KfK 5361 Juni 1994

Ein austenitischer Stahl für Hüllrohre und Kernkomponenten natriumgekühlter Brüter mit hoher Duktilität nach Neutronenbestrahlung

L. Schäfer, H. Kempe Institut für Materialforschung Projekt Nukleare Sicherheitsforschung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe Institut für Materialforschung Projekt Nukleare Sicherheitsforschung

KfK 5361

Ein austenitischer Stahl für Hüllrohre und Kernkomponenten natriumgekühlter Brüter mit hoher Duktilität nach Neutronenbestrahlung

L. Schäfer, H. Kempe

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

Kurzfassung

Im Rahmen der Entwicklung austenitischer Stähle als Werkstoffe für Hüllrohre und Kernkomponenten Schneller Natriumgekühlter Brutreaktoren wurden zwei Chargen mit unterschiedlicher Priorität für ihre Widerstandsfähigkeit gegen Heliumversprödung (B801) und Porenschwellen (F218) konzipiert und untersucht. Beide Stähle zeigten nach Bestrahlung in Reaktoren mit schnellem bzw. gemischtem Neutronenfluß sowohl im Warmzugversuch als auch im Zeitstandversuch eine Duktilität, die um den Faktor 5 höher liegt als die des Referenzstahles 1.4970. Für beide Stähle konnte die Schwellresistenz bis 40 dpa Neutronenbestrahlung nachgewiesen werden. Für Brennstab- und Bündelbestrahlungsexperimente stehen geprüfte Hüllrohre der Charge F218 mit den Abmessungen 6 x 0.38 mm, 6.55 x 0.45 mm und 7.6 x 0.5 mm zur Verfügung.

Abstract

An austenitic steel for fuel cladding tubes and core components of LMFBR[^]s with high ductility after neutron irradiation.

Two heats of an austenitic stainless steel with different priority concerning the resistance against Helium-embrittlement (B 801) and void-swelling (F 218) had been developed and tested as a material for fuel rod claddings and core components of liquid metal fast breeder reactors. The two steels show a ductility five times higher than the reference steel 1.4970 in tensile - and creep-rupture-tests after irradiation in reactors with fast and mixed neutron flux respectively. Just so the swelling resistance had been confirmed up to 40 dpa. Checked claddings of the heat F 218 in the dimensions 6 x 0.38 mm, 6.55 x 0.45 mm and 7.6 x 0.5 mm are available for pin - and bundle irradiation experiments.

Ein austenitischer Stahl für Hüllrohre und Kernkomponenten natriumgekühlter Brüter mit hoher Duktilität nach Neutronenbestrahlung

Inhalt:

Seite

1.	Einleitung	1
2.	Versuchsmaterial und Prüfmethoden	1
3.	Bestrahlungsmethoden	2
3.1	Schwerionenbestrahlung	2
3.2	Neutronenbestrahlung im BR-2 in Mol (Belgien)	2
3.3	Bestrahlungen mit schnellen Neutronen im PFR in Dounreay (U.K.)	3
3.3.1	PFR-Transient	3
3.3.2	PFR-M2	3
3.3.3	PFR-Exchange	3
4.	Versuchsergebnisse	3
4.1	Zugeigenschaften	3
4.1.1	Bruchdehnung	3
4.1.2	Gleichmaßdehnung	4
4.1.3	Zugfestigkeit und Streckgrenze	4
4.2	Schwellen durch Porenbildung	5
4.2.1	Schwellen nach Schwerionenbestrahlung	5
4.2.2	Schwellen nach Neutronenbestrahlung	5
4.3	Bestrahlungsinduziertes Kriechen	5
4.4	Zeitstandeigenschaften	6
4.4.1	Unbestrahltes Material	6
4.4.2	Nach Neutronenbestrahlung	7
4.5	Metallografie und Mikrostrukturuntersuchungen	8
4.5.1	Metallografische Charakterisierung der Chargen	8
4.5.2	Mikrostrukturuntersuchungen	8
5.	Diskussion	9
5.1	Heliumversprödung	9
5.2	Schwellneigung	11
5.3	Chemische Zusammensetzung	12
6.	Zusammenfassung	13
7.	Literatur	14
8.	Danksagungen, Nomenklatur, Abkürzungen	16
9.	Tabellen und Bilder	19

1. Einleitung

Als Werkstoff für Hüllrohre und Kernkomponenten Schneller Natriumgekühlter Brutreaktoren sind bisher neben hochwarmfesten Nickelbasislegierungen [1] [2] [3] und Vanadinlegierungen [4] vor allem Stähle untersucht worden. Bei den Stählen gibt es wegen der allotropen Umwandlung des Kristallgitters des Eisens (bei 910 °C) kubisch flächenzentrierte, austenitische [5] und kubisch raumzentrierte, ferritische [6] Modifikationen. Beide Stahlarten haben deutliche Vor- und Nachteile, so daß sie als Alternativen anzusehen sind [7] [8]. Die austenitischen Stähle haben vor allem die Nachteile, daß sie bei Bestrahlung mit schnellen Neutronen Poren bilden, die das Volumen des Werkstoffes vergrößern, und daß sie durch Heliumansammlungen an den Korngrenzen ihre gute Verformbarkeit verlieren. In den 70-er und 80-er Jahren gab es weltweit große Bemühungen, durch Variation der chemischen Zusammensetzung und der mechanisch-thermischen Materialbehandlung, diese ungünstigen Eigenschaften der Austenite zu verbessern [9] [10] [11]. Über einen der neu entwickelten Stähle soll hier berichtet werden, weil er eine erhöhte Widerstandsfähigkeit gegen die Heliumversprödung aufweist. Daneben wurden aber auch die anderen für einen Einsatz in einem Brutreaktor relevante Eigenschaften überprüft, und es scheint so, daß dieser Stahl in allen Belangen brauchbar und noch optimierbar ist.

2. Versuchsmaterial und Prüfmethode

Das Versuchsmaterial besteht aus zwei Chargen eines austenitischen Stahles mit ungefähr folgender chemischer Zusammensetzung in Gewichtsprozent: 30 % Ni, 11 % Cr; 2 % Mo; 0,7 % V; 0,6 % Si; 0,1-0,4 % Mn; 0,01-0,02 % C und ca. 60 ppm B. Die genaue chemische Zusammensetzung ist in Tabelle 1 enthalten. Auffallend ist hier der für einen austenitischen Stahl relativ hohe Nickel- und niedere Chromgehalt. Beides zusammen soll die Schwellneigung bei hohen Temperaturen reduzieren [10]. Die beiden Chargen unterscheiden sich im wesentlichen dadurch, daß die Charge F218 mehrere Arten von Karbonitriden bilden kann, während die Charge B801 nur Vanadinnitrid bildet. Reines Vanadinnitrid wurde gewählt, weil ein früherer Stahl mit dieser Ausscheidungsart sich in Zug- und Zeitstandversuchen nach einer Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung (T_B < 100 °C; $\Phi \cdot t \approx 2 \cdot$ 10²¹ n/cm²) als relativ duktil erwiesen hat [12] [13]. Die Charge F218 mit mehreren Arten von Karbonitriden wurde sozusagen als Zwischenglied zwischen dem bisherigen Referenzstahl 1.4970 mit Titankarbidausscheidungen und der Charge B801 mit Vanadinnitrid konzipiert. Die Zugabe von Ti im Stahl F218 soll auch die Schwellneigung bei tiefen Temperaturen reduzieren. Die mechanisch-thermische Behandlung des Stahles war entweder nur kaltverformt oder zusätzlich bei 800 °C-2 h ausgelagert. Sie ist für die verschiedenen Untersuchungsarten und Probenformen in Tabelle 2 aufgeführt. Bild 2 zeigt die metallografischen Schliffbilder der unbestrahlten Chargen B801 und F218 in verschiedenen Materialbehandlungszuständen.

3. Bestrahlungsmethoden

Ein Teil der Proben wurde bestrahlt, um das Schwellverhalten zu erfassen und um in Zug- und Zeitstandversuchen die Heliumversprödung zu überprüfen. Es wurden folgende Bestrahlungen durchgeführt:

3.1 Schwerionenbestrahlung [14]

Kleine Scheibchen mit einem Durchmesser von 3 mm und einer Dicke von 0,18 mm wurden in dem Variable Energy Cychtron (VEC) der AERE in Harwell (England) bestrahlt. Zunächst wurden ca. 17,5 appm He vorimplantiert, um die He-Transmutation wärhrend einer Neutronenbestrahlung zu simulieren. Anschliessend wurde bei 575 °C (\triangleq 450 °C bei Neutronenbestrahlung) mit 46 Me V - Ni + 6 - Ionen bis zu einer Dosis von ca. 70 dpa \pm 10 % (\triangleq 64 dpa NRT) bestrahlt. Da die Schicht maximaler Schädigung bei der verwendeten Technik in ca. 3,5 µm Tiefe liegt, wurde die darüberliegende Schicht durch Vibrationspolieren abgetragen. Die Fotos der Transelektronenmikroskopie aus den Bereichen mit Poren wurden nach Porendurchmesser und -konzentration ausgewertet, und es wurde das Volumenschwellen in % berechnet.

3.2 Neutronenbestrahlung im BR-2 in Mol (Belgien)

Flachzugproben der Charge B801 mit einer Abmessung der Meßlänge von 25 x 4 x 0,5 mm (Bild 1) wurden in einer natriumgefüllten Bestrahlungskapsel des Types Mol 3B9 im Forschungsreaktor BR-2 in Mol/Belgien bei einer Temperatur von T = 650 °C bis zu einer Neutronendosis von $\Phi \cdot t_m = 8,2 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$ bestrahlt, wobei ca. 68 appm He akkumuliert wurden. Nach der Bestrahlung wurden die Zugproben in den Heißen Zellen des KfK in Zug- und Zeitstandversuchen geprüft.

3.3 Bestrahlung mit schnellen Neutronen im PFR in Dounreay (U.K.)

3.3.1 PFR-Transient

Rundzugproben der Charge B801 und F218 mit einem Durchmesser von 3 mm und einer Meßlänge von 20 mm (Bild 1) wurden in Bestrahlungsrigs bei etwa T_p \approx 650 °C bis 40 dpa und bei T_p \approx 480 °C bis 42 dpa bestrahlt.

3.3.2 PFR-M2 [15]

Hüllrohrabschnitte der Charge F218 mit und ohne Gasinnendruck mit den Abmessungen 6 x 0,38 x 25,5 mm (Bild 1) wurden bei $T_p \approx 493$ °C bzw. 420 °C bis zu 38 dpa bestrahlt. Aus der Längenänderung der Proben schließt man auf den Schwellbetrag und aus der Durchmesseränderung auf das bestrahlungsinduzierte Kriechen und das Schwellen.

3.3.3 PFR-Exchange

Als Vergleichsmaterial wurde der Stahl 1.4970 bei $T_B = 420$ °C bis 58 dpa bestrahlt. Sowohl die bestrahlten als auch die unbestrahlten Proben wurden in Zugund Zeitstandversuchen geprüft, um die Festigkeit und die Duktilität als Maß für die Heliumversprödung in Abhängigkeit von Verformungsgeschwindigkeit und Temperatur zu erfassen. Rohrproben wurden mit Gasinnendruck belastet.

4. Versuchsergebnisse

4.1 Zugeigenschaften

Die Meßdaten und Parameter der Zugversuche sind in Tabelle 2 und 3 enthalten.

4.1.1 Bruchdehnung

Im Rahmen des Entwicklungszieles eines schwellresistenten austenitischen Stahles mit möglichst hoher Verformbarkeit nach Neutronenbestrahlung kommt der Bruchdehnung im Zugversuch die höchste Bedeutung zu. Sie ist in Bild 3 für die Stähle B801, F218 und 1.4970 in Abhängigkeit von der Prüftemperatur bei einer Bestrahlungstemperatur von T_B = 650 °C dargestellt. Bis 700 °C liegt die Bruchdehung der bestrahlten Stähle B801 und F218 mit Werten zwischen 10 und 25 % extrem hoch, was als Sicherheitsreserve für Störfälle sehr vorteilhaft ist. Ab 700 °C fällt die Bruchdehnung mit zunehmender Temperatur auf einen hier unbekannten unteren Grenzwerte ab. Ein totaler Duktilitätsverlust ist nicht zu erwarten [16], was auch die Meßwerte des Stahles 1.4970 bis 800 und 900 °C nahelegen. Insgesamt sind die beiden Entwicklungslegierungen ganz entscheidend duktiler als der auch nicht gerade schlechte Stahl 1.4970. Überraschend ist der Umstand, daß besonders bei tiefen Temperaturen die Stähle B801 und F218 im bestrahlten Zustand eine höhere Bruchdehnung haben als im unbestrahlten Zustand und das sowohl nach Bestrahlung im BR-2 als auch im PFR.

4.1.2 Gleichmaßdehnung

Die Gleichmaßdehnung der beiden Stähle B801 und F218 im bestrahlten und unbestrahlten Zustand und des Stahles 1.4970 im bestrahlten Zustand ist in Bild 4 in Abhängigkeit von der Prüftemperatur dargestellt. Die Gleichmaßdehnung nimmt mit zunehmender Prüftemperatur von etwa 10 % auf etwa 0,5 % ab, vermutlich ohne diesen Wert deutlich zu unterschreiten [16]. Die beiden Stähle B801 und F218 sind unterhalb 725 °C duktiler als der brauchbare Stahl 1.4970. Ebenso wie bei der Bruchdehnung ist auch hier bemerkenswert, daß die beiden Stähle B801 und F218 (hier allerdings nur nach Bestrahlung im PFR, oder aus dem kaltverformten Zustand heraus) nach Bestrahlung eine höhere Gleichmaßdehnung aufweisen als vor der Bestrahlung. Möglicherweise ist dafür die Erholung der Kaltverformung unter Bestrahlung bei T_B = 650 °C verantwortlich.

4.1.3 Zugfestigkeit und Streckgrenze

In den Bildern 5 und 6 sind die Zugfestigkeit bzw. die 0,2-Dehngrenze der Stähle B801 und F218 im bestrahlten und unbestrahlten Zustand sowie als Vergleich der Stahl 1.4970 im bestrahlten Zustand in Abhängigkeit von der Prüftemperatur dargestellt. Die Werte der Zugfestigkeit und der Streckgrenze sind infolge Bestrahlung etwas abgefallen, und zwar wiederum bei den kaltverformten Zuständen im PFR mehr als bei dem zusätzlich ausgelagerten, was auf eine Erholung der Kaltverformung infolge der Hochtemperaturbestrahlung (mit T_B = 650 °C) schließen läßt. Der Stahl 1.4970 hat im allgemeinen eine etwas höhere Zugfestigkeit und Streckgrenze als die beiden Entwicklungslegierungen. Vermutlich ist seine Gefügestabilität höher.

4.2 Schwellen durch Porenbildung

4.2.1 Schwellen nach Schwerionenbestrahlung [14]

Die Schmelze B801 wurde im Zustand "1150 °C/0,5h + 15 % KV + 900 °C/2h" wie in Pkt. 3.1 beschrieben mit Schwerionen bestrahlt. Für die Untersuchungen im Transmissionselektronenmikroskop wurden die Proben nach dem "backthinning"-Verfahren abgedünnt, und es wurden aus den Bereichen mit Poren Fotos angefertigt, aus denen das (nur lokal vorhandene) Volumenschwellen zu 0,2 % bestimmt wurde. Das ist ein Wert, der es erlaubt, die Schmelze B801 unter den gegebenen Bedingungen (d.h. Schwerionenbestrahlung bei 575 °C bis ca. 70 dpa) als schwellresistent zu bezeichnen.

4.2.2 Schwellen nach Neutronenbestrahlung

In Tabelle 4 sind die Probenabmessungen vor und nach der Bestrahlung und die daraus berechneten prozentualen Änderungen der Probenlänge und des Probendurchmessers sowie die Versuchsparameter für die Stähle B801, F218 und 1.4970 angegeben. In Bild 7 sind die linearen Schwellbeträge (= relative Änderungen der Probenlänge bzw. des Probendurchmessers) in Abhängigkeit von den Atomverlagerungen ab 18 dpa dargestellt. Bis zu einer Dosis von 40 dpa ist kein Schwellen feststellbar, d.h. bis dahin schwellresistent ist der Stahl 1.4970 bei einer Bestrahlungstemperatur von $T_B = 420$ °C und sind die Stähle B801 und F218 bei den Bestrahlungstemperaturen $T_B \approx 500$ bzw. 650 °C. Oberhalb einer Dosis von 40 dpa ist von 40 dpa ist das Schwellen des Stahles 1.4970 eindeutig meßbar, während für den Stahl B801 nur andeutungsweise erkennbar ist, daß auch bei ihm das Schwellen hier (bei $T_B = 480$ °C) beginnt.

4.3 Bestrahlungsinduziertes Kriechen

Die wenigen für den Stahl F218 vorhandenen Daten aus dem in-pile-Kriechexperiment PFR-M2 eignen sich nicht gut zur Auswertung auf bestrahlungsinduziertes Kriechen. Trotzdem soll das vorhandene Datenmaterial hier wenigstens in Tabelle 5 dokumentiert und in Bild 8 dargestellt werden. Ausgewertet wurde die relative Durchmesserzunahme der druckbeaufschlagten Rohrproben unter Abzug der reinen Schwellbeträge. Bei den Proben mit einer Bestrahlungstemperatur von $T_B = 420$ °C handelt es sich um den ersten Bestrahlungszyklus, während bei den Proben mit $T_B = 493$ °C nur der zweite Bestrahlungszyklus auswertbar war. Die Proben mit $T_B = 493$ °C zeigen bei hohen und bei tiefen Spannungen unterschiedliche Spannungsabhängigkeiten der Dehnungszunahme. Das bestrahlungsinduzierte Kriechen hat bei niedrigen Spannungen wahrscheinlich eine lineare Spannungsabhängigkeit, während oberhalb einer Tangentialspannung von etwa $\sigma_t = 106$ MPa ein anderer möglicherweise nichtlinearer Kriechmechanismus geschwindigkeitsbestimmend ist. Für eine Einordnung und Beurteilung solche Beobachtungen sei auf die einschlägige Literatur aus dem IMF verwiesen [17] bis [19].

4.4 Zeitstandeigenschaften

Die Zeitstandeigenschaften vor und nach Bestrahlung, wie sie hier im folgenden dargestellt werden, sind für die Berechnung der Standzeiten von strahlenbelasteten Bauteilen im Reaktor unbrauchbar, weil die thermisch aktivierten und die bestrahlungsinduzierten Kriechprozesse unterschiedlicher Art sind. Lediglich zur groben Abschätzung des Lebensdauerverlustes während einer Kühlmittelstörung können die Zeitstanddaten nach Bestrahlung verwendet werden. [20] Darüberhinaus ist lediglich die Bruchdehnung im bestrahlten (und unbestrahlten) Zustand von Interesse, weil sie ein Maß für die Heliumversprödung ist. Trotzdem sollen auch die Zeitstanddaten des unbestrahlten Materials berichtet werden, weil sie für manche Zwecke zur Charakterisierung eines Stahles brauchbar sind. Sofern Zeitstandversuche an Rohrproben unter Rohrinnendruck durchgeführt wurden, wurde der Rohrinnendruck und die gemessene tangentiale Bruchdehnung entsprechend den Ausführungen im Anhang in Vergleichswerte für einachsige Belastung umgerechnet.

4.4.1 Unbestrahltes Material

Die Zeitstanddaten der unbestrahlten Schmelzen B801 und F218 sind in den Tabellen 6 und 7 enthalten und in den Bildern 9 und 10 dargestellt. Variiert wurde die Prüftemperatur ($T_p = 600$; 650; 700 und 750 °C) und die Probenform (Rund-, Flach- und Rohrproben). In Bild 9 ist (nach technischer Anschauung) die Zeitstandfestigkeit σ in Abhängigkeit von der Standzeit t_m dargestellt. Ebenso kann man aber auch die Standzeit in Abhängigkeit von der angelegten Spannung ablesen. Die Zeitstandergebnisse der Chargen B801 und F218 weichen nicht voneinander ab. Lediglich bei $T_p = 700$ °C streuen die Flachproben aus Charge B801 stark. In Bild 10 ist die Bruchdehnung in Abhängigkeit von der Standzeit dargestellt. Obwohl die Werte zum Teil stark streuen, ist doch feststellbar, daß die Bruchdehnung der Schmelze B801 wesentlich höher ist als die der Charge F218. Verglichen mit dem Referenz-Hüllrohrstahl des SNR-300 (1.4970) sind diese Entwicklungslegierungen weniger fest, dafür aber ist die Charge B801 generell und die Charge F218 bei einer Prüftemperatur von $T_p = 600$ °C duktiler als der Stahl 1.4970.

4.4.2 Nach Neutronenbestrahlung

Die Ergebnisse der Zeitstandversuche an bestrahlten Proben sind in Tabelle 8 enthalten und in den Bildern 11 und 12 dagestellt.

Bild 11 zeigt die Standzeit in Abhängigkeit von der Prüfspannung für die Prüftemperaturen $T_p = 650$ °C und 700 °C. Bei einer Prüftemperatur von $T_p = 650$ °C ist die Standzeit bzw. die Zeitstandfestigkeit der Charge F218 gegenüber dem unbestrahlten Zustand abgesunken, während sie bei einer Prüftemperatur von $T_p = 700$ °C bei den beiden Chargen B801 und F218 unverändert geblieben ist. Die Standzeit des Stahles 1.4970 liegt bei einer Prüftemperatur von $T_p = 700$ °C sowohl nach einer Bestrahlung im gemischten Fluß (BR-2) als auch im schnellen Fluß (PFR) am unteren Ende des jeweiligen Streubandes der Meßwerte. Lediglich bei einer Prüftemperatur von $T_p = 650$ °C ist die Zeitstandfestigkeit des Stahles 1.4970 höher als die der Legierung F218, was allerdings auch zum Teil auf die unterschiedliche Bestrahlungstemperatur zurückgeführt werden kann.

Bild 12 zeigt die Zeitstand-Bruchdehnung in Abhängigkeit von der Prüfspannung für die Prüftemperaturen $T_p = 650$ °C und 700 °C. Die Bruchdehnung nimmt in dem gemessenen Bereich mit der Prüfspannung zu. Bei oder unterhalb von $\sigma = 100$ MPa dürfte sich entsprechend früherer Messungen [16] ein Duktilitätsminimum befinden. Bei $\sigma = 350$ bis 400 MPa erreicht die Bruchdehnung die im Zugversuch (Bild 3) bei 650 bzw. 700 °C gemessenen Werte. Die Bruchdehnungen der Chargen B801 und F218 sind im Zeitstandversuch wie auch schon im Zugversuch eminent hoch. Dies gilt unabhängig davon, ob es sich um eine Bestrahlung im gemischten (BR-2) oder im schnellen (PFR) Fluß handelt, ob die Bestrahlungstemperatur relativ hoch (650 °C) oder relativ niedrig (~ 475 °C) ist, ob die Prüftemperatur 650 °C oder 700 °C beträgt und ob die Proben Flach- oder Rundproben sind. Als Vergleich zu dem, was bisher als gut und brauchbar galt, ist der Stahl 1.4970 im gleichen Bild dargestellt. Seine Bruchdehnung ist etwa um den Faktor 5 niedriger als die der beiden Entwicklungslegierungen.

Die Untersuchungen dienen zwei Zielen: einmal der weiteren Charakterisierung der beiden Chargen B801 und F218 und zum anderen der Suche nach den Ursachen für die hohe Duktilität nach Bestrahlung.

4.5.1 Metallografische Charakterisierung der Chargen

Die Charge B801, die im Materialbestrahlungsexperiment Mol 3B9 eingesetzt war, hatte im Zustand LG = 1150 °C /1h + KV = 15-20 % + A = 800 °C/2h vor der Bestrahlung eine Härte von HV 0.05 = 227 und nach der Bestrahlung bei T_{B} = 650 °C eine Härte von HV 0.05 = 179. Anscheinend wird durch die Bestrahlung bei $T_B = 650$ °C die noch nach dem Anlassen bei $T_A = 800$ °C verbliebene restliche Kaltverformung abgebaut. Der mittlere Korndurchmesser nach ASTM beträgt 32 \div 65 mm und die mittlere Korngröße nach ASTM beträgt 5 \div 7, was dem Feinkornbereich entspricht. Die metallografischen Schliffbilder in Bild 2a) und b) zeigen die unbestrahlten Materialbehandlungszustände a) = $1100 \degree C/1h + 15-20 \%$ KV und b) = 1100 °C/1h + 15-20 KV + 800 °C/2h. Auffallend ist, daß die Korngröße sehr ungleichmäßig ist. Anscheinend hat stellenweise beim Lösungsglühen schon bei 1150 °C die Grobkornbildung eingesetzt, obwohl sie nach einer anderen Versuchserie erst ab 1200 °C zu erwarten war. Die Dichte der Zwillingskorngrenzen ist relativ gering. Die Bruchart nach Bestrahlung ist gemäß dem metallografischen Schliffbild in Bild 13a transkristallin und gemäß der Rasterelektronenmikroskopie in Bild 13b duktil [23]. Die Charge F218 hat in den beiden Materialbehandlungszuständen folgende Härte:

a.) $LG = 1100 \degree C + KV = 30 \% + R = 950 \degree C/30'$: HV 0,5 = 133

b.) $LG = 1100 \degree C + KV = 30 \% + R = 950 \degree C/30' + KV = 15 \%$: HV 0,5 = 220. Die metallografischen Schliffbilder in Bild 2a) und b) zeigen die unbestrahlten Materialbehandlungszustände. Die mittleren Korndurchmesser betragen etwa 30 \div 60 µm, was einer Korngröße nach ASTM von 5 \div 7 entspricht. Die Zwillingsdichte scheint für einen austenitischen Stahl nicht ungewöhnlich niedrig zu sein.

4.5.2 Mikrostrukturuntersuchungen

Nach der in der Diskussion (Pkt. 5.1) erläuterten Modellvorstellung sollte die hohe Duktilität nach Bestrahlung auf eine geringe Dichte der Zwillingskorngrenzen und auf feinverteilte Vanadinnitride zurückzuführen zu sein. Die Zwillingsdichte ist in Pkt. 4.5.1 angesprochen worden. Die Verteilung der Vanadinnitride in der Charge B801 wird in Bild 14a gezeigt. Die gut sichtbaren Ausscheidungen sind durch Umformung zerstörte Primärausscheidungen, die hier uninteressant sind, weil sie unwirksam sind. Interessant sind die sicher auch vorhandenen, aber wahrscheinlich wegen ihrer Feinheit unsichtbaren Ausscheidungen aus dem festen Zustand. Diese würde man, wenn sie zu grob wären bevorzugt, (oder auch gerade nicht) an den Korngrenzen erwarten. Auf dem Bild 14a sind aber keinerlei Korngrenzen erkennbar, obwohl, wie Bild 14b zeigt, viele vorhanden sind. Das ist ein gutes Symptom für die Feinheit der Vanadinnitrid-Ausscheidungen. Eventuell sind aber die kleinen hellen Pünktchen im Bild 14a nicht nur Untergrundrauschen, sondern auch Vanadin-Signale. Die in Bild 15 sichtbaren kleinen dunklen Ätzgrübchen sind eventuell die Spuren ehemaliger Vanadinnitridausscheidungen. Sie sind nicht selten linienförmig angeordnet, was auf deren Ausscheidung an Versetzungen schliessen läßt. Nachfolgende Untersuchungen am TEM werden hier Klarheit schaffen.

5. Diskussion

5.1 Heliumversprödung

Das auffallendste (und wegen seiner Einmaligkeit auch wertvollste) Merkmal der beiden untersuchten Entwicklungslegierungen B801 und F218 ist die hohe Duktilität nach Neutronenbestrahlung. Eine hohe Duktilität nach Neutronenbestrahlung kann bei sonst durchschnittlichen Eigenschaften ein entscheidendes Kriterium für die Auswahl eines Werkstoffs für Hüll- und Kernstrukturen sein. Daher soll hier diskutiert werden, wie dieses Phänomen erklärbar ist. Die ursprüngliche Modellvorstellung zur Erzeugung hoher Duktilitäten war einfach und lautete: Vandinnitrid hat gegenüber den in austenitischen Stählen üblichen Karbiden und Nitriden der Stabilisierungselemente (z.B. Nb, Ti) eine hohe Keimbildungs- und Oberflächenenergie [21]. Es wird sich daher bevorzugt an Versetzungen und an Fehlstellenclustern, die bei der Neutronenbestrahlung entstehen, ausscheiden. Da diese Fehlstellen überall feinverteilt entstehen, werden so auch die Vanadinnitride vorliegen. Diese feindispersen Vanadinnitride mit Korndurchmessern von weniger als 10 nm wachsen nur sehr träge und sind daher relativ stabil [12]. Man kann nun annehmen, daß sie während der Bestrahlung als Heliumfallen wirken und so verhindern, daß das entstehende Helium zu den Korngrenzen wandert, wo es Heliumblasen bilden würde, die einen spröden Korngrenzenbruch begünstigen. Möglicherweise sind aber nicht nur die Heliumfallen, sondern auch die kohärenten Zwillingskorngrenzen für die Duktilität bedeutungsvoll. Nach C. Wassilew [22] erzeugen sie mit abgleitenden Versetzungen Leerstellen, die sie dann

auch noch ohne großen Energieaufwand zu den Großwinkelkorngrenzen transportieren können. Dort können daraus, besonders wenn Helium an den Korngrenzen vorhanden ist, Hohlräume, oder mit Helium stabilisierte Blasen, entstehen, die zusammenwachsen und Korngrenzenrisse begünstigen, die wiederum zu verformungsarmen Brüchen führen. Dieser Mechanismus könnte in der Charge B801 auch wirksam sein, zumal eine niedrigere Konzentration an Zwillingskorngrenzen mit viel weniger Anrissen an Korngrenzen und Tripelpunkten im Vergleich zu anderen austenitischen Stählen beobachtet wurde [23].

Mit diesem Modell könnte man die Duktilität der Charge B801 erklären. Die Charge F218 dagegen bildet in Konkurrenz zu den Vanadinnitriden noch Titan- und Niob-Karbonitride mit ganz anderen Eigenschaften. Möglicherweise aber ist in diesem Gesamtangebot an Ausscheidungen eine ausreichende Anzahl von solchen vorhanden, die so wie die Vanadinnitride oder zusammen mit ihnen als feindisperse Heliumfallen wirksam sind. Da zusätzlich auch keine besonders niedrige Dichte an Zwillingskorngrenzen beobachtet wurde, ist es eher erstaunlich, daß die Charge F218, die so wenig den Modellvorstellungen entspricht, eine so gute Duktilität nach Bestrahlung hat. Andererseits ist es erfreulich, daß die hohe Duktilität nach Bestrahlung nicht nur bei einer modelltreuen Charge (B801), sondern auch bei einer bezüglich der Schwellresistenz optimierten Charge (F218) erreicht wurde. Auf diese Weise ist auch der in dem Patent Nr. 3902634 beanspruchte Legierungsbereich (s. Tabelle 1) vertretbar. Zusätzlich zur Legierungszusammensetzung wurden alle Parameter die einen Einfluß auf die Duktilität haben könnten variiert:

1.) Das Neutronenspektrum der Bestrahlung.

Es wurde eine anwendungstypische Bestrahlung im schnellen Fluß (PFR) und eine modellkritische Bestrahlung im gemischten Fluß (BR-2, Mol) mit hoher Heliumerzeugung gewählt.

2.) Die Bestrahlungstemperatur

Zusätzlich zu der kritischeren hohen Bestrahlungstemperatur von $T_B = 650$ °C im BR-2 und im PFR wurde noch eine niedrigere Bestrahlungstemperatur von $T_B \sim 475$ °C im PFR gewählt, um zu zeigen, daß die Versprödungsunterdrückung bei $T_B = 650$ °C vollständig gelungen ist und leichtere Bedingungen, wie sie niedrigere Diffusionsgeschwindigkeiten darstellen, auch keine noch besseren Erfolgen erzielen können.

3.) Die Prüftemperatur

Sie wurde im Zugversuch (s. Bild 3) zwischen $T_p = 650$ °C und $T_p = 850$ °C variiert. Bis 750 °C sind die Chargen B801 und F218 gut duktil. Sehr hohe Prüftemperaturen aber sind ein "gnadenloser" Test auf Heliumversprödung. Bei Prüftemperaturen von $T_p = 850$ °C genügen schon kleinste Heliummengen an den Korngrenzen, die garnicht dorthin transportiert wurden, sondern dort schon entstanden sind, um das Bruchgeschehen mehr oder weniger zu verspröden. Dies ist unabänderlich und somit auch hier geschehen, allerdings sehr viel schwächer als beim Stahl 1.4970.

4.) Die Prüfspannung

Je niedriger die Prüfspannung ist, desto mehr verlagert sich die Verformung auf die ohenhin schwachen Korngrenzen, und die Bruchdehnung nimmt ab (s. Bild 12). In den meisten Fällen durchläuft die Bruchdehnung aber ein Minimum, so daß bei Spannungen, die Reaktorbedingungen entsprechen, die Bruchdehnung wahrscheinlich nicht niedriger als hier gemessen ist. Die minimale gemessene Bruchdehnung von 4,7 % dürfte aber ein sehr komfortables Duktilitätspolster für Reaktorausleger sein, die bisher mit etwa einem Zehntel dieses Wertes auskommen mußten. Auf jeden Fall aber stellt der Unterschied zwischen den Daten des bisherigen Referenzstahles 1.4970 und den Entwicklungslegierungen einen ganz entscheidenden Fortschritt dar.

5.) Der Materialbehandlungszustand

Wegen der damit verbundenen Verringerung der Schwellneigung wurde hier fast nur kaltverformtes Material benutzt. Dies ist entsprechend der Modellvorstellung von den Heliumfallen auch schon ein relativ günstiger Anfangszustand für das Material. Der zusätzlich ausgelagerte Zustand hat hier jedenfalls im Zugversuch niedrigere Bruchdehnungen als der rein kaltverformte.

5.2 Schwellneigung

Die Schwellresistenz in der Schwerionenbestrahlung ist nur als Vororientierung anzusehen. Leider ist aus den vorhandenen Meßdaten der Neutronenbestrahlung nicht erkennbar, ob die ursprünglichen Entwicklungsziele dieser Legierungen erreicht wurden. Der einfachere Stahl B801 sollte aufgrund seines erhöhten Nickelgehaltes und seines optimierten Verhältnisses von Chrom zu Nickel besonders bei hohen Bestrahlungstemperaturen und aufgrund des erhöhten Siliziumgehaltes auch bei tiefen Bestrahlungstemperaturen etwas schwellresistenter werden als der bisherige Referenzstahl 1.4970. Beim Stahl F218 wurde zur zusätzlichen Verbesserung der Schwellresistenz bei tiefen Bestrahlungstemperaturen noch etwas Titan und Aluminium hinzulegiert. Dabei bestand allerdings die Gefahr, daß dadurch der Heliumfallen-Mechanismus beeinträchtigt würde, was sich aber im nachhinein nicht bestätigt hat.

Da bei einer Bestrahlungstemperatur von $T_B = 650$ °C für die Charge F218 bis 40 dpa keinerlei Schwellen gemessen wurde und im Mittel sogar eine Verkürzung der Abmessungen um 0.1 % beobachtet wurde, kann man diese Legierungen bei $T_B = 650$ °C bis 45 dpa als sicher schwellresistent ansehen. Dasselbe könnte man wegen gleicher Ni- und Cr- Gehalte auch für die Charge B801 erwarten. Bei Bestrahlungstemperaturen unterhalb $T_B = 500$ °C zeigt die Charge B801 ab 42 dpa andeutungsweise erstes Schwellen. Ob dies ebenso für die Charge F218 gilt, die bis 38 dpa sicher schwellresistent ist, ist offen. Man kann nur hoffen, daß sie aufgrund der zusätzlichen Dotierung mit Ti und Al länger schwellresistent bleibt. Auf jeden Fall sind nach den vorliegenden Meßdaten die beiden Entwicklungslegierungen nicht weniger schwellresisten als der Stahl 1.4970.

5.3 Chemische Zusammensetzung

Um die angeführten und diskutierten Eigenschaften des Stahles mit einiger Sicherheit reproduzieren zu können, sind genaue Kopien der untersuchten Chargen weder möglich noch nötig. Schon der Unterschied der Chargen B801 und F218 in der chemischen Zusammensetzung bei etwa gleichwertigen Eigenschaften signalisiert eine gewisse Toleranz der Legierung, die aber hier diskutiert werden muß. Der Nickelgehalt sollte wegen der Schwellresistenz bei hohen Bestrahlungstemperaturen zwischen 26 und 33 % liegen. Dabei ist der höhere Betrag vorzuziehen, weil Nickel (bis ca. 30 %) im austenitischen Stahl die Stapelfehlerenergie des kubisch flächenzentrierten Mischkristalls erhöht und so die Zwillingskorngrenzendichte erniedrigt [24]. Der Chromgehalt sollte wegen der Schwellresistenz und Stapelfehlerenergie möglichst niedrig und wegen der Matrixhärtung und der Korrosionsresistenz möglichst hoch liegen. Wegen der Schwellresistenz sollte ein Verhältnis von Ni: Cr > 2 eingehalten werden. Also sind hier 11 \div 13 % Cr richtig. Molybdän wird zur athermischen Erhöhung der Materialfestigkeit zugegeben. Bei hohen Anwendungstemperaturen (600 ÷ 700 °) sind 2 % optimal, bei tiefen Anwendungstemperaturen deutlich weniger. Hier wird ein Bereich von

1,7 ÷ 2,1 % für Hüllrohre empfohlen. Zur Erzeugung von Heliumfallen ist Vandinnitrid notwendig. Aus der Menge der überflüssigen Primärausscheidungen in der Charge B801 sollte man schließen daß etwa 0.06 % N und 0.22 % V ausreichen (V: N = 3.6). Offenbar schadet aber auch nicht die doppelte Menge, oder deutlich weniger Stickstoff, wenn er durch Kohlenstoff ersetzt wird. Daher wird ein Vanadingehalt mit 0.3 ÷ 0.6 % zur Heliumfallenbildung sicher ausreichen. Zur Reduzierung der Schwellneigung bei tiefen Temperaturen sollten 0.2 ÷ 0.3 % Ti, 0.1 ÷ 0.2 % Al, 0.6 ÷ 0.8 % Si und evtl. bis 0.4 % Nb und 0.05 % P hinzulegiert werden. Mangan könnte mit 0.2 ÷ 0.5 % zum Abbinden von Schwefelverunreinigungen dienen. Der Kohlenstoffgehalt sollte unter 0.05 % liegen, damit die Wirkung der Vanadinnitride nicht überdeckt wird. Bor mit 40 ÷ 80 ppm stabilisiert die Korngrenzenkarbide. Alles in allem entspricht die hier vorgschlagene Stahllegierung in etwa dem Patent Nr. 3902634 [11].

6. Zusammenfassung

Im Rahmen der Entwicklung austenitischer Stähle als Werkstoffe für Hüllrohre und Kernkomponenten Schneller Natriumgekühlter Brutreaktoren wurden zwei Chargen mit unterschiedlicher Priorität für ihre Widerstandsfähigkeit gegen Heliumversprödung (B801) und Porenschwellen (F218) konzipiert und untersucht. Beide Stähle zeigten nach Bestrahlung im schnellen (PFR) bzw. gemischten (BR-2) Fluß sowohl im Warmzugversuch als auch im Zeitstandversuch eine Duktilität, die um den Faktor 5 höher liegt als die des Referenzstahles 1.4970. Für beide Stähle konnte die Schwellresistenz bis 40 dpa Neutronbestrahlung nachgewiesen werden. Das Verhalten bei höheren Dosen ist für die Charge F218 unbekannt, während die Charge B801 erste kleine Schwellbeträge zeigt. Für Brennstab- und Bündelbestrahlungsexperimente stehen geprüfte Hüllrohre der Charge F218 mit den Abmessungen 6 x 0.38 mm; 6.55 x 0.45 mm und 7.6 x 0.5 mm zur Verfügung. Falls zu dem Stahl 1.4970 echte Alternativen beachtet werden sollen, empfiehlt sich (neben der hochwarmfesten aber spröden Nickelbasislegierung PE16) vor allem der hier vorgestellte hochduktile Stahl.

7. Literatur

- [1] R.M. Boothby and D.R. Harries: Irradiation induced embrittlement and precipitation in Nimonic PE 16. AERE-R 10108, (March 1981), pp. 1-18.
- G.W. Lewthwaite, D. Mosedale: Irradiation creep of Nimonic PE 16 alloy in the Dounreay Fast Reactor. Proceedings of the Ajaccio-Conference (4.-8. Juni 1979). G7 pp. 399.
- [3] F.W. Wiffen: 4.2 Mechanical Properties of Nimonic PE 16 Following Irradiation in HFIR. In: Alloy Development for Irradiation Performance. DOE/ET-0058/4 (May 1979), pp. 48-56.
- [4] D.N. Braski: The effect of neutron irradiation on the tensile properties and microstructure of serveral Vanadium alloys. In: F.A. Garner, C.H. Henager, Jr. and N. Igata, Eds. Influence of radiation on material properties, ASTM-STP 956 (1987), pp. 271-290.
- [5] W. Schneider et al.: Stand der Hüllmaterialentwicklung für das SNR-Referenzkonzept - kritische Materialprobleme - In: W. Marth, G. Mühling: Schnellbrüter-Brennelemententwicklung. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 3505 (August 1983). S. 125-146.
- [6] K. Anderko: Zur Eignung warmfester Vergütungsstähle mit 9 bis 12 % Chrom für Komponenten im Kern Schneller Reaktoren-Ein Überblick. Journal of Nuclear Materials 95 (1980) S. 31-43.
- K. Ehrlich und K. Anderko: Werkstoffe für höhere Abbrände. In: W.Marth,
 G. Mühling: Schnellbrüter-Brennelemententwicklung. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 3505 (August 1983). S. 147-177.
- [8] R.G. Faulkner and K. Anderko: High Temperature Ductility of Irradiated Ferritic and Austenitic Steels. Journal of Nuclear Materials 113 (1983) 168-171.
- [9] K. Ehrlich und K. Anderko: Material Development for LMFBR-Fuel Elements of High Burn-up. International Symposium on Fast Breeder Reactors-Experience and Future Trends. IAEA-SM 284/17, Lyon (France), 22.-26. July 1985.

- [10] J.F. Bates and W.G. Johnston: Effects of Alloy Composition on Void Swelling.
 In: M.L. Bleiberg and J.W. Bennett: Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials. International Conference in Scottsdale, Arizona, 19.-23.06.1977, AIME (1977) pp. 625-644.
- [11] L. Schäfer: Verwendung eines austenitischen Stahls als Reaktorwerkstoff. Patentschrift DE 3902 634 C 2 (30.01.1989 und 15.10.1992).
- [12] L.G. Liljestrand and A. Omsen: The Mechanisms of Improved Creep Strength in a New Austenitic Stainless Steel. Metallurgical Transactions A, Vol. 6A (Februar 1975) pp. 279-286.
- [13] E. Pott, L. Schäfer: Kernforschungszentrum Karlsruhe, IMF II, Interner Bericht (März 1994).
- [14] D. Gulden, G. Hecker, K. Ehrlich:Kernforschungszentrum Karlsruhe, Interner Bericht (Sept. ´82).
- [15] K. Herschbach: Kernforschungszentrum Karlsruhe, Interner Bericht (Sept. 1990).
- [16] L. Schäfer: Mechanische Eigenschaften der Hüllrohre aus dem Stahl 1.4970 nach dem Einsatz in Bündelbestrahlungsexperiment Rapsodie. Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 3029 (Aug. 1980).
- [17] C. Wassilew, K. Ehrlich and H.J. Bergmann: Analysis of the In-Reactor Creep and Rupture Life Behavior of Stabilized Austenitic Stainless Steels and the Nickel-Base Alloy Hastalloy-X, ASTM-STP 956 (1987) pp. 30-53.
- [18] K. Herschbach, W. Schneider, H.J. Bergmann: Swelling and In-Pile Creep Behavior of Some 15 Cr 15 Ni Ti Stainless Steels in the Temperature Range 400 to 600 °C, ASTM-STP 1046 (1990), pp. 570-587.

- [19] K. Herschbach, W. Schneider, K. Ehrlich: Effect of minor alloying elements upon swelling and in-pile creep in model plain Fe-15 Cr-15 Ni stainless steels and in commercial DIN 1.4970 alloys. Journal of Nuclear Materials 203 (1993) 233-248.
- [20] L. Schäfer and C. Wassilew: Assessment of the residual time to rupture of fuel pins after reactor core disturbances using the Lebensanteil rule, Nuclear Engineering and Design 137 (1992) pp. 371-378.
- [21] L.G. Liljestrand and A. Omsen: The Mechanisms of Improved Creep Strength in a New Austenitic Stainless Steel. Jahrestagung Kerntechnik 73, 1973 in Karlsruhe, KTG und Deutsches Atomforum, S. 606-609.
- [22] C. Wassilew: Influence of Helium embrittlement on post irradiation creep rupture behaviour of austenitic and martensitic stainless steel. In: Mechanical behaviour and nuclear applications of stainless steel at elevated temperatures. Metals Society, London, International Conference in Vares (Italy), 1981, pp. 172-181.
- [23] R. Lindau: Kernforschungszentrum Karlsruhe, Interner Bericht. (1986)
- [24] R. E. Schramm and R.P. Reed: Stacking Fault Energies of Seven Commerical Austenitic Stainless Steels. Metallurgical Transactions A, Vol. 6A (July 1975), pp. 1345-51.

8. Danksagungen, Nomenklatur, Abkürzungen

Danksagungen

Die Autoren bedanken sich bei Herrn DI G. Gulden, ehem. IMF II, für TEM-Untersuchungen zum Porenschwellen [14,] bei Herrn DI R. Lindau, IMF I, für Untersuchungen an einer bestrahlten Probe am Rasterelektronenmikroskop [23], bei Herrn A. Kräutter, HVT-HZ, für Zugversuche an bestrahlten Proben, bei den Herren W. Kunisch und A. Drasl, HVT-HZ, für Zeitstandversuche an bestrahlten Proben, bei Herrn B. Burbulla, HVT-HZ, für metallografische Schliffbilder an einer bestrahlten Probe, bei den Herren P. Graf und H. Zimmermann, IMF I, für metallografische Schliffbilder an unbestrahlten Proben, bei Herrn W. Schweiger, IMF II, für Zugversuche an unbestrahlten Proben und bei Herrn Ing. M. Schirra, IMF I, für Zeitstandversuche an unbestrahlten Proben.

Nomenklatur

A[%]		Bruchdehnung im Zugversuch
Ag[%]		Gleichmaßdehnung im Zugversuch
Au [%]		Bruchdehnung im Zeitstandversuch
BIK		Bestrahlungsinduziertes Kriechen
d		Durchmesser einer Probe (i = innen; a = außen)
dpa		displacement per atom
KV		Kaltverformung
LG		Lösungsglühen
1		Länge einer Probe
KG		Korngröße
P _i [bar]		Rohrinnendruck
R		Rekristallisation
R _m [MPa]	—	Zugfestigkeit
R _{p, 0.2} [MPa]		0,2-Dehngrenze (Streckgrenze)
T _A [°C]		Anlaßtemperatur
Т _В [°С]		Bestrahlungstemperatur
Tp [°C]		Prüftemperatur
t _m [h]		Standzeit
V	—	Vakuumabkühlung
σ [MPa]		Prüfspannung
σ _t [MPa]		tangentiale Prüfspannung
σ _V [MPa]		Vergleichspannung im Zeitstandversuch
Φ · t [n/cm²]		Neutronendosis
ε [%/min.]		Verformungsgeschwindigkeit
ε _t [%]	****	Tangentialbruchdehnung im Zeitstandversuch
ε _V [%]		Vergleichsbruchdehnung im Zeitstandversuch
Δ		Änderung

Abkürzungen

A		<u>A</u> uslagerung/ <u>A</u> nnealing
AERE		<u>A</u> tomic <u>E</u> nergy <u>R</u> esearch <u>E</u> stablishment
ASTM		<u>American Society for Testing and Materials</u>
BR 2		Forschungsreaktor in Mol (Belgien)
B 801		Charge eines neu entwickelten austenitischen Stahles
F 218	—	Charge eines neu entwicklten austenitischen Stahles
HVT-HZ		<u>H</u> auptabteilung <u>V</u> ersuchs <u>t</u> echnik <u>H</u> eiße <u>Z</u> ellen
HV 0,5		Vickershärte mit 0,5 Kp Last
IMF II		<u>I</u> nstitut für <u>M</u> aterial <u>f</u> orschung II
KfK		<u>K</u> ern <u>f</u> orschungszentrum <u>K</u> arlsruhe
Mol 3B9		Materialbestrahlungsexperiment in BR2
PFR		<u>P</u> rototype <u>F</u> ast <u>R</u> eactor in Dounreay (U.K.)
SNR 300		<u>S</u> chneller <u>N</u> atriumgekühlter Brut <u>r</u> eaktor 300
TEM		<u>Transmissions-Elektronenmikroskopie</u>

	B801	F218	Paten-Nr. 3902634
Fe	56 (Rest)	55.1 (Rest)	Rest
Ni	30.5	29.5	26 ÷ 33
Cr	11.1	11.2	11 ÷ 14
Мо	2.0	1.9	1.7 ÷ 2.1
V	0.7	0.63	0.4 ÷ 0.8
Si	0.6	0.54	0.4 ÷ 0.8
Nb	-	0.34	0 ÷ 0.4
Mn	0.39	0.1	0 ÷ 0.5
Ti	-	0.31	0 ÷ 0.6
Al	-	0.16	0.1 ÷ 0.2
N	0.11	0.025	0.02 ÷ 0.08
C	0.01	0.022	0.02 ÷ 0.06
Zr	-	0.041	0.03 ÷ 0.05
Р	0.007	0.014	0.01 ÷ 0.06
В	55 ppm	60 ppm	40 ÷ 80ppm

Tabelle 1:	Chemische Zusammensetzung (in Gew. %) der beiden Ver-
	suchsschmelzen B801 und F218 eines austenitischen Stahles
	nach Patent-Nr. 3902634

Schmelze Nr.	Werk- stoff- zustand	Bestr bedin- gungen	Probe Nr.	Prüftem- peratur in °C	R _m in MPA	R _{p 0.2} in MPA	A in %	A _g in %	Proben- form
B801	$KV_1 + A_1$	1	12	600	429	342	10.2	7.6	flach
11	u -	u	11	650	380	336	13.6	4.8	-
11	u	"	15	650	372	337	13.2	4.5	-
	й .		10	700	322	304	16.8	2.1	-
61	"	н	9	750	268	262	10.8	0.9	-
41	KV ₂	2	V1	650	361	278	25.2	11.1	rund
u	н	"	V2	750	240	224	20.0	2.5	-
	11		V8	800	162	159	12.8	0.7	-
u u	11	u	V6	850	139	138	5.7	0.5	-
F218	KV3	3	15	550	451	303	23.6	14.8	-
11	43	11	17	650	312	268	21.7	5.8	-
11	- 11	11	18	750	197	193	15.0	1.3	-
"	n	88	28	800	155	151	9.5	0.8	-
	0	44	19	850	120	117	3.3	0.7	-
B801	KV2	ohne		600	477	446	17.6	5.1	rund
	п	0		650	413	399	25.6	1.8	-
	"	n		700	348	319	35.3	1.2	-
	"	41		750	265	234	31.1	0.7	-
	"	41		600	497	385	11.6	7.6	flach
"		16		650	422	362	21.5	1.7	-
		U .		700	346	282	25.0	2.1	-
п	$KV_1 + A_1$	11		750	255	221	56.8	1.7	-
		"		600	475	382	12.5	11.4	-
"	33	D D		650	431	372	12.6	7.8	-
**				700	358	319	13.3	3.5	-
1	"	41		750	304	247	16.6	1.9	-
F218	KV3	45		550	512	469	11.4	7.1	-
	**	11		600	452	406	25.7	6.4	-
	n	u		650	412	399	26.5	1.2	-
	"	11		700	336	327	33.1	0.8	-
	"	41		750	279	275	57.5	-	-
"	u	**		800	211	207	50.5	0.5	-
"				850	157	151	52	0.5	-

.

Tabelle 2:Zugeigenschaften der austenitischen Stähle B801 und F218 mit und
ohne Neutronenbestrahlung, $\varepsilon = 1 \%$ /min.

Anmerkungen zu Tabelle 2:

A. Materialbehandlungszustände

 $KV_1 + A_1$ bedeutet: 1150 °C/1h + 15 - 20 % KV + 800 °C/2h KV_2 bedeutet: 1150 °C/0.5h + 900 °C/2h + 15 % KV KV_3 bedeutet: 1100 °C/1h + 30 % KV + 950 °C/30 min. + 15 % KV

B. Bestrahlungsbedingungen

- 2 bedeutet: PFR-Trans. Rig. 14-01 PR. 33; T_B = 653 °C, max. 24.1 dpa.
- 3 bedeutet: PFR-Trans. Rig. 14-01 HT. 028; T_B = 650 °C; max. 39.2 dpa

Werkstoffzustand	Probe Nr.	T _p in °C	ε in %/min.	R _m in MPa	R _{p 0.2} in MPa	A in %	A _g in %
$KV_1 + A_1 + A_2$	2	700	0.2	286	281	4.5	0.9
*	3		2.0	319	306	3.1	1.9
U U	7	500	0.2	436	373	5.1	3.9
4	8	600		391	354	4.8	4.0
11	10	700		286	280	4.3	0. 9
п	11	800		196	193	0.7	0.4
$LG_1 + KV + A_1$	265	700		319	281	4.7	1.4
	681	"		333	312	-	1.6
•	106		"	331	305	5.8	1.4
	259		,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,	331	306	4.3	1.3
	260	"	2	364	339	5.9	2.7
$LG_1 + A_1 + KV$	1.10		0.2	325	318	5.8	1.2
$LG_1 + KV + A_2$	3.11			347	324	5.7	1.5
$LG_2 + KV + A_1$	7.10			340	321	2.9	1.4
$LG_2 + KV$	8.10			363	324	3.9	1./
$LG_1 + KV + A_1$	264	600		459	418	6.9	3.6
	266	800		220	186		0.9
	26/	900		98	93	1.3	0.9

Tabelle 3:Zugeigenschaften des austenitischen Stahls 1.4970, Chg. 8-29052, Flachzugpro-
ben (0.7 x 4 x 25 mm) aus der Materialbestrahlung Mol 3B8.

Anmerkungen zu Tabelle 3:

A. Materialbehandlungszustände:

1). KV₁ + A₁ + A₂ bedeutet: LG = 1100 °C/10 min. Vak. + KV = 15 % + A₁ = 800 °C/2h

 $+ A_2 = 650 \,^{\circ}\text{C}/1000\text{h}$

2.) $LG_1 + KV + A_1$ bedeutet: 1100 °C/10 min. + 15 % + 800 °C/2h 3.) $LG_1 + A_1 + KV$ bedeutet: 1100 °C/10 min. + 800 °C/2h + 15 % 4.) $LG_1 + KV + A_2$ bedeutet: 1100 °C/10 min. + 15 % + 750 °C/2h 5.) $LG_2 + KV + A_1$ bedeutet: 1120 °C/30 min. + 15 % + 800 °C/2h 6.) $LG_2 + KV$ bedeutet: 1120 °C/30 min. + 15 %

B. Bestrahlungsbedingungen:

Mol 3B8 (im BR-2): $T_B = 650 \text{ °C}$ $\Phi \cdot t \text{ (therm.)} = 7.1 \cdot 10^{20} \text{ n/cm}^2$ $\Phi \cdot t \text{ (E} > 0.1 \text{ MeV)} = 1.86 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$ He (max) = 56 ppm

			1	[1	T		T	T
Big -Nr (CAN-	Probe	Material Cho -	Materialbehand	Proben m	länge in Im	Al/L in	Durchmes	ser in mm		
Nr.) BestrTemp.	Nr.	Nr.	-lungszustand	vor Bestr.	nach Bestr.	%	vor Bestr.	nach Bestr.	Δd/d _o in %	dpa
14-01 PR. 033	V1 V2 V3	B801	1150 °C/0.5h + 950 °C/2h + 15 % KV	37.954 37.986 37.949	37.935 37.955 37.940	- 0.05 - 0.08 - 0.02	~ 2.971 "	2.968 2.969	~ - 0.1 ~ - 0.07	11.3 14.9 18.2
(CAN "H")	V4 V5 V6			37.949 37.943 37.980	37.938 37.938 37.959	- 0.03 - 0.01 - 0.06	11 11 11	2.970 2.972	" - 0.03 + 0.03	20.6 22.5 23.6
$I_{B} = 647-659$ °C	∨7 ∨8 ∨9			37.973 37.999 37.946	37.938 37.947 37.934	- 0.09 - 0.14 - 0.03	11	2.968	- 0.1 - 0.17	11.3 14.9 18.2
14-01 HT. 028	14		1100 ℃/1h V.	37.914	37.899	- 0.04	3.002			16.0
(CAN "I") T _B = ~ 650 °C	15 16 17 18 19 20 21 22 23 24 25 26 27 28 29	F218	+ 30 % KV + 950 %-30`V. + 15 % KV	37.918 37.932 37.922 37.938 37.975 37.981 37.933 37.906 37.945 37.946 37.985 37.991 37.868 37.981 37.944	37.901 37.905 37.900 37.907 37.966 37.946 37.925 37.894 37.929 37.903 39.931 37.934 37.861 37.923 37.899	- 0.04 - 0.07 - 0.06 - 0.08 - 0.02 - 0.09 - 0.02 - 0.03 - 0.04 - 0.11 - 0.14 - 0.15 - 0.18 - 0.15 - 0.12	3.025 3.027 2.998 3.013 3.014 3.007 2.998 3.019 3.003 3.001 3.019 3.029 3.029 3.032 2.989 3.027	3.026 3.020 3.009 3.009 2.991 3.013 3.000 3.020 3.030 2.983 3.022	$\begin{array}{r} + \ 0.03 \\ - \ 0.23 \\ - \ 0.23 \\ - \ 0.17 \\ + \ 0.07 \\ - \ 0.23 \\ - \ 0.20 \\ - \ 0.03 \\ + \ 0.03 \\ - \ 0.07 \\ - \ 0.20 \\ - \ 0.17 \end{array}$	18.8 21.8 24.8 27.6 30.2 32.4 34.2 36.2 37.4 38.4 39.2 39.8 16.0 18.8 21.8
14-13 MT. 018	V10	B801	1150 °C-30	37.953	38.037	+ 0.22	2.971			42.3
(CAN "F") T _B = 476-487 °C	V11 V12 V13		+ 900 °C-2h + 15 % KV	37.830 37.981 37.998	37.836 37.972 38.036	+ 0.02 - 0.02 + 0.10	2.972 2.978 2.971	2.975 2.980 2.975	+ 0.10 + 0.07 + 0.13	40.0 22.7 42.3

<u>Tabelle 4:</u>	Probenabmessungen vor und	nach der Bestrahlung und linearer Schwellbeträge
F		

RigNr. (CAN- Nr.) BestrTemp.	Probe Nr.	Material, Chg Nr.	Materialbehand -lungszustand	Probenlänge in mm		$\Delta I/I_0$ in	Durchmesser in mm					daa
				vor Bestr.	nach Bestr.	%	vor Bestr.	nach Bestr.		дра		dpa
14-15 LT · 003/B (CAN "E") T _B = 420 °C (~ 405 °C)	462 468 471 473	1.4970 54572	1120 °C-10 ⁻ + 17 % KV	37.844 37.900 37.927 37.666	37.853 38.150 38.174 37.833	0.02 0.66 0.65 0.44	3.049 3.038 3.038 3.038	3.051 3.054 3.067 3.060	0.07 0.53 0.95 0.69	35.7 56.4 57.5 56.1		
PFR-M2 T _B = 493 °C	28D 22D 21D 20D 24D 18D	F218	1075 °C-2´+ 50 % KV + 950 °C/0.5h + 13 % KV (feinkörnig)	28.512 28.524 28.517 28.479 28.507 28.462	28.510 28.522 28.513 28.461 28.506 28.474	- 0.01 - 0.01 - 0.01 - 0.06 0.00 + 0.04	6.016 6.015 6.015 6.015 6.016 6.017	6.019 6.019 6.016 6.016 6.014	0.050 0.067 0.017 0.017 - 0.033 -	18.8 18.8 18.9 18.2 18.9 19.2	0.033 0.083 0.050 0.067 0.066 -	37.5 37.5 37.7 36.4 37.7 -

Tabelle 4: (Fortsetzung 1) Probenabmessungen vor und nach der Bestrahlung und linearer Schwellbeträge

Tabelle 5: Durchmesserzunahme infolge bestrahlungsinduzierten Kriechens (BIK) von Rohren unter Innendruck. Bestrahlungsexperiment PFR-M2, Werkstoff: Austenitischer Stahl, Chg. F218. Zustand 1075 °C-2 + 50 % KV + 950°C /0.5 h + 13 % KV (feinkörnig)

Probe Nr.	T _B in ℃	Tangential- spannung ơ _t in MPa	Dosis 1 in dpa	Δd_1 in %	Dosis 2 in dpa	Δd_2 in %	Dosis 2-Dosis1 in dpa	Δd_2 - Δd_1 in %
(28D	493	0	18.8	0.050	37.5	0.033	18.7	- 0.017)
22D		30	18.8	0.067	37.5	0.083	18.7	0.016
21D	n	60	18.9	0.017	37.7	0.050	18.8	0.033
20D	n	90	18.2	0.017	36.4	0.067	18.2	0.050
24D	11	120	18.9	- 0.033	37.7	0.066	18.8	0.099
18D	II	150	19.2	0.183	38.4	0.366	19.2	0.183
(00D	420	0	10.3	0.183 = reines Schwellen)				
04D		80	9.2	0.183 - 0.183 = 0.0 % BIK				
05D	u	104	10.3	0.283-0.183 = 0.1 % BIK				
07D	n	127	12.9	0.333-0.183 = 0.15 % BIK				

Anmerkung: Das Schwellen wird für die Proben bei $T_B = 493$ °C als Null vorausgesetzt. (s. 4.2.2 und 5.2)

Werkstoffzustand	Versuch- Nr.	T _p in °C	σ in MPa	t _m in h	A _U in %	Proben- form
1150 °C/0.5h + 900 °C/2h + 15% KV	2236	600	400	5	17.2	rund
11	2266	-	340	89	5.6	"
11	2237	"	300	192	6.1	
11	2248	•	260	661	6.1	"
11	2246	"	400	16	14.8	flach
11	2244	- 11	340	67	12.8	11
14	2243		300	167	14.0	14
11	2247	- 41	260	429	16.4	
11	2249		230	1300	16.8	ш
1150 ℃/1h + 15-20 % KV	2553	650	300	57	7.6	10
**	2554	н	260	165	-	65
11	2557	в	220	630	10.8	н
11	2561	"	180	1547	8.4	и
1150 °C/0.5h + 900 °C/2h + 15 % KV	2905	700	180	171	29.6	
11	2900	n	180	561	18.4	
11	2901	11	160	152	19.6	
н	2902	н	140	1927	12.8	
11	2903	6	120	677	24.4	
н	2904		90	3130	12.8	**
11	2240	750	140	17	7.8	rund
41	1315	- 11	120	63	29.4	
	2239	н	100	184	28.3	
н	1314	**	100	· 336	27.8	
и	1313	4	80	1636	13.9	n

Tabelle 6:	Zeitstandeigenschaften des austenitischen Stahls B801,
	unbestrahlt

 $\begin{array}{lll} \underline{Erk\ddot{a}rungen} & : & T_p = Pr\ddot{u}ftemperatur; \ \sigma = Pr\ddot{u}fspannung, \ t_m = Standzeit, \ A_U \\ & = Bruchdehnung \ im \ Zeitstandversuch \end{array}$

Versuch- Nr.	T _p in °C	P _i in bar	σ_V in MPa	t _m in h	ε _t in %	ε _v in %
3412	600	650	347	49	6.7	7.7
3415		600	320	71	9.1	10.5
3418	в	580	309	142	10.1	11.7
3411	н	550	293	446	2.5	2.9
3437	"	550	293	284	3.0	3.5
3420		500	267	712	5. 9	6.8
3438	11	480	256	596	5.0	5.8
3466		480	256	716	10.5	12.1
3481	"	450	240	1564	1.1	1.3
3690	"	400	213	4012	1.2	1.4
3408	650	500	267	70	3.5	4.0
3407	11	480	256	106	9.1	10.5
3369	11	450	240	203	-	-
3409	u	400	213	624	6.9	8.0
3410		360	192	1003	1.4	1.6
3467	и	320	171	2067	1.5	1.7
3691	**	260	139	5766	3.4	3.9
3421	700	400	213	41	5.7	6.6
3424		350	187	221	3.8	4.4
3431	"	320	171	298	7.2	8.3
3447		320	171	396	3.2	3.7
3426	u	300	160	297	9.1	10.5
3435		300	160	509	2.0	2.3
3436	44	250	133	919	6.9	8.0
3465		200	107	1633	2.3	2.7
3695	1	150	80	(2920)	2.8	.3.2
3696	"	100	53	> 21000		

Anmerkungen :

 $\begin{array}{l} T_p = \mbox{Prüftemperatur; } \sigma_V = \mbox{Vergleichs-Prüfspannung; } P_i \\ = \mbox{Rohrinnendruck; } t_m = \mbox{Standzeit; } \epsilon_t = \mbox{Tangentialbruch-dehnung; } \epsilon_V = \mbox{Vergleichs-Bruchdehnung.} \end{array}$

Schmelze Nr.	Werkstoff- zustand	Bestrahlungsbedingungen		Duchashin						
		Reaktor	Einsatz	T _B in ℃	Probe Nr.	Ip In °C	o in ivira	t _m in n	A _u in %	Probeform
B801	1150 °C-1h	BR-2	Mol 3B9	650	1	700	200	>7	(9.4)	flach
16	+ 15 - 20 % KV	31	u	11	2	27	130	4.743	8.2	
11	17	IJ	u	11	4	31	170	400	12.4	11
13		**	n	υ	5	21	150	1.222	-	u
n	1150 °C-0.5h	PFR	01PR.33	653	V4	81	110	2.329	10	rund
11	+ 900 °C-2h	u	v	11	V5	81	130	591	14.4	u
u	+ 15 % KV	11	13MT.18	482	V10	91	130	844	10.9	17
n	n	17	n	u	· V11	**	110	4.152	5.4	17
พ	"	31	n	n	V12	11	150	146	15.7	ar.
IT	"	n	11	11	V13	'n	120	1.985	8.7	11
F218	1100 °C-1h	11	01HT.028	650	22	31	140	628	7.3	п
n	+ 30 % KV		u	11	23	II	170	48	20.1	11
97	+ 950 °C-0.5h		н	11	24		125	1.409	(4.7)	n
11	+ 15 % KV	"	n	31	25		115	-	8.3	υ
IF	н	**		ν	26	52	115	(1275)	6.8	n
**	п	н	п	n	27 .	*1	105	-	9.2	11
п	ъ		н	11	16	650	190	122	16.9	n
38	н	**	н	31	20	11	160	519	10.7	
33	n	n	u	11	21		140	2.418	11.4	**
n	п	и	11	11	29	ч	130	4.918	14.0	11
8-29264	1100 °C	PFR	13MT.015	467	0-1	700	170	226	2.7	rund
(1.4970)	+ 20 % KV	11	11	11	0-2		150	890	2.5	ti
11	11	81	u	II	0-3/0-4	b)	130	(49)3715	1 /1,5	81
11	11		н	11	0-8	650	200	746	2.1	11
и	u	"	н	81	0-9	H	230	8.7	2.8	
11	и	н	н	н	0-10		210	609	2.3	E2
π		n	u	н	0-12	11	180			
8-29052 (1.4970)	1100 °C-10 ` + 15 % KV + 800 °C-2h + 650 °C-1000h	BR-2 "	Mol 3B8 "	650 "	13 15	700 "	160 140	24 230	2.4 1.9	flach "

Tabelle 8: Zeitstandeigenschaften der austentitischen Stähle B801 und F218 (und 1.4970 als Vergleich) nach Bestrahlung

- 27 -





Flachzugprobe



Bild 1a: Abmessungen der verwendeten Proben.



Rohrinnendruck-Zeitstandprobe



Bild 1b: Abmessungen der verwendeten Proben.

Rohrinnendruck-Kriechkapsel



(100×)



Bild 2a: Metallografische Schliffbilder der unbestrahlten Charge B801 in verschiedenen Materialbehandlungszuständen.



Bild 2b: Metallografische Schliffbilder der unbestrahlten Charge F218 in verschiedenen Materialbehandlungszuständen.



Bild 3: Bruchdehnung aus Zugversuchen an bestrahlten und unbestrahlten Proben der Charge B801 und F218 (und 1.4970).



Bild 4: Gleichmaßdehnung aus Zugversuchen an bestrahlten und unbestrahlten Proben der Charge B801 und F218 (und 1.4970).



Bild 5: Zugfestigkeit von bestrahlten und unbestrahlten Proben der Chargen B801 und F218 (und 1.4970).



Bild 6: 0,2-Dehngrenze von bestrahlten und unbestrahlten Proben der Chargen B801 und F218 (und 1.4970).



Bild 7: Längenänderung bzw. Durchmesseränderung in % infolge Porenschwellens der Chargen B801 und F218 (und 1.4970) in Abhängigkeit von der Neutronendosis in dpa [NRT] Fe-





Bild 8: Dehnungszunahme in % infolge bestrahlungsinduzierten Kriechens der Charge F218 in Abhängigkeit von der angelegten Tangentialspannung bei $T_B = 420$ °C.



Bild 9: Zeitstandfestigkeit der unbestrahlten Chargen B801 und F218 bei verschiedenen Prüftemperaturen in Abhängigkeit von der Standzeit.



Bild 10: Zeitstand-Bruchdehnung der unbestrahlten Chargen B801 und F218 bei verschiedenen Prüftemperaturen in Abhängigkeit von der Prüfspannung.

- 39 -



Bild 11: Standzeit der bestrahlten Chargen B801 und F218 (und 1.4970) in Abhängigkeit von der Prüfspannung.



Bild 12: Zeitstand-Bruchdehnung der bestrahlten Chargen B801 und F218 (und 1.4970) in Abhängigkeit von der Prüfspannung.



Bild 13: Metallografisches Schliffbild (a) und rasterelektronenmikroskopisches Bruchbild (b) der bestrahlten Probe 10 aus der Charge B801 [23].

a



Bild 14: Wellenlängendispersive Röntgenanalyse auf Vanadium (a) und dazugehöriges REM-Oberflächenbild (b) der bestrahlten Probe 10 aus der Charge B801 [23].



Bild 15: Teilweise linienförmig angeordnete Ätzgrübchen als eventuelle Spuren ehemaliger Vanadiumnitridausscheidungen.