhöhung beitragen /48/.
- Der Ferrit 1.4914 (Abbildung 26) ist im Temperaturbereich 550 bis 650 °C mit zunehmender Standzeit einer geringfügigen Bruchdehnungsabnahme ausgesetzt. Bei 700 °C kehrt sich diese Tendenz leicht um. Die Temperaturen oberhalb 750 °C zeigen aber wieder eine Bruchdehnungsabnahme mit zunehmender Standzeit. Das Bruchdehnungsniveau liegt im Bereich kleiner Standzeiten bei den höheren Temperaturen etwa dreimal so hoch /49/.

- Das Zircaloy-4 liegt, wie dessen Bruchdehnungswerte in Abbildung 27 zeigen, im Temperaturbereich 600 bis 800 °C bei Bruchdehnungswerten zwischen 35 bis 60 % und diese sind hier standzeitunabhängig. Die um 900 °C auftretende superplastische Verformung, die auch stark geschwindigkeitsabhängig ist, zeigt mit zunehmender Standzeit einen starken Bruchdehnungsanstieg.

#### 5.2.4 Berstverhalten

Drei austenitische Stähle (1.4970, 1.4981, 1.4988) wurden in isothermen Hochtemperaturberstversuchen untersucht. In einem Temperaturbereich von 950 bis 1050 °C ist dabei die Standzeit und die Berstdehnung ermittelt worden. In den Abbildungen 28 bis 30 ist die Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit unter Innendruck für die austenitischen Stähle 1.4970 (Abbildung 28), 1.4981 (Abbildung 29) und 1.4988 (Abbildung 30) dargestellt. In allen drei Fällen hat eine Änderung in der Temperatur um 100 °C (950 bis 1050 °C) beim gleichen Innendruck eine Verkürzung der Standzeit um über eine Größenordnung zur Folge. Bis zu einem Innendruck von 60 bar zeigt der 1.4970 gegenüber den beiden anderen Stählen das bessere Zeitstandverhalten.

Die Bruchdehnung ist bei allen drei Stählen nicht systematisch von Temperatur oder Standzeit abhängig. Das höchste Umfangsdehnungsniveau mit 30 bis 70 % hat der 1.4970. Der 1.4988 erreicht Umfangsdehnungen von 20 bis 35 % und die kleinsten Werte ergeben sich beim 1.4981 mit 10 bis 25 % Umfangsdehnung.

Das Bruchaussehen wurde makroskopisch und mikroskopisch untersucht. In Abbildung 31 sind die zwei typischen Brucherscheinungen der Hochtemperaturversagensarten austenitischer Stähle dargestellt. Das Versagen durch Platzen (Abbildung 31a) auch mikroskopisch am Beispiel des 1.4970 Hüllrohres in Abbildung 32 dargestellt, findet meistens bei höheren Spannungen mit starker Kornverformung in den Berstlippen statt. Das Versagen durch die Ausbildung von interkristallinen Mikrorissen (Abbildung 31b) hängt hauptsächlich, wie am Beispiel eines 1.4988-Hüllrohres in Abbildung 33 mikroskopisch belegt wurde, mit dem Zusammenwachsen von interkristalliner Kavitation und Korngrenzenaufrissen zusammen /54, 55/.

### 5.3 Bestrahlungsverhalten

Wie sich aus zahlreichen in-pile Versuchen zur Untersuchung des Materialverhaltens von Zircaloy-Hüllrohren beim Kühlmittelverluststörfall ergeben hat, heilen etwaige im Betrieb aufgetretene Strahlenschäden bei der Temperaturexkursion des Störfalles wieder aus, und haben keinen merklichen Einfluß mehr /56, 57/. Anders bei den austenitischen und ferritischen Stählen, bei denen etwas ausführlicher auf das Bestrahlungsverhalten eingegangen werden soll.

#### 5.3.1 Mechanismen

Nach dem derzeitigen Kenntnisstand über das Verhalten von austenitischen Stählen unter Bestrahlung, beeinflussen Neutronen sowohl durch Stoßprozesse als auch durch Kernreaktion die mechanischen Eigenschaften /15, 58, 59/. Während jedoch die durch Stoßprozesse eingebrachten Gitterfehlordnungen oberhalb einer bestimmten Temperatur, durch Ausheilung ähnlich wie beim Zircaloy /60/, die mechanischen Eigenschaften nicht mehr beeinflussen, werden die durch Kernreaktionen erzeugten Gitterstörungen erst bei hohen Temperaturen wirksam. Die dadurch hervorgerufenen Änderungen bezeichnet man als Hochtemperaturversprödung. Durch überwiegend thermische Neutronen hervorgerufene thermische  $^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li}$ -Reaktionen des Bors zu Lithium und Helium führen zur Ausscheidung von kleinen Helium-gefüllten Gasblasen. Diese tragen zur Schwächung der Korngrenzen bei oder wirken keimbildend auf Karbidausscheidungen.

Bei den ferritisch martensitischen Stählen konnte eine solch ausgeprägte Gasblasenbildung und damit verbundene Hochtemperaturversprödung im  $\alpha$ -Phasen-gebiet nicht beobachtet werden /61, 62, 63/.

#### 5.3.2 Kurzzeiteigenschaften aus Zugversuchen

- Bei allen austenitischen Stählen wird eine ausgeprägte Hochtemperaturversprödung festgestellt. Wie in Abbildung 34 für den 1.4988 dargestellt ist, bewirkt die Bestrahlung bei einer Prüftemperatur unterhalb von  $600^\circ\text{C}$  einen Anstieg der Streckgrenze, die auf eine Verfestigung, ver-

ursacht durch Bildung von Defektagglomeraten, Poren und Versetzungsringen, zurückzuführen ist. Andererseits wird dadurch auch eine Erniedrigung der Gesamtdehnung bewirkt (Abbildung 35). Während die Erhöhung von Streckgrenze und Zugfestigkeit (unterhalb 700 °C) im allgemeinen als vorteilhaft zu bewerten ist, kann eine Herabsetzung der Gesamtdehnung auf sehr niedrige Werte besonders beim instationären Betrieb zu Schwierigkeiten führen. Für den Kühlmittelverluststörfall dagegen wäre eine solche kleine Versagensdehnung von Vorteil.

In Abbildung 35 ist die Gesamtdehnung in Abhängigkeit von der Temperatur auch für den Ferrit 1.4914 dargestellt. Dieser zeigt auch nach Bestrahlung bis zur  $\alpha$ - $\gamma$ -Umwandlung bei 825 °C, also im Bereich der kubisch-raumzentrischen Gitterstruktur ein wesentlich günstigeres Dehnungsverhalten. Erst oberhalb 825 °C im Bereich der kubisch flächenzentrierten  $\gamma$ -Phase verhält sich auch dieser Werkstoff unter Bestrahlung wie ein Austenit, indem eine drastische Abnahme der Gesamtdehnung die Folge ist. Somit wird die Hochtemperaturversprödung in erster Linie mit dem Vorliegen einer kubisch-flächenzentrierten Matrix in Verbindung gebracht. Und erst in zweiter Linie vermutet, daß mit der zunehmenden Auflösung von Karbidteilchen bei Überschreiten der Umwandlung und dem damit verbundenen Übergang zu einem weitgehend homogenen Gefüge dies zum Einsetzen der Versprödung führt /15, 63, 64/.

- Ein Vergleich zwischen AISI 304 und Zircaloy ist mit deren Kurzeit-eigenschaften (Streckgrenze (Abbildung 36), Zugfestigkeit (Abbildung 37) und Bruchdehnung (Abbildung 38)) in Abhängigkeit von der Neutronendosis im Temperaturbereich von 300 °C vorgenommen worden /65, 66/.

Die Streckgrenze (Abbildung 36) des kaltverformten AISI 304 nimmt mit zunehmender Neutronendosis bis  $1,4 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> (E > 1 MeV) stark zu (bis 750 MPa), wohingegen das Zircaloy bei etwas höherer Dosis und Prüftemperatur eine Streckgrenze um 400 MPa erreicht. Das Verhalten der Zugfestigkeitswerte (Abbildung 37) ist ähnlich, nur daß es beim kaltverformten AISI 304 nicht zu einer so ausgeprägten Verfestigung während der Verformung führt.

Die in Abbildung 38 dargestellte Neutronendosisabhängigkeit der Bruchdehnung zeigt, daß in dem betrachteten Temperaturbereich der kaltver-

formte Zustand des AISI 304 und das Zircaloy weitgehend unabhängig von der Bestrahlung sind. Hingegen führt eine Dosiszunahme im lösungsgelühten AISI 304 zu einer starken Versprödung. Dieser Effekt wird als Tieftemperaturversprödung beschrieben /44, 59, 68/.

- Am Ferrit 1.4914 wurden im bestrahlten und unbestrahlten Zustand die Streckgrenze (Abbildung 39), die Zugfestigkeit (Abbildung 40) und die Gesamtdehnung (Abbildung 41) für höhere Temperaturen ermittelt /67/. Dabei zeigt sich bis ca. 780 °C (Prüftemperatur) bei der Streckgrenze und bei der Zugfestigkeit eine durch Bestrahlung bewirkte Verfestigung. In dem betrachteten Werkstoffzustand: 1080 °C/1 h, Wasserabkühlung (Austenitisierung) und 700 °C/20 h, Luftabkühlung (Vergütung) führt auch hier die Bestrahlung ähnlich wie bei den Austeniten zu einer Bildung von Poren und Versetzungsringen, nur können diese Effekte durch den anderen Verformungsmechanismus, der in der kubisch-raumzentrierten  $\alpha$ -Phase unterhalb 825 °C wirksam ist, nicht so stark in Erscheinung treten. Bei der Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung (Abbildung 41) ist hier gegenüber dem anderen Ausgangszustand der Abbildung 35 eine geringfügig stärkere Versprödung, d.h. Dehnungsreduktion des bestrahlten Zustandes zu beobachten.

### 5.3.3 Langzeitverhalten aus Kriechversuchen

- In Abbildung 42 ist die Zeitstandfestigkeit des Austenits 1.4970 bei 650 °C und 700 °C im bestrahlten und unbestrahlten Zustand dargestellt. Der Werkstoff liegt im "Industriezustand" vor und war folgenden Bestrahlungsbedingungen ausgesetzt: Bestrahlungstemperatur:  $T_B = 600$  °C, Neutronendosis:  $6 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 0,1$  MeV). Der unbestrahlte Zustand hat bei beiden Temperaturen die bessere Zeitstandfestigkeit. Wobei das Abknicken der Zeitstandlinien zumindest bei 700 °C eher auf einen Atmosphäreinfluß der Luft zurückzuführen ist, wie Referenzversuche oberhalb  $10^3$  Stunden in Vakuum ergeben haben /70, 71/.

Aus demselben Datensatz wurde auch die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit bestimmt (Abbildung 43). Im unbestrahlten Zustand wird bei 650 und 700 °C mit zunehmender Prüfspannung jeweils eine kontinuierliche Zunahme der Kriechgeschwindigkeit beobachtet.

Im bestrahlten Zustand liegt die minimale Kriechgeschwindigkeit bei 700 °C oberhalb 180 MPa und bei 650 °C oberhalb 260 MPa ähnlich wie im unbestrahlten Zustand. Unterhalb der angegebenen Spannungen aber zeigen die bestrahlten Proben eine deutliche Erhöhung der Kriechgeschwindigkeit im Vergleich zu den unbestrahlten Proben.

Wie schon bei den Kurzzeiteigenschaften festgestellt, äußert sich die Hochtemperaturversprödung in der Bruchdehnung am gravierendsten. Dies ist auch, wie in der Abbildung 44 dargestellt, für die Kriechbruchdehnung gültig. Bei 650 °C ist die Bruchdehnung durch die Neutronenbestrahlung deutlich reduziert und die Versprödung wird mit zunehmender Standzeit immer größer. Bei 700 °C dagegen ist der Versprödungsanteil schon bei kleineren Standzeiten erheblich und bleibt mit zunehmender Standzeit nahezu konstant. Die bei diesen Bestrahlungsbedingungen erzeugte Heliummenge betrug 90 Atppm. Mit zunehmendem Heliumgehalt wird auch bei 700 °C eine drastische Zunahme der Versprödung mit steigender Standzeit beobachtet /71/.

- Der Ferrit 1.4914 wurde im unbestrahlten und bestrahlten Zustand in Zeitstandversuchen geprüft. Die Bestrahlungsbedingungen waren:  $T_B = 600$  °C, Neutronendosis  $1,05 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 0,1$  MeV). Das Material lag für die bestrahlten Zustände in der thermischen Vorbehandlung: 1060 °C/30 min, Öl + 600 °C/2 h, Luft vor /71/. Für die Prüfung der unbestrahlten Proben ist ein direkter Vergleich nur bei der Prüftemperatur 600 °C möglich, weil diese im gleichen Ausgangszustand vorlagen. Die unbestrahlten Proben bei den Prüftemperaturen von 650 und 700 °C hatten folgende thermische Vorbehandlung: 1080 °C/1 h, Wasser + 700 °C/20 h, Luft /50/. Diese Vergütung führt zu verringerter Festigkeit und vermehrter Duktilität.

Daher wird der Vergleich der Zeitstandfestigkeit des unbestrahlten und des bestrahlten Zustandes in Abbildung 45 nur bei 600 °C Prüftemperatur direkt zu führen sein. Hierbei zeigt sich, daß die Bestrahlung eine Abnahme der Zeitstandfestigkeit zur Folge hat, die sich bei längeren Standzeiten ( $> 5 \times 10^3$  h) wieder ausgleicht. Bei 650 und 700 °C Prüftemperatur haben die bestrahlten Zustände aus den oben erwähnten Gründen die bessere Zeitstandfestigkeit. Daraus wird deutlich, daß der thermische Vorbehandlungszustand beim 1.4914 einen stärkeren Einfluß auf die Zeitstandfestigkeit hat, als die Bestrahlung /71, 72/.

Die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des 1.4914 mit und ohne Bestrahlung ist in Abbildung 46 dargestellt. Bei einer Prüftemperatur von 600 °C erkennt man, daß die Kriechgeschwindigkeit nach Neutronenbestrahlung nur bei relativ hoher Prüfspannung (oberhalb 200 MPa) erhöht wird. Ferner wird deutlich, daß bei 650 und 700 °C der Einfluß der Wärmebehandlung auf die Kriechgeschwindigkeit erhalten bleibt und die Bestrahlungseinflüsse überwiegen. Außerdem hängt die Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit auch wesentlich von der Prüftemperatur ab.

In Abbildung 47 ist die Bruchdehnung des 1.4914 gegen die Standzeit vor und nach Neutronenbestrahlung aufgetragen. Ein gewisser Duktilitätsverlust ist auch hier zu beobachten. Dabei fällt jedoch die Bruchdehnung des bestrahlten Zustandes bei 650 °C Prüftemperatur nicht unter 5 % (bei 10<sup>4</sup> h) ab, wie dies bei den Austeniten schon ab 100 h (Abbildung 44) beobachtet wird.

## 6 Zusammenfassung

Nach einer vergleichenden Betrachtung für Betriebsbedingungen der in Frage kommenden Hüllmaterialalternativen: Austenit 1.4970 und Ferrit 1.4914, zum Zircaloy-4 konnten:

- Neutronenökonomische Bedenken ausgeräumt werden
- Chemische Verträglichkeit mit Kühlmittel und Brennstoff als gleich gut erachtet werden
- Mechanische Stabilität bei Betriebsbedingungen als überlegen angesehen werden
- Bestrahlungseinflüsse hinsichtlich Schwellen nach langer Einsatzzeit selbst bei den Austeniten, als unter der Inkubationsdosis liegend, angesehen werden.
- Bei den Herstellungskosten keine gravierenden Unterschiede gefunden und im Wiederaufarbeitungsprozeß nur der Ferrit als kritisch eingestuft werden.

Beim Vergleich der physikalischen Eigenschaften bei hohen Temperaturen können Vorteile für die Stahlwerkstoffe gefunden werden.

Bei den mechanischen Kurzzeiteigenschaften ergeben sich für den optimierten thermomechanischen Vorbehandlungszustand des 1.4970 und den thermischen Vorbehandlungszustand des 1.4914 höhere Festigkeiten bei geringeren Bruchdehnungen als beim Zircaloy-4. Erst oberhalb 800 °C zeigt das Zircaloy bessere Festigkeitseigenschaften als die Stähle, aufgrund seines höheren Schmelzpunktes.

Ebenso ergaben sich bei den Langzeiteigenschaften für die Stähle höhere Zeitstandfestigkeiten, kleinere Kriechgeschwindigkeiten und zumindest für den 1.4970 kleinere Bruchdehnungen als für das Zircaloy.

Eine Bestrahlung führt im Austenit nur bei SBR-typischer Dosis zum Schwellen des Hüllrohres, das aber durch Erhöhung der Kaltverformung minimiert werden kann. Die Hochtemperaturversprödung nach Neutronenbestrahlung ist bei den Austeniten sehr und bei dem Ferrit 1.4914 nicht so ausgeprägt. Die damit verbundenen kleinen Versagensdehnungen sind für das Störfallverhalten von Vorteil.

Für Sicherheitsanalysen reicht das vorliegende Datenmaterial nicht aus. Denn bei isothermer Versuchsführung ist oberhalb 900 °C nur eine sehr lückenhafte Kenntnis des Materialverhaltens vorhanden. Temperaturtransiente Versuchsergebnisse fehlen bei den Stählen völlig. Hierauf sollten sich anstehende Untersuchungen zum Sicherheitsverhalten der FDWR-Hüllrohre im verstärkten Maße konzentrieren.

7 Literatur

- /1/ R. Pejsa  
unveröffentlichter Bericht (1980)
- /2/ C. Broeders, M. Dalle Donne, F. Erbacher, B. Kuczera, H. Küsters,  
S. Leistikow, P. Rau  
unveröffentlichter Bericht (1981)
- /3/ A.D. Amaev, et al.  
Corrosion Behaviour of Zirconium Alloys in Boiling Water under  
Irradiation  
A/Conf 49/P/428, USSR, June 1971
- 
- /4/ S. Kass  
Corrosion of LWBR Zircaloy End Cap Weldments  
WAPD-TM-972, Februar 1973
- /5/ G. Östberg  
On the Relationship Between Texture and Hydride Orientation in  
Zirconium  
J. Nucl. Mat. 40 (1971) 53
- /6/ C.E. Coleman, J.F.R. Ambler  
Susceptibility of Zirconium Alloys to delayed Hydrogen Cracking  
AED-Conf-76-322-011 (1976)
- /7/ J.B. Roll  
Westinghouse Nuclear Fuel Operating Experience in 1974  
Proc. of the Electric utility engineering Conf. Pittsburgh, March 1974, Vol. II
- /8/ P. Hofmann, C. Politis  
The Kinetics of the Uranium Dioxide-Zircaloy-Reactions at high  
Temperatures  
J. Nucl. Mat. 87 (1979) 375
- /9/ G. Dressler, K.H. Matucha  
Yield and Fracture of Biaxially Stressed Zircaloy-4 Cladding  
Tubes at Room Temperature and at 400 °C  
AED-Conf-76-322-012

- /10/ G. Ganguly, P.R. Roy  
A Comparative Study of Zircaloy and Stainless Steel as Cladding  
Material for Pressurized Water Reactor  
Report Nr. B.A.R.C.-914 (1977)
- /11/ D.O. Pickman  
Properties of Zircaloy Cladding  
Nucl. Eng. and Design 21 (1972) 212
- /12/ C. Petersen  
Literaturübersicht über einige Eigenschaften von Zircaloy-4  
bei höheren Temperaturen  
KfK-Ext. 6/73-6 (1974)
- /13/ M. Boček, C. Petersen  
Stand der Materialuntersuchungen zum Brennstabverhalten beim LWR-  
Kühlmittelverluststörfall  
Fachtagung der Fachgruppe "Brennelemente" der KTG Erlangen, KWU,  
14. November 1975
- /14/ C.J. Barock  
Effect of Irradiation at 130, 650 and 775 °F on Tensile Properties  
of Zircaloy-4 at 70, 650 and 775 °F  
ASTM-STP 570 (1975) 129
- /15/ H. Böhm  
Bedeutung des Bestrahlungsverhaltens für die Auswahl und Entwicklung  
warmfester Legierungen im Reaktorbau  
Arch. Eisenhüttenwes., 45 (1974) 821
- /16/ M. Schirra, B. Seith  
unveröffentlichter Bericht (1980)
- /17/ S. Ans  
Mechanical interaction between Fuel and Cladding  
Nucl. Eng. and Design 21 (1972) 237
- /18/ R.R. Hosbens  
Low Cycle Fatigue Behaviour of Zircaloy at 573 K  
ASTM-STP 520 (1972) 473

- /19/ K. Defferson  
Low Cycle Fatigue Properties of Zr-2  
J. Nucl. Mat. 56 (1975) 100
- /20/ A. Armas, I. Armas, M. Boček, C. Petersen  
Das Versagensverhalten von Zircaloy-4 und des Stahles X6CrNi1811  
(1.4948) bei niederfrequenter Wechselbeanspruchung im Bereich  
höherer Temperaturen  
Hauptversammlung der DGM 24.-27.05.83, Erlangen
- /21/ H.H. Smith  
Fatigue Behaviour of Irradiated Thin Section Type 348 SS at 288 °C  
ASTM-STP 529 (1972) 451
- 
- /22/ W. Scheibe, R. Schmitt et al.  
Zyklisches Verfestigungsverhalten des SNR-Strukturwerkstoffes  
X6CrNi1811 (1.4948)  
KfK-Bericht 2872 (1979)
- /23/ P. Quaaßdorf  
Der nukleare Brennstoffkreislauf  
Energie und Technik, 26 (1974) 228
- /24/ F. Baumgärtner  
Der Entwicklungsgang zum heutigen Stand der Wiederaufarbeitungstechnik  
Kerntechnik 20 (1978) 74
- /25/ K. Anderko, K. Ehrlich  
Bericht über "Topical Conference on Ferritic Alloys for Use in Nuclear  
Energy Technologies"  
KfK-Nachrichten 3 (1983) (im Druck)
- /26/ L. Goldstein, L. Joseph  
Economic Comparison of Stainless Steel VS. Zircaloy Clad for a PWR  
in Report: EPRI NP-2642 (1982) Section 6
- /27/ RSK-Leitlinien für Druckwasserreaktoren  
2. Ausgabe, 24. Januar 1979

- /28/ P. Rau, et al.  
Ergebnisse der Vorstudie für einen Leichtwasserreaktor mit  
besserer Uranausnutzung  
Berichtsband: Jahrestagung Kerntechnik 80 (1980) 957
- /29/ W. Zeggel, N. Neelen, K.-L. Nissen  
Thermohydraulische und konstruktive Randbedingungen eines Fortgeschrit-  
tenen Druckwasserreaktors (FDWR)  
Berichtsband: Jahrestagung Kerntechnik 80 (1980) 601
- /30/ K. Wiehr et al.  
Untersuchungen zur Wechselwirkung zwischen aufblähenden Zircaloy-  
Hüllen und einsetzender Kernnotkühlung (REBEKA-Programm)  
PNS-Jahresbericht 1980, KfK 2950 (1981) 155
- /31/ M. Boček  
Creep Rupture at Monotonous Stress and Temperatur Ramp Loading,  
I. Calculations  
J. Nucl. Mat. 82 (1979) 329
- /32/ M. Boček  
Creep Rupture at Monotonous Stress and Temperatur Ramp Loading,  
II. Application to Zircaloy  
J. Nucl. Mat. 82 (1979) 339
- /33/ M. Boček  
Lifetime and Failure Strain Prediction for Material Subjected to Non-  
Stationary Tensile Loading-Conditions; Application to Zircaloy-4  
ASTM STP 754 (1982) 329
- /34/ M. Boček, C. Petersen, L. Schmidt  
The Lifetime and Failure Strain Prediction of Zircaloy-4 Cladding  
Loaded under LOCA-Similar Temperature Ramp Conditions  
Nuclear Technology (im Druck, voraussichtlich August 1983)
- /35/ K. Fink, F. Richter, U. Lotter, K. Schrecke  
Physikalische Eigenschaften von Stählen insbesondere von warm-  
festen Stählen  
Thyssenforschung 2 (1970) 65

- /36/ J.E. Rosinger, I.G. Ritchie, A.J. Shillinglaw  
Young's Modulus of Crystal bar Zirconium and Zirconium Alloys  
(Zircaloy-2, Zircaloy-4, Zirconium -2.5 wt% Niobium) to 1000 K  
Report: AECL-5231 (1975)
- /37/ N.H. Brett  
The Thermal Expansion of  $\text{PuO}_2$  and Some Other Actinide Oxides  
Between Room Temperature and 1000 °C  
Proc. of the 2<sup>nd</sup> Intern. Plutonium Conf., Grenoble, 19-22.04.60, 397
- /38/ D.B. Scott  
Physical and Mechanical Properties of Zircaloy-2 and -4  
Report: WCAP-3269-41 (1965)
- /39/ F. Richter  
Die wichtigsten physikalischen Eigenschaften von 52 Eisenwerkstoffen  
Stahleisen-Sonderberichte, H.8 (1973)
- /40/ R. Pich  
Betrachtung über Werkstoffkennwerte, die bei der Berechnung von  
Wärmespannungen benötigt werden  
VGB Kraftwerkstechnik, 61 (1981) 593
- /41/ L. Schäfer, P. Hofmann  
Tensile Properties of 1.4970 Austenitic Stainless Steel After  
Corrosion Caused by Uranium Dioxide and Simulated Fission Products  
J. Nucl. Mat. 115 (1983) 169
- /42/ C.R. Brinkman, V.K. Sikka, R.T. King  
Mechanical Properties of Liquid-Metal Fast Breeder Reactor Primary  
Piping Materials  
Nucl. Technology 33 (1977) 76
- /43/ J.G. Conner et al.  
A Compendium of Properties and Characteristics for Selected LMFBR  
Cladding Materials  
Report: BMI-1900 (1968) Sec. II

- /44/ A. Strasser et al.  
An Evaluation of Stainless Steel Cladding for Use in Current  
Design LWR's  
Report: EPRI NP-2642 (1982)
- /45/ H. Wisniowski  
Hochwarmfeste 12 %-Chromstähle  
DEW-Technische Berichte 9 (1969) 117
- /46/ K. Anderko, K. David, W. Ohly, M. Schirra, C. Wassilew  
Optimization Work on Niobium Stabilized 12 % Cr Martensitic Steels  
for Breeder and Fusion Reactor Applications  
Tagungsbericht von "Topical Conference on Ferritic Alloys for use  
in Nuclear Energy Technologies", Snowbird, Utah, 19-23 June, 1983
- /47/ M. Boček, F. Faisst, C. Petersen  
Examination of the Plastic Properties of Zircaloy-4 at elevated  
Temperatures in Air Atmosphere  
J. Nucl. Mat. 62 (1976) 26
- /48/ M. Schirra, B. Seith  
unveröffentlichter Bericht (1976)
- /49/ M. Schirra, B. Seith  
unveröffentlichter Bericht (1983)
- /50/ M. Schirra  
unveröffentlichter Bericht (1968)
- /51/ M. Boček, C. Petersen, H. Schneider, W. Schweiger, B. Seith, K. Dindorf  
Untersuchungen zum mechanischen Verhalten von Zircaloy-Hüllrohr-  
material  
PNS-Halbjahresbericht 1977/1  
KfK-Bericht 2500 (1977) 270
- /52/ H. Böhm  
Hüllwerkstoffe für schnelle Brutreaktoren  
KfK-Bericht 985 (1969) 183

- /53/ H. Schneider, persönliche Mitteilung
- /54/ W. van Witzenburg, H. Kwast  
Stress-Rupture Tests on Fast-Breeder Fuel Cladding Tubes at  
Temperatures near 1000 °C  
RCN-Report Nr. 193 (1973)
- /55/ O.D. Sherby  
Factors affecting the high-Temperature Strength of Polycrystalline  
Solids  
Acta Met. 10 (1962) 135
- /56/ E.H. Karb, L. Sepold, P. Hofmann, C. Petersen, G. Schanz, H. Zimmermann  
LWR Fuel Rod Behaviour During Reactor Tests under Loss-of-Coolant  
Conditions: Results of the FR2 in-pile Tests  
J. Nucl. Mat. 107 (1982) 55
- /57/ C.A. Mann, E.D. Hindle, P.D. Parsons  
The Deformation of PWR Fuel in a LOCA  
UKAEA-Report ND-R-701(S) (1982) 19
- /58/ K. Ehrlich  
Irradiation Creep and Interrelation with Swelling in Austenitic  
Stainless Steels  
J. Nucl. Mat. 100 (1981) 149
- /59/ H. Böhm, W. Dienst, H. Hauck, H.J. Laue  
Änderung der mechanischen Eigenschaften von Chrom-Nickel-Stählen  
und Nickellegierungen durch Neutronenbestrahlung  
J. Nucl. Mat. 18 (1966) 337
- /60/ C.C. Dollins  
In-pile Dimensional Changes in Neutron Irradiated Zirconium  
Base Alloys  
J. Nucl. Mat. 59 (1975) 61
- /61/ E.A. Little  
Void-Swelling in Irons and Ferritic Steels: I. Mechanisms of  
Swelling Suppression  
J. Nucl. Mat. 87 (1979) 11

- /62/ E.A. Little, D.A. Stow  
Void-Swelling in Irons and Ferritic Steels: II. An experimental  
Survey of Materials Irradiated in a Fast Reactor  
J. Nucl. Mat. 87 (1979) 25
- /63/ H. Böhm, H. Hauck  
Einfluß einer Phasenumwandlung auf das Auftreten der Hochtemperatur-  
versprödung nach Neutronenbestrahlung  
J. Nucl. Mat. 21 (1967) 112
- /64/ H. van den Boorn  
Bestrahlungsversuche an Hüllmaterialien und ihre Auswertung  
KfK-Bericht 700 oder EUR 3713d (1967) X-1
- /65/ J.E. Irvin  
The Combined Effects of Temperature and Irradiation on the  
Mechanical Properties of Austenitic Stainless Steel  
BNWL-(T/D-4500) (1975)
- /66/ J.B. Melehan  
Yankee Core Evaluation Program, Final Report  
WCAP-3017-6094 (1971)
- /67/ C. Wassilew  
unveröffentlichter Bericht (1975)
- /68/ J.R. Matthews  
Deformation and Rupture Processes in Fuel Cladding under Steady  
State and Transient Reactor Conditions  
Tagungsbericht der "Intern. Conf. on Irradiation Behaviour of  
Metallic Materials for Fast Reactor Core Components, Ajaccio,  
France, Eds. J. Poirier and J.M. Dupouy (1979) 274
- /69/ K. Anderko, C. Wassilew  
Einfluß von Neutronenbestrahlung auf das Kriechverhalten des ver-  
güteten 12 % Chrom-Stahles 1.4914  
Berichtsband: Jahrestagung Kerntechnik 80 (1980) 535

/70/ H. Trinkaus, H. Ullmaier

A Model for the High-Temperature Embrittlement of Metals Containing Helium

Phil. Mag. A 39 (1979) 563

/71/ C. Wassilew, K. Ehrlich, K. Anderko

Post-Irradiation Creep Rupture Properties of the 12 % Chromium Martensitic Steels 1.4914 and 1.4923

Berichtsband der Konferenz "Dimensional Stability and Mechanical Behaviour of Irradiated Metals and Alloys", British Nuclear Energy Society, 1 (1983) 161

/72/ C. Wassilew, K. Herschbach, E. Materna-Morris, K. Ehrlich

Irradiation Behaviour of 12 % Cr. Martensitic Steels

Tagungsbericht von "Topical Conference on Ferritic Alloys for use in Nuclear Energy Technology "Snowbird, Utah, 19-23 June, 1983

8 Tabellen

Tabelle I: Mögliche Hüllrohrwerkstoffe

1) Austenitische Stähle

Werkstoff-Nr. 1.4550  $\cong$  AISI 347  
Werkstoff-Nr. 1.4878  $\cong$  AISI 348  
Werkstoff-Nr. 1.4919  $\cong$  AISI 316H  
Werkstoff-Nr. 1.4948  $\cong$  AISI 304H  
Werkstoff-Nr. 1.4961  
Werkstoff-Nr. 1.4970  
Werkstoff-Nr. 1.4981  
Werkstoff-Nr. 1.4988

2) Ferritisch martensitische Stähle

Werkstoff-Nr. 1.4913  
Werkstoff-Nr. 1.4914  
Werkstoff-Nr. 1.4923

3) Zirkonlegierungen

Zircaloy-2  
Zircaloy-4

Tabelle II: Chemische Zusammensetzung von möglichen Hüllrohrwerkstoffen in Gew.%

Stähle, Fe-Basis

Werkstoff	W.-Nr.	AISI	C	Si	Mn	P <	S <	Cr	Mo	Ni	Cu <	Nb >	Ti >	Sonstige
X10CrNiNb189	1.4550	347	<0,08	<1,0	<2,0	-	-	17,0-19,0	-	9,0-13,0	-	-	-	Nb+Ta>10xC
X12CrNiTi189	1.4878	348	<0,08	<1,0	<2,0	-	-	17,0-19,0	-	9,0-13,0	-	-	-	Nb+Ta>10xC, Ta<0,1
X19CrMoVNbN111	1.4913	-	<0,22	<0,6	1,25	0,03	0,03	10,5-12,5	0,3-1,0	<1,0	-	0,3	-	NO,07, VO,1-0,4
X18CrMoVNb121	1.4914	-	<0,22	<0,6	1,25	0,03	0,03	10,5-12,5	0,3-1,0	<1,0	0,3	0,1	-	VO,1-0,4
C6CrNiMo1713	1.4919	316H	0,04-0,08	<0,75	<2,0	0,045	0,03	16,0-18,0	2,0-2,5	12,0-14,0	-	-	-	-
X22CrMoV121	1.4923	-	0,2-0,26	0,1-0,5	0,3-0,8	0,035	0,035	11,0-12,5	0,8-1,2	0,3-0,8	-	-	-	VO,25-0,35
X6CrNi1811	1.4948	304H	0,04-0,08	<0,75	<2,0	0,045	0,03	17,0-19,0	-	10,0-12,0	-	-	-	-
X8CrNiNb1613	1.4961	-	0,04-0,1	0,3-0,6	<1,5	0,045	0,03	15,0-17,0	-	12,0-14,0	-	10xC	-	Nb<1,2
X10NiCrMoTiB1515	1.4970	-	0,08-0,12	0,25-0,45	1,6-2,0	0,03	0,015	14,5-15,5	1,05-1,2	15,0-16,0	-	-	0,35	BO,003-0,006
X8CrNiMoNb1616	1.4981	-	0,04-0,1	0,3-0,6	<1,5	0,045	0,03	15,5-17,5	1,6-2,0	15,5-17,5	-	10xC	-	Nb<1,2
X8CrNiMoVNb1613	1.4988	-	0,04-0,1	0,3-0,6	<1,5	0,045	0,03	15,5-17,5	1,1-1,5	12,5-14,5	-	10xC	-	Nb+Ta<1,2; V<0,85+N

Zirkonlegierungen, Zr-Basis

Werkstoff	Sn	Fe	Cr	Ni	C	Al	N <sub>2</sub>
Zircaloy-2	1,2-1,7	0,07-0,2	0,05-0,15	0,03-0,08	0,027	0,0075	0,008
Zircaloy-4	1,2-1,7	0,18-0,24	0,05-0,15	0,007	0,027	0,0075	0,008

Tabelle III: Temperaturabhängigkeit des Spannungsexponenten n für drei Werkstoffe

Werkstoff T °C	1.4970	1.4914	Zircaloy-4
	/48/	/49,50/	/53/
Spannungsexponent n			
550	-	14,3	-
600	38,0	10,5	7,7
650	25,0	11,0	-
700	8,0	4,9	5,7
750	4,5	4,5	-
800	-	2,4	4,7
850	-	-	-
900	-	-	3,0

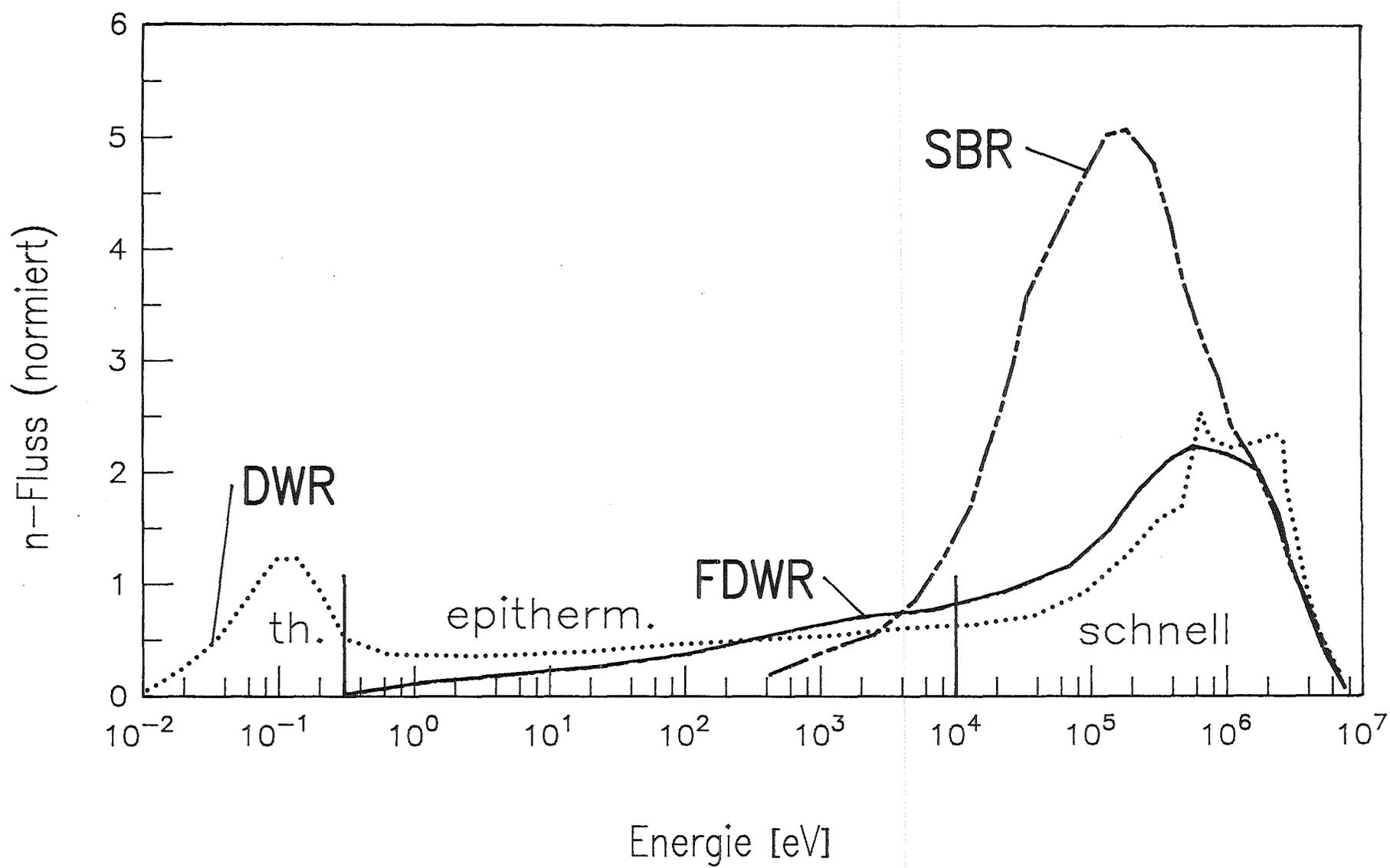


Abbildung 1: Neutronenspektrum von drei Reaktortypen /2/

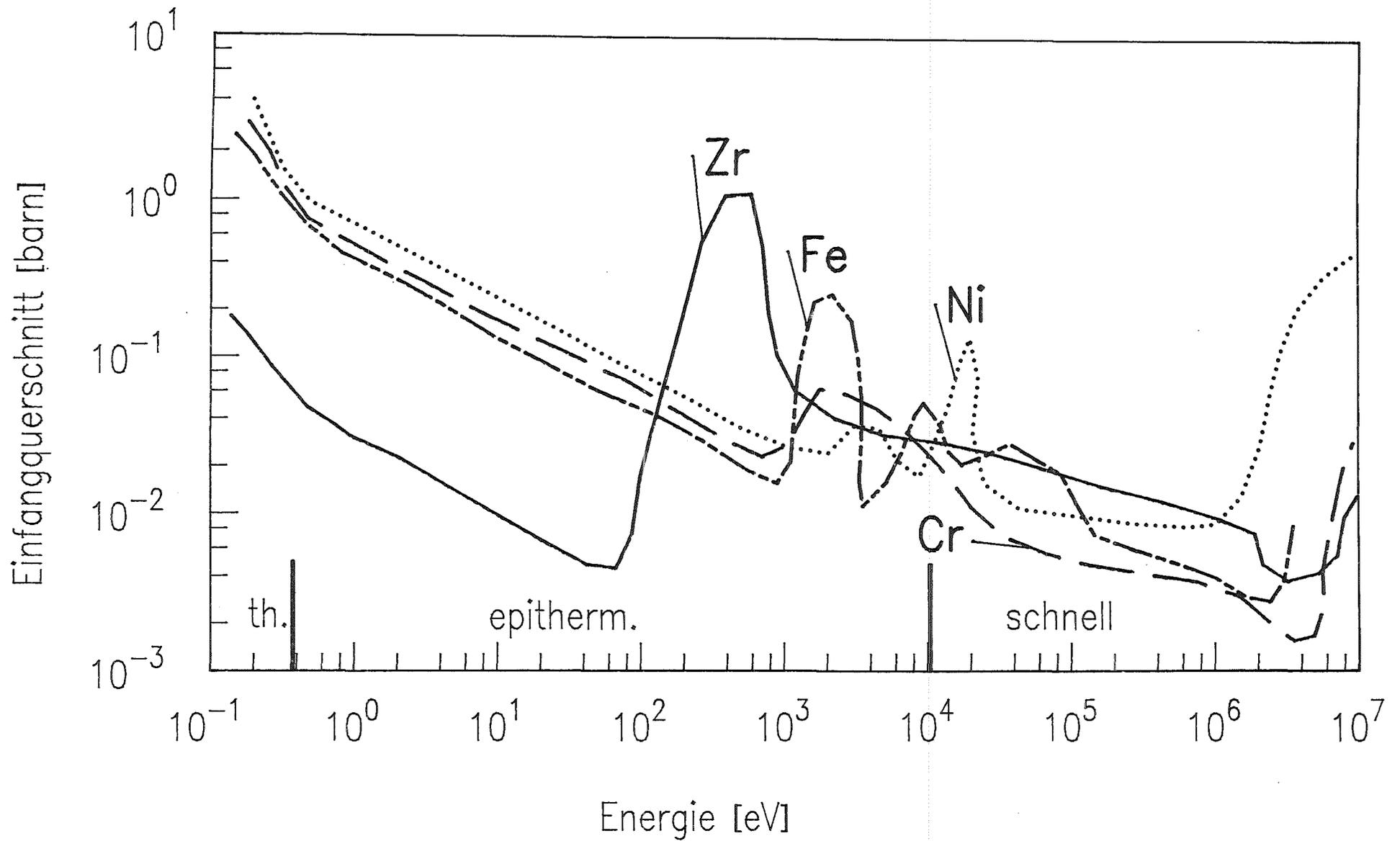


Abbildung 2: Einfangquerschnitte für Zirkonium und Stahlkomponenten /2/

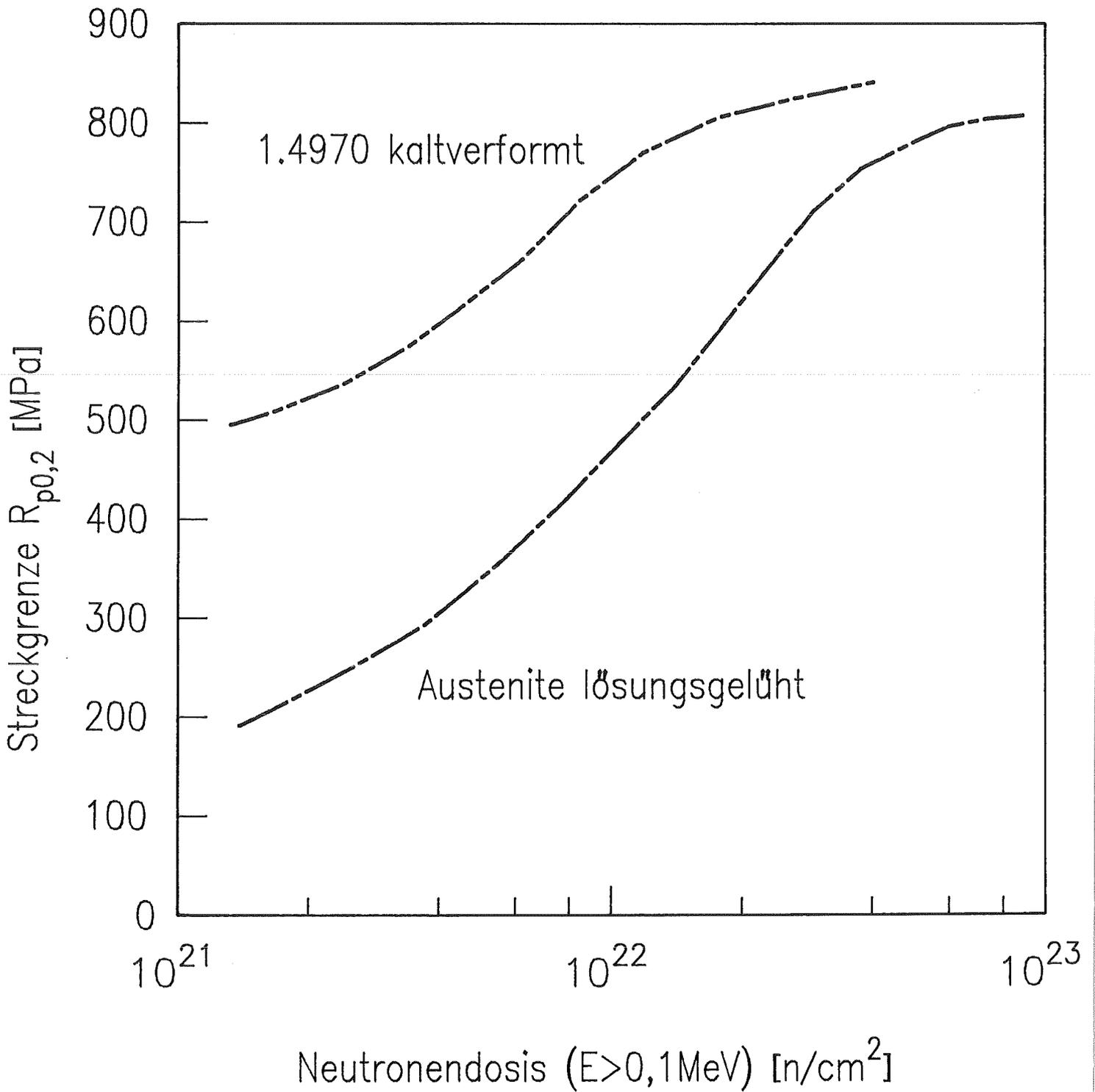


Abbildung 3: Abhängigkeit der Streckgrenze verschiedener austenitischer Stähle von der Dosis schneller Neutronen bei Bestrahlungs- und Versuchstemperaturen zwischen 370 und 430 °C /15/

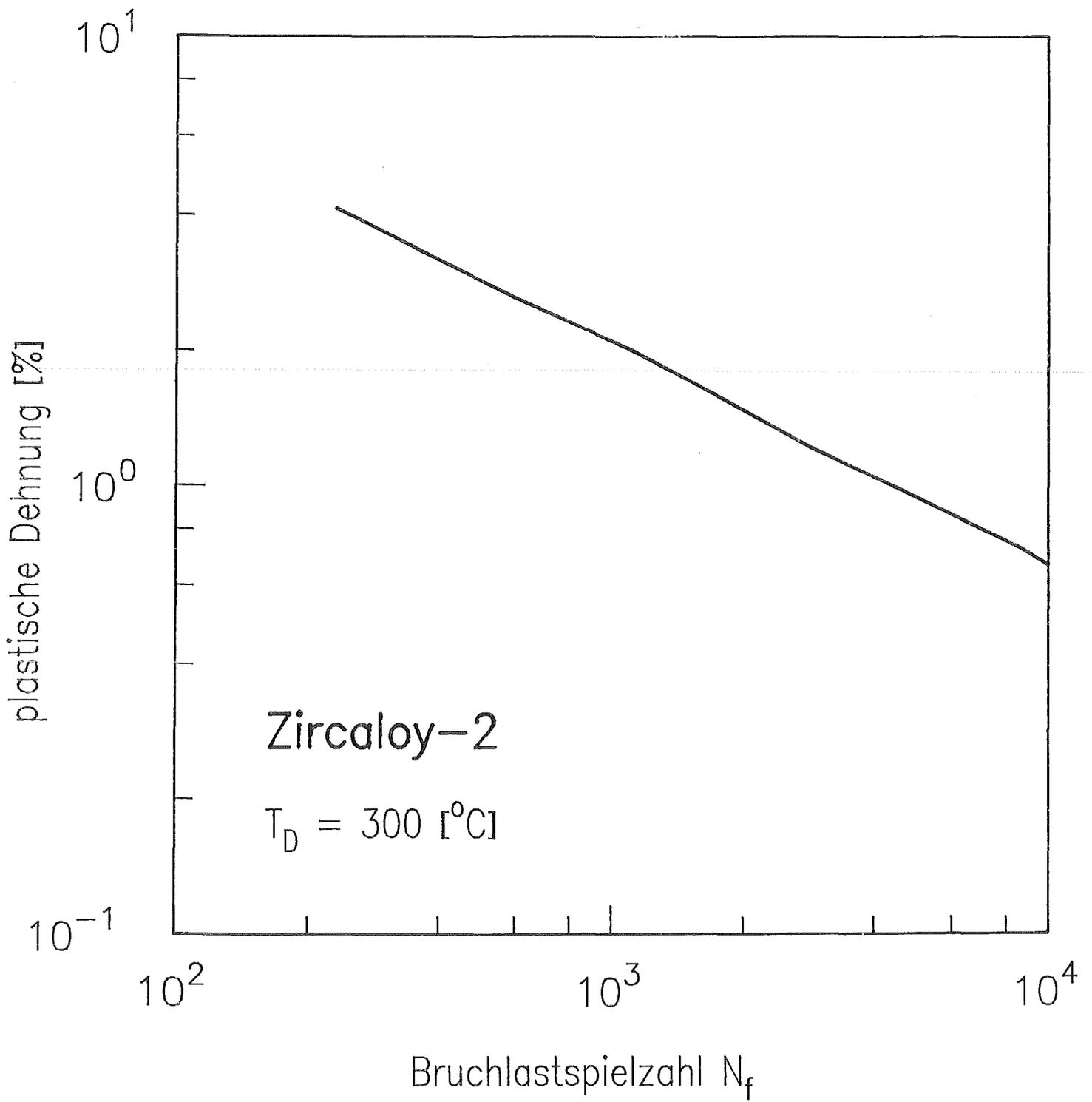


Abbildung 4: Bruchlastspielzahlen von Zircaloy-2 bei unterschiedlichen Dehnungsamplituden /18/

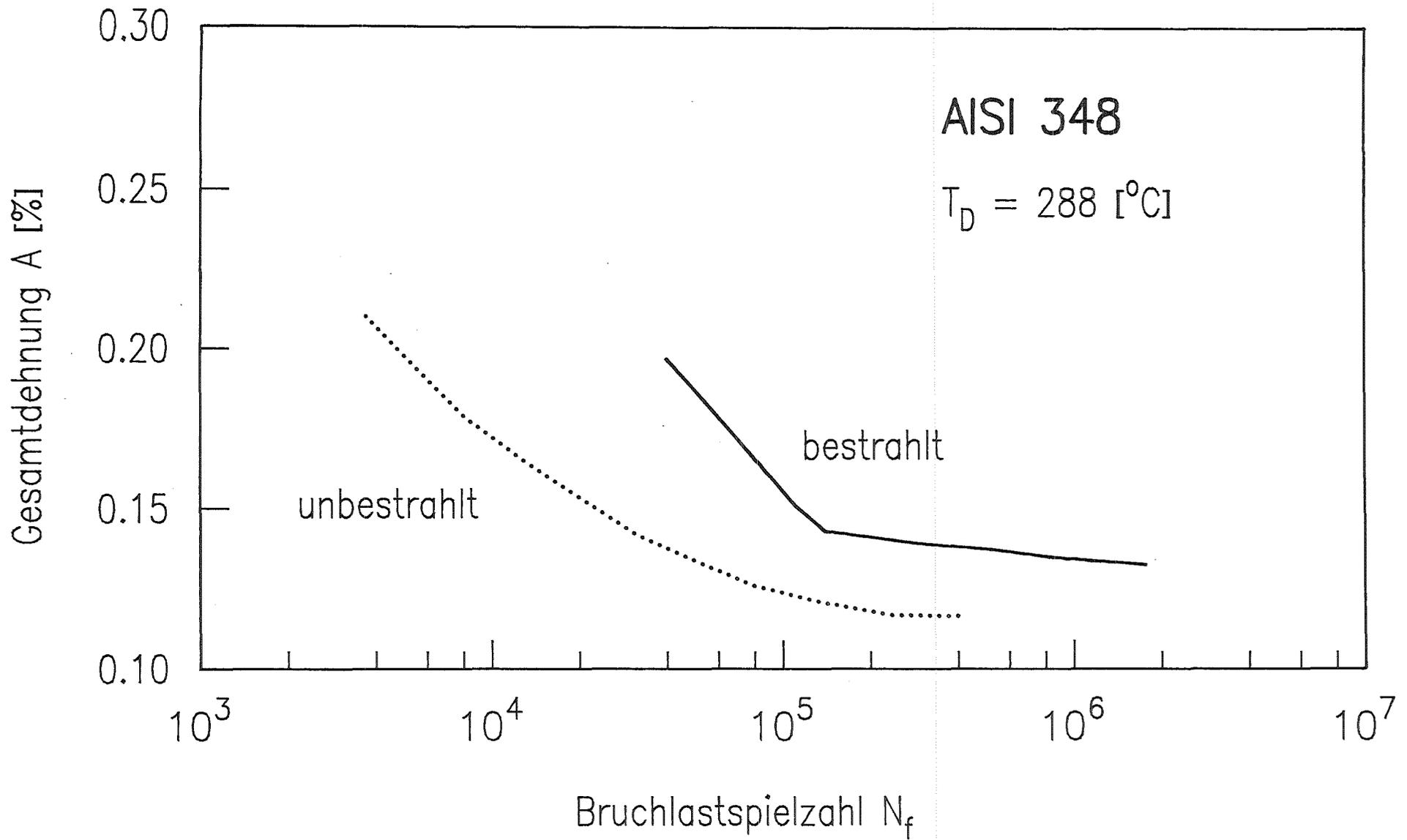


Abbildung 5: Bruchlastspielzahlen von AISI 348 im unbestrahlten und bestrahlten Zustand ( $1,5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ,  $E > 0,1 \text{ MeV}$ ) bei unterschiedlichen Dehnungsamplituden /21/

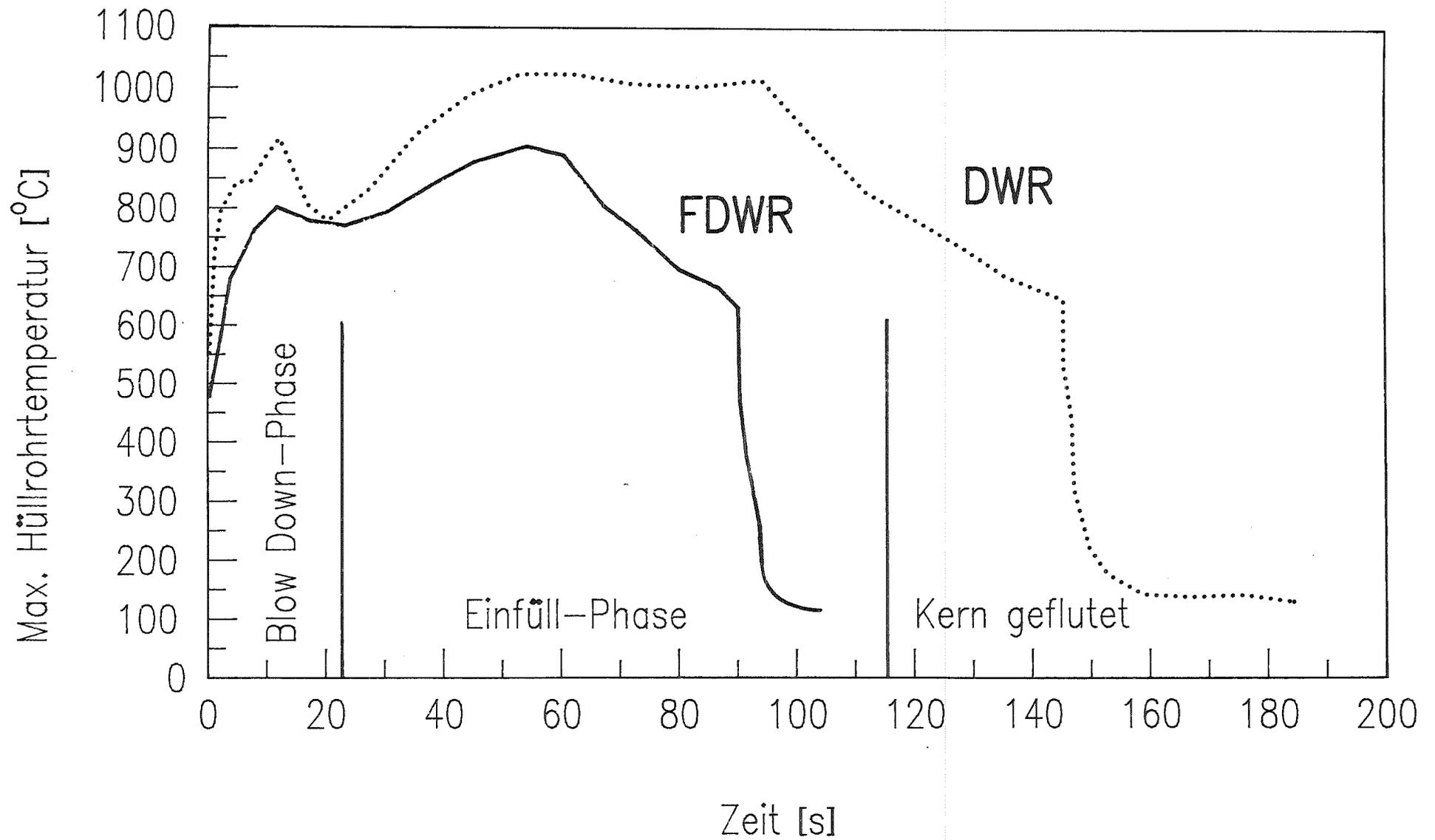


Abbildung 6: Zeitlicher Verlauf der maximalen Hüllrohrtemperaturen nach einem 2F-Bruch der Hauptkühlmittelleitung von FDWR und DWR /28/

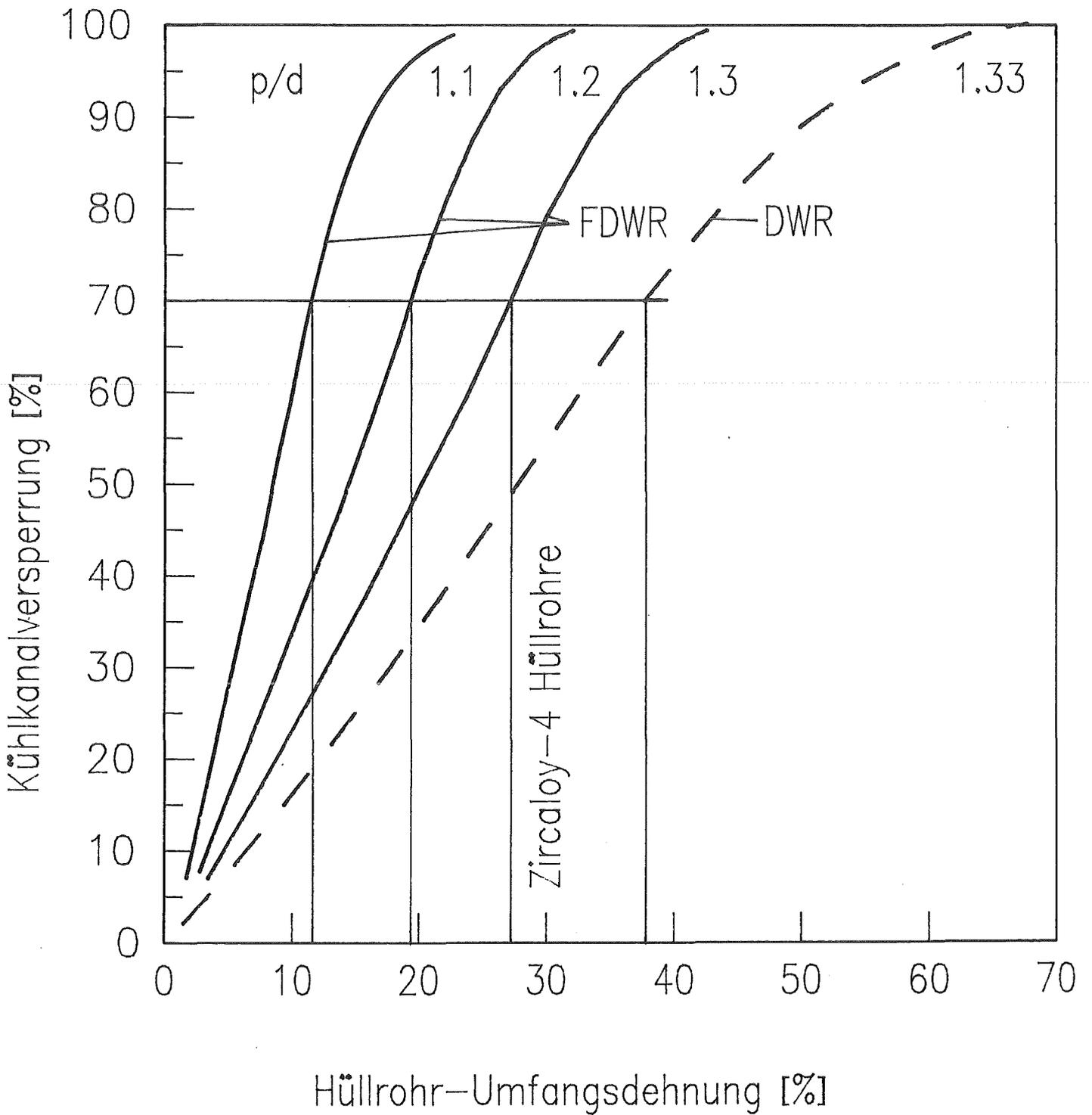


Abbildung 7: Kühlkanalversperrung berechnet für unterschiedliche (Hüllrohrabstand  $p$ /Hüllrohrdurchmesser  $d$ )-Verhältnisse für FDWR und DWR /30/

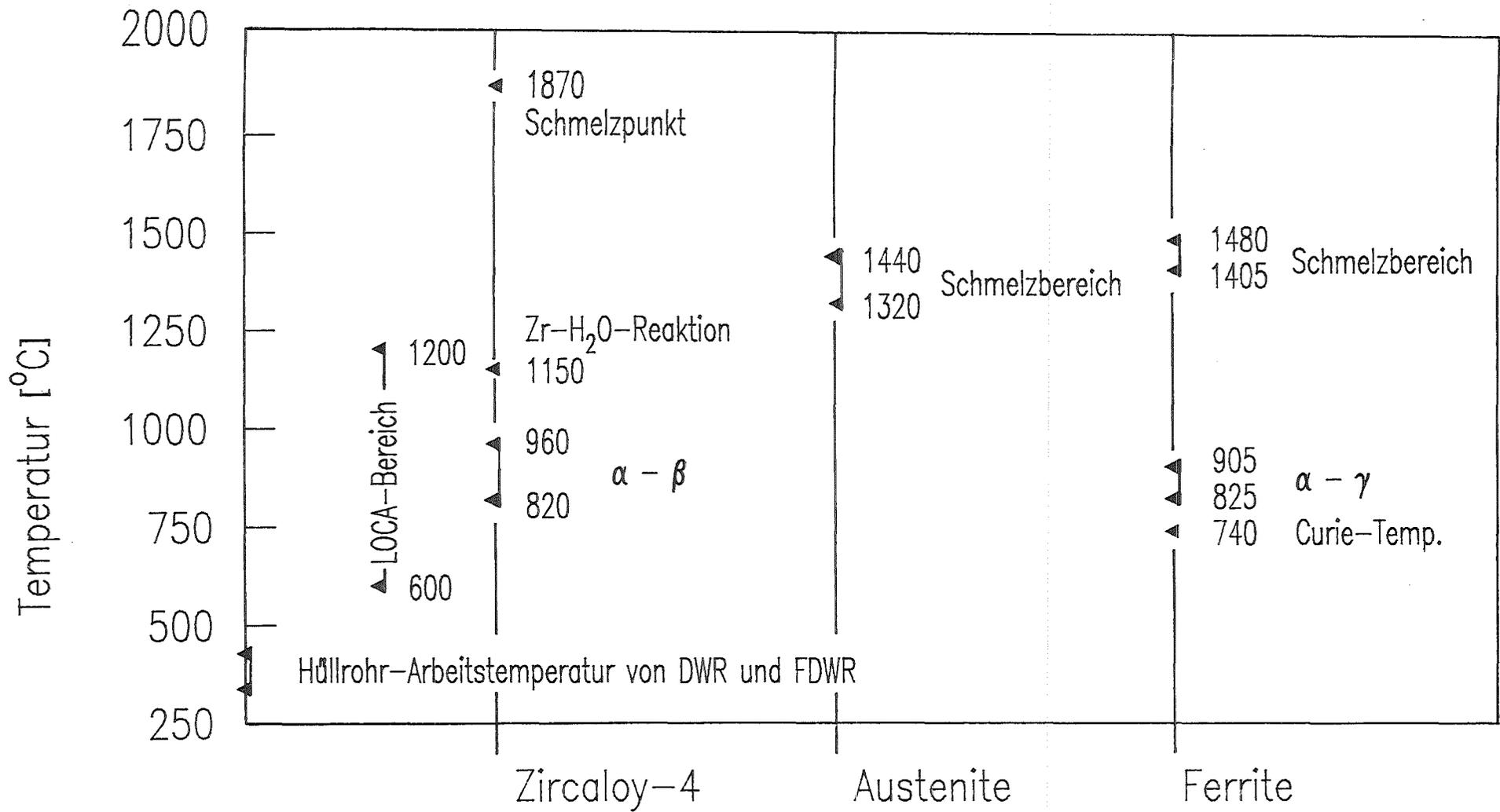


Abbildung 8: Temperaturbereiche für Betrieb und Sicherheitsuntersuchungen und markante Temperaturen der drei Werkstoffgruppen

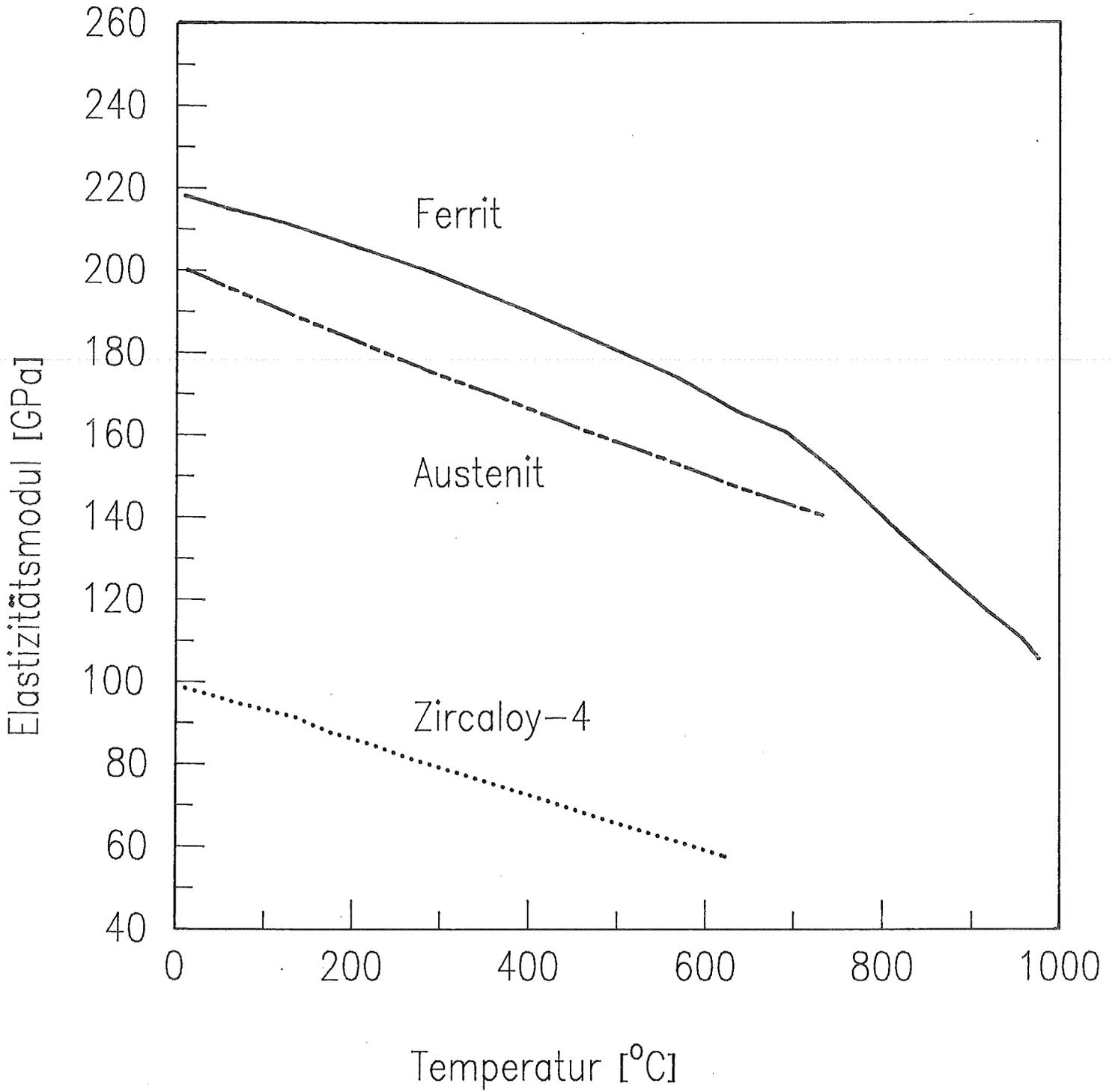


Abbildung 9: Temperaturabhängigkeit des Elastizitätsmoduls von Stählen /35/ und Zircaloy-4 /36/

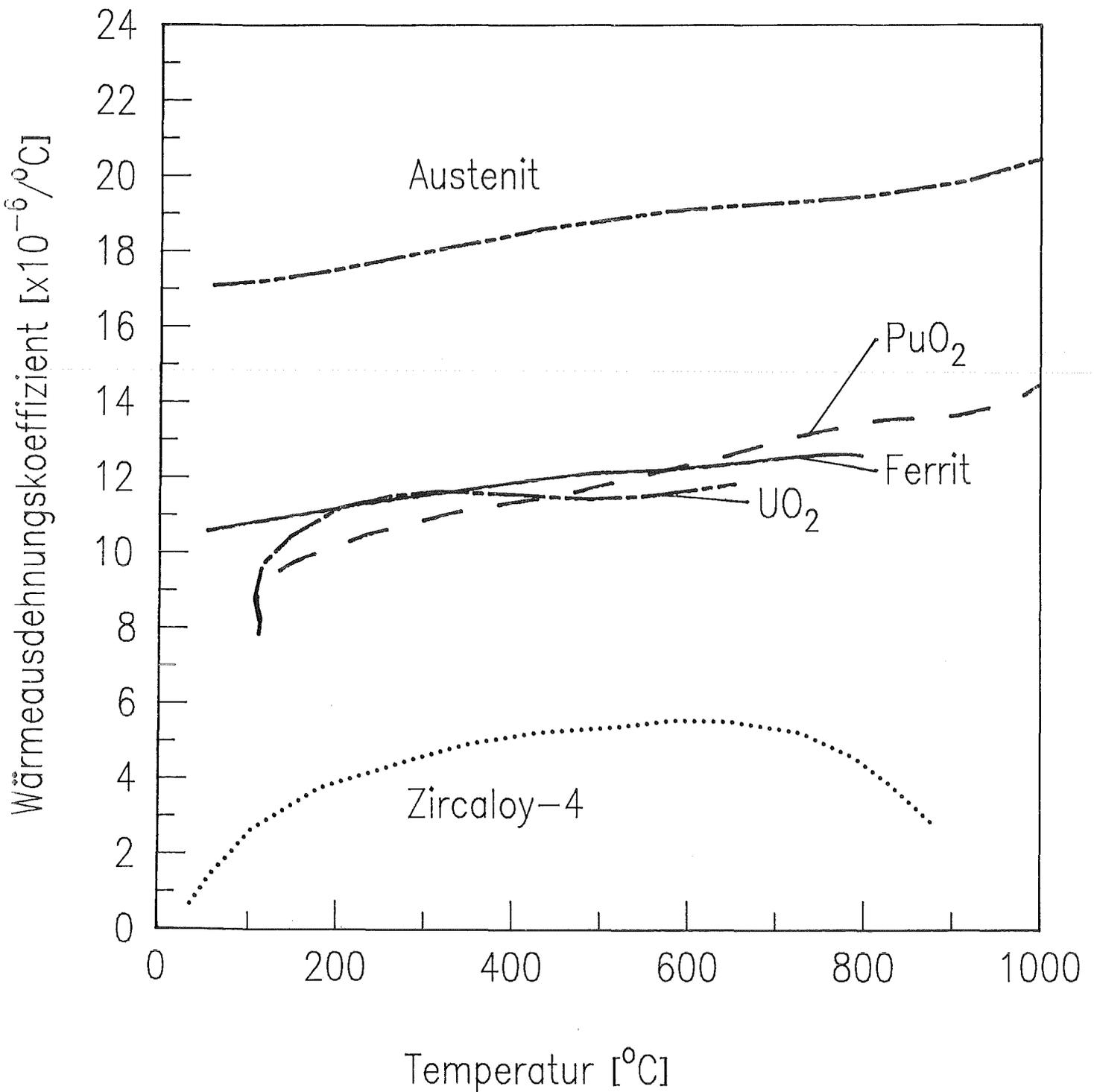


Abbildung 10: Temperaturabhängigkeit der linearen Wärmeausdehnungskoeffizienten von Stählen /35/ den Brennstoffen: PuO<sub>2</sub> und UO<sub>2</sub> /37/ und Zircaloy-4 /38/

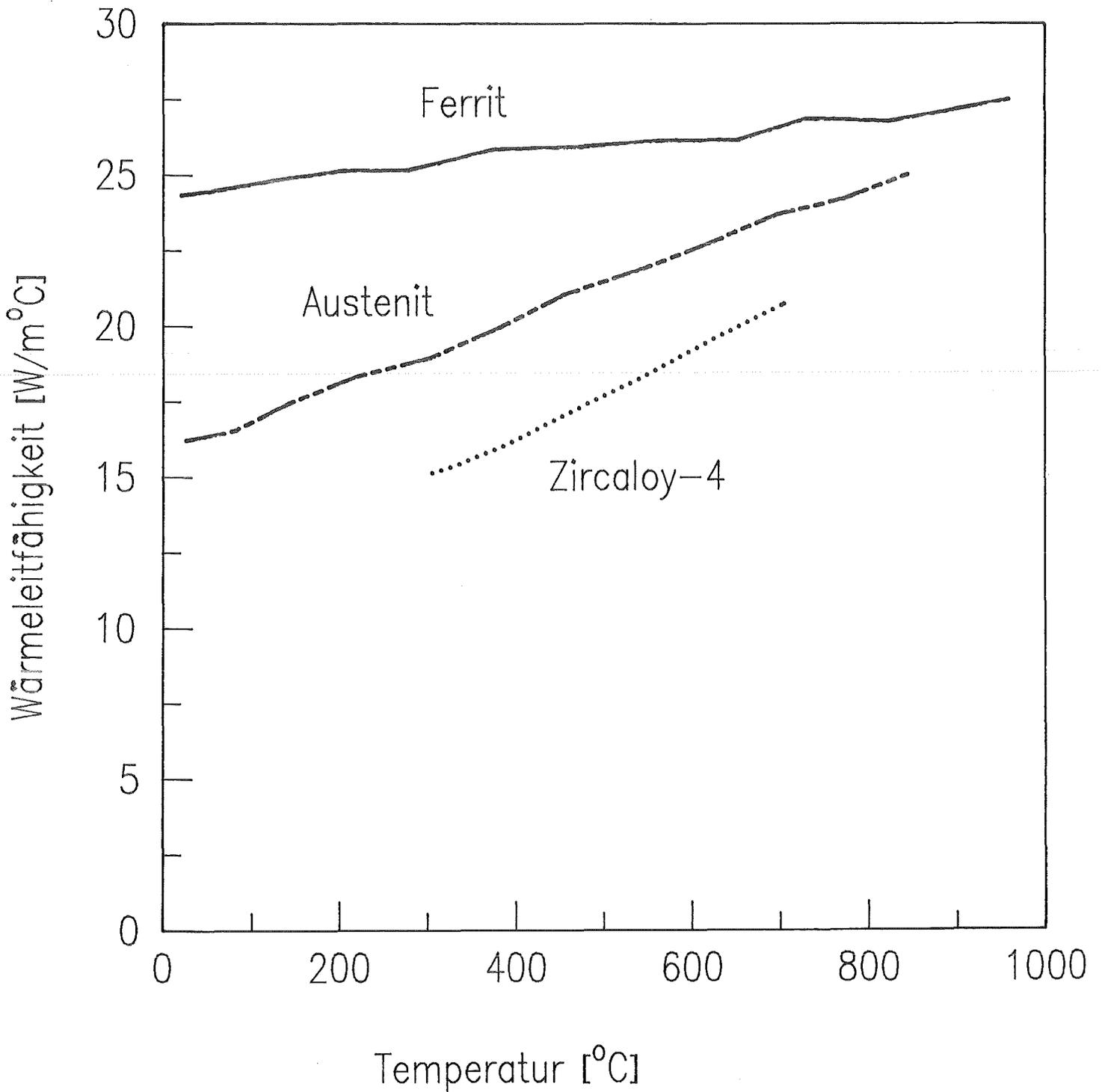


Abbildung 11: Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von Zircaloy-4 /38/ und den Stählen /39/

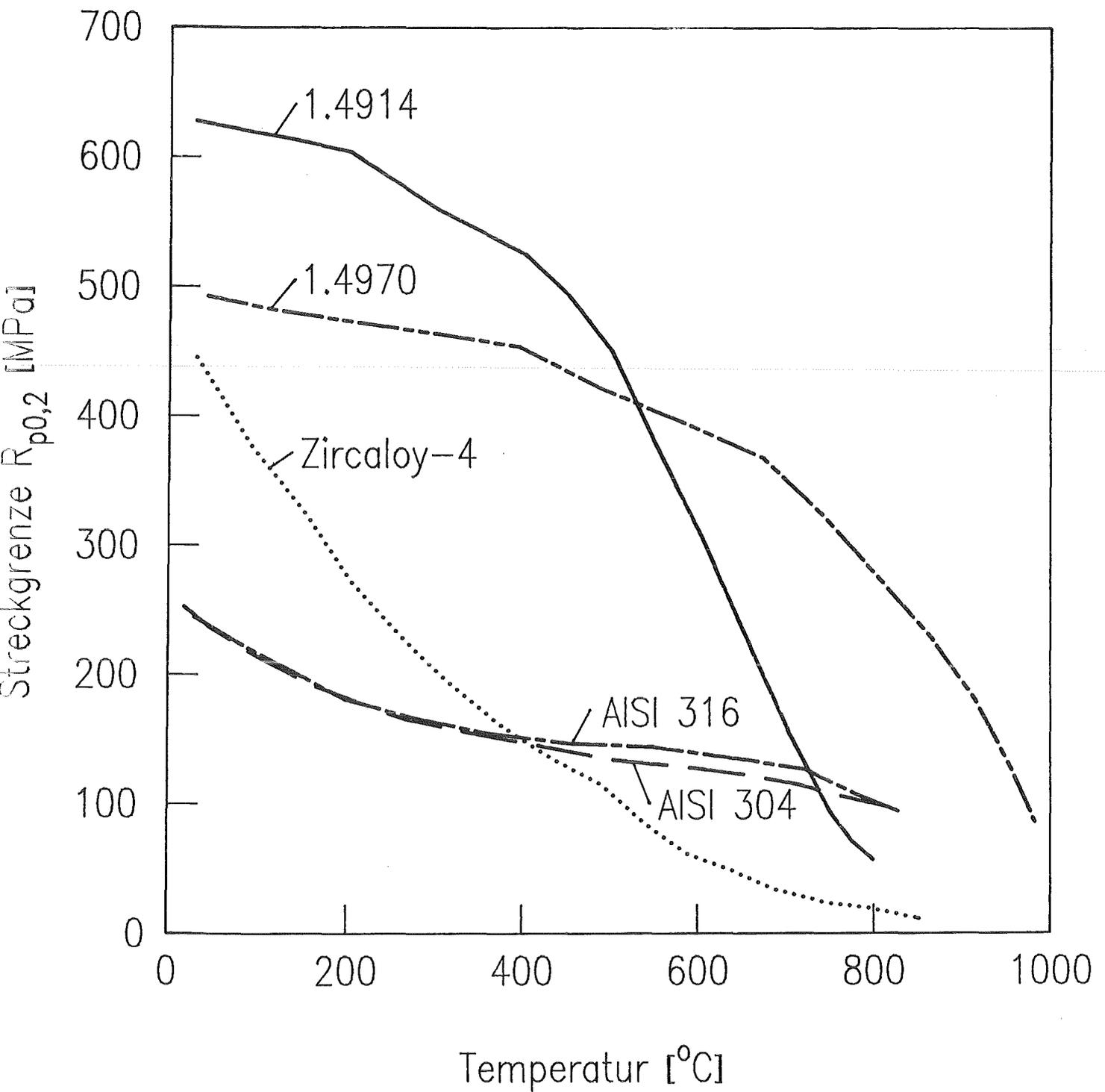


Abbildung 12: Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze für die Austenite 1.4970 /41/, AISI 304 und 316 /42/, den Ferrit 1.4914 /46/ und das Zircaloy-4 /47/

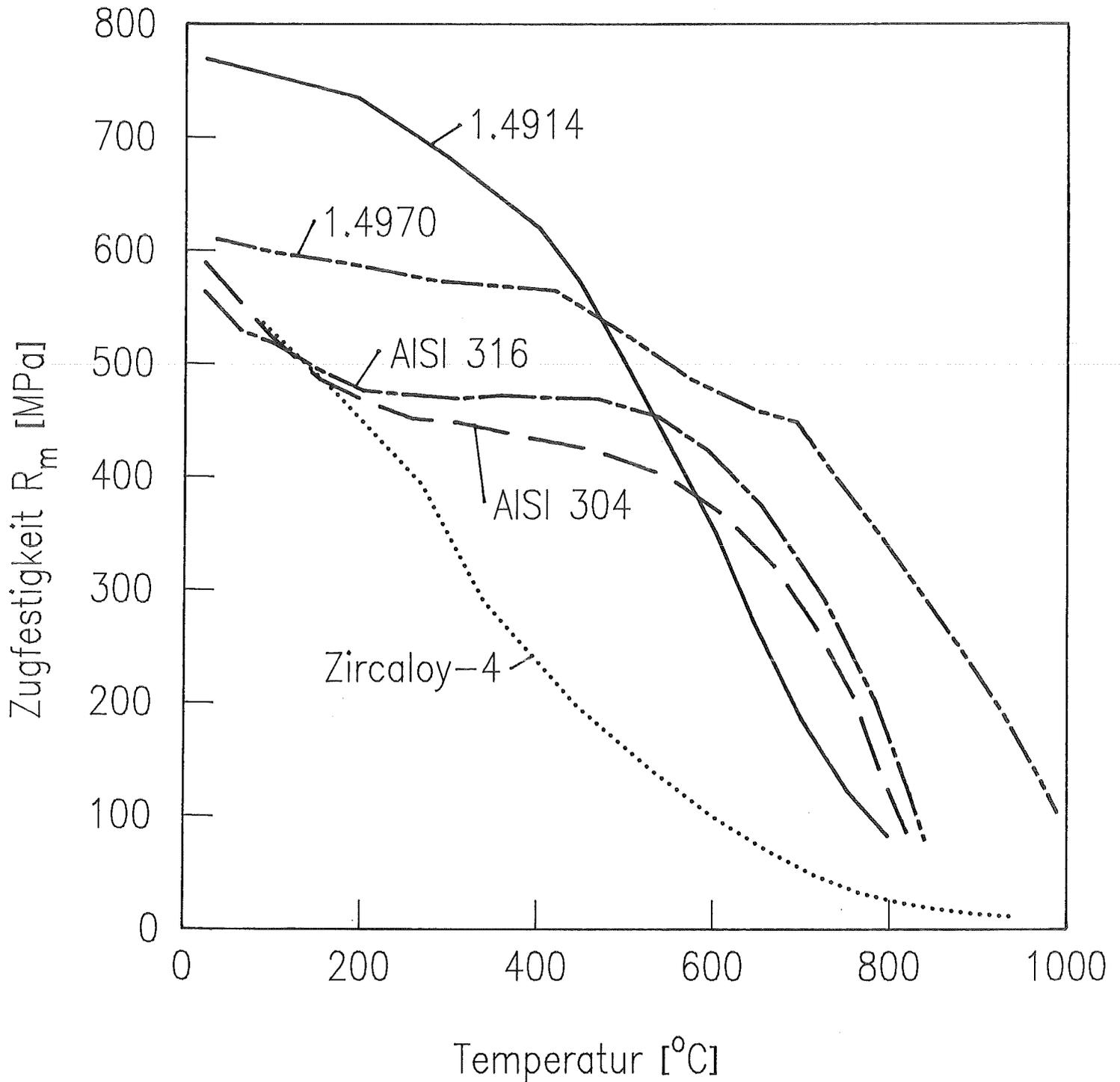


Abbildung 13: Temperaturabhängigkeit der Zugfestigkeit für die Austenite 1.4970 /41/, AISI 304 und 316 /42/, den Ferrit 1.4914 /46/ und Zircaloy-4 /12/

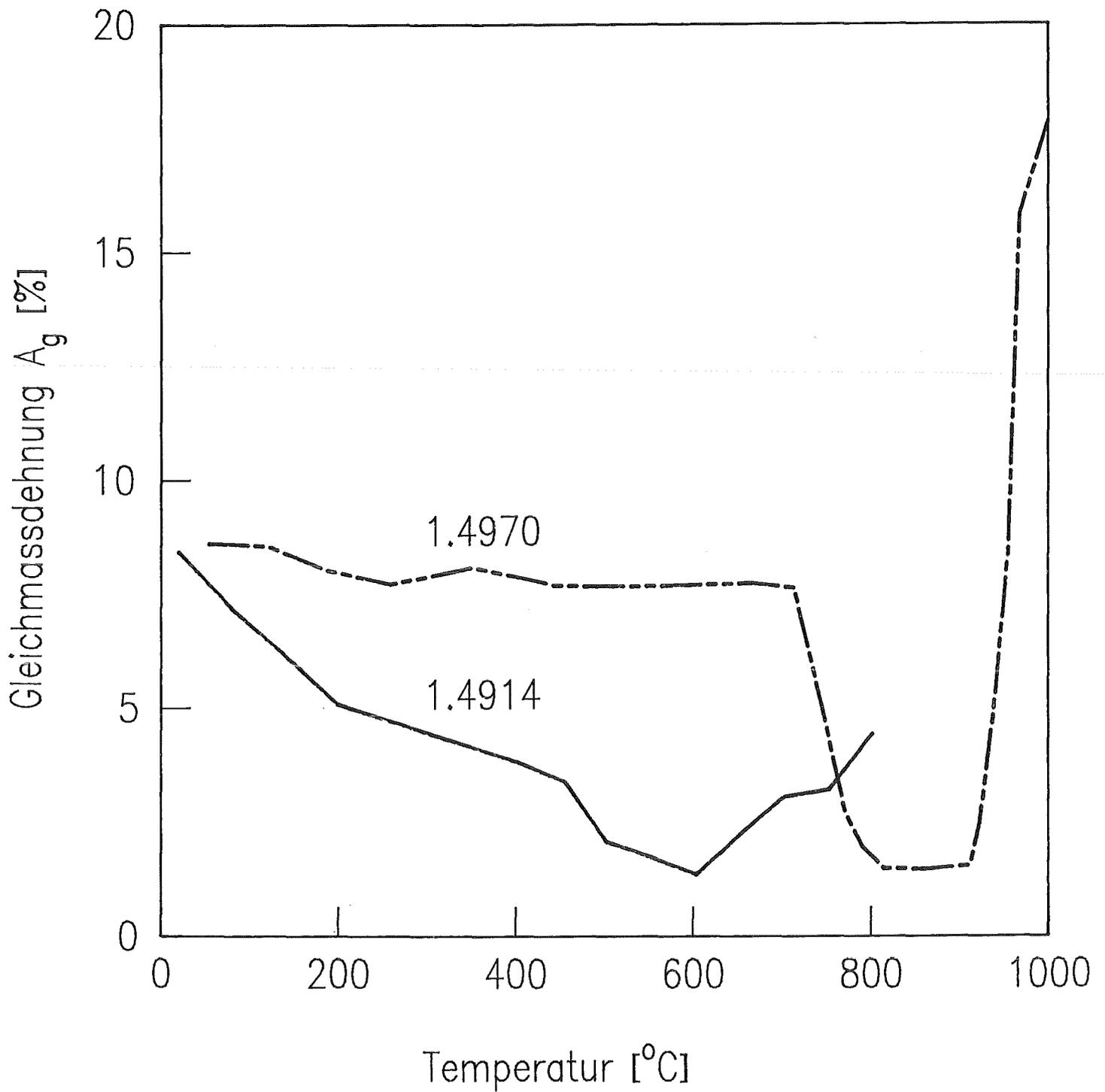


Abbildung 14: Temperaturabhängigkeit der Gleichmaßdehnung für den Austenit 1.4970 /41/ und den Ferrit 1.4914 /46/

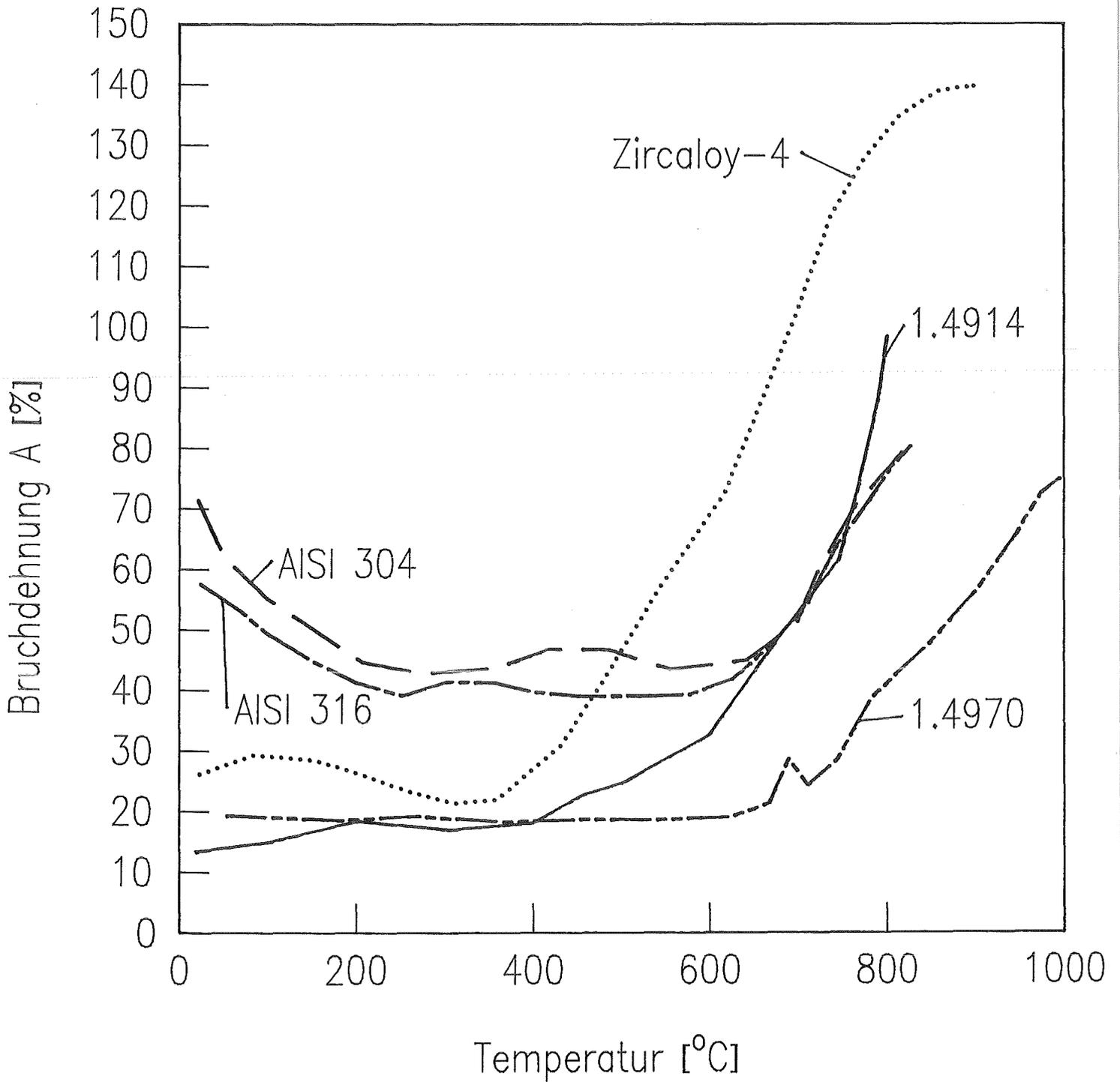


Abbildung 15: Temperaturabhängigkeit der Bruchdehnung für die Austenite 1.4970 /41/, AISI 304 und 316 /42/, den Ferrit 1.4914 /46/ und Zircaloy-4 /47/

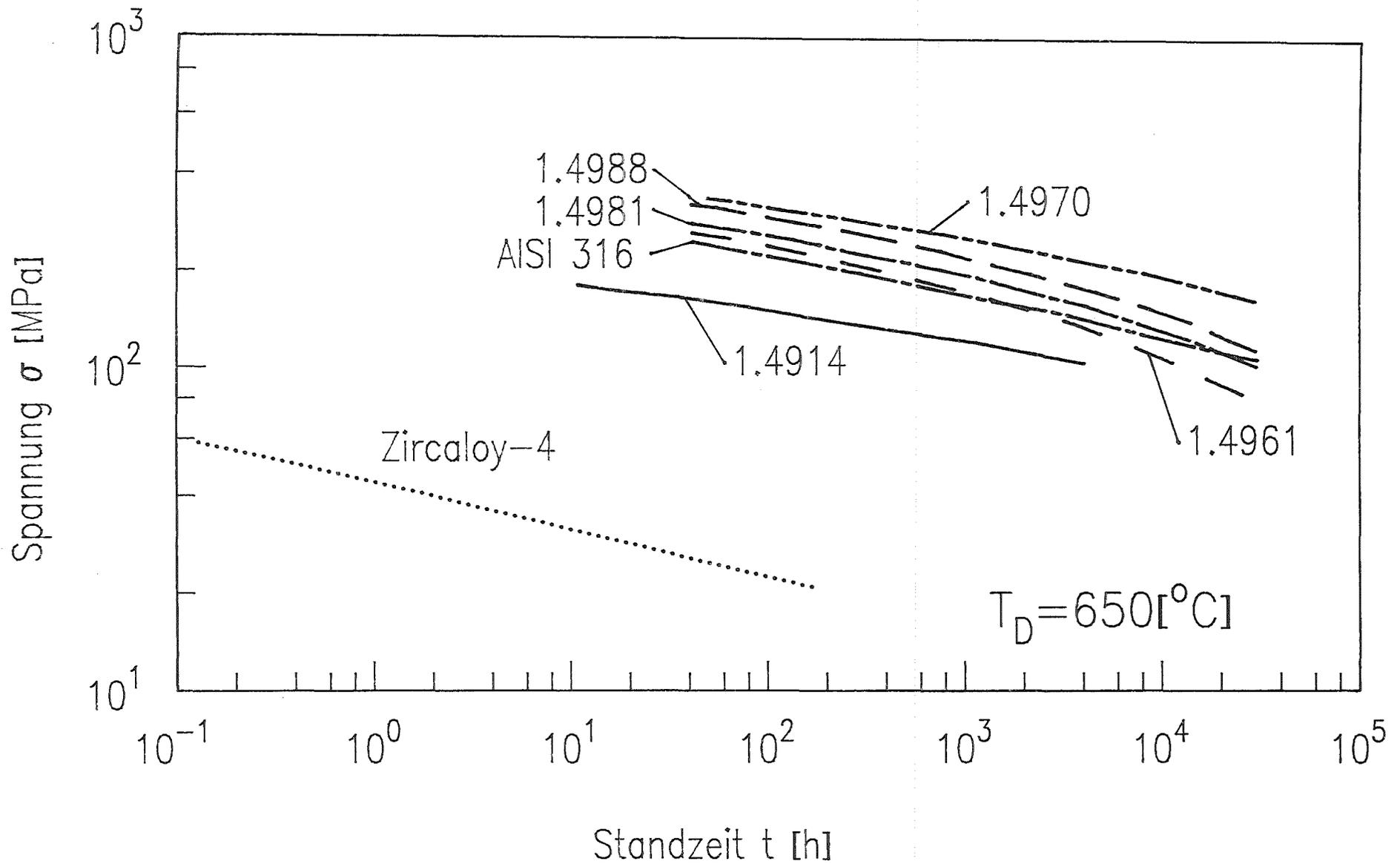


Abbildung 16: Vergleich der Zeitstandfestigkeit der Austenite (1.4961, 1.4970, 1.4981, 1.4988 und AISI 316) /52/ des Ferrits /49/ und des Zircaloy-4 /53/ bei  $650\text{ }^\circ\text{C}$

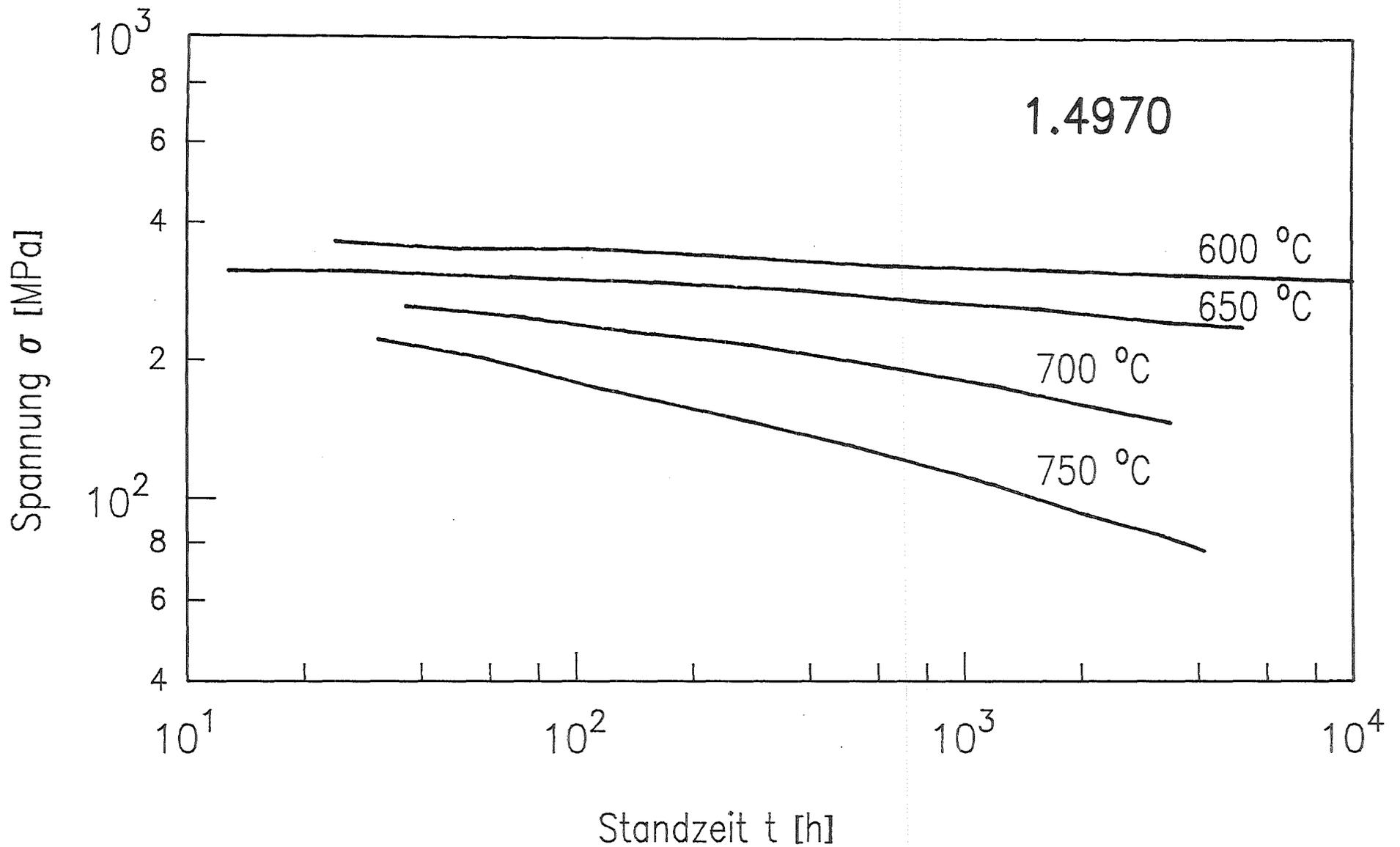


Abbildung 17: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit des Austenits 1.4970 im "Industriezustand" /48/

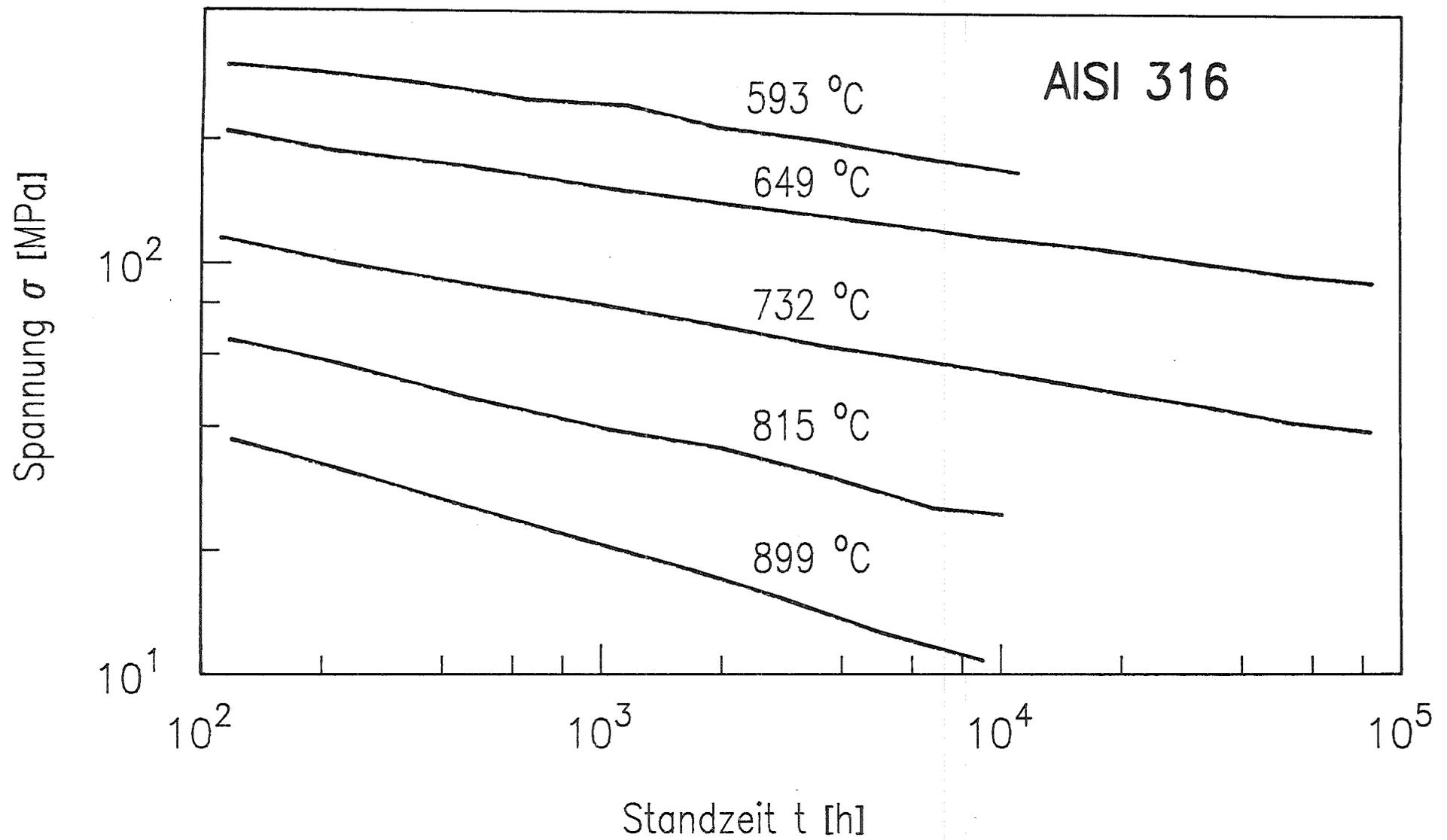


Abbildung 18: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit des Austenits AISI 316 im lösungsgeglühten Zustand /43/

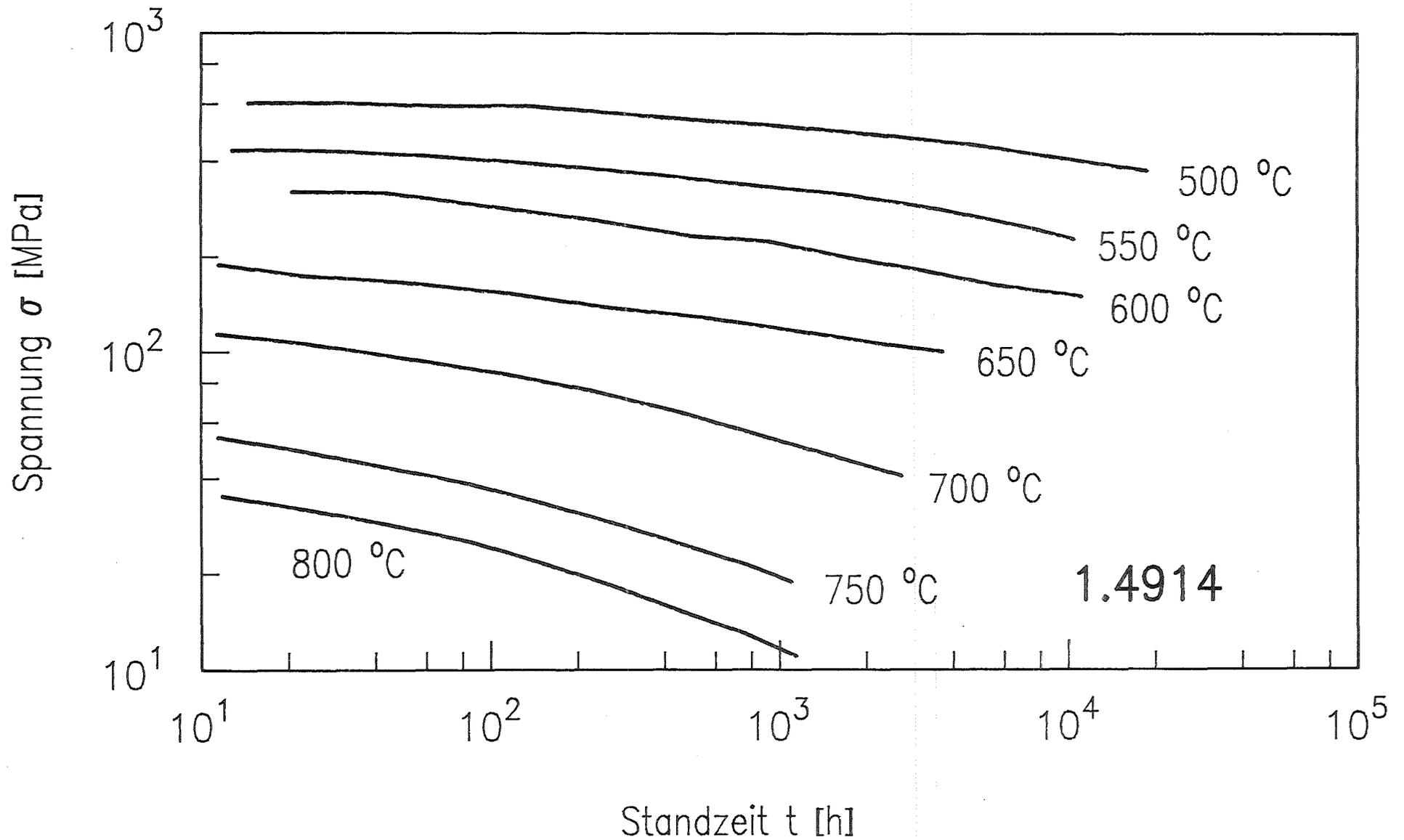


Abbildung 19: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit des Ferrit 1.4914 im Bereich 500 bis 600 °C /49/ und 650 bis 800 °C /50/

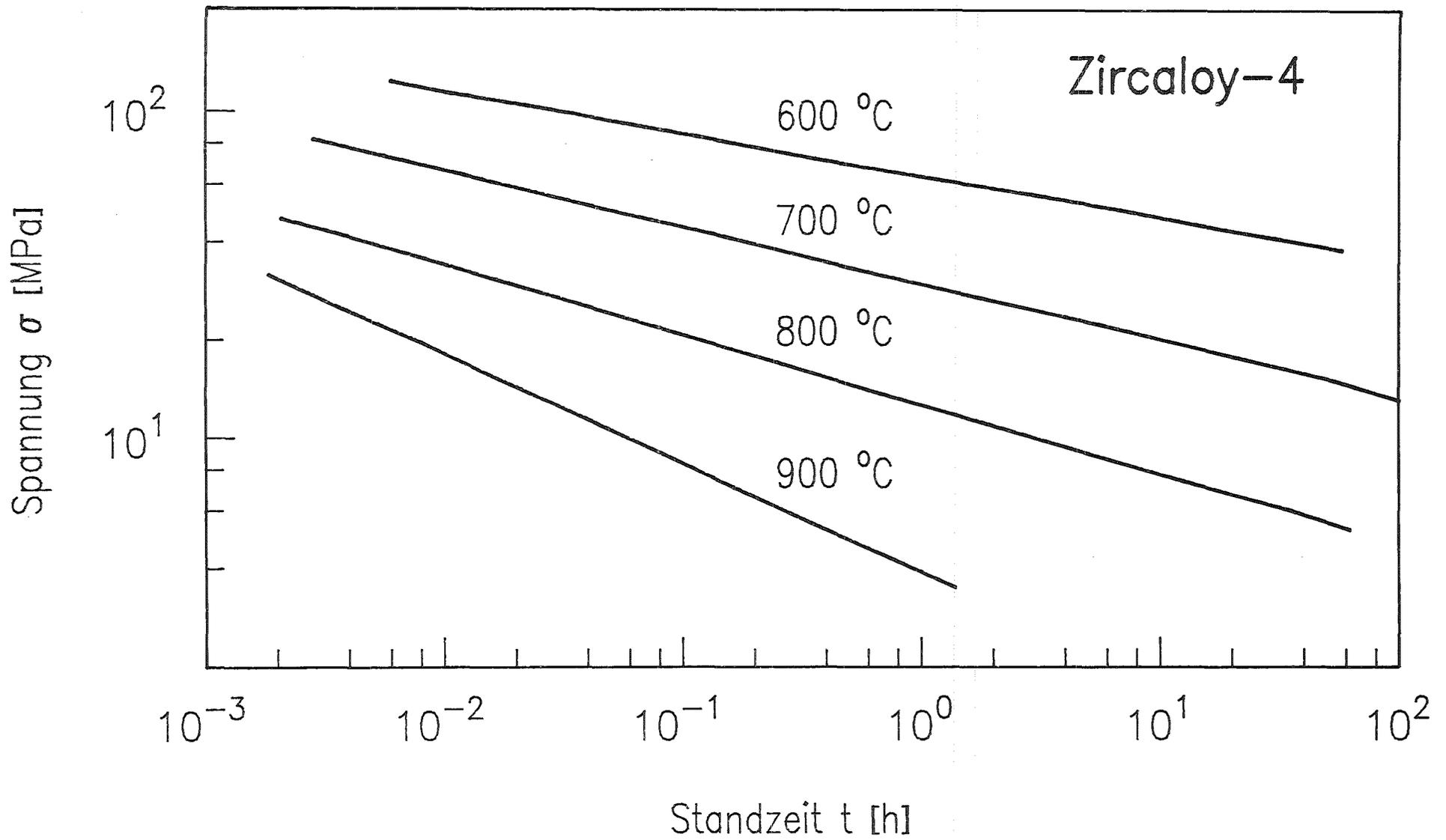


Abbildung 20: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit des Zircaloy-4 /51/

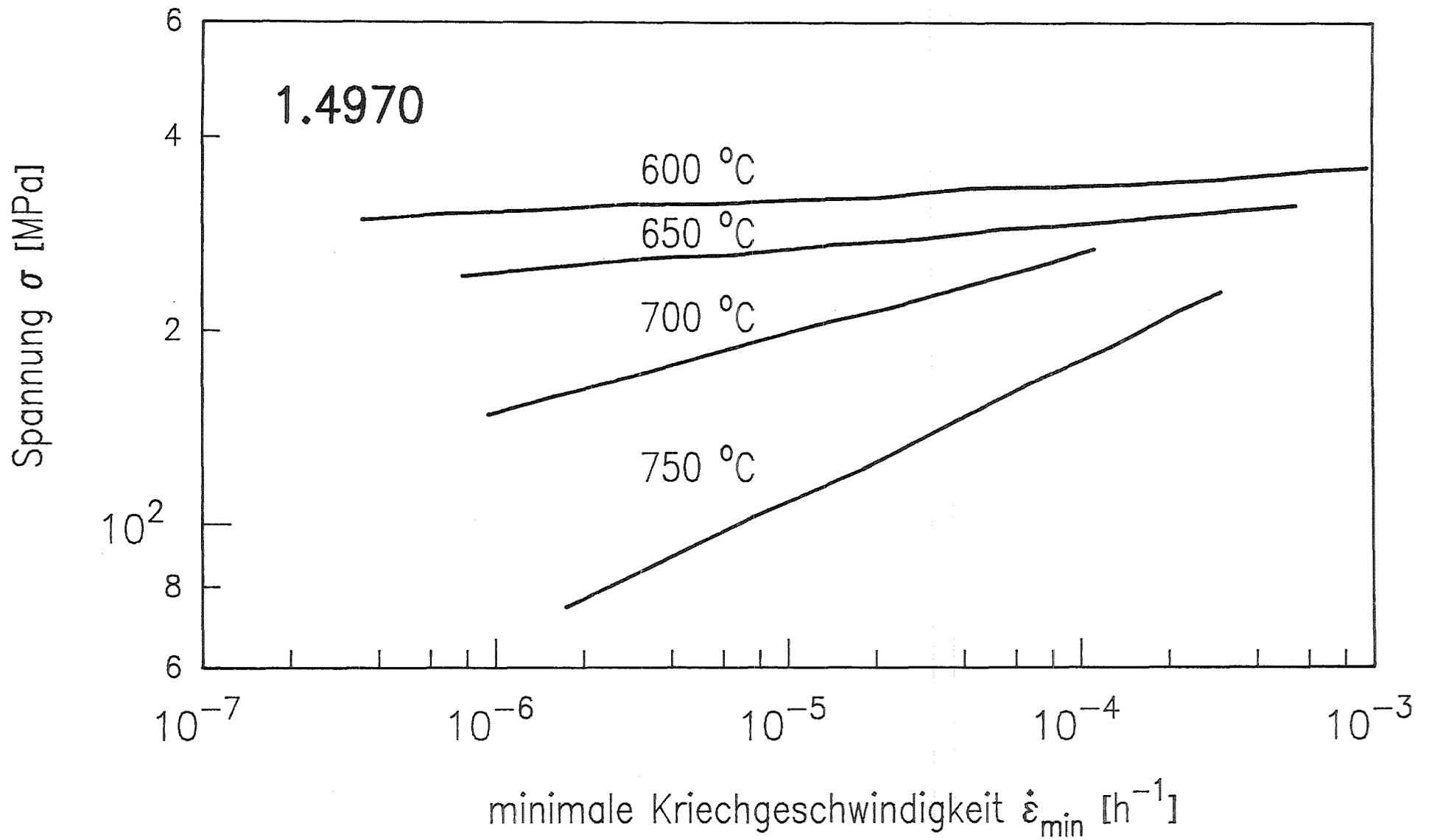


Abbildung 21: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des 1.4970 im Temperaturbereich 600 bis 750 °C /48/

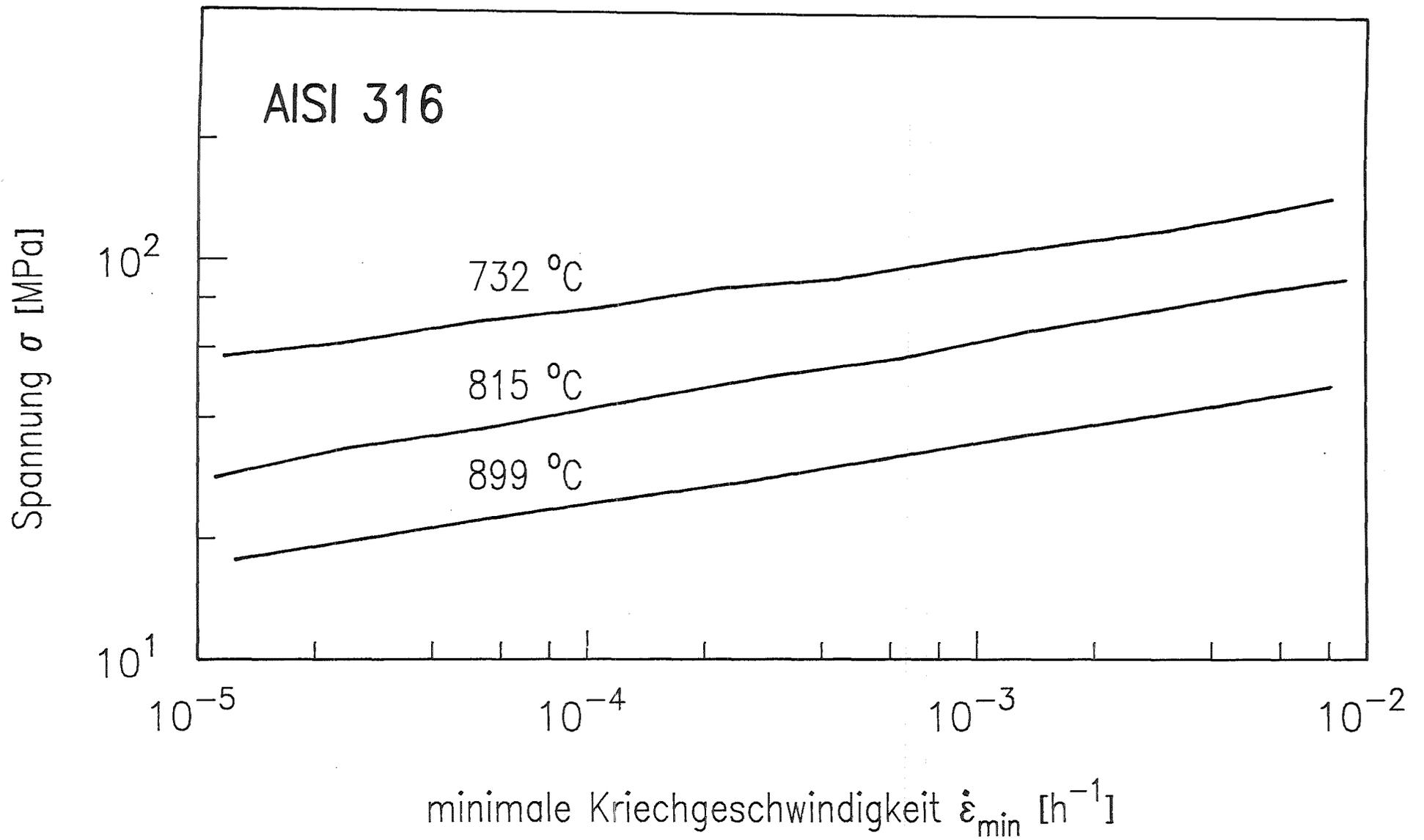


Abbildung 22: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des AISI 316 im Temperaturbereich 732 bis 899 °C /43/

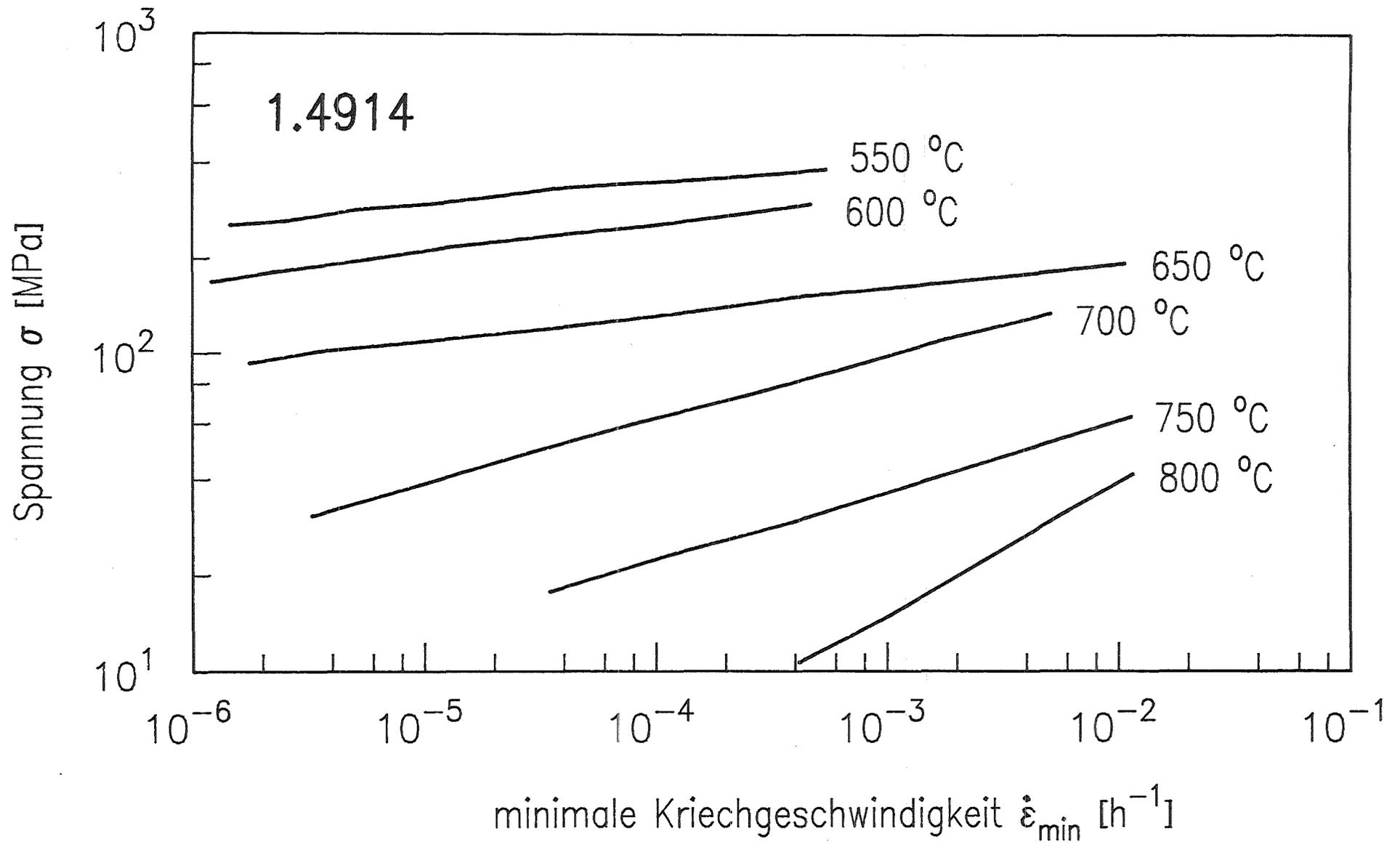


Abbildung 23: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des 1.4914 im Temperaturbereich 550 und 600 °C /49/ und 650 bis 800 °C /50/

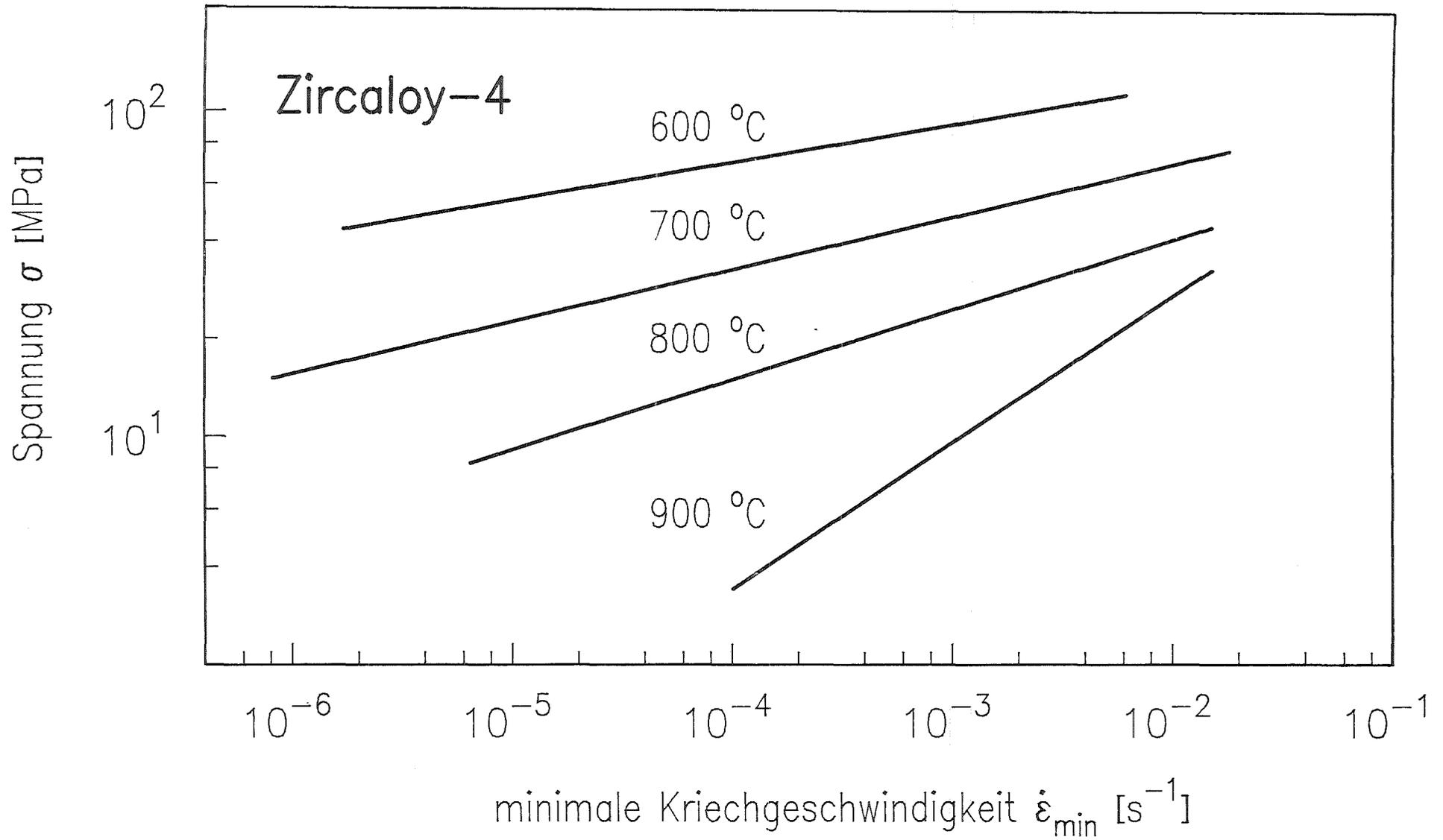


Abbildung 24: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des Zircaloy-4 im Temperaturbereich 600 bis 900 °C /53/

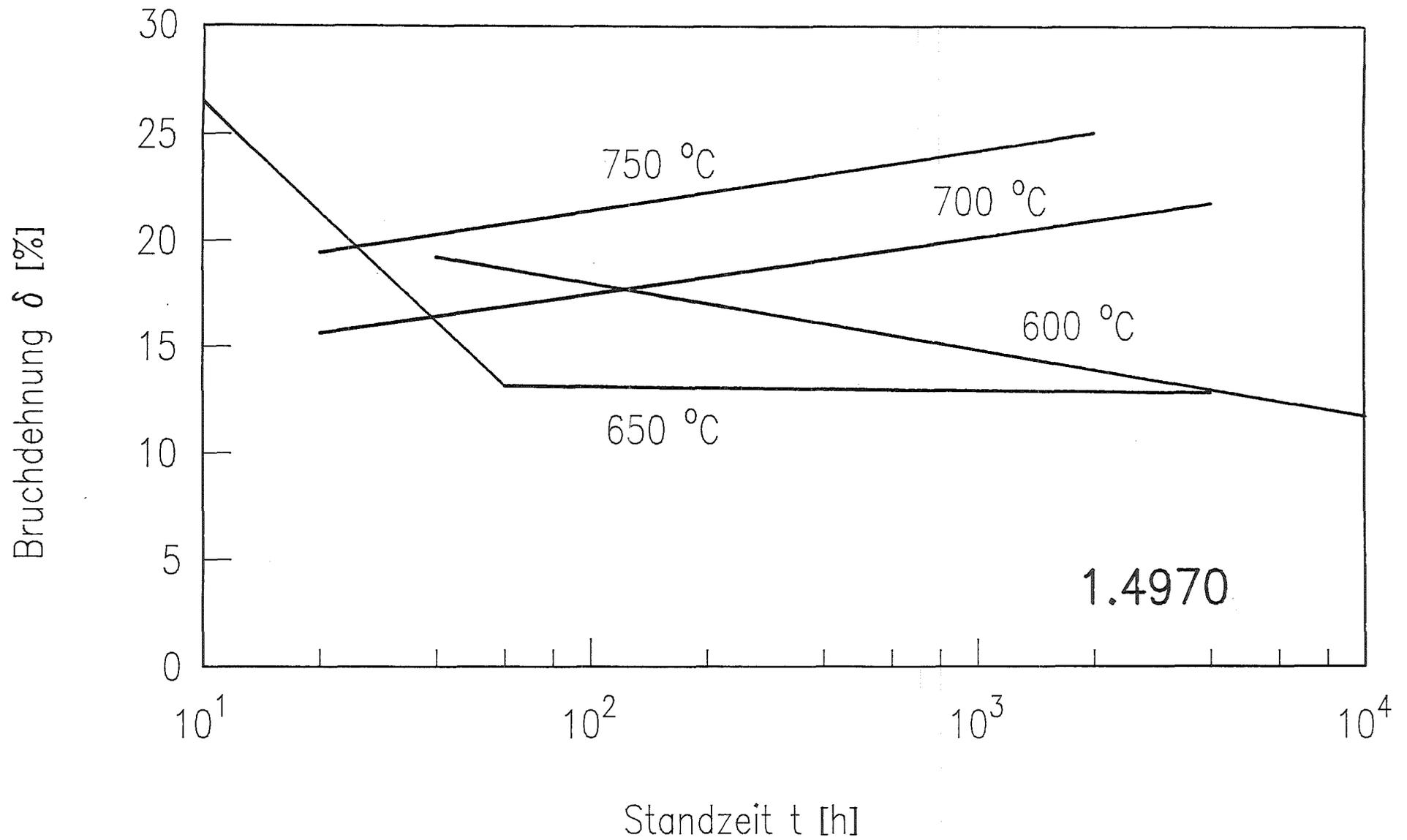


Abbildung 25: Standzeitabhängigkeit der Bruchdehnung im Temperaturbereich 600 bis 750 °C des Austenits 1.4970 /48/

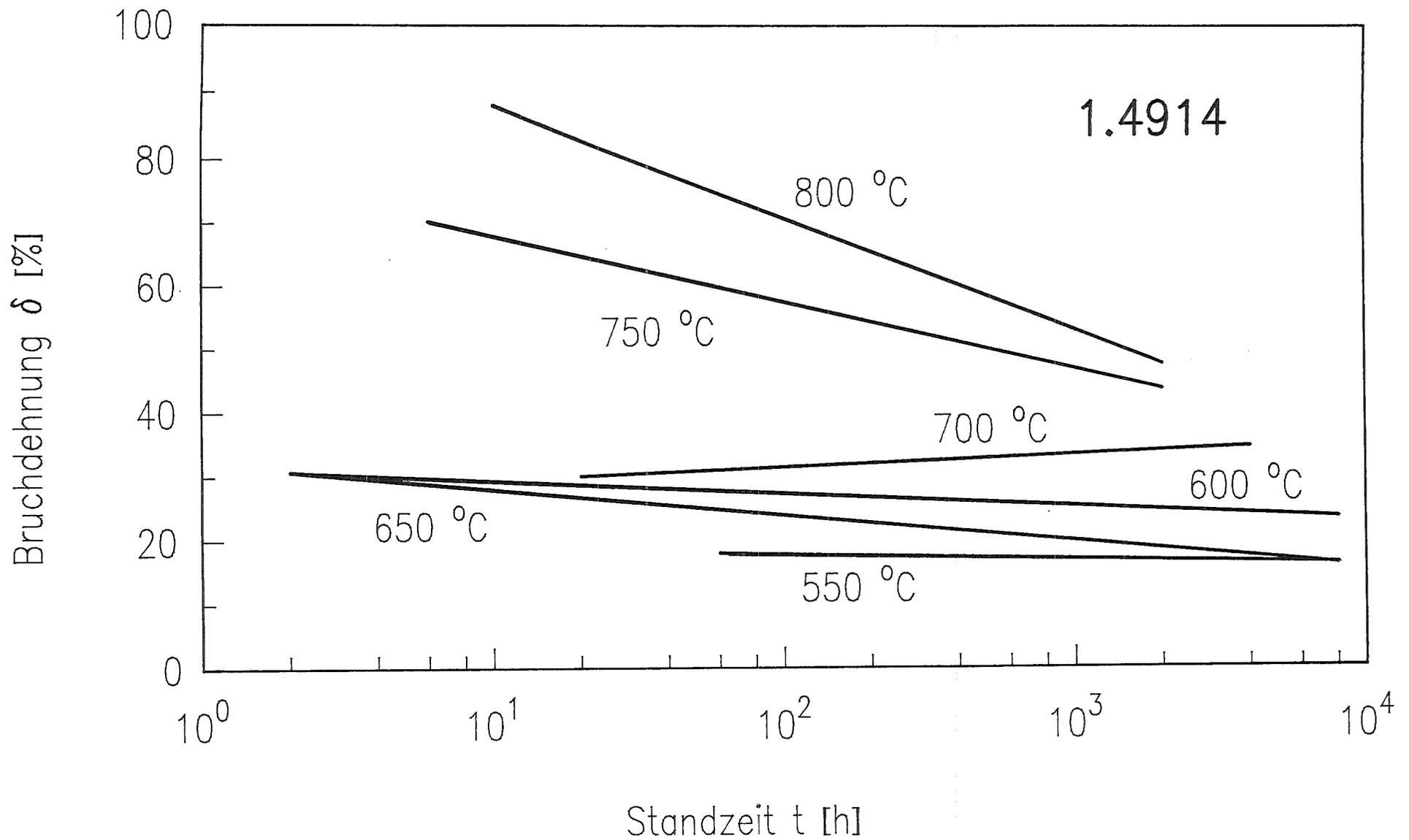


Abbildung 26: Standzeitabhängigkeit der Bruchdehnung im Temperaturbereich 550 bis 800 °C des Ferrits 1.4914 /49/

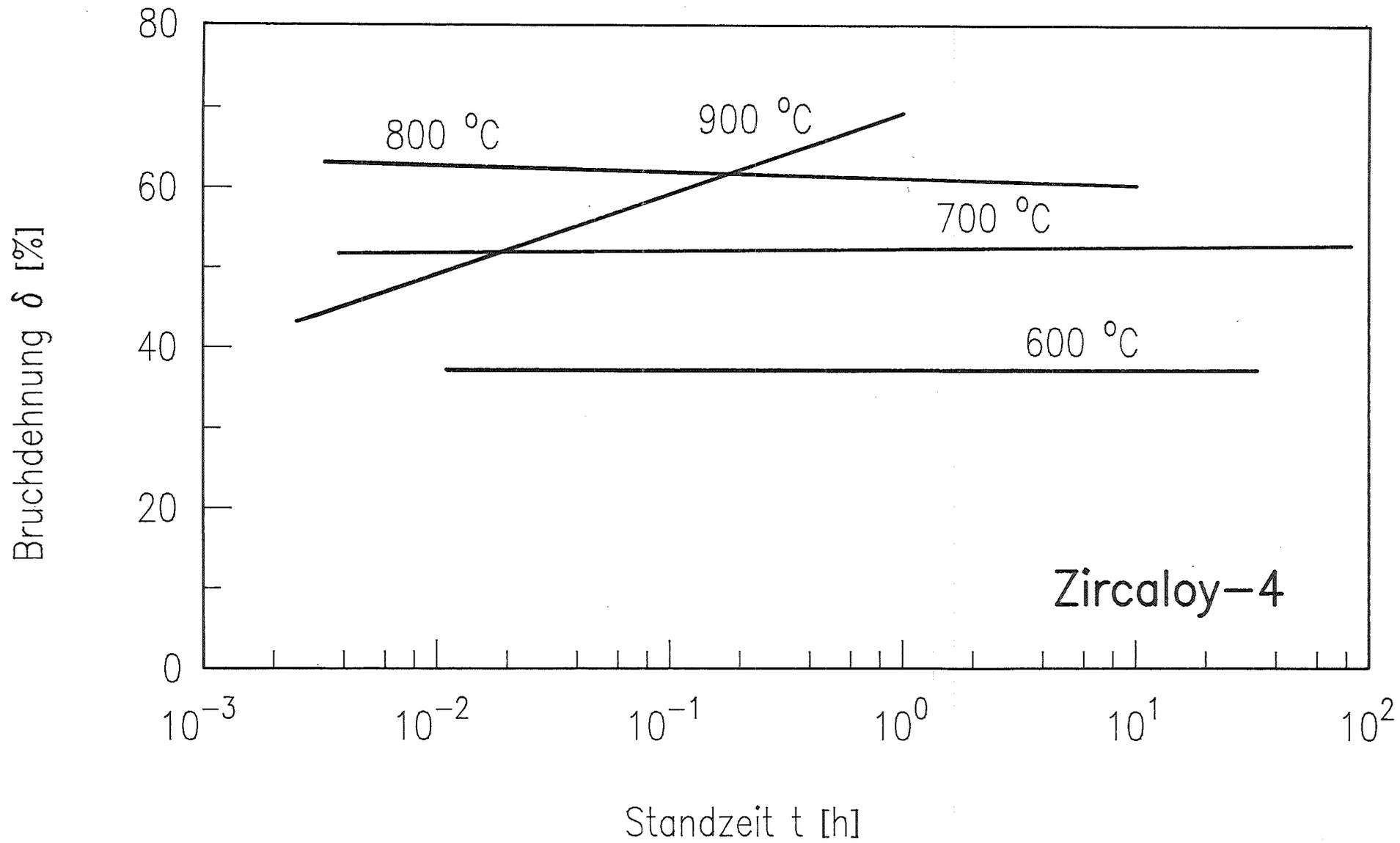


Abbildung 27: Standzeitabhängigkeit der Bruchdehnung im Temperaturbereich 600 bis 900 °C des Zircaloy-4 /53/

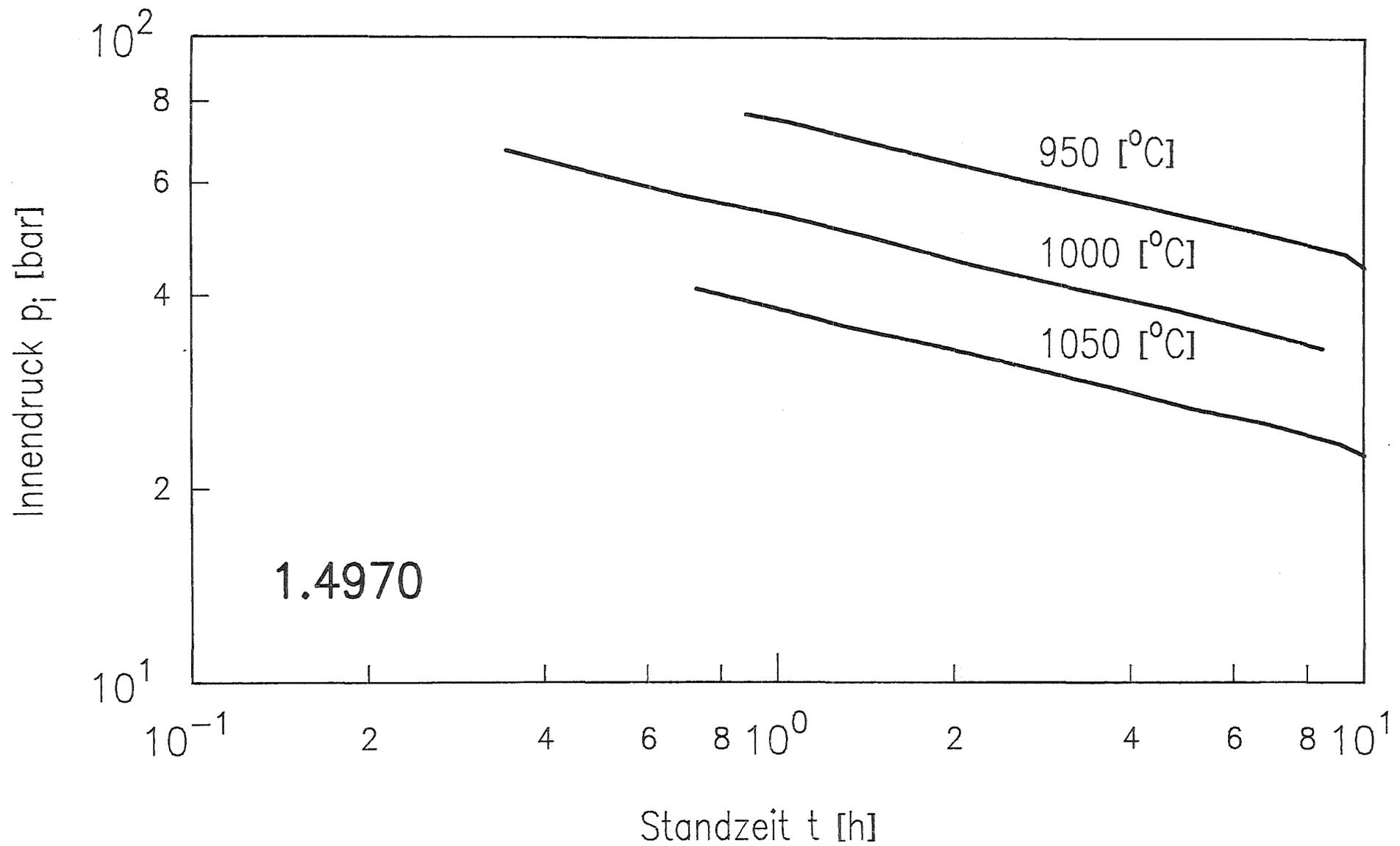


Abbildung 28: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit unter Innendruck des 1.4970 /54/

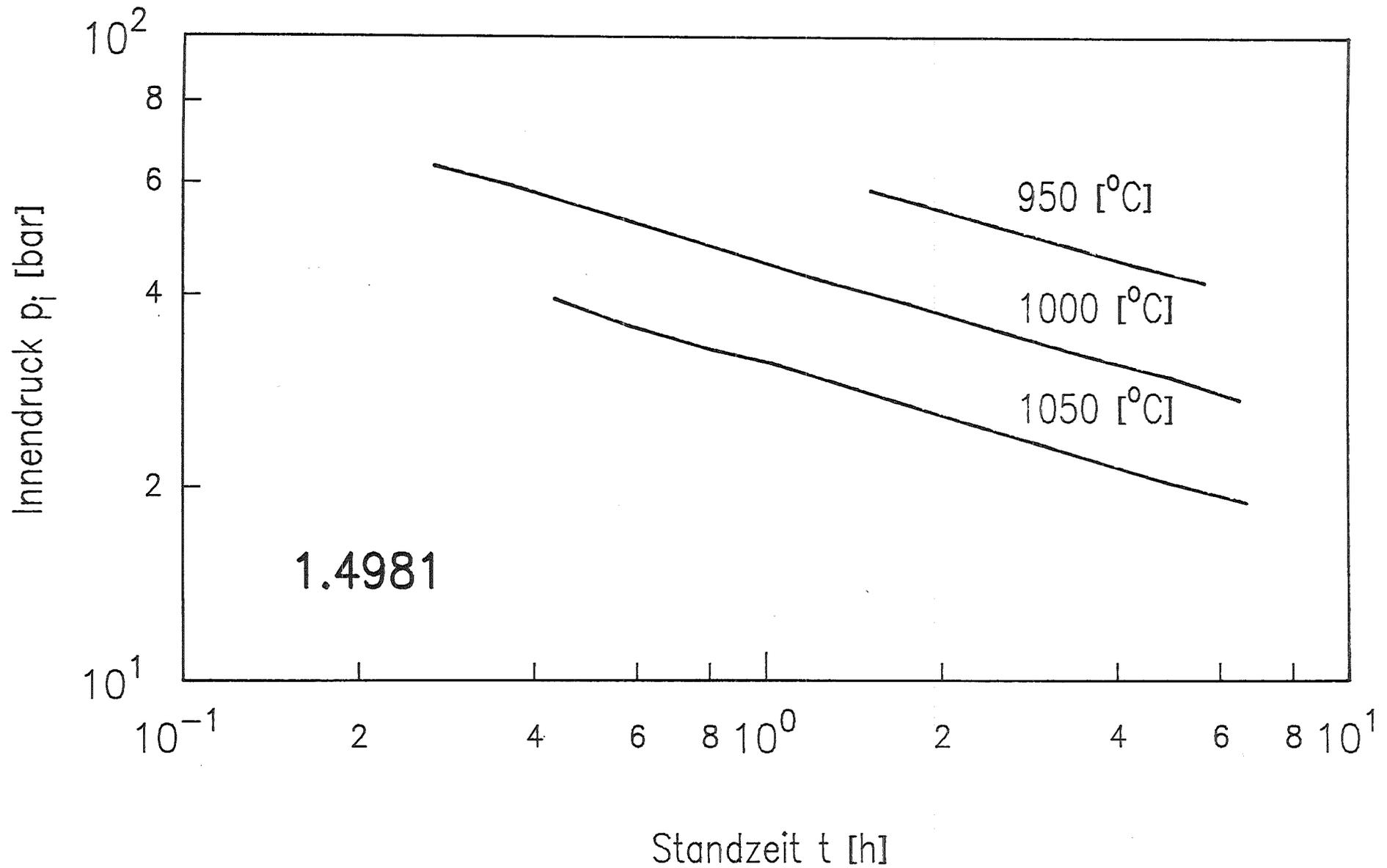


Abbildung 29: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit unter Innendruck des 1.4981 /54/

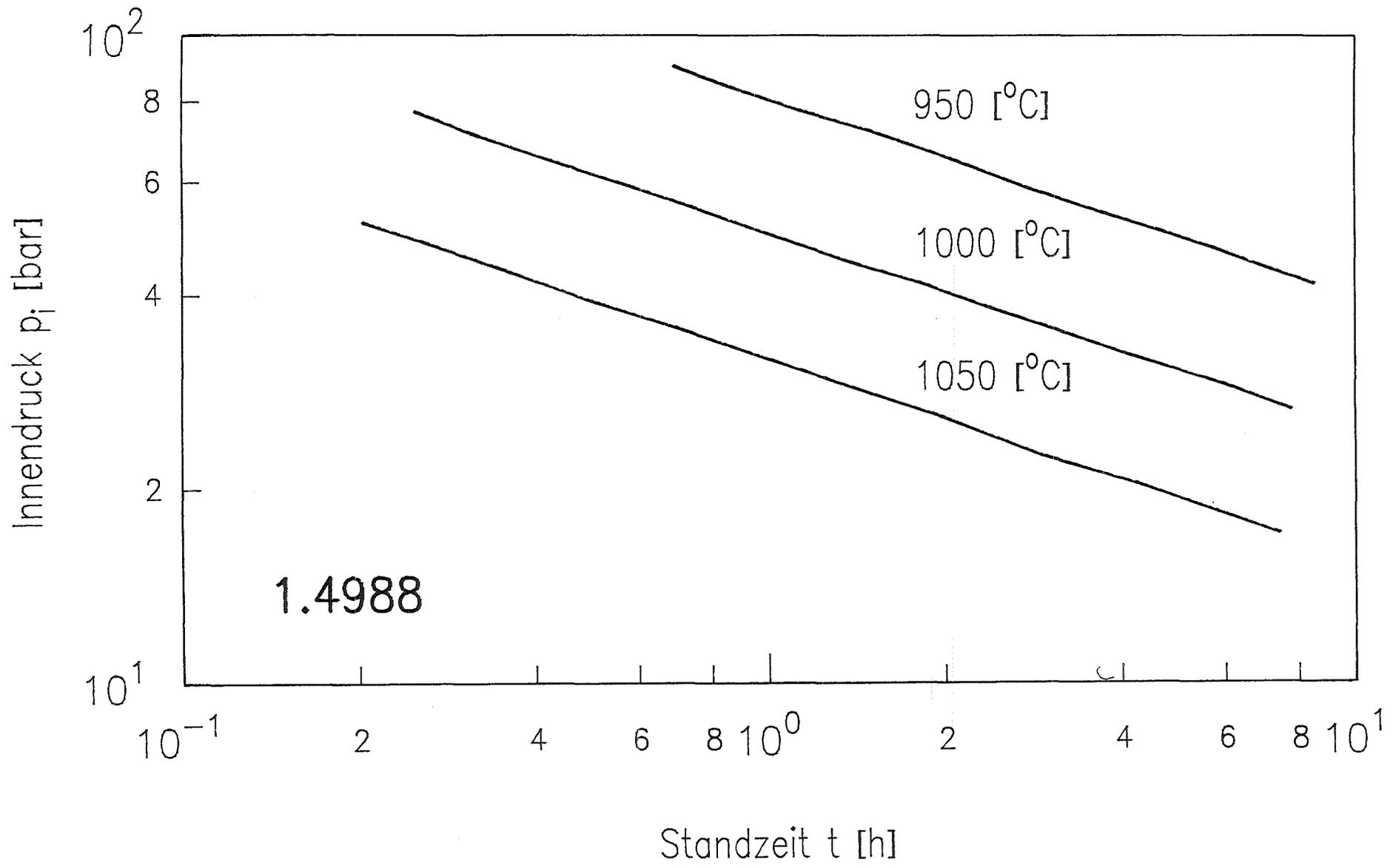


Abbildung 30: Temperaturabhängigkeit der Zeitstandfestigkeit unter Innendruck des 1.4988 /54/

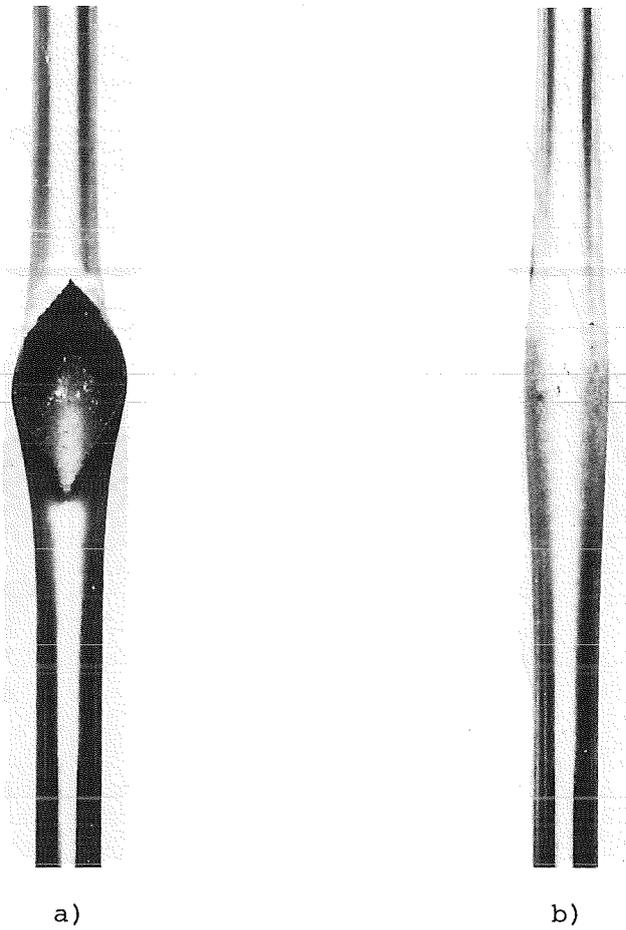
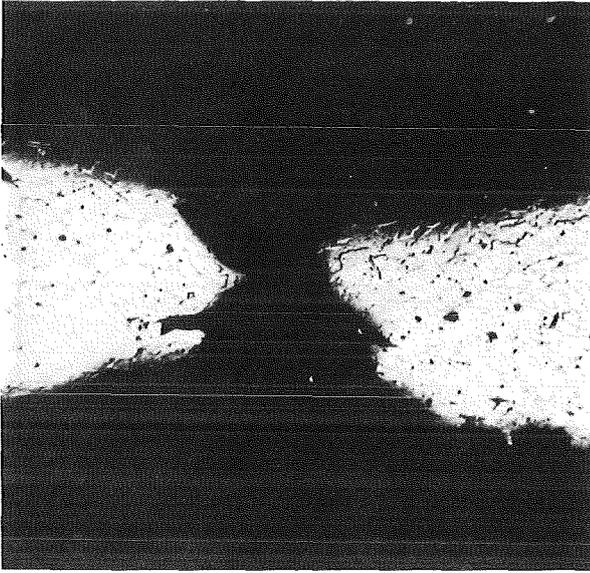


Abbildung 31: Typische Brucherscheinungen der Hochtemperaturversagensarten austenitischer Stähle /54/:

- a) Versagen durch Platzen
- b) Versagen durch Mikrorisse auf 1 cm Länge

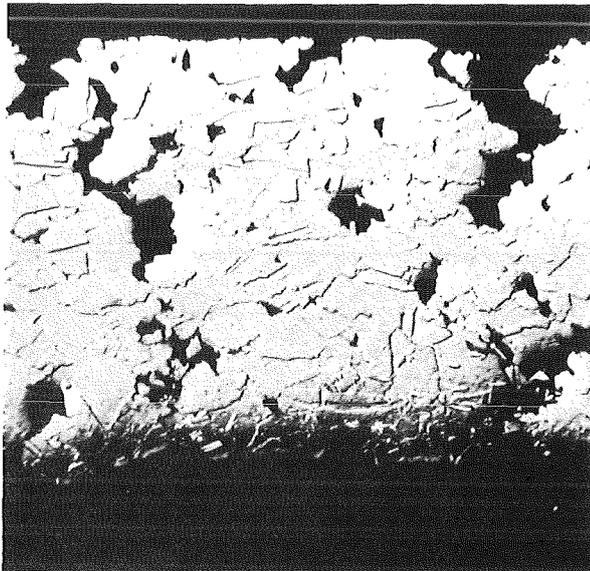


a)

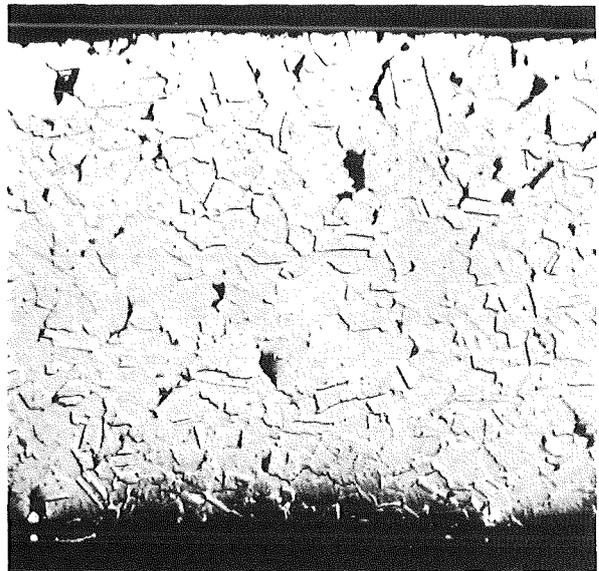


b)

Abbildung 32: Querschliff eines Hüllrohres aus 1.4970,  $T_D=1000^{\circ}\text{C}$ ,  $P_i=47,8$  bar,  $t_B=120$  min.  
Versagen durch Platzen. a) Berststelle, b) Rohrwand gegenüber der Berststelle. (Vergr.: 200x) /54/



a)



b)

Abbildung 33: Querschliff eines Hüllrohres aus 1.4988,  $T_D=1000^{\circ}\text{C}$ ,  $P_i=46,1$  bar,  $t_B=106$  min.  
Versagen durch Mikrorisse. a) Berststelle, b) Rohrwand gegenüber der Berststelle. (Vergr.: 200x) /54/

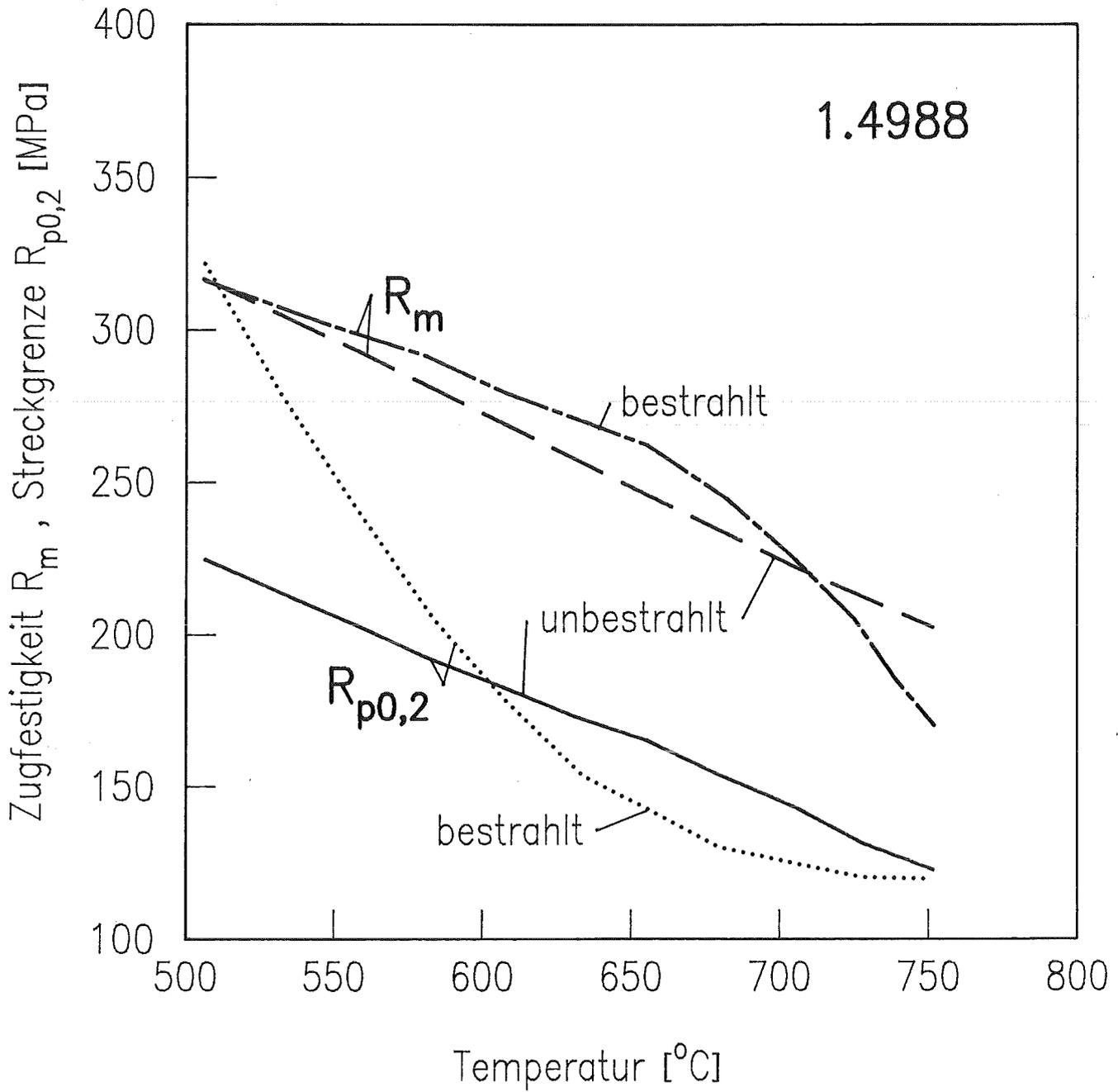


Abbildung 34: Temperaturabhängigkeit von Streckgrenze und Zugfestigkeit des 1.4988 im unbestrahlten und bestrahlten Zustand. Bestrahlungsbedingungen  $T_B = 50$  °C, thermische Neutronendosis:  $10^{21}$  n/cm<sup>2</sup> /64/

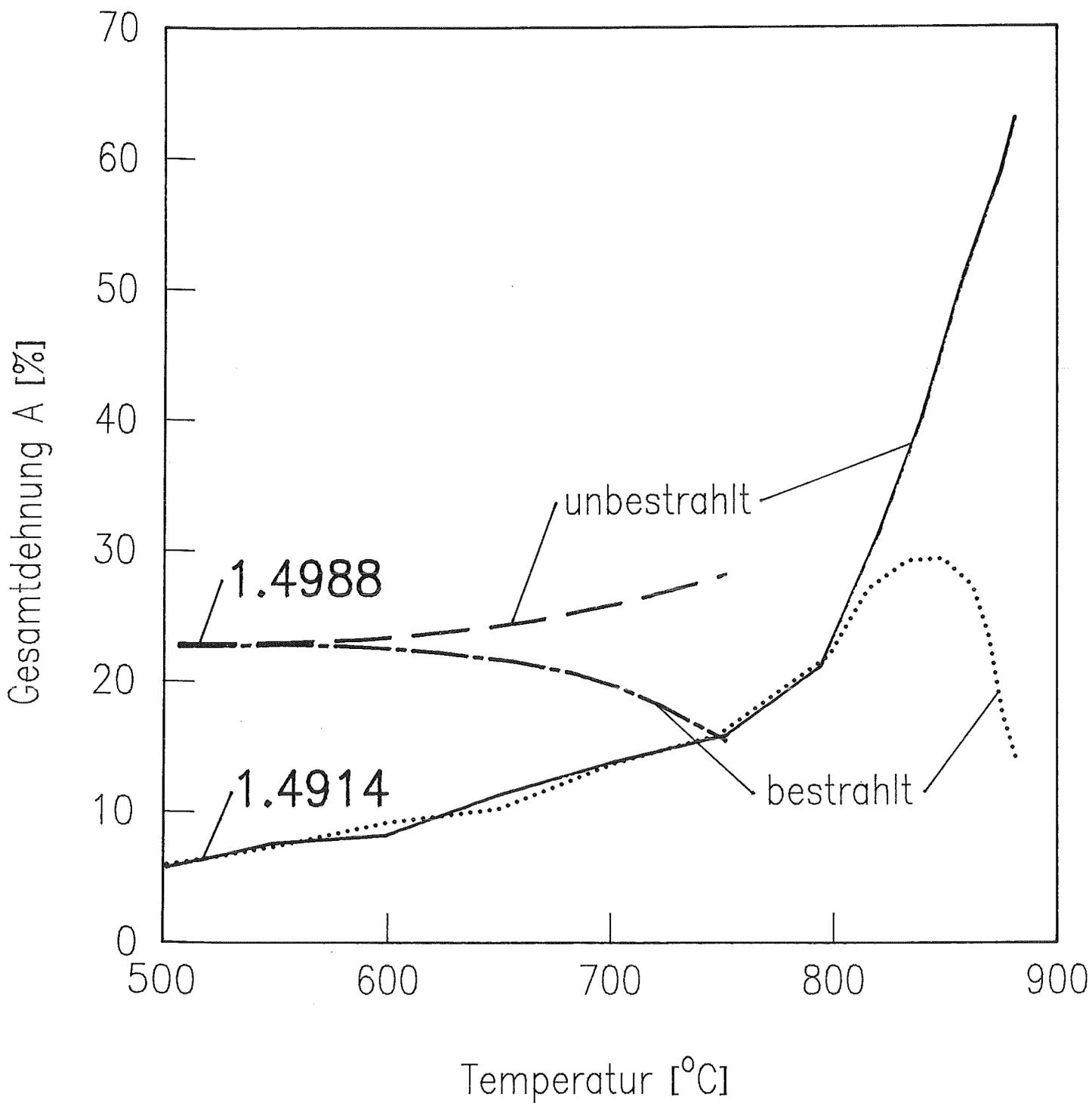


Abbildung 35: Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung des 1.4988 (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=50\text{ °C}$ ,  $n_{th}=10^{21}\text{ n/cm}^2$ ) /64/ und des 1.4914 (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=50\text{ °C}$ ,  $n_{th}=4,8 \times 10^{19}\text{ n/cm}^2$ ) /63/ im unbestrahlten und bestrahlten Zustand

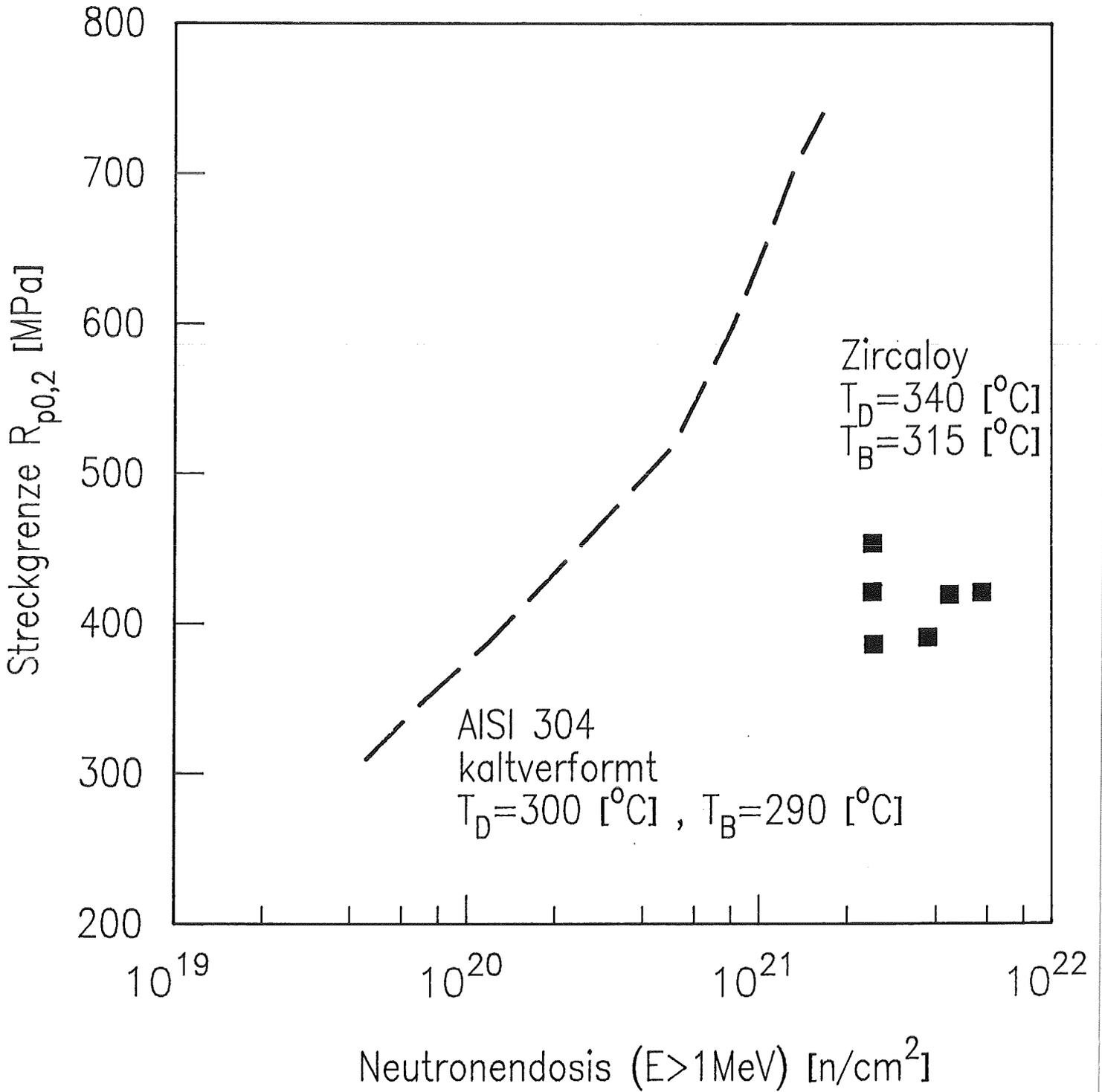


Abbildung 36: Neutronendosisabhängigkeit der Streckgrenze eines kaltverformten AISI 304 /65/ und des spannungsfrei geglühten Zircaloy /66/ bei ca. 300 °C

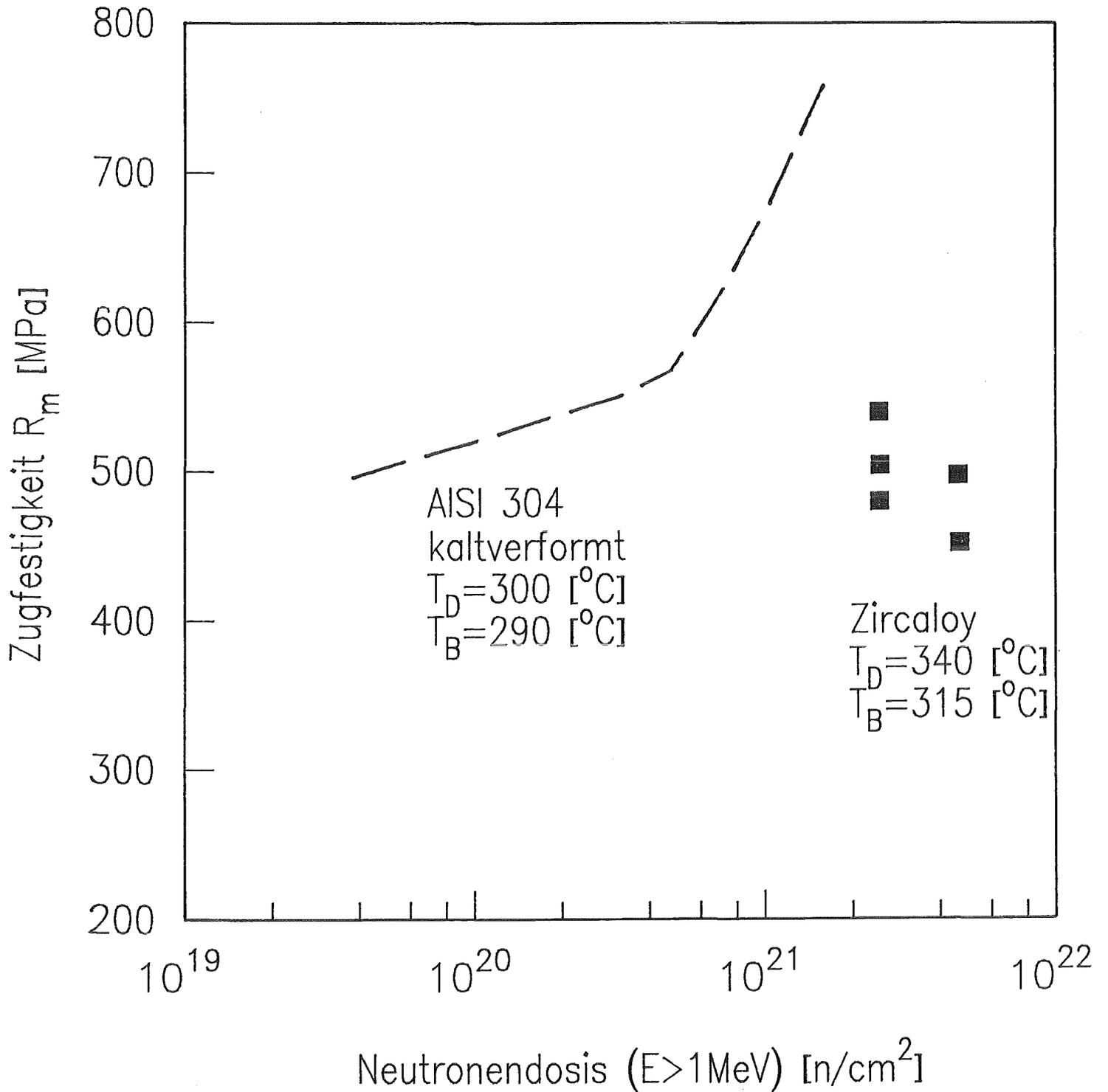


Abbildung 37: Neutronendosisabhängigkeit der Zugfestigkeit eines kaltverformten AISI 304 /65/ und des spannungsfreigelegten Zircaloy /66/ bei ca. 300 °C

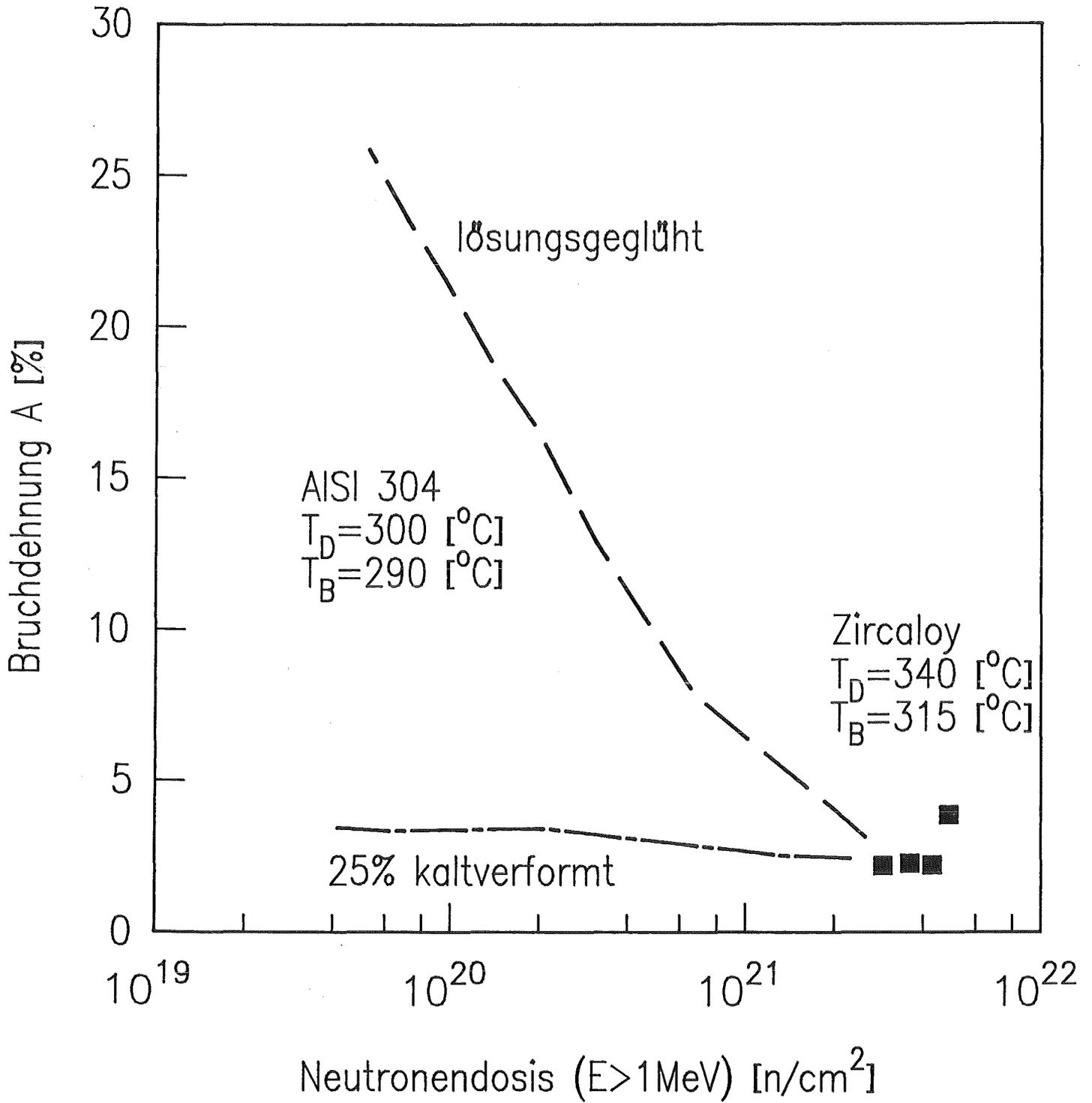


Abbildung 38: Neutronendosisabhängigkeit der Bruchdehnung eines 25 % kaltverformten und eines lösungsgeglühten AISI 304 /65/ und des spannungsfreigelegühten Zircaloy /66/ bei ca. 300 °C

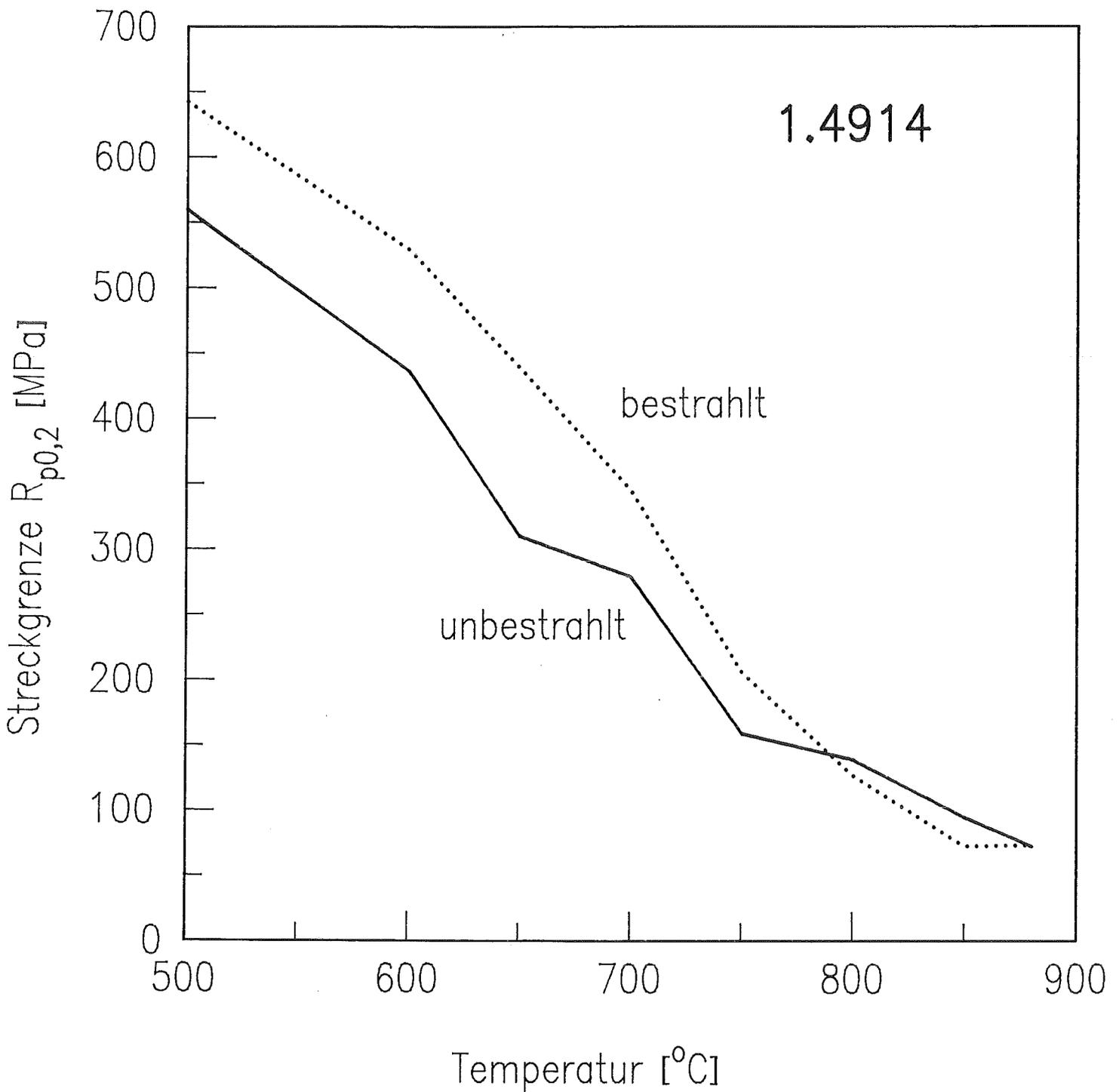


Abbildung 39: Temperaturabhängigkeit der Streckgrenze des 1.4914 im Vorbehandlungszustand: 1080 °C, 1 h/ Wasser + 700 °C, 20 h/ Luft, im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B = 50$  °C,  $n_{th} = 5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>) /67/

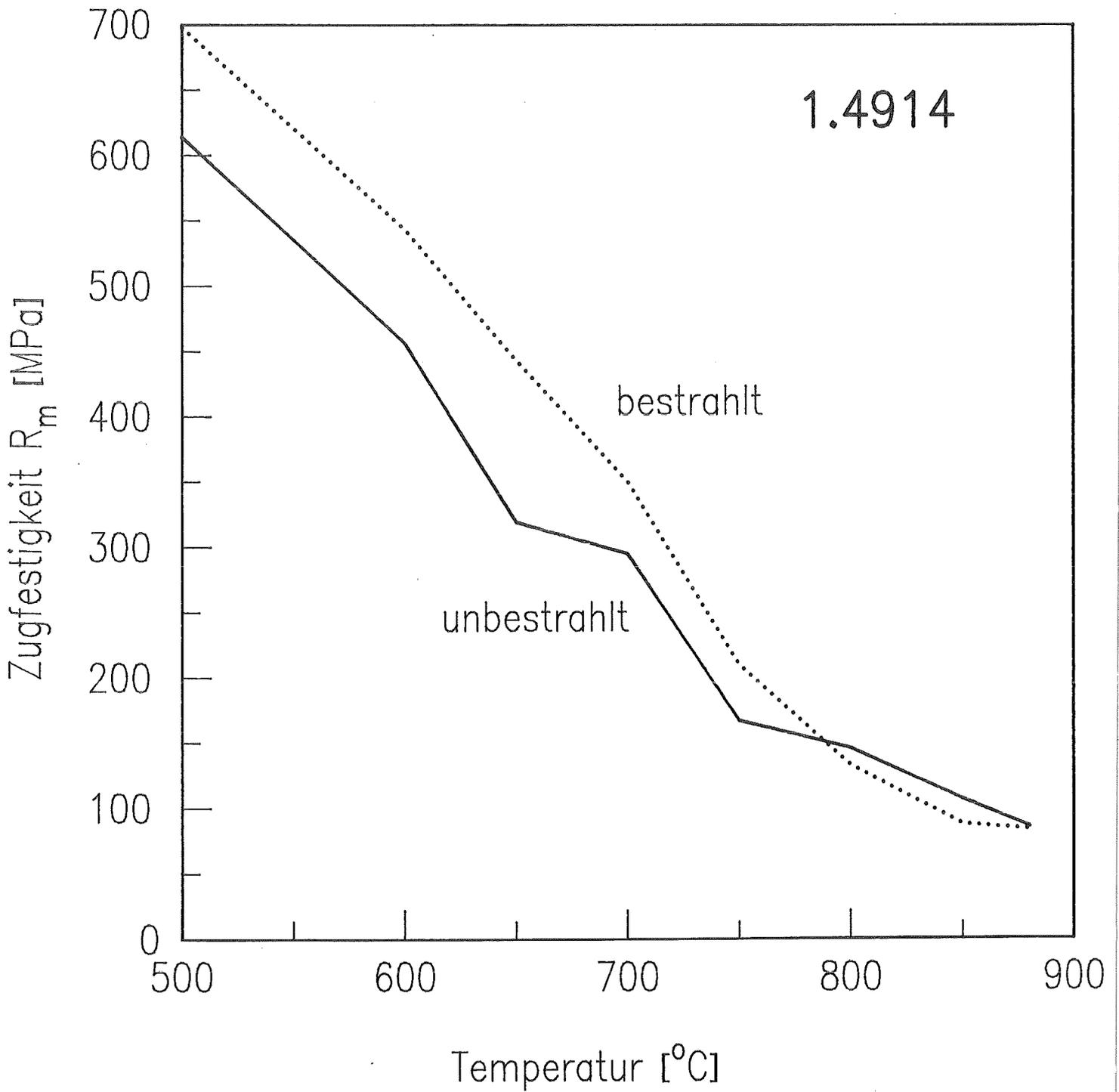


Abbildung 40: Temperaturabhängigkeit der Zugfestigkeit des 1.4914 im Vorbehandlungszustand: 1080 °C, 1h/ Wasser + 700 °C, 20 h/ Luft, im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=50^\circ\text{C}$ ,  $n_{th}=5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>) /67/

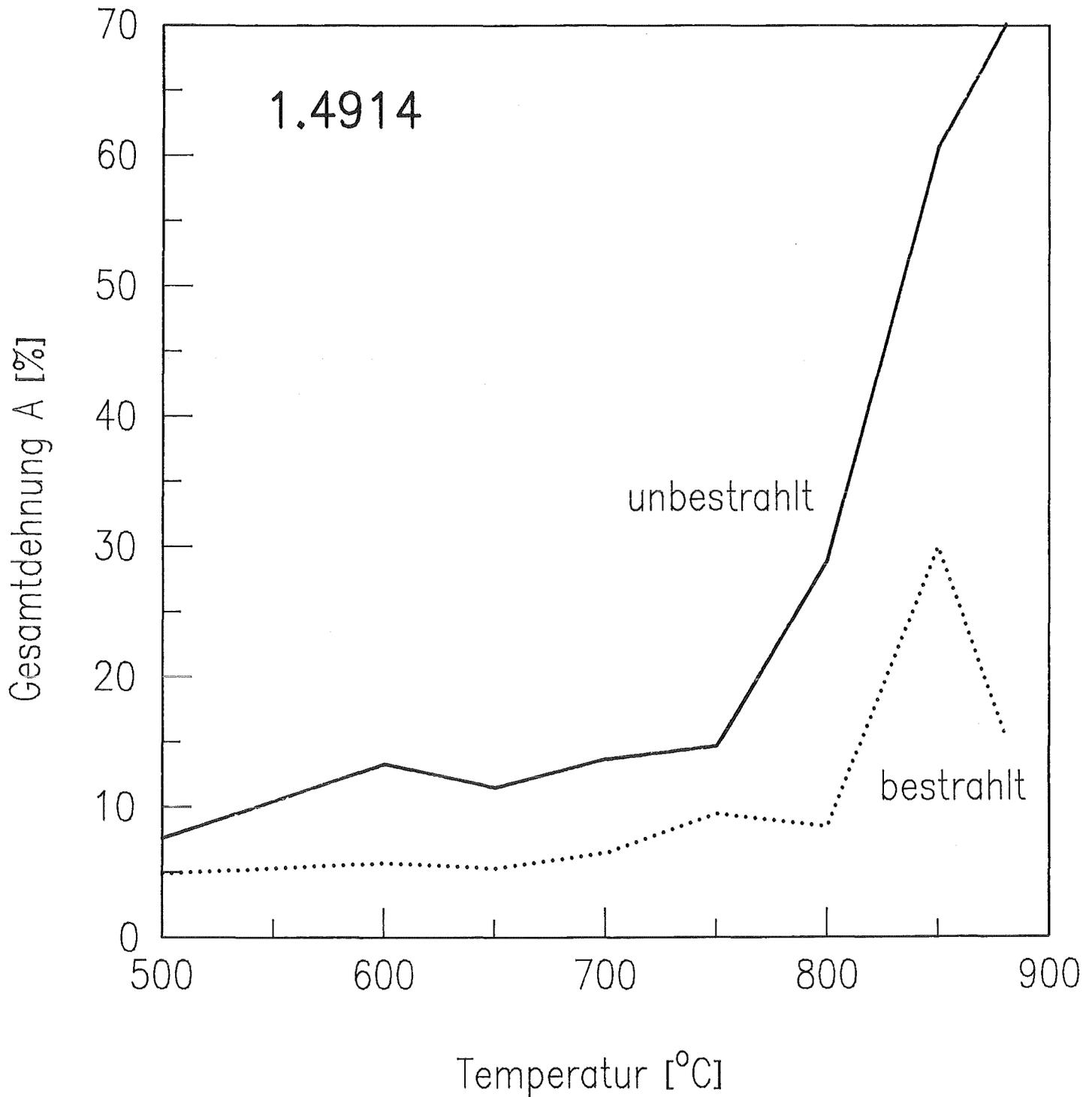


Abbildung 41: Temperaturabhängigkeit der Gesamtdehnung des 1.4914 im Vorbehandlungszustand: 1080 °C, 1h/ Wasser + 700 °C, 20 h/ Luft, im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=50$  °C,  $n_{th}=5 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>) /67/

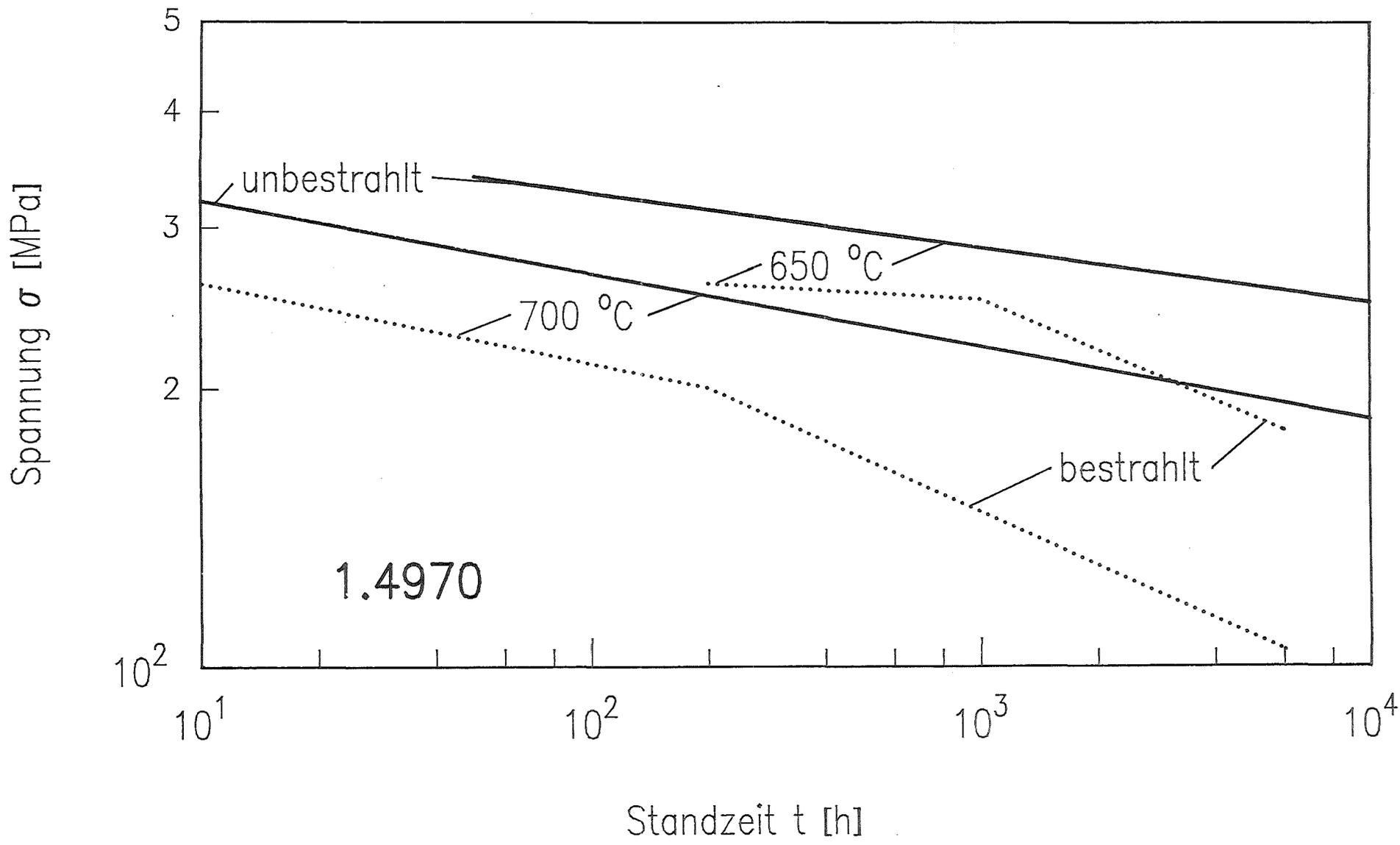


Abbildung 42: Zeitstandfestigkeit des 1.4970, Industriezustand, im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen  $T_B = 600$  °C, Neutronendosis  $6 \times 10^{21}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) bei 650 °C und 700 °C /71/

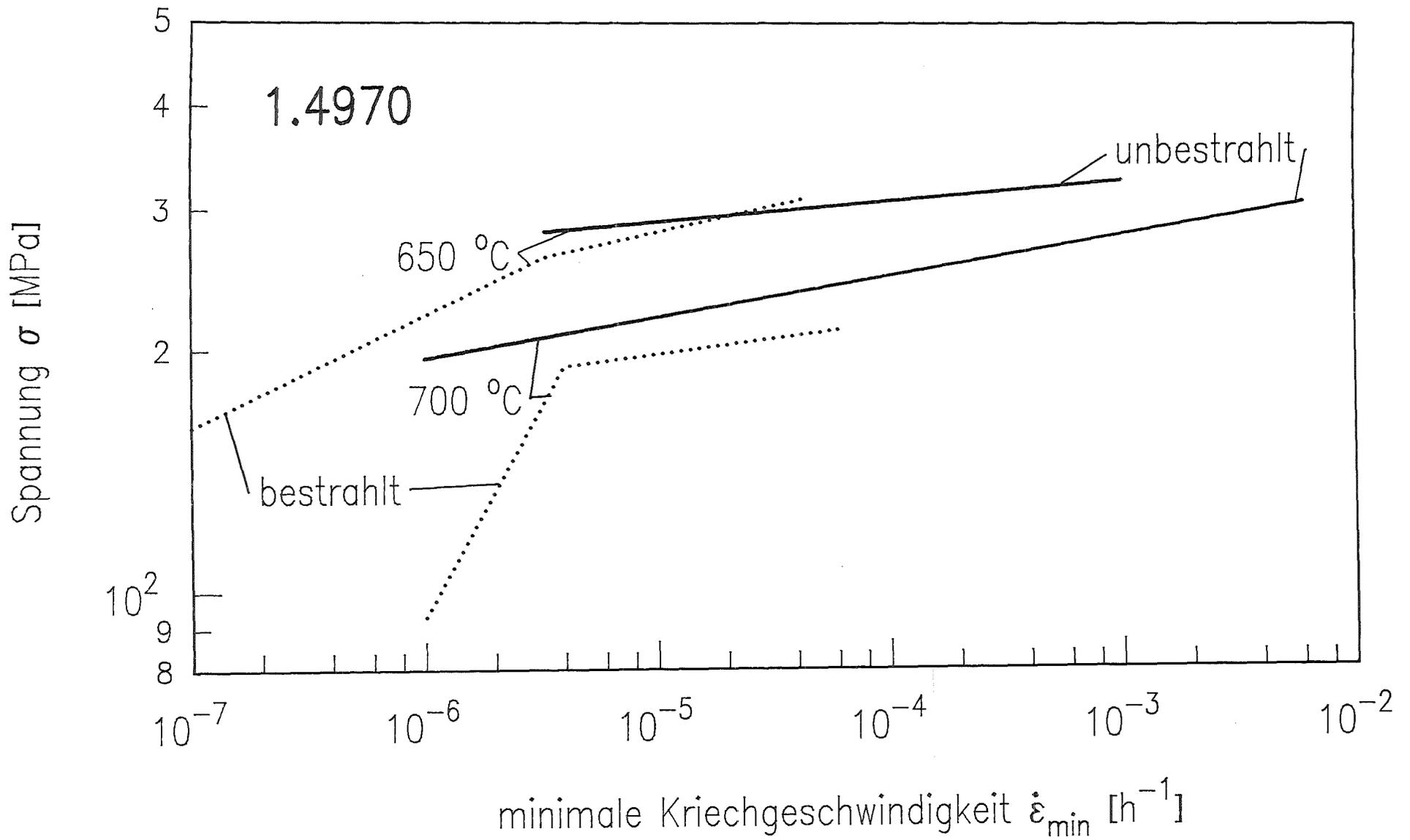


Abbildung 43: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des 1.4970 (Industriezustand) im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=600$  °C, Neutronendosis  $1 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) bei 650 °C und 700 °C /71/

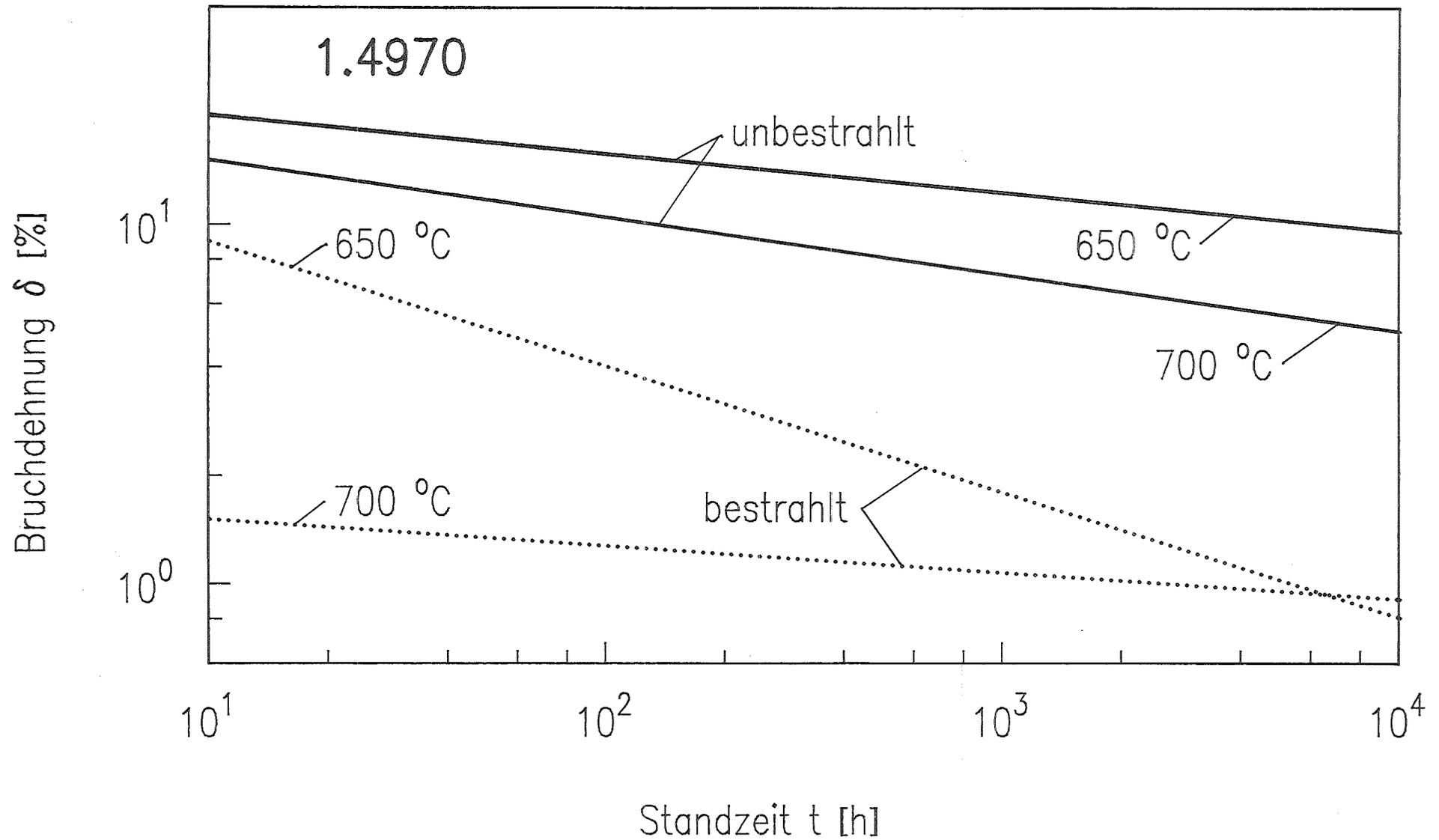


Abbildung 44: Standzeitabhängigkeit der Bruchdehnung des 1.4970 (Industriezustand) im unbestrahlten und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=600$  °C, Neutronendosis  $1 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) bei 650 °C und 700 °C /71/

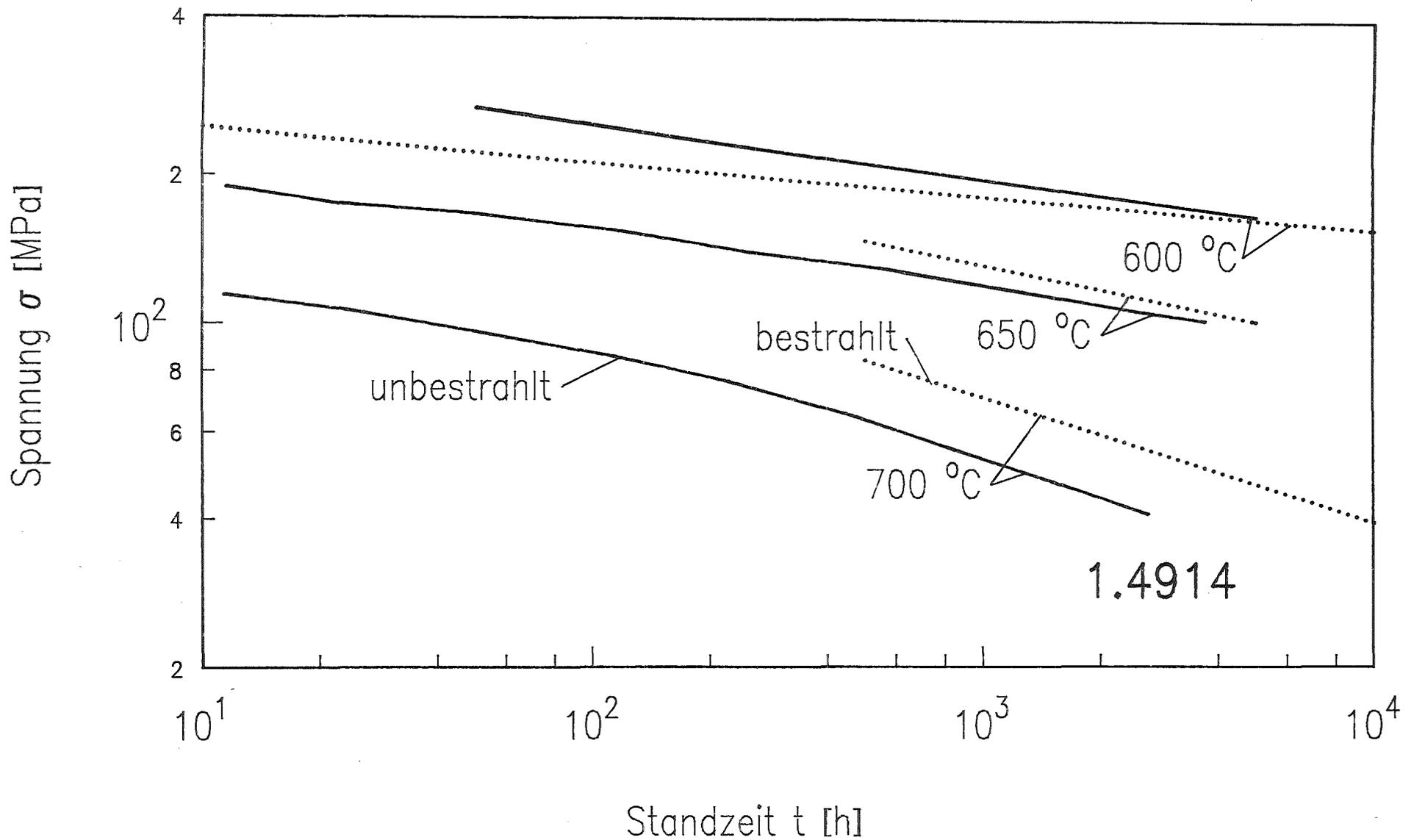


Abbildung 45: Zeitstandfestigkeit des 1.4914 ( $1060^{\circ}\text{C}$ , 30 min/Öl +  $600^{\circ}\text{C}$ , 2 h/Luft) im unbestrahlten ( $650^{\circ}\text{C}$  und  $700^{\circ}\text{C}$  aus /50/) und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=600^{\circ}\text{C}$ , Neutronendosis  $1,05 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) im Temperaturbereich 600 bis  $700^{\circ}\text{C}$  /71/

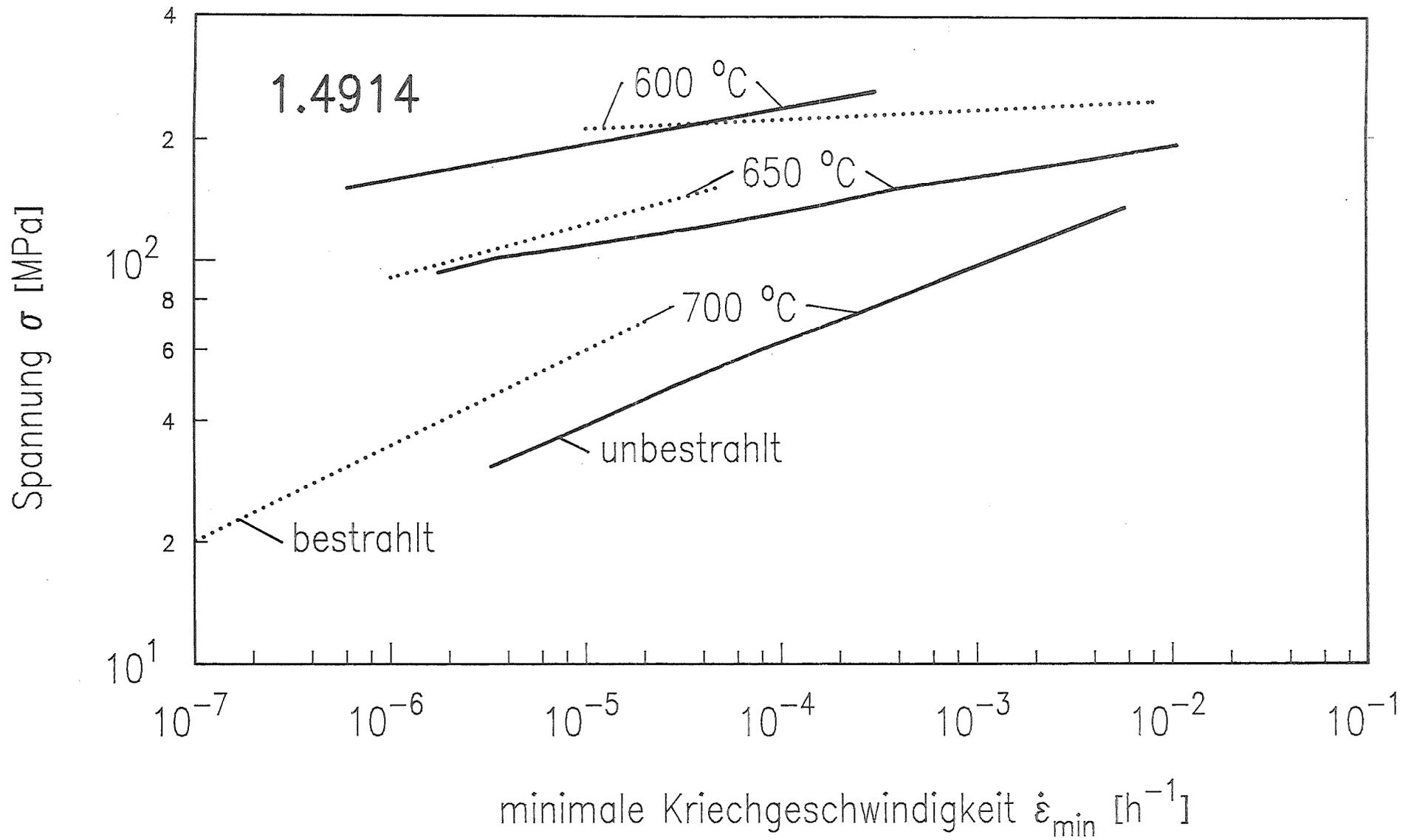


Abbildung 46: Spannungsabhängigkeit der minimalen Kriechgeschwindigkeit des 1.4914 (1060 °C, 30 min/ Öl + 600 °C, 2 h/ Luft) im unbestrahlten (650 und 700 °C aus /50/) und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B = 600$  °C, Neutronendosis  $1,05 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) im Temperaturbereich 650 bis 700 °C /71/

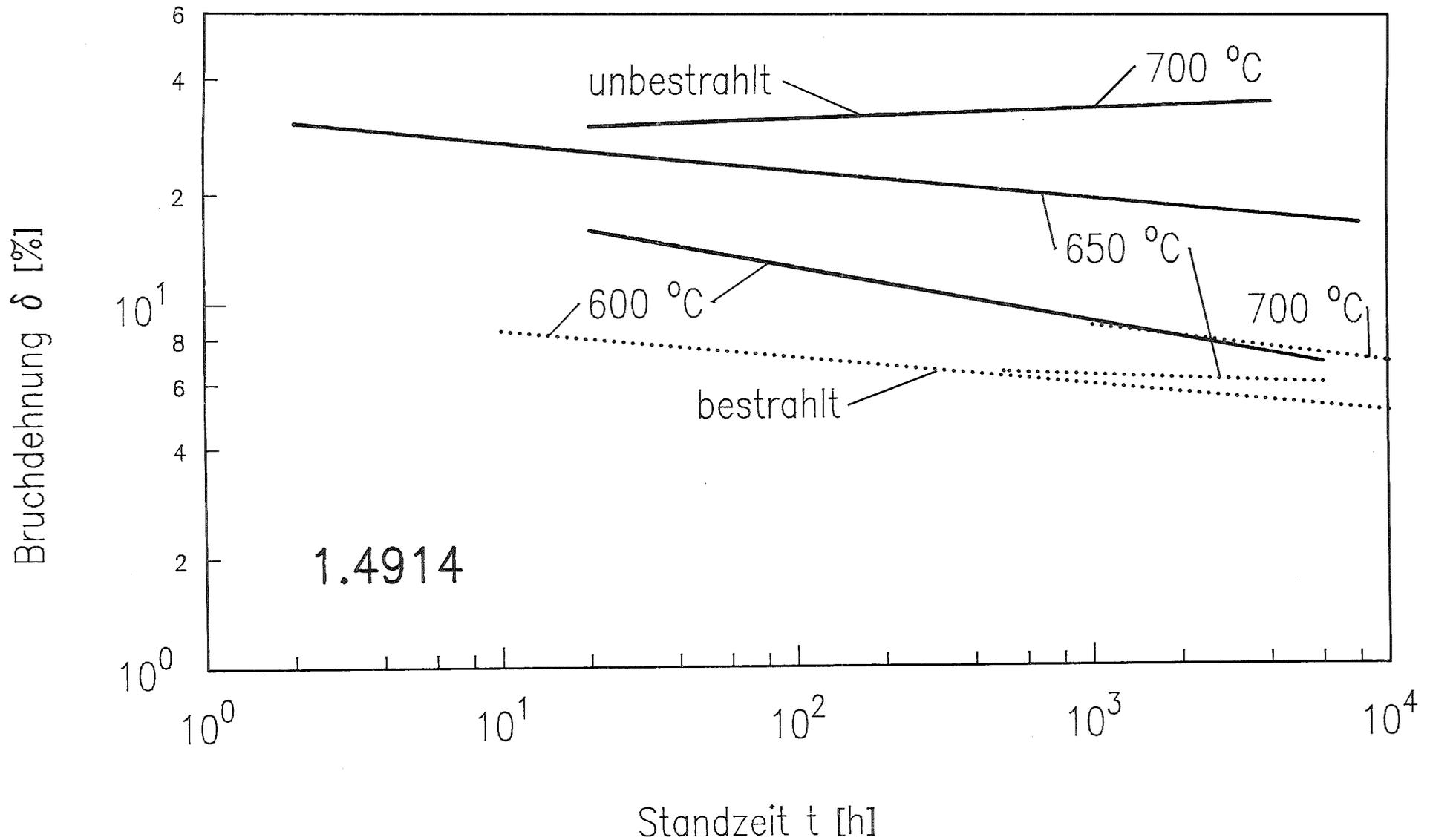


Abbildung 47: Standzeitabhängigkeit der Bruchdehnung des 1.4914 (1060 °C, 30 min/ Öl + 600 °C, 2 h/ Luft) im unbestrahlten (650 und 700 °C aus /50/) und bestrahlten Zustand (Bestrahlungsbedingungen:  $T_B=600$  °C, Neutronendosis  $1,03 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>,  $E > 0,1$  MeV) im Temperaturbereich 600 bis 700 °C

/71/