

KFK-708  
(1. Ex.)

KFK-708

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

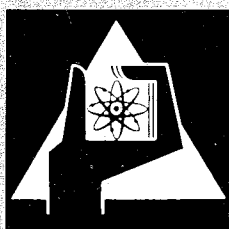
Januar 1968

KFK 708  
EUR 3717 d

Institut für Material- und Festkörperforschung

Isostatisches Heißpressen - ein neues Verdichtungsverfahren  
der Pulvermetallurgie

H. Bumm, F. Thümmeler, P. Weimar



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Januar 1968

KFK-Nr. 708  
EUR 3717 d

Institut für Material-und Festkörperforschung

Isostatisches Heißpressen - ein neues Verdichtungsverfahren  
der Pulvermetallurgie

von

H. Bumm, F. Thümmler, P. Weimar

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.  
- Zentralbüreau -

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H. Karlsruhe

---

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

## Gliederung

1. Einleitung
2. Beschreibung der Anlage
  - 2.1 Allgemeines
  - 2.2 Instrumentierung des Autoklaven
3. Funktionsweise der Einheit
4. Probenvorbereitung
  - 4.1 Auswahl des geeigneten Kapselmaterials
  - 4.2 Auswahl der geeigneten Teilchen
  - 4.3 Vorverdichtung der Pulverfüllung
  - 4.4 Verschweißen der Kapseln
  - 4.5 Leck-Test des Behälters
  - 4.6 Abmessungen der Kapsel
  - 4.7 Einbau der Kapsel im Autoklaven
5. Einfluß des verwendeten Inertgases auf die Temperaturverteilung im System
6. Einige Beispiele isostatisch heißgepreßter Pulverproben
7. Vorläufige Werte physikalischer und mechanischer Eigenschaften der heißgepreßten Proben
  - 7.1 Elektrische Leitfähigkeit
  - 7.2 Wärmeleitfähigkeit
  - 7.3 Biegebruchfestigkeit
  - 7.4 Schlagzähigkeit
8. Schlußfolgerungen
9. Zusammenfassung
10. Literatur

## 1. Einleitung

In der konventionellen Pulvermetallurgie ist schon seit Jahren das Heipressen von Formteilen auf Stempelpressen bekannt. Man bedient sich hier der gleichzeitigen Einwirkung von Druck und Temperatur auf das zu verdichtende Material und erzielt so hohe Prelingsdichten in kurzen Zeiten. Auch das isostatische Pressen ist in der Keramik wie in der Pulvermetallurgie jedoch bei niederen Temperaturen, seit langem bekannt und ist im Begriff, auch fr den industriellen Bereich grere Bedeutung zu erlangen. Im Jahre 1958 begann man in den USA [1], [2], [3] mit der Entwicklung eines isostatischen Preverfahrens bei hoher Temperatur, bei dem das im Hinblick auf den Verdichtungsvorgang erzielbare Optimum, nmlich hohe Temperatur bei allseitigem Druck gleichzeitig angewendet wird. Zur Druckbertragung kommen vorzugsweise Edelgase in Betracht. Diese neue Verfahrenstechnik wird als "isostatisches Heipressen" bezeichnet.

Die technologischen Vorzge des Verfahrens liegen einmal in der homogenen (da allseitigen) Verdichtung der Prelinge, (siehe Bild 1b), wobei weitgehend richtungsunabhngige mechanische und physikalische Eigenschaften des Endproduktes erzielt werden, zum anderen in der Vermeidung der Wandreibung, die bei den axialen Preverfahren wegen der hiermit verbundenen Dichtegradienten im Preling nur ein begrenztes Lnge/Durchmesser-Verhltnis ( $L/D$ ) der gepreten Probe zult. Beim isostatischen Heipressen ist somit, hnlich wie beim isostatischen Kaltpressen, die Herstellung auch langer Proben ( $L/D \gg 1$ ) prinzipiell mglich.

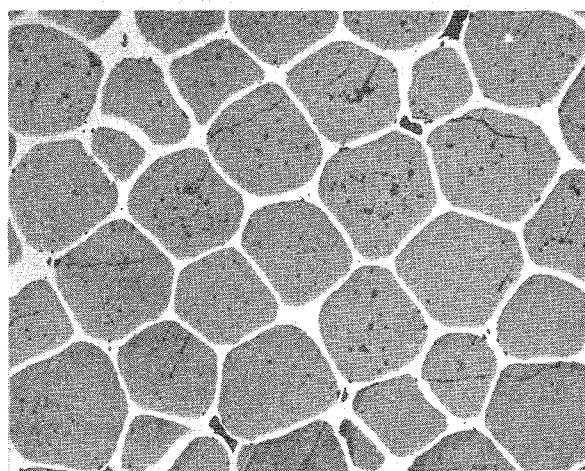
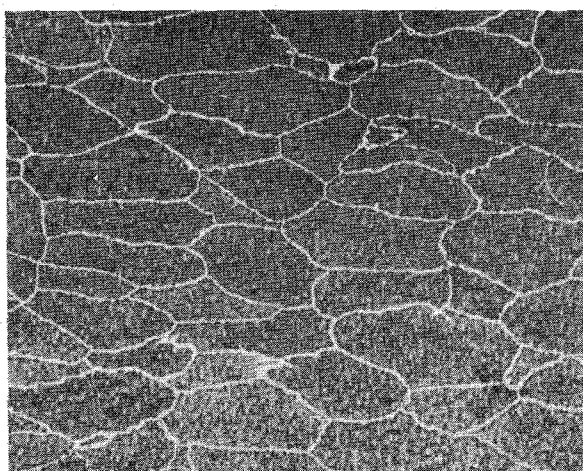


Bild 1 a) axial-

b) isostatisch heigeprete Struktur mit metallischem Netz

## 2. Beschreibung der Anlage

### 2.1 Allgemeines

Im Institut für Material- und Festkörperforschung (IMF) wurde eine Anlage zum isostatischen Heißpressen konstruiert und erstellt. Die Anlage besteht aus Druckgefäß, Kompressor und Bedienungsstand (s. Bild 2). Es sollte eine Möglichkeit zur weitgehend gleichmäßigen Verdichtung auch schwer sinterbarer Systeme geschaffen, zunächst aber Erfahrungen mit dieser Technik gewonnen werden, um Möglichkeiten und Aufwand beurteilen zu können. Bei den vorliegenden Anforderungen für Druck (1000 at) und Temperatur (1600°C) konnte nicht mehr der außenbeheizte "hot wall" Autoklav, sondern mußte zwangsläufig der innenbeheizte "cold wall" Autoklav vorgesehen werden. Ein wichtiger Punkt beim Entwurf war die Frage der leichten Bedienbarkeit beim Öffnen und Schließen des Autoklaven sowie der Sicherheit für das Bedienungspersonal. Gemäß den Sicherheitsvorschriften der zuständigen Überwachungsvereine ist für Hochdruckbehälter von einem "Druckliterprodukt" ( $p \cdot v > 200$ ) bei besonderer Gefährdung der Umgebung ein eigenes Gebäude zu erstellen. Die Anlage muß daher fernbedienbar sein (Bild 2). Der eigentliche Autoklavenraum darf, während sich der Rezipient unter Druck befindet, nicht betreten werden.

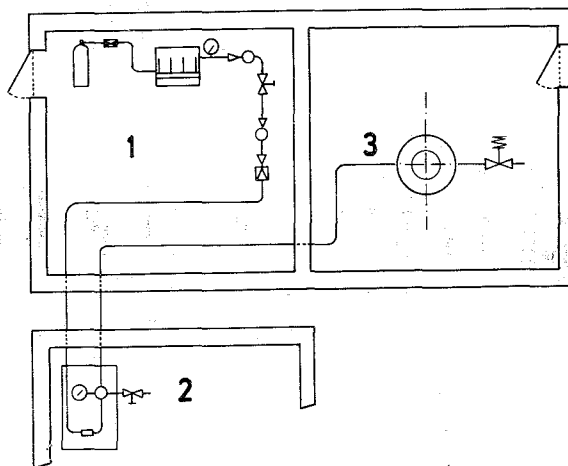


Bild 2 Schaltschema der Anlage zum isostatischen Heißpressen

Wie aus dem Schaltplan ersichtlich ist, kann der Gesamtdruck des Systems am Kompressor (1) und am Fernbedienungspult (2) abgelesen werden. Mit einem Kompensationsschreiber werden die Temperaturen an den 3 Heizzonen im Innern des Ofens, an der Autoklavenwandung und in der Nähe der Metalledichtung geschrieben, sowie der Gasdruck registriert. Weiterhin wird die Kühlwasseraustrittstemperatur gemessen.

Unmittelbar mit dem Druckbehälter (3) verbunden ist ein auf 10 % über Nenndruck kalibriertes, federbelastetes Sicherheitsventil. Der 3-Zonenofen kann von Hand oder auch über Stellmotoren, deren Endwert über Endschalter begrenzt wird, hochgeheizt werden.

## 2.2 Instrumentierung des Autoklaven:

Entscheidend für die Funktion eines solchen Hochdrucksystems sind die elektrisch isolierten Durchführungen für die Spannungsversorgung des Ofens bzw. die Thermoelementdurchführungen durch den Autoklavendeckel. Nachdem sich eine Mehrfach-Keramikdurchführung ab 300 atü als gasdurchlässig erwiesen hatte, wurde diese durch eine Mehrfach-Glasdurchführung der Firma Fusite, Karlsruhe ersetzt. Sie besteht aus einem durchbohrten Stopfen, in den die Drahtdurchführungen eingeschmolzen werden (s. Bild 3).

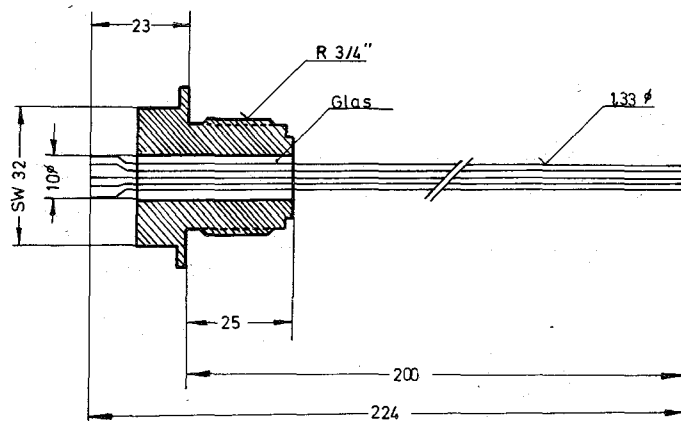


Bild 3 Hochdruckstromdurchführung (Firma Fusite, Karlsruhe)

Die Stromdurchführung besteht aus einem Metallstab mit Konusansatz, der über einem Einsatz aus Glasgewebe gegen Masse isoliert und mit einem Spezialkleber gedichtet wurde. Die Heizwicklung ist aus einer Legierung Molybdän-Rhenium 50/50, die bis  $1650^{\circ}\text{C}$  im Kontakt mit  $\text{Al}_2\text{O}_3$  eingesetzt werden kann, gefertigt. Der Ofen wurde von der Firma Marshall in Columbus/USA gebaut. Für noch höhere Temperaturen verwendet man Graphit als Heizelement [1], [2]. Als Thermoelemente können nur bifilare Elemente eingesetzt werden, da ab 600 at ein Zerdrücken des coaxialen Elementes sehr schnell zu seinem Ausfall führen kann. In vorstehendem System wurden ursprünglich W/Re-Elemente eingesetzt, die jedoch recht bald infolge Versprödung brachen. Darauf wurden dieselben gegen Platin-Platin/Rhodium-Elemente ausgetauscht.

Technische Daten der Anlage zum isostatischen Heipressen:

- I. Autoklav:  $P_{\text{max}} = 1000 \text{ atü}$   
 $t_{\text{max}} = 300^{\circ}\text{C}$   
Durchmesser(innen) = 200 mm  
Länge = 550 mm
- II. Ofen:  $T_{\text{max}} = 1650^{\circ}\text{C}$   
Heizwicklung = Mo/Re 50/50
- III. Kompressor: = 4-stufig,  $3 \text{ m}^3/\text{h}$  bei 1000 atü

In den Abbildungen 4 und 5 ist der Autoklav, der nach unseren Angaben von der Firma UHDE gebaut wurde, in der Seitenansicht bzw. mit montiertem Ofen in einem Hauptschnitt dargestellt.

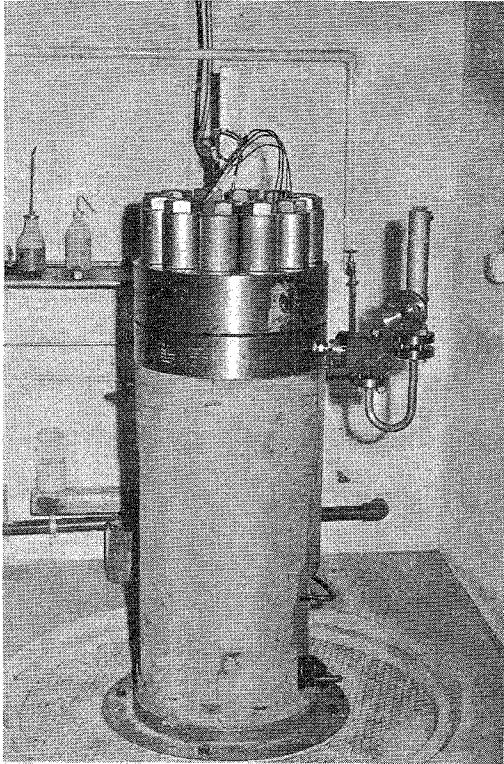


Bild 4 Autoklav-Ansicht

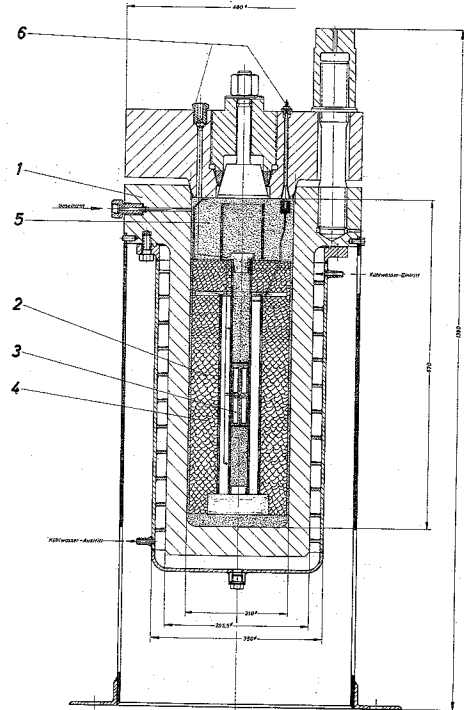
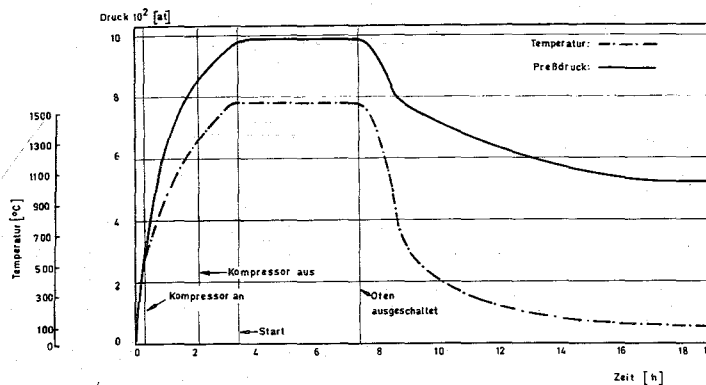


Bild 5 Autoklav-Schnitt  
(Firma Uhde, Hagen/i.W.)

### 3. Funktionsweise

In Abb. 5 wird der Autoklav im eingebauten Zustand gezeigt. Der von außen wassergekühlte Autoklavenkörper (1) enthält den vertikalen Rohr-  
ofen (2) und dieser wiederum die mit Pulver gefüllten und gasdicht ver-  
schlossenen Kapseln (3). Der Deckel des Druckkörpers ist geteilt und  
besteht aus einem äußeren, über Zuganker gehaltenen Ringteil, das  
seinerseits den eigentlichen Schraubverschluß (System Bridgeman) ent-  
hält. Der Gaseinlaß liegt seitwärts und verläuft radial in den Druck-  
behälter. Der Druck-Temperatur-Zyklus verläuft wie folgt: (Abb. 6)





**Bild 6** Druck-Temperatur-Zyklus

Nach Einbau der Proben muß der Autoklav evakuiert werden, um den  $H_2O$ - und  $O_2$ -Gehalt im Gefäß herabzusetzen. Dies ist notwendig, um die Mo/Re Wicklung und das Kapselmateriale vor Oxidation zu schützen. Anschließend wird das Inertgas mit Hilfe des Kompressors auf einen Vordruck von z.B. 200 atü komprimiert und der Ofen aufgeheizt. Hierbei steigt der Druck infolge der thermischen Ausdehnung des Gases an. Der Enddruck kann entweder über die Endtemperatur des Ofens oder durch nachträgliches und zusätzliches Pumpen des Kompressors angesteuert werden. Nach der Haltezeit (hier 4 h) werden Druck und Temperatur kontinuierlich auf ihre Normalwerte gesenkt. - Für den Pressablauf muß bei der Festlegung des Druck-Temperatur-Zyklus die Duktilität des Umhüllungsmaterials und das Drucksinterverhalten des zu pressenden Pulvers beachtet werden. Bei Metallen kann hier die Warmstreckgrenze, bei keramischen Pulvern das Verhalten beim gewöhnlichen Heißpressen als Anhaltspunkt dienen.

#### 4. Probenvorbereitung

##### 4.1 Auswahl eines geeigneten Kapselmaterials

Das Behältermaterial für den zu verdichtenden Stoff sollte folgende physikalische Eigenschaften besitzen:

- a) Hoher Schmelzpunkt und gute Schweißbarkeit
- b) Gute Verträglichkeit mit dem Material des Preßlings
- c) Hohe Duktilität bei Preßtemperatur
- d) Keine Gasdurchlässigkeit bei erhöhter Temperatur und hohem Außendruck
- e) Geringe Oxidationsneigung

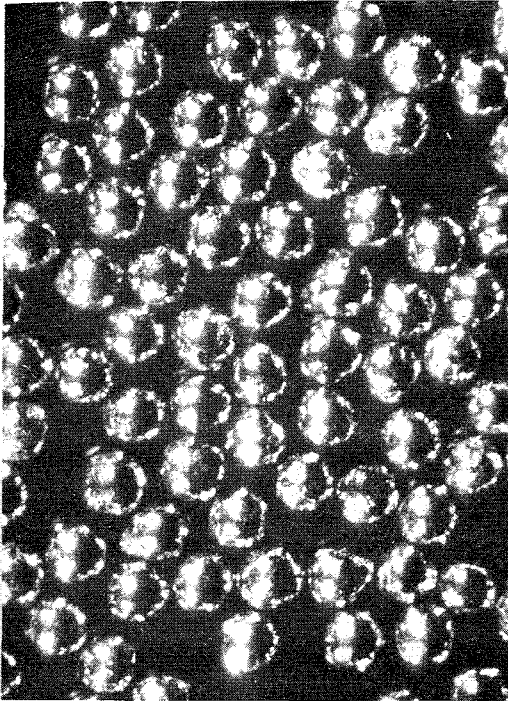
Bei Temperaturen oberhalb  $1200^{\circ}\text{C}$  verwendet man hochschmelzende Metalle wie Tantal, Molybdän und Niob; bei Einsatztemperaturen um  $1000^{\circ}\text{C}$  kann auch Reineisen oder nichtrostender Stahl verwendet werden.

Von den drei erstgenannten Metallen hat Tantal wegen seiner sehr guten Schweißbarkeit und Duktilität bei Raumtemperatur bestimmte Vorteile, besonders im Hinblick auf die Herstellung der Behälter z.B. durch Tiefziehen.

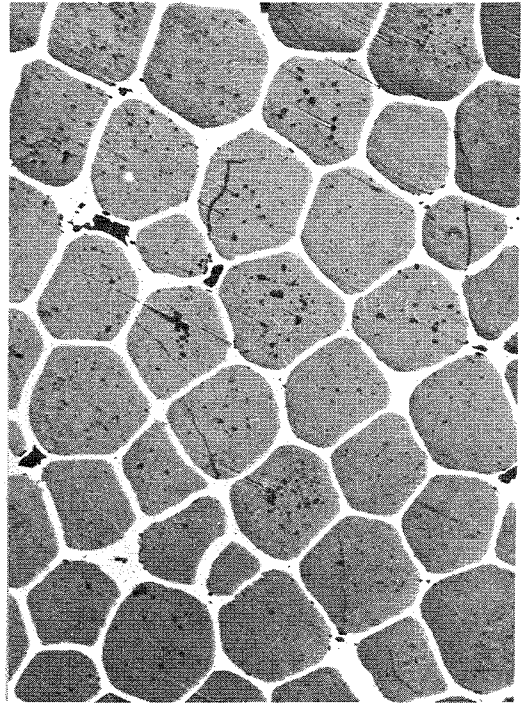
#### 4.2 Auswahl der geeigneten Partikel

Es ist die Verwendung eines zu feinkörnigen Produkts nicht angezeigt, da dieses bei der Heißpreßtemperatur größere Anteile adsorbierte oder anderweitig gebundene gasförmige Bestandteile abgibt. Hierdurch kann sich ein die Verdichtung behindernder Gegendruck in der Kapsel aufbauen. Bei grobteiligen kugelförmigen Pulvern hoher Dichte, z.B. im Bereich von  $100\ \mu\text{m}$  ist diese Störung im allgemeinen vernachlässigbar.

Im IMF werden bei der Herstellung von Cermets mit besonders gleichmäßigem Gefüge metallisierte Metalloxidkugeln von ca.  $100\ \mu\text{m}$  Durchmesser wie z.B. mit Molybdän beschichtete [6], [12] (Abb. 8)  $\text{UO}_2$ -Kugeln benutzt. Man kann auf diese Weise mit wenig Metallzusatz, wie in Abb. 8 gezeigt wird, nach dem Preßvorgang ein durchgehendes Metallnetz in der verformten  $\text{UO}_2$ -Grundmasse erzielen. Aus den metallisierten Kugeln sind durch plastische Verformung vieleckige Körper entstanden, an deren Berührungsflächen die Metallkomponente vorliegt. Ein solches Gefüge ist für bestimmte Brennelementtypen vorteilhaft; man erreicht so eine starke Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit, Zurückhaltung der Spaltgase und eine wesentliche Verbesserung der mechanischen Festigkeit des Brennstabes [13].



**Abb.7** Mo-beschichtete  
UO<sub>2</sub>-Kugeln  
V  $\approx$  100 x



**Abb.8** UO<sub>2</sub>/12vol% Mo-Cermet  
V  $\approx$  90 x

#### 4.3 Vorverdichtung der Pulverfüllung

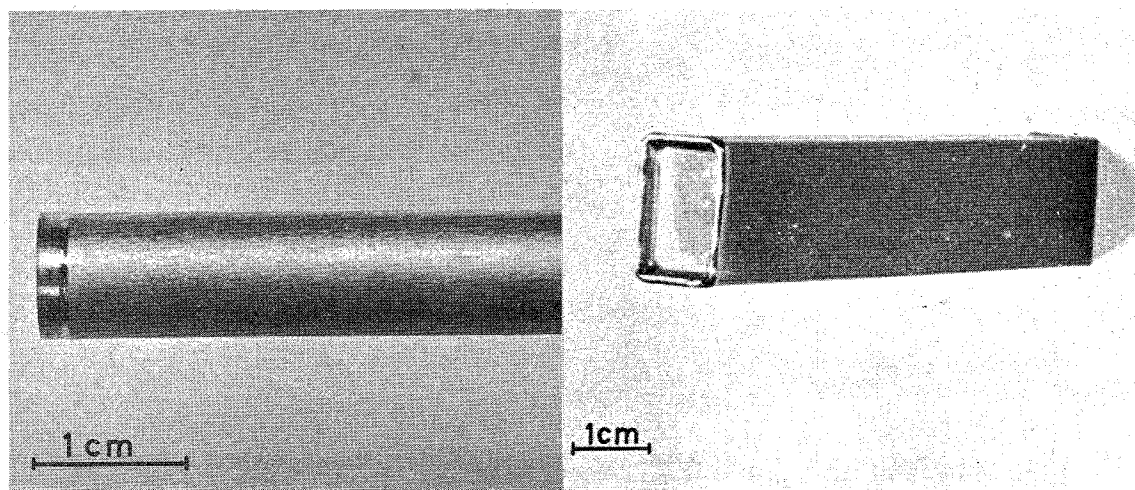
Zum Erreichen einer hohen und gleichmäßigen Enddichte ist es unbedingt erforderlich, eine Vorverdichtung von ca. 70 % der theoretischen Dichte der Pulvermasse zu erzielen, da eine geringere Grünlingsdichte zu starken Faltenbildungen bzw. Einbeulen der Hülle beim nachfolgenden Preßvorgang führt.

Man wendet im Institut für Material- und Festkörperforschung momentan drei Methoden an, um diese hohe Ausgangsdichte zu erzielen.

- a) Sukzessives Füllen und Einpressen der Pulver in die Kapsel mit einem Stempel
- b) Isostatisches Kaltpressen, Vorsintern, Bearbeiten und Einpassen in den Behälter
- c) Direktes Einvibrieren in das Hüllrohr

#### 4.4 Verschweißen

Nach dem Füllen wird die Kapsel in Hochvakuum mit Elektronenstrahlen verschweißt (Abb.9). Das Verfahren wurde für verschiedene Metalle von W. Scheibe [11] an anderer Stelle beschrieben.



a) Rund-Kapsel

b) Vierkant-Kapsel

Abb.9 Elektronenstrahlgeschweißte Behälter zum isostatischen Heißpressen.

#### 4.5 Leck-Test der Kapsel

Nach dem Zuschweißen wird jede Kapsel auf Gasdichtheit geprüft. Für den nachfolgenden Preßvorgang unter hohem Gasdruck (bis zu 1000 atü) ist Heliumdichtheit unerlässlich, da sonst durch Aufbau eines gleichgroßen Gegendruckes in der Probe die Verdichtung unterbleibt.

#### 4.6 Abmessungen der Kapseln

Die Maße des Pulverbehälters richten sich naturgemäß nach der gewünschten Form des Endprodukts. Da man gewöhnlich von gezogenem Rohrmaterial ausgeht, ist man hierdurch zunächst auf runde bzw. quadratische oder rechteckige Formen begrenzt. Bei der Dimensionierung der Kapsel ist natürlich ein lineares Schrumpfen von 15 - 20 % mit einzubeziehen.

Nach dem Preßvorgang ist bei starker Bindung zwischen Metallhülle und Preßling eine Endbearbeitung (z.B. Abschleifen der Hülle) erforderlich (Bild 10), sofern man den isolierten Preßling benötigt. Der Grad der Bindung hängt stark von der verwendeten Kombination Preßling-Kapsel ab und ist ohne besonderen Schutzmaßnahmen bei Preßlingen mit höherem Metallanteil sehr bedeutend.

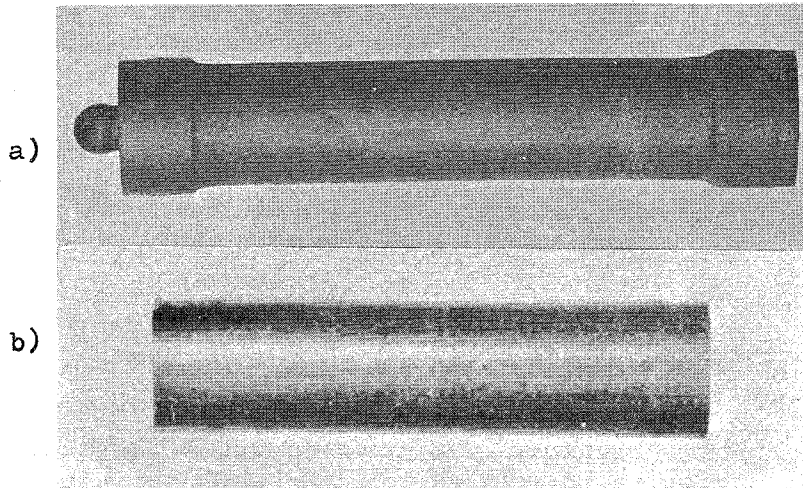


Bild 10 a) ungeschliffen b) geschliffener Preßling

#### 4.7 Einbau der Kapsel

Es zeigte sich schon bei den ersten orientierenden Vorversuchen, daß das Totvolumen im Autoklaven wegen der starken Konvektion des hochverdichteten Gases möglichst klein zu halten ist. Geschieht dies nicht, so stellt sich selbst nach langen Zeiten kein Temperatúrausgleich zwischen Wicklung und Probe ein, und der Hauptanteil der erzeugten Wärme wird über das Kühlwasser abgeführt. Man muß daher die Kapsel nach dem Einbau in die Einheit dicht mit grobem keramischem Pulver (z.B.  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) umgeben, um so das freie Gasvolumen auf ein Minimum zu reduzieren.

5. Einfluß des verwendeten Inertgases auf die Temperaturverteilung im System.

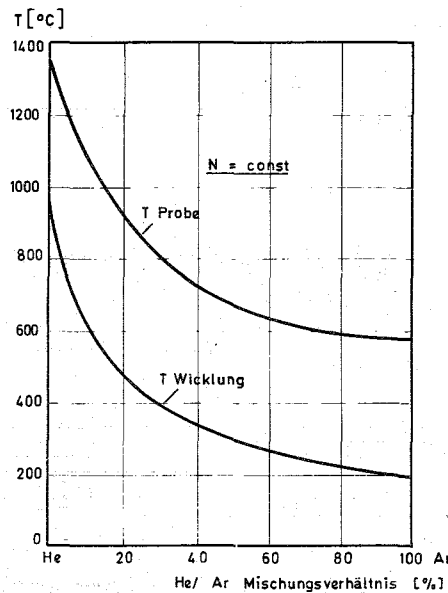


Abb. 11 Temperatur-Verteilung als Funktion vom Mischungsverhältnis He/Ar

In Abbildung 11 ist die Temperatur an der Probe und an der unteren (kältesten) Heizwicklung des 3-Zonen-Ofens in Abhängigkeit vom Mischungsverhältnis Helium-Argon dargestellt. Mit  $N$  wird die Heizleistung des Ofens bezeichnet. Man kann sehen, daß mit zunehmendem Argon-Gehalt die Probertemperatur bei konstanter Ofenleistung fällt. - Dies ist natürlich mit einer höheren Verlustwärme, die über das Kühlwasser direkt meßbar ist, verbunden. Dieses Phänomen bei Verwendung von Argon als Druckgas kann über einen konvektiven Wärmetransport von der Heizwicklung zur Kühlwasserseite erklärt werden.

Nur bei Verwendung von reinem Helium werden die mit der Konvektion verbundenen Verluste durch die um den Faktor 11 bessere Wärmeleitfähigkeit (bessere Querleitung im vertikalen Autoklaven) weitgehend verhindert. Die Frage, warum man solche Autoklaven nicht in horizontaler Lage verwenden kann, läßt sich wiederum über die Konvektion erklären. Bei horizontaler Lage würde sich die obere Heizwicklung des Ofens unzulässig hoch erwärmen. Es kommt dadurch zu hohen Temperaturgradienten in der Heizwicklung, wodurch die Lebensdauer des Ofens stark herabgesetzt wird.

6. Einige Beispiele isostatisch-heißgepreßter Proben

Es können Metalle, Keramiken und auch Kombinationen der beiden (Cer-mets) durch dieses Verfahren bis meist zur theoretischen Dichte ge-preßt werden. (Tabelle 1)

Bei den Metallen hat man bisher auf die Verdichtung von hochschmel-zenden Metallen, wie Niob, Molybdän, Rhenium, Tantal, Wolfram, Vana-din und deren Legierungen sein Hauptaugenmerk [2], [4],[5] gerichtet. Durch isostatisches Heißpressen kann die Verdichtungstemperatur auf ca.  $0,5 T_s$  gesenkt werden, was gleichzeitig mit der Erzielung besonders kleiner Korngrößen verbunden ist. Man erreicht durchweg theoretische Dichte.

isostatisch heißgepreßtes Pulver	Heißpreß-Temp. [°C]	Druck atü	Zeit [h]	erzielte Dichte % T.D.	Heißpreßtemp. [°K/°K] Schmelztemp.
W	1500				0,49
Ta	1400				0,51
Mo	1350				0,56
Nb	1250			100	0,55
Be	890	700-1000	3		0,75
Al	450				0,78
UO <sub>2</sub>	1400			99,5	0,52
UN	1480	700-1000	3	96,0	0,59
UC	1430			99,0	0,61
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1350			99,9	0,67
80vol% UO <sub>2</sub> /Cr				95	—
Mo	1270	700	3	90	—
Nb				91	—
SS				95	—

Tabelle 1 Isostatische Heißpreßdaten einiger Materialien nach [1], [3] und [10]

Für die Metalle Beryllium und Aluminium liegt diese Verhältniszahl etwas höher, was über die Stabilität von anhaftenden Oxidfilmen erklärt werden kann. Ähnliches wird auch beim Sintern beobachtet. - Bei den aufgeführten keramischen Verbindungen liegt die Preßtemperatur ebenfalls in der Gegend von ca.  $0,6 T_S$ . Beim Aluminiumoxid liegt sie bei ca.  $0,7 T_S$ .

Bei dem in Tabelle 1 aufgeführten Cermet-System  $UO_2$ /Metall kann man natürlich nicht wie bei den einphasigen Stoffen eine mehr oder weniger einheitliche "Bonding"-Temperatur angeben.

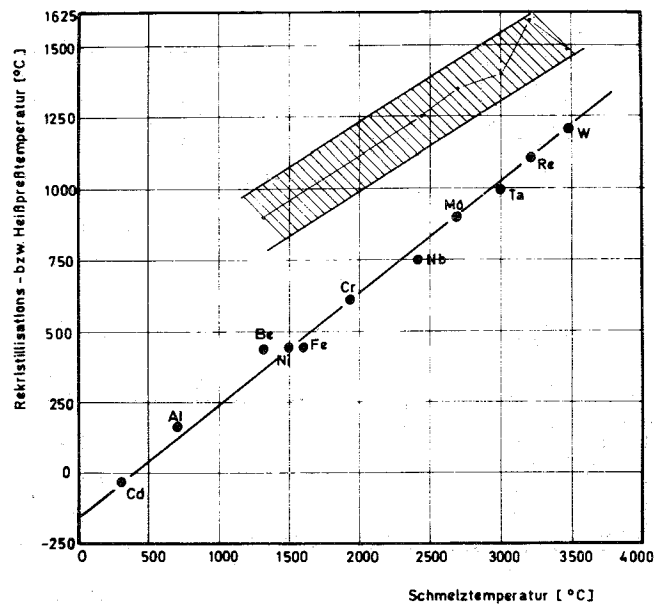


Abb. 12 Rekristallisations- [15] bzw. Heißpreßtemperatur (schraffiert) als Funktion der jeweiligen Schmelztemperatur.

Die Rekristallisationstemperatur ist bekanntlich ein gutes Maß für die Atombeweglichkeit und für den Widerstand gegenüber Verformung. Aus Abbildung 12 geht hervor, daß die notwendigen Temperaturen für isostatisches Heißpressen mit weitgehender Verdichtung bei Zeiten von wenigen Stunden durchweg oberhalb der Rekristallisationstemperatur liegen.



## 7. Vorläufige Werte physikalischer und mechanischer Eigenschaften isostatisch heißgepreßter Proben.

Beim Betrachten der beiden in Abb. 1 dargestellten Strukturen ist leicht einzusehen, daß es Unterschiede in den physikalischen und mechanischen Eigenschaften geben muß.

### 7.1 Elektrische Leitfähigkeit

Amato [6] und Mitarbeiter geben den spez. elektr. Widerstand von axialheißgepreßten  $UO_2/10$  vol % Cermets zu  $4 \cdot 10^{-4}$  [ $\Omega \cdot cm$ ] an.

System	Herstellung	spez. Widerst. [ $\Omega \cdot cm$ ]	Bemerkung	Literatur
$UO_2/10\%$ $Mo_2$	gesintert	$4 \cdot 10^{-2}$	$UO_2 + Mo$ gemischt	[7]
	axial heiß- gepreßt	$4 \cdot 10^{-4}$	umhüllte Kugeln	[6]
	isostatisch heißgepreßt	$4 \cdot 10^{-5}$	umhüllte Kugeln	eigene Messung

Im IMF isostatisch-heißgepreßte  $UO_2/10$  vol % Mo-Cermets zeigten einen Widerstandwert von  $4 \cdot 10^{-5}$  [ $\Omega cm$ ], d.h. um eine Zehnerpotenz niedriger. Sinterkörper derselben Zusammensetzung haben nach Gebhard, Ondracek und Thümmler [7] einen um zwei Zehnerpotenzen höheren spez. Widerstand. Allerdings lag hier wie aus der Tabelle ersichtlich ist ein durchgehendes Metallnetz vor.

### 7.2 Wärmeleitfähigkeit

Die Verbesserung im Leitvermögen von isostatisch verdichteten Cermet-Proben zeigten Cunningham und Mitarbeiter [3] anhand der Wärmeleitfähigkeit im System 80 vol %  $UO_2$ /Metall. In der nachfolgenden Tabelle

werden eigene Messungen im System  $UO_2/20\text{vol}\% \text{ Mo}$  mit einigen Werten aus der Literatur [17], [3] verglichen.

System	Herstellung	W-Leitfähigkeit [cal/s cm °C]	Bemerkungen	Literatur
$UO_2/20\text{Mo}$	gesintert	0,040	$UO_2$ -Pulver mit $Mo_2$ durch "Dragee-Coating" umhüllt. f. $40^\circ C$ , auf 100% T.D. korrigiert	[17]
	isostatisch heißgepreßt	0,033	$UO_2 + Mo$ gemischt f. $100^\circ C$ , 94,4% T.D.	[3]
	isostatisch heißgepreßt	0,046	$UO_2$ -Pulver mit $Mo$ durch Vapor-Deposition umhüllt. f. $100^\circ C$ , 99 % T.D.	eigene Messung

### 7.3 Biegebruchfestigkeit

Für spröde Werkstoffe nimmt man im allgemeinen zur Charakterisierung der Festigkeit die Werte des Biegebruchversuches.

Eine im IMF heißgepreßte Probe von 90 % T.D., System  $UO_2/20 \text{ vol-\% Mo}$ , zeigte eine Biegebruchfestigkeit von 11,0 [kp/mm<sup>2</sup>], während die von Cunningham [3] zitierten Werte des gleichen Systems im Mittel bei 8,0 [kp/mm<sup>2</sup>] lagen. Die Biegebruchfestigkeit von  $UO_2/Mo$ -Sinterkörpern [7] des gleichen Systems lag hingegen nur bei ca. 4 [kp/mm<sup>2</sup>]. Bei Verwendung von einem allseitigen Druck ist hier demnach eine Festigkeitssteigerung um ca. 200 % zu verzeichnen.

### 7.4 Schlagzähigkeit

Über die Schlagzähigkeit von isostatisch heißgepreßten Proben ist relativ wenig bekannt.

Eigene Messungen im System  $UO_2/Mo$  erbrachten für einen Metallgehalt von

12 vol % bei 8 % Porosität Werte um 7 [cm · g/mm<sup>2</sup>] bei Raumtemperatur. Eisenkolb und Schatt [8], [9] berichten über die Schlagzähigkeit im System Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr bei verschiedenen Temperaturen. Für 12 vol % Cr wurden bei Raumtemperatur an Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr-Sinterlingen eine Schlagzähigkeit von ca. 16 [cmg/mm<sup>2</sup>] gemessen. Ein direkter Vergleich dieser Werte von verschiedenen Systemen ist nicht möglich, da der Bindungszustand an den Phasengrenzen sehr unterschiedlich ist.

### 8. Schlußfolgerungen

Man kann die Vorteile des isostatischen Heißpressens gegenüber den herkömmlichen Preßverfahren in 5 Punkten zusammenfassen.

- a) Das Endprodukt wird in einem Arbeitsgang hergestellt, wobei gleichzeitig eine metallische Umhüllung aufgebracht wird. Ein großes Länge : Durchmesser-Verhältnis ist möglich.
- B) Die Verdichtung verläuft bei relativ niedrigen Temperaturen ab, wodurch eine gute Kontrolle über das Kornwachstum gegeben ist. Es resultiert ein feinkörniges Material mit guter Duktilität.
- Y) Auch Stoffe mit stark unterschiedlichen Sintertemperaturen und für die normale Sintertechnik zu hohen Dampfdrucken können zu massiven Körpern verdichtet werden. Dies erweist sich z.B. bei der Herstellung von Cermets als wichtig.
- δ) Toxische und α-strahlende Materialien, wie z.B. Kernbrennstoffe, können in der gasdichten Metallkapsel sicher gehandhabt werden.
- ε) Die Herstellungstoleranz liegt für Rundstäbe von 10 mm Ø z.Zt. bei ca. ± 1,0 % (mit Metallhülle). Soll der Preßling ohne Hülle benutzt werden, ist ein nachträgliches Abschleifen erforderlich, hier sind dann ohne Schwierigkeit enge Herstellungstoleranzen, wie sie z.B. für Brennelemente von "Schnellen Brutreaktoren" gefordert werden, einhaltbar.

Diesen Vorteilen stehen folgende Nachteile gegenüber:

- a) Die Anlagekosten liegen für eine isostatische Heißpreßanlage hoch.

Sie erhöhen sich jedoch nicht sehr stark, wenn von kleinen Proben auf längere Stäbe übergegangen wird. Hierbei treten jedoch neue Toleranzprobleme auf.

- B) Die Probenvorbereitung und der Preßvorgang sind kompliziert, zeitaufwendig und damit teuer.
- V) Die erzielbaren Durchmesser der Teile sind bei der beschriebenen Anlage auf ca. 30 mm begrenzt. Für Brennstäbe ist dieser Wert voll ausreichend und wird wohl in keinem Falle als Grenze empfunden. Für andere Anwendungen wäre dies sicher nicht der Fall. Mit steigendem verfügbarem Querschnitt wachsen die Anlagekosten für den Autoklaven viel stärker als linear.

Ein Haupthindernis für eine breitere industrielle Anwendung dieses Verfahrens liegt sonst außer in den an sich hohen Kosten in der Begrenzung im Preßling-Querschnitt (nicht in der Länge!), da bei Verwendung des "Cold Wall" Autoklaven ca. 85 % des Nutzdurchmessers durch die Innenheizung belegt sind.

Die Stärke des isostatischen Heißpreßverfahrens liegt in der Möglichkeit, dichte Werkstoffe sehr kleiner Korngröße herstellen zu können. In Verbindung mit einer Beschichtungstechnik können Verbundkörper hoher Dichte und definierter und reproduzierbarer Mikrogeometrie erhalten werden. Bei Benutzung von metallisierten Keramikugeln konnte so im Institut für Material- und Festkörperforschung ein durchgehendes Metallnetz bis zu einem Metallgehalt von nur 2 vol% im Preßling geschaffen werden.

Es bietet sich hier offensichtlich die Möglichkeit an, die physikalischen und mechanischen Eigenschaften des keramischen Ausgangsmaterials schon durch geringe Zusätze stark zu verändern. Dies ist sowohl im Hinblick auf die Weiterentwicklung des Cermetsgebietes als auch für modifizierte Kernbrennstoffe mit stark verbesserter Wärmeleitfähigkeit und guter Spaltgasruckerhaltung von besonderem Interesse. Erste Überlegungen hierzu wurden im Hinblick auf einen gasgekühlten Hochtemperaturbrüter kürzlich publiziert [14].

Einzelheiten über Herstellung und Eigenschaften solcher Spezialmaterialien werden in einem späteren Bericht mitgeteilt [16].

An dieser Stelle sei Fräulein Geiser für die Ausführung von physikalischen Messungen, Herrn Bauer für die Betreuung der isostatischen Heißpreßanlage und Herrn Schönwald für die Herstellung des Molybdän-"coating" gedankt.

Den Herren Rodrian und Hägele vom IMF danken wir für ihre Hilfe bei den Elektronenstrahlschweißungen.

Der Firma NUKEM in Hanau danken wir für das Schleifen der uranhaltigen Prüfkörper.

## 9. Zusammenfassung

Ein neuartiges Verdichtungsverfahren für pulverförmige Substanzen, das isostatische Heißpressen, wird beschrieben. Der Prozess läuft bei hohen Temperaturen und Drucken in einem Autoklaven ab. Die Proben befinden sich in einem dünnwandigen Metallbehälter, der den isostatischen Gasdruck auf die pulverförmige Substanz überträgt und sie dadurch auf theoretische Dichte bringt.

Im Institut für Material- und Festkörperforschung wurde eine für diese Zwecke geeignete Anlage bis  $1600^{\circ}\text{C}$  und 1000 atü entwickelt, aufgebaut und erprobt.

Die physikalischen Kennwerte einiger im Institut für Material- und Festkörperforschung heißgepreßter Proben wurden gemessen und mit einigen aus der Literatur entnommenen Werten verglichen.

## 10. Literatur

- [1] E.S. Hodge "Elevated Temperature Compaction of Metals and Ceramics by Gas-Pressures"  
Powder Met., 1964, Vol 7, 14 S.168
- [2] E.S. Hodge "Fabrication of Tungsten and Tungsten Composites by the Gas-Pressure-Bonding Process"  
Paper A.I.M.E. Symposium June 1964
- [3] G.W. Cunningham "Cermets-Fuel-Elements"  
4. Plansee Sem. 1962 und "Recent Developments in Reactor-Materials from Powders"  
Reactor-Mat., Vol 6, 1963 H 1.
- [4] E.S. Hodge "Solid State Bonding of Refractory Metals and Isostatic Compaction of Refractory Metal Powders"  
Paper Am.Soc. f.Met. 1962  
in Mat. Design. Eng. 1962 55 (3) 14
- [5] S.J. Paprocki et.al.
- [6] I. Amato et.al. "The dependence on Microstructure of the high Temp. Properties of  $UO_2$ -Mo and  $UO_2/W$ -Cermets"
- [7] E. Gebhardt  
G. Ondracek  
F. Thümler "Eigenschaften von  $UO_2$ /Mo-Formkörpern"  
Journ. of. Nucl. Mat. 13 (1964) 229 - 241
- [8] W. Schatt "Über das Schlag-, Temperaturwechsel- und Zeitstandsverhalten von Cermets auf  $Al_2O_3$ -Basis"  
Wiss. Z. TH Dresden 8 (1959) 2

- [9] F. Eisenkolb und  
W. Schatt "Herstellung und Prüfung von Sinterkör-  
pern aus  $Al_2O_3$  und Chrom"  
Wiss. Z. TH Dresden 6 (1956/57) 2
- [10] R. R. Irving "Pressure Bonding Tapes Powders" in Iron  
Age Oct. 17 (1963)
- [11] W. Scheibe "Das Elektronenstrahlschweißen und seine  
Anwendung in der Reaktortechnik"  
KFK-Bericht Nr. 404 (1966)
- [12] H. Schneider "Die Abscheidung von Molybdän auf Zirkon-  
oxid - und  $UO_2$ -Kugeln aus der Gasphase"  
KFK-Bericht 555 Jan. (1967)
- [13] F. G. Robertshaw "The Use of spherical  $UO_2$  in a Cermet-Fuel  
R.K. Betts Plate"  
D. E. Conner Nucl.Sci. u. Eng. 28, 20 - 33 (1967)
- [14] K. Wirtz "Gas Cooling for Fast Breeders"  
M. Dalle Donne Vortrag beim: Winter Meeting of the Ameri-  
can Nuclear Society at Chicago Nov. 5 - 9,  
1967 sowie KFK-689 (1968) Dalle Donne u.  
Wirtz
- [15] R. Kieffer "Hartmetalle" und "Hartmetalle"  
F. Benesorsky Springer 1965
- [16] P. Weimar Bericht für das 2. Internationale Symposium  
F. Thümmeler über Pulvermetallurgie, Stuttgart, Mai 1968  
H. Bumm in Vorbereitung
- [17] Himmelstein et.al. Private Mitteilung