

14. Feb. 1989

Diss. ETH

Diss. ETH Nr. 8722

**UNTERSUCHUNG MIKROPHYSIKALISCHER VORGAENGE IN
NEUTRONENBESTRAHLTEN REAKTORDRUCKBEHAELTER-STAEHLEN
UND Fe-Cu-LEGIERUNGEN MIT METHODEN
DER POSITRONENANNIHILATION**

ABHANDLUNG
zur Erlangung des Titels eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
der
EIDGENOESSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZUERICH

vorgelegt von
Karim GHAZI WAKILI
Dipl. Phys. ETH
geboren am 24. November 1959
Iranischer Staatsangehöriger



Angenommen auf Antrag von
Prof. Dr. F. Heinrich, Referent
Dr. U. Zimmermann, Korreferent
1988

[Handwritten signature]

14. II. 89



ABSTRACT

The embrittlement of ferritic reactor pressure vessel steels due to irradiation with fast neutrons has been investigated by means of material testing procedures. The present positron annihilation study is an attempt to obtain an understanding on a microscopic scale of the defect structure of such steels. Various positron lifetime and angular correlation (peak height) measurements, the latter as a function of annealing temperature up to 750°C, have revealed recovery stages which correlate quantitatively with the microhardness behaviour. The interpretation of the peak height results from non-irradiated Fe-Cu alloys lead to a detailed picture of precipitation, Ostwald-ripening and dissolution of Cu-rich clusters. Lifetime measurements on these alloys can be understood in terms of trapping effects at the misfit structure of the interface between the precipitates and the iron matrix. These mechanisms are not observed in non-irradiated steels where they are inhibited by the microstructure. This microstructure is destroyed by the irradiation. Precipitation and ripening occur during a subsequent temperature treatment. The measurements also show that under the irradiation conditions applied here voids are not produced in the weldment and probably also not in the forging. Thus, the embrittlement is mainly due to the presence of Cu clusters (precipitation hardening). This finding has been decisive also in the choice of possible model descriptions when interpreting small angle neutron scattering results.

Zusammenfassung

Die neutroneninduzierte Versprödung von Reaktordruckbehälterstählen (RDB) insbesondere bei den Schweißnähten, wurde bisher im Rahmen internationaler Forschungsprogramme bevorzugt mit typisch technischen Methoden der Materialprüfung (Kerbschlagversuche, Härtemessungen u.ä.) untersucht. Das Ziel dieser Arbeit ist es, durch Anwendung der Methoden der Positronenannihilation Einblicke in die bei der Versprödung wirksamen mikrophysikalischen Vorgänge zu gewinnen. Nach Vorversuchen an realen RDB-Stählen hat es sich als sehr nützlich erwiesen, vorerst an einer einfachen Modellegierung Fe-0.8 Gew.% Cu das Verhalten der Kupferatome bei verschiedenartigen Wärmebehandlungen vor und nach der Bestrahlung mit Neutronen (0.5×10^{19} n/cm², E >1MeV, 290°C) zu studieren.

Messungen der Peakhöhe der 2γ -Winkelkorrelationsfunktion als Funktion der Temperatur (bis 750°C) an unbestrahlten Fe-Cu Proben ergaben detaillierte Informationen über die Ausscheidung, die Ostwald-Reifung und die Auflösung von Cu-reichen Clusters in dieser Legierung. Resultate von Lebensdauermessungen an den gleichen Proben bei Zimmertemperatur konnten erklärt werden als Einfang von Positronen in vakanzartigen Defekten (Misfits), die an der Grenzfläche zwischen Cu-Ausscheidungen und der Fe-Matrix auftreten.

Wegen der hohen Eigenaktivität bestrahlter Fe-Cu-Proben waren Lebensdauermessungen unmöglich. Dagegen konnten mit Hilfe der Peakhöhenmethode Untersuchungen an neutronenbestrahlten Legierungsproben mit verschiedenen thermischen Vorgeschichten durchgeführt werden und die Resultate mit Referenzproben aus reinem Eisen verglichen werden. Dabei ergab sich, dass bei einer Übersättigung der Fe-Matrix an Cu-Atome keine Mikrovoids, sondern aufgrund der strahlungsinduzierten Erhöhung der Diffusion viele kleine Cu-Ausscheidungen zu erwarten sind, deren Oberflächen nicht nur mit Misfits, sondern auch mit Vakanzen behaftet sind.

Positronenmessungen an realen RDB-Stählen können mit Hilfe der an der Fe-Cu-Modellegierung gewonnenen Resultate erklärt werden. Untersucht wurden Schweißproben mit hohem Cu-Gehalt (0.3 Gew.%), die in einem kommerziellen Kernkraftwerk bei einer Fluenz von 5.4×10^{17} n/cm² mit

E > 1 MeV bei 290°C bestrahlt wurden, ferner Schmiedeproben mittleren Cu-Gehalts (0.17 Gew.%), die in einem Testreaktor einer viel höheren Fluenz ($1.9 \cdot 10^{19}$ n/cm² mit E > 1 MeV bei 290°C) ausgesetzt waren. Insbesondere konnte gezeigt werden, dass in unbestrahlten RDB-Materialien keine Cu-Ausscheidungen auftreten. Dies wird durch eine stabile Mikrostruktur (Einfluss andere Legierungspartner) verhindert, die aber durch Bestrahlung mit Neutronen zerstört wird. Ferner ergeben Lebensdauermessungen, dass durch die Neutronenbestrahlung keine "Voids" in den Schweißproben gebildet werden. Lebensdauermessungen an den bestrahlten Schmiedeproben waren wegen der hohen Eigenaktivität nicht möglich. Es ist aber naheliegend, dass in diesem Material (aufgrund der relativ hohen Konzentration an Legierungspartnern) ähnlich wie in der an Kupfer übersättigten Fe-Matrix der Modellegierung keine Voids zu erwarten sind.

Der Vergleich der Resultate von Positronenexperimenten mit technischen Messungen der Mikrohärtigkeit zeigt eine so eindeutige Korrelation, dass die strahlungsinduzierte Versprödung hauptsächlich durch Ausscheidungshärtung zu interpretieren ist. Ferner ergänzen und bestätigen die Positronenexperimente die bei der Neutronen-Kleinwinkelstreuung gewonnenen Resultate.

بنام آنکه هستی نام از ویافت

تقدیم به والدین عزیزم

شکستگی منظمه های فولادی حاوی سوزفت هسته ای ، بر اثر تابش نوترونهای سریع موجود در داخل آنها تاکنون اغلب با روشهای مکانیکی بررسی شده است. پژوهش فوق که با کمک روشهای اندام یوزتریونی صورت گرفته ، کوشش است برای درک ساختار ذره ای اخلاهای که بر اثر تابش نوترونهای سریع در این فولادها تشکیل شده است .

با کمک این روشها (طول عمر یوزتریون و انسجام زاده ای بر حسب دما) درجه ترمیم اخلاهای مذکور مشخص شده اند و از این طریق نتیجه بررسی های مکانیکی قابل توجه میگردند .