

Orientált egykristály előállítása Heusler ötvözetből

PHD értekezés

Veres Zsolt

Mérnök-fizikus

Tudományos témavezető

Dr. Roósz András



Miskolci Egyetem

Műszaki Anyagtudományi Kar

Anyagtudományi Intézet

Miskolc

2009

Tartalomjegyzék

1	Bevezetés.....	4
2	Neutronnyaláb monokromatizálása és polarizálása	5
2.1	Neutron	5
2.2	Neutronok előállítása.....	5
2.3	A neutronnyaláb manipulálása.....	6
2.3.1	A neutronnyaláb monokromatizálása	6
2.3.2	A neutronnyaláb polarizálása	8
3	Heusler ötvözet	9
4	Egykristály-előállítás.....	11
4.1	Kristályosodás	11
4.2	Az egyirányú kristályosítás elve	12
4.3	Az egykristály növesztés elve	14
4.3.1	Kristályszelekció.....	14
4.3.2	Növesztés kristálymagra	16
4.4	Eljárások egykristályok növesztésére.....	16
4.4.1	Véglaphűtéses eljárás.....	16
4.4.2	A Bridgman eljárás	17
4.4.3	Az Ohno módszer	19
4.4.4	A Chohralsky módszer.....	20
4.5	Az Institut Laue Langevin-ben előállított Heusler polarizátor	21
5	Orientált egykristály előállításának módszere	21
6	Alkalmazott vizsgálati módszerek	22
6.1	Összetétel ellenőrzése.....	22
6.2	Fénymikroszkópos vizsgálatok	23
6.3	Neutrodiffrakciós vizsgálatok	24
6.4	Orientálás röntgen Laue módszerrel.....	26
6.4.1	Mérési összeállítás	27
6.4.2	Mérések menete	28
7	Polikristályos előgyártmány készítése	32
7.1	A kokilla.....	33
7.2	Alapanyag összeállítása	34
7.3	Öntés	35
7.3.1	Az öntés eredménye.....	36
8	Sokzónás kemencével történő kristályosítás elve	37
8.1	A formaüreg kitöltése olvadékkal	38
8.2	Irányított kristályosítás	39
9	Az előkísérletek végzéséhez használt Univerzális Sokzónás Kristályosító Ipari változata (USKI)	39
9.1	Kísérleti összeállítás az USKI-ban	40
10	A kristályosító berendezés	41
10.1	Kemence	41
10.2	Vákuum rendszer.....	42
10.3	Tápegység	42
10.4	Adatgyűjtő és szabályozó egység.....	42
10.5	Kísérleti összeállítás az UMC-ben	43
10.6	Fűtési program készítése.....	46
10.7	A kristályosító termikus viselkedése	49
10.7.1	Hőmérsékletviszonyok a kemence falán.....	49

10.7.2	Hőmérsékletviszonyok a darabban	52
11	Előkísérletek az USKI-ban.....	55
11.1	Az előkísérletek legfontosabb eredményei	60
12	Kristályosító tégely kifejlesztése	61
12.1	Öntartó kerámiából készült kristályszelektoros kristályosító kapszula.....	61
12.1.1	Repedések a darab felületéhez közel	62
12.1.2	Oxidhártya a darab belsejében.....	62
12.1.3	Szennyeződések a darab belsejében	63
12.2	Öntartó kerámiából készült kúpos kristályosító kapszula.....	63
12.3	Alumínium-oxiddal beszórt kapszulák.....	64
12.4	Alumínium-oxid kapszulák.....	64
12.4.1	Az alumínium-oxid kapszulák többszöri felhasználása.....	65
13	Orientálatlan egykristály növesztése	65
13.1	A fénymikroszkópos vizsgálatok eredményei	72
13.2	A neutrondiffrakciós vizsgálatok eredménye	73
13.3	A röntgen-Laue mérések eredménye.....	74
14	Magra növesztés	74
14.1	Magkristály kivágása	74
14.2	Alumínium-oxid kapszula a magra növesztéshez	75
14.3	Kísérletek	76
14.4	A kísérletek eredménye	83
15	Monokromátor lemezek készítése és minősítése	84
15.1	A lemezek kivágása.....	84
15.2	A monokromátor lemez minősítése.....	85
16	A Heusler egykristályok szerkezete	89
17	Összefoglalás.....	93
18	Új tudományos eredmények	97
19	Irodalomjegyzék.....	100
20	Mellékletek	102

1 Bevezetés

Egyes neutron diffrakciós vizsgálatokkal szemben támasztott követelmények megkövetelik a minél nagyobb intenzitású, megfelelő mértékben monokromatizált és polarizált neutronsugarak használatát. Minden követelménynek teljes mértékben eleget tenni a ma ismert módszerekkel nem lehetséges, azonban az értékek optimalizálhatók. A különböző monokromatizálási és polarizálási eljárások, berendezések mindegyikének megvannak az előnyei és hátrányai egyaránt.

A módszerek többségében a két folyamat egymástól térben és időben elkülönül, azaz a monokromatizálás és a polarizálás két lépésben történik, ami többszöri intenzitás-vesztéssel jár. Ezt a túlzott intenzitás-vesztést küszöböli ki az egykristállyal egy lépésben való monokromatizálás és polarizálás.

Több ötvözet is alkalmas egykristály monokromátor-polarizátor alapanyagának, de ilyen egykristályok előállítása még nem megoldott, általában több nagy kristály közül választanak ki egy megfelelőt. A módszer hátránya, hogy a kristály előállítása nem ellenőrzött körülmények között történik, így a kristályok méretét és minőségét nem lehet közvetlenül befolyásolni.

Munkám során a célkitűzésem volt egy komplex eljárás kidolgozása (az ötvözet előállításától a kristályok minősítéséig) amellyel a Cu_2MnAl Heusler ötvözetből olyan egykristály növeszthető amely alkalmas neutronsugár egyidejű monokromatizálására és polarizálására.

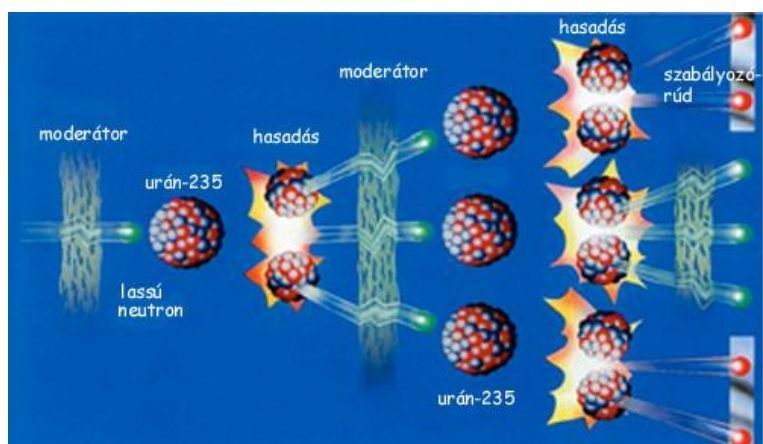
2 Neutronnyaláb monokromatizálása és polarizálása [16, 21]

2.1 Neutron [1, 2, 3]

A neutron elektromosan semleges, nyugalmi tömege közel egyenlő egy proton és egy elektron nyugalmi tömegének összegével. Bár az elektron és a proton elektromos tere kioltja egymást, a forgásból adódóan a neutron mágneses spinnel rendelkezik, amelyik paritása $1/2$ vagy $-1/2$ lehet. Az anyaggal való kölcsönhatása nagyon gyenge, egyrészt az atommagokkal való kölcsönhatásból, másrészt, mágneses anyagok esetén, az elektronok eredő mágneses momentumával való kölcsönhatásból áll. Előbbit rugalmas, utóbbit rugalmatlan szórásnak nevezzük. A kétféle szóródás, intenzitása összeadódik, miközben interferencia jelenségek nem lépnek fel.

A neutronoknak nagy a behatoló képessége, tehát vastag rétegeken képesek áthatolni. Ez a nagy gerjesztési térfogat miatt hátrány lehet, ha kevés minta áll rendelkezésre. Minden más esetben sokkal pontosabb, az anyag egészére vonatkozó információt ad, mint egyéb vizsgálati módszerek. Kristálytani vizsgálatokra általában akkor használják, ha a periódusos rendszerben egymás melletti, tömegükben kismértékben különböző elemeket kell megkülönböztetni, esetleg izotópok, vagy kis rendszámú elemek helyének a meghatározása szükséges. Ezekben az esetekben ugyanis az olcsóbb vizsgálati módszerekkel nem lehet megfelelő eredményeket elérni.

2.2 Neutronok előállítása [1, 2, 4, 7, 16]



1. ábra. A maghasadás [7]

Neutronok előállítására kevésbé elterjedt módszer a protonnyalábbal indukált neutronforrás. Ebben az esetben nehézfémet bombáznak proton nyalábbal. A nagy erejű ütközések hatására az atommag „felforr” és neutron kibocsátás közben elbomlik. A keletkező

neutronok újabb neutronokat generálnak. Az így keletkező neutronok energiája nagyobb, mint 20MeV.

Elterjedtebb neutronforrások a hasadási reaktorok. Itt kis energiájú neutronok hatására az U^{235} vagy a Pu^{239} atommagok hasadnak, több kisebb atommagra esnek szét, miközben többek között neutronok szabadulnak fel. A keletkezett neutronok újabb hasadásokat idéznek elő. (1.ábra)

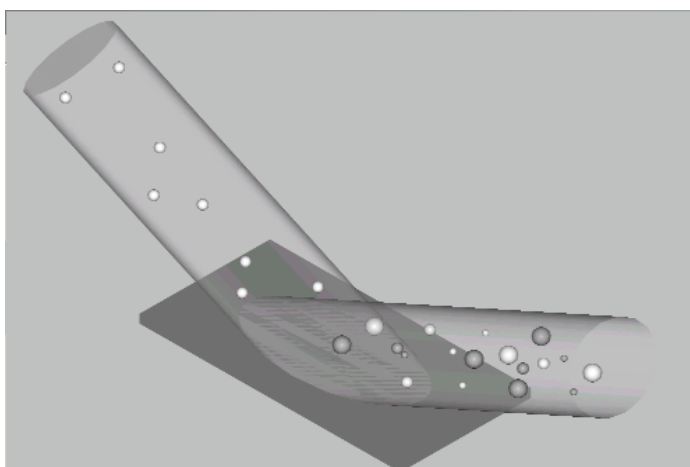
2.3 A neutronnyaláb manipulálása [14, 15]

A keletkező neutronok energiája Maxwell-Boltzmann eloszlást mutat. Fluxusa jóval kisebb, mint a röntgen fotonoké, ezért a nyalábot optimalizálni kell. Ezt moderátorokkal végzik, amelyek a termikus neutronokat adott hőmérsékletűre hűtik, ezáltal lassítják. Így a kívánt energiájú neutronok arányát meg lehet növelni. A moderátor lehet pl. grafit, hidrogén, vagy víz.

A moderált neutronnyalábot el kell vezetni a mérőhelyekre. Erre a feladatra neutron vezetőket használnak, amelyek a teljes visszaverődés elvén működnek. Mivel a teljes visszaverődés csak néhány fokos beesési szögnél valósul meg, a nyalábot ilyen módon vezetni csak nagyon nagy sugarú ívben lehetséges. Ezért a nagy energiájú, termikus neutronokkal dolgozó berendezéseket a reaktor mellett radiálisan, a hideg neutronokkal dolgozókat pedig tangenciálisan helyezik el. Ennek az eredménye, hogy a nyaláb egyenesen a berendezéshez vezethető. [1]

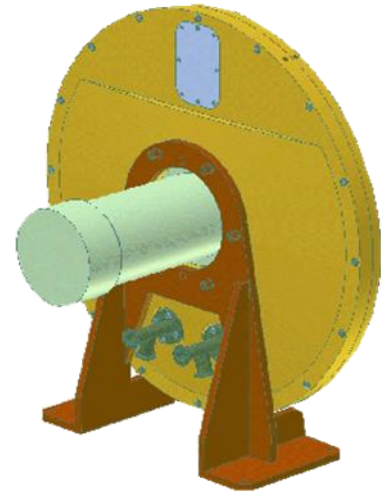
2.3.1 A neutronnyaláb monokromatizálása [1, 18]

A vizsgálatok jelentős részéhez monokromatizált nyaláb szükséges. Ez azt jelenti, hogy a vizsgálatok elvégzéséhez egy bizonyos energiájú (kis energiatartományba eső)



2. ábra. A neutronnyaláb polarizálása és monokromatizálása

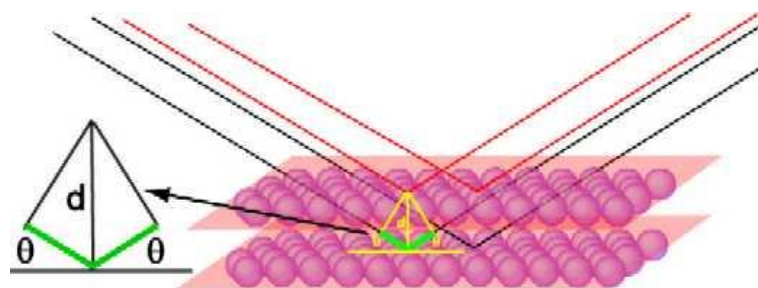
neutronokra van szükség (2. ábra). A monokromatizálásra több módszer is ismeretes. A legtöbb közülük a repülési úthossz különbségek (TOF=Time Of Flight) segítségével monokromatizál, vagyis azt használja ki, hogy a különböző hullámhosszú, így különböző energiájú neutronok sebessége is különböző. Így ugyanakkora út megtételéhez más-más időre van szükségük. A nyaláb útjában egy chopper forog állandó sebességgel, ami leegyszerűsítve egy, a neutronnyaláb magasságában átfúrt vízszintes tengelyű korong. (3. ábra) A lyukba belépő neutronok közül csak azok tudnak kilépni a túloldalon, amelyeknek a sebessége legalább akkora, hogy még azelőtt kiérjenek, mielőtt a lyuk elfordulna a nyaláb irányából. Ha a lyuk nem egyenes vonalú, hanem vízszintesen elhajlik a forgás irányával ellentétes irányba, akkor a túl nagy energiájú neutronok is kiszűrhetők, mivel ezek a lyuk falának ütköznek. Az elhajlás mértékével és a chopper forgási sebességével változtatható a kiérkező neutronok energiája. [5, 6]



3. ábra. Chopper [8]

A módszer hátránya hogy amikor a lyuk nem párhuzamos a nyalábbal, akkor elnyeli a neutronokat, vagyis a nyalábot megszaggatja erősen lecsökkentve az intenzitást.

Elterjedtebb az egykristály monokromátor alkalmazása. Ez a módszer a Bragg-feltétel szerint történő monokromatizálás, ami folyamatos sugárnyaláb előállítását teszi lehetővé, szemben az előzőekben ismertetett módszerekkel. Ha feltételezzük, hogy a neutronsugarak (elektron, röntgen, fény stb. esetén is) a kristály különböző atomsíkjairól, mint síktükrökről verődnek vissza, akkor a visszavert nyalábok csak azokban az irányokban észlelhetők, amelyekben a párhuzamos atomsíkokról visszavert nyalábok interferenciája erősítést eredményez. (4. ábra) [3, 4]



4. ábra A Bragg szabály [9]

Tekintsük a kristályt egymástól d távolságban levő párhuzamos atomsíkok sorozatának, amelyek a λ hullámhosszú sugárzást részben visszaverik. Legyen a sugárzás beesési síkja az ábra síkjában. A két szomszédos síkról visszavert sugár közti útkülönbség $2d\sin\Theta$. Az egymás alatti további síkokról visszavert sugarak mind erősítik egymást, ha az útkülönbség a hullámhossz egész számú (n) többszöröse. A reflexió irányában az erősítés feltétele:

$$2d\sin\Theta = n\lambda$$

A Bragg reflexió szükséges feltétele: $\lambda \leq 2d$.

Ideális kristály esetében, párhuzamos kristálytani síkoknál, csak a λ hullámhosszú neutronok verődnek vissza. Reális kristályok esetében azonban a kristálytani síkok egymással nem párhuzamosak. Ebben az esetben a visszaszórt neutronok hullámhossza nem konstans érték, hanem annak szűk környezetébe eső hullámhosszúságú neutronok összessége. Az ilyen kristályon reflektálódott nyaláb hullámhossza normál eloszlású. A síkok párhuzamostól való eltéréseinek mértékét az intenzitás eloszlásfüggvény félértékszélességével jellemezzük. [3, 4]

Monokromátor egykristályként leggyakrabban Pb, Cu, Be vagy pyrolitikusan előállított grafit egykristályok használatosak. Az ezekkel a kristályokkal monokromatizált sugár még polarizálatlan, így azt, ha a vizsgálat megkívánja még polarizálni kell.

2.3.2 A neutronnyaláb polarizálása [1, 10, 17]

A neutronok forgásukból adódóan mágneses momentummal rendelkeznek, melynek paritása $-\frac{1}{2}$ vagy $\frac{1}{2}$ lehet. A polarizálással szét tudjuk választani a forgás iránya alapján a neutronokat, sőt meg is tudjuk változtatni a paritásukat.

A polarizálás alapja, hogy a reflexiós szög és a teljes visszaverődés kritikus szöge többek között függ a mágneses tértől is a kétféle spin esetében nem egyenlő mértékben. Egy mágneses térbe helyezett ferromágneses szupertükör vagy egykristály más irányba veri vissza a különböző spinű neutronokat.

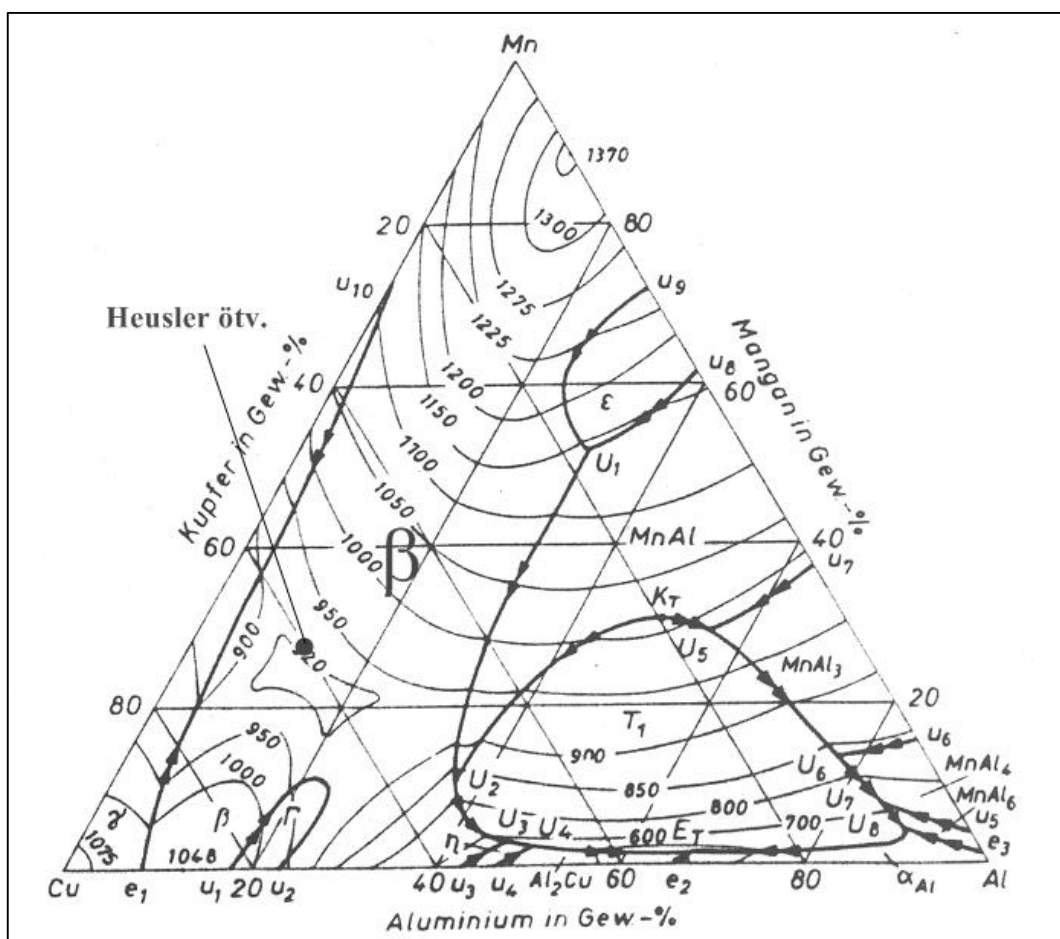
Ezek alapján vagy a már monokromatizált nyalábot vezetik egy szupertükörré, ami polarizálja azt, vagy a fehér nyaláb útjába olyan monokromátor kristályt helyeznek, ami ferromágneses és a monokromatizálással egy időben polarizálja is a nyalábot. Erre a célra régebben olyan $\text{Co}_{0,95}\text{Fe}_{0,05}$ egykristályt használtak, amiben a Fe^{57} izotóp található. Ennek kiváltására alkalmas az eredeti Heusler ötvözet egykristály. A Cu_2MnAl ötvözetből készített egykristály reflektivitása nagyobb, mint elődjéé, ráadásul nincs benne radioaktív komponens. [12, 13]

Ez utóbbi módszer rendelkezik a legnagyobb hatáskeresztmetszettel. Így lehet elérni a legnagyobb intenzitást, ezért kívánatos a megfelelő méretű és minőségű Heusler egykristályok előállítás.

3 Heusler ötvözet [11, 12]

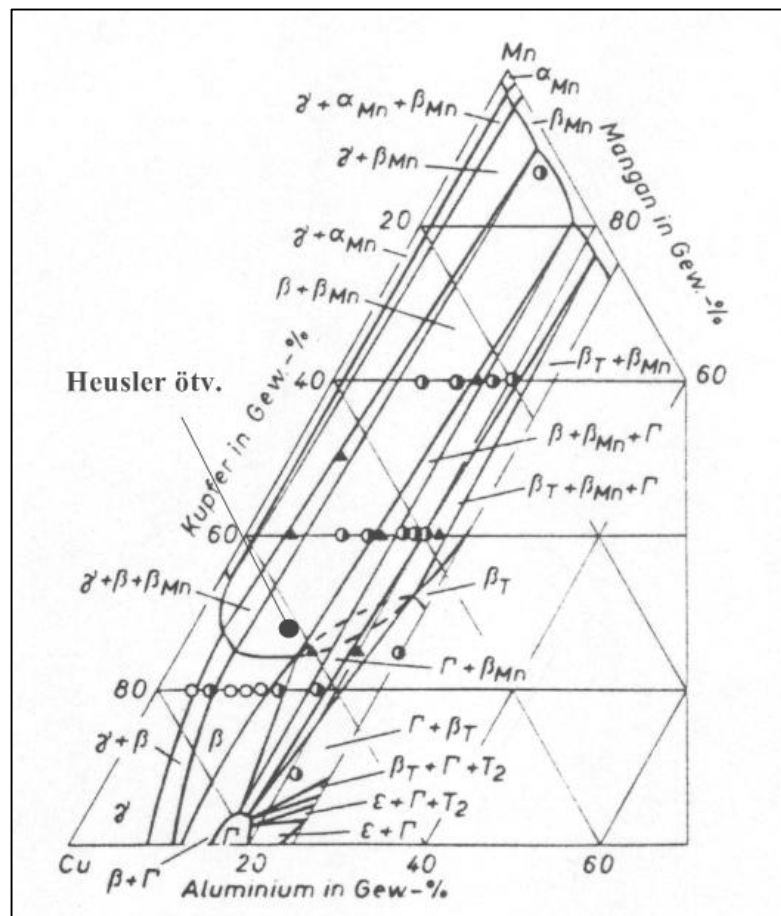
Ez a felfedezőjéről elnevezett ötvözet, a Cu_2MnAl 60,7 m/m % Cu-ból, 26,4 m/m% Mn-ből és 12,9 m/m% Al-ból áll.

Az összetétel alapján a 5.ábrán látható egyensúlyi diagramból és mérésekből megállapítható a Heusler ötvözet olvadáspontja. A Heusler ötvözet nyílt maximummal kristályosodó ötvözet, a likvidusz és a szolidusz hőmérséklet egybeesik. Az irodalom szerint a Heusler ötvözet olvadáspontja 920°C .



5. ábra. A Cu-Mn-Al rendszer likvidusz felülete [11]

Vizsgálatok alapján a Cu_2MnAl -nek megfelelő összetételű háromalkotós olvadékból hűtés közben egyensúlyi állapotban 920°C hőmérsékleten β -vegyület kristályosodik (5. ábra) és kb. 630°C -ig homogén marad. 630°C alatt a β -vegyület fázisból β mangán fázis válik ki. (6. ábra)



6. ábra. Cu-Mn-Al rendszer egyensúlyi fázisdiagrammja 600°C-os izotermán [11]

600°C-tól a β és β_{Mn} mellett megjelenik Γ fázis is. Ez a három fázis tart egymással egyensúlyt 420°C-ig. 420°C-on $\beta + \beta_{Mn} = \Gamma + T_3$ átalakulás megy végbe az ötvözetben (7. ábra) Szobahőmérsékleten az ötvözet térben középpontos kockarácsú, egyensúlyban Γ , T_3 , és β_{Mn} fázisokból áll.

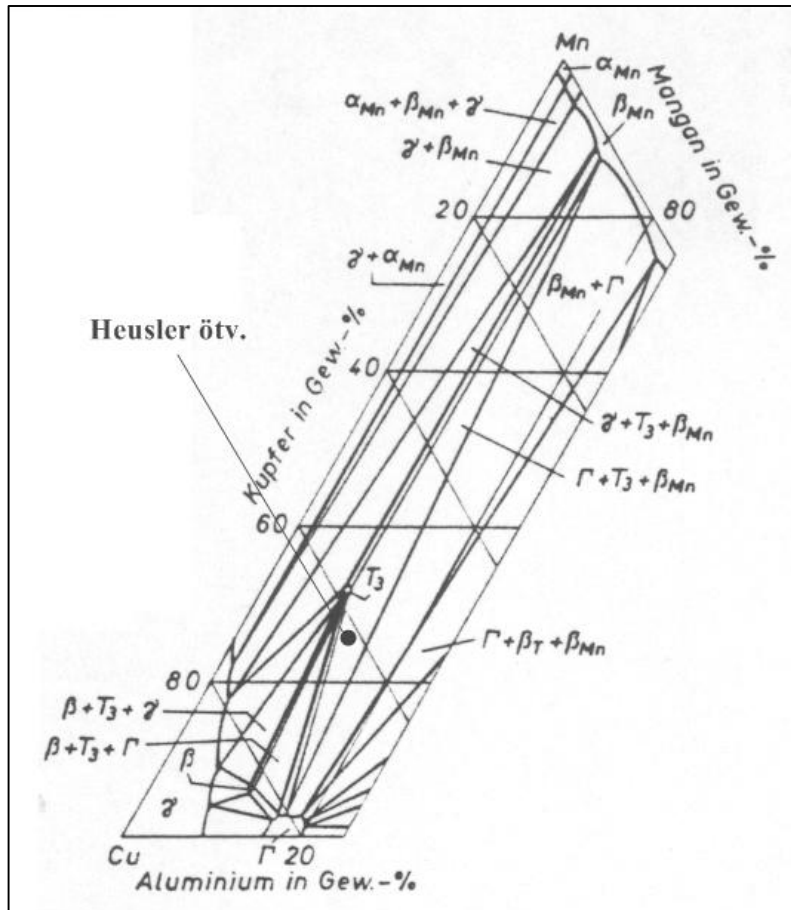
A hűlés közben keletkező fázisok a következők:

β : a kristályosodásnál keletkező fázis, mely térben középpontos vegyületkristály, aminek a képlete a már fentebb leírt Cu_2MnAl , ami különböző hőmérsékleten különböző mértékben, de tudja oldani az alkotóit.

β_{Mn} : a mangán β állapotú allotróp módosulata

Γ : vegyületfázis, amely egyáltalán nem tartalmaz mangánt, képlete: Cu_9Al_4 . Kis mértékben képes oldani alkotóit.

T_3 : egy Al-ban gazdag háromalkotós vegyületfázis, melynek a képlete $Cu_5Al_{11}Mn_3$.



7. ábra: Cu-Mn-Al rendszer egyensúlyi fázisdiagramja Cu sarkának 410°C-os izotermáin [11]

Meg kell jegyezni, hogy az átalakulásokhoz, diffúzióra, a diffúzióhoz pedig időre van szükség. A diagrammok egyensúlyi állapotra vonatkoznak, tehát végtelenül lassú lehűlésre. A valóságban azonban a folyamatok nagy részére nincs elég idő, mert a hűlési sebessége nagy. A kísérleteimben használt hűtési sebességek mellett a próbadarabokban szobahőmérsékleten csak β és β_{Mn} fázis található.

4 Egykristály-előállítás

4.1 Kristályosodás [23, 24, 25]

A kristályos anyagok fizikai, mechanikai tulajdonságai, különböző kristálytani irányokban különbözőek. Egyes irányokban ezek a jellemzők a felhasználás szempontjából kedvezőbbek, mint más irányok esetében. Ha az igénybevétel iránya és az a kristálytani irány, amely irányban a tárgy a legjobb tulajdonsággal rendelkezik egybeesnek, az adott célnak nagyobb mértékben megfelelő tárgyakat tudunk létrehozni. Egyes esetekben még jobb tulajdonságok érhetők el, ha az előállított tárgyak egyetlen kristályból állnak azaz nem

tartalmaznak nagyszögű kristályhatárokat. Ezeket az egykristályokat az irányított kristályosítás valamilyen változatával állítják elő.

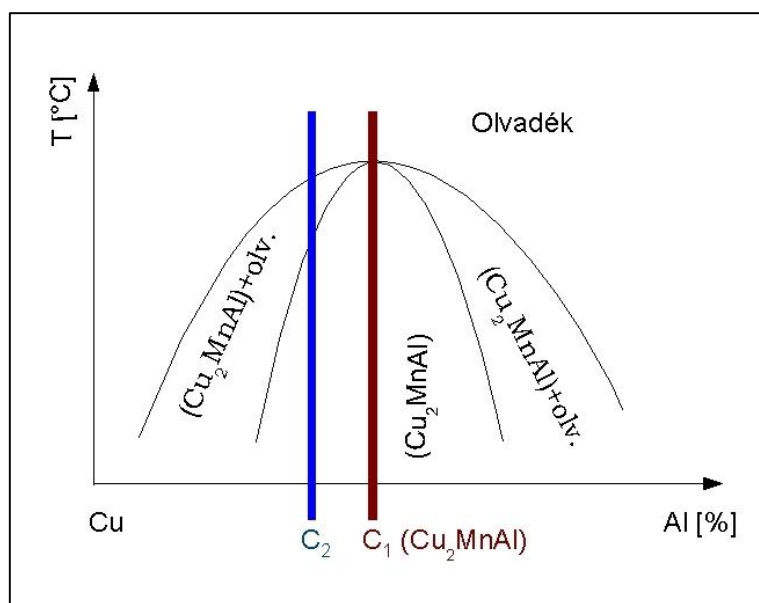
4.2 Az egyirányú kristályosítás elve [25, 26]

Egyirányú kristályosítás esetében a kristályok azonos irányban nőnek. Ezt egyirányú hőelvonással lehet megvalósítani. Ebben az esetben a kristályosodási front (szilárd/olvadék határ) haladásának iránya párhuzamos a hőelvonás irányával, értelmében azzal ellentétes. A front (ha a növekedés síkfronttal történik) merőleges a hőelvonás és a növekedés irányára. (8. ábra)

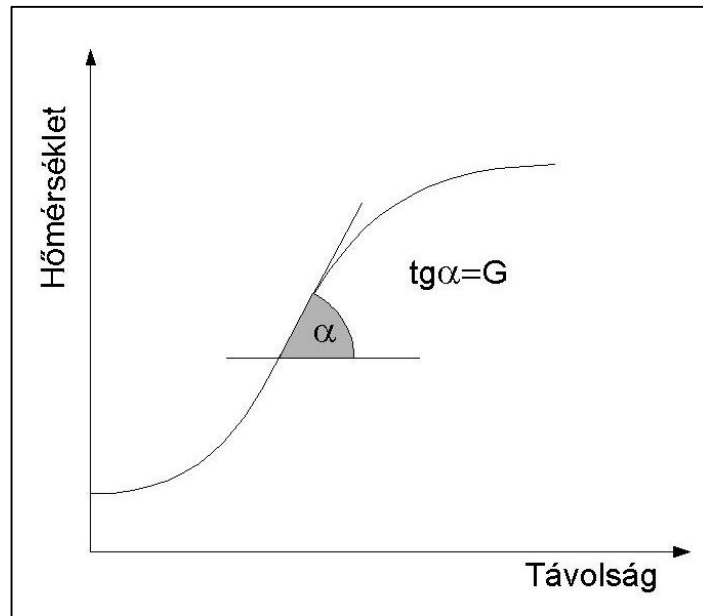


8. ábra: Szilárd/olvadék fázishatár

Ha a keletkező fázis liquidusz és szolidusz hőmérséklete egybeesik, (9. ábra, C_1 koncentráció) a kristályosítás, ha új csírák nem keletkeznek, sík fronttal megy végbe. (nincs mushy zóna). A Heusler ötvözetnél ez azt jelenti, hogy az összetétel pontosan megfelel a Cu_2MnAl sztoichiometriai összetételnek. Ha az összetétel ettől kismértékben eltér, (9. ábra, C_2 koncentráció) a vegyület szilárd oldatként viselkedik (szekunder szilárd oldat), a síkfront felborulhat. A gyakorlatban általában nem sikerül megtalálni a sztoichiometriai összetételt, ezért mindenképpen figyelembe kell venni a következőket.



9. ábra. A vegyület szilárdoldatként való viselkedésének az oka. (C_1 koncentráció a sztoichiometriai összetétel, C_2 koncentráció attól kismértékben eltérő)



10. ábra. Az olvadék/szilárd fázishatás közelében kialakuló hőmérsékletgradiens

A front alakját a front sebesség (v) és a front előtt kialakuló hőmérséklet-gradiens (G) (10. ábra) hányadosa (egyéb, az anyagra jellemző adatok mellett) erősen befolyásolja. Amennyiben az olvadékban nem alakul ki áramlás, a kristályosodási front alakja sík, ha:

$$\frac{G}{v} \geq \frac{m \cdot C_0}{D_L} \cdot \frac{1-k}{k}$$

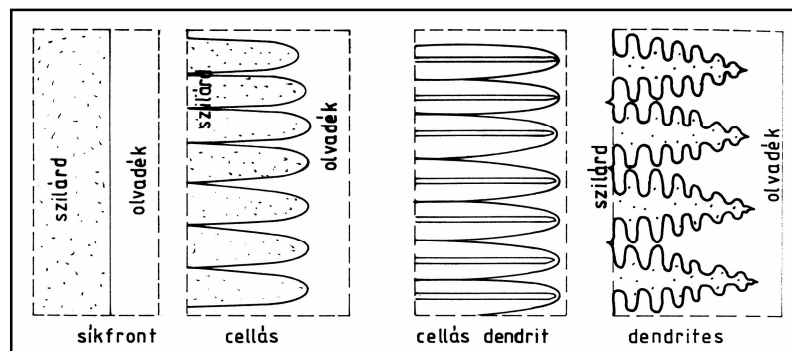
ahol:

m : a likvidusz görbe lejtése,

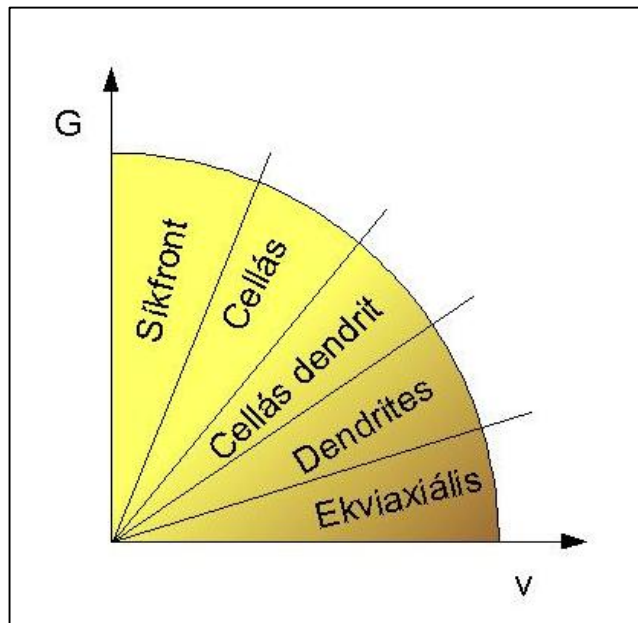
k a megoszlási hányados,

D_L a diffúziós együttható az olvadékban,

C_0 az ötvözet koncentrációja.



11. ábra. Lehetséges frontalakok [27]



12.ábra. Kialakuló szerkezetek a G/v viszony függvényében

Ha ez a feltétel nem teljesül, a síkfront felborul, és cellás, cellás-dendrites illetve dendrites szerkezet alakul ki. (11.ábra)

Ha áramlás alakul ki az olvadékban, az megváltoztatja a koncentráció eloszlást az előző esethez képest. Ebben az esetben megváltoznak azok a G/v értékek is amelyeknél szerkezetváltás bekövetkezik. (12.ábra)

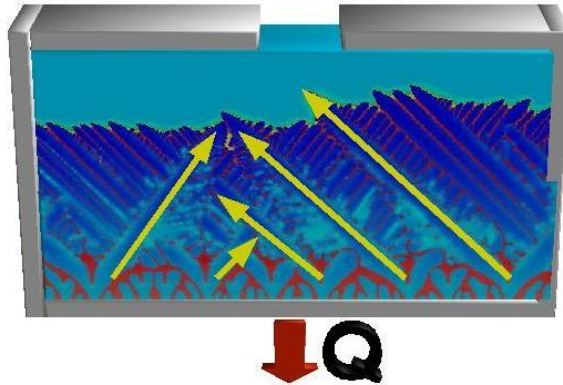
4.3 Az egykristály növesztés elve [26-30]

Az egyirányú kristályosodás eredményeként általában sokkristályos darabot kapunk. Azt, hogy a kristályosodott darab egyetlen kristályból álljon kétféleképpen lehet biztosítani. Vagy csak egy krisztallit keletkezését és/vagy növekedését tesszük lehetővé, vagy egy már létező egykristályból álló magra, magkristályra növesztjük a darabunkat.

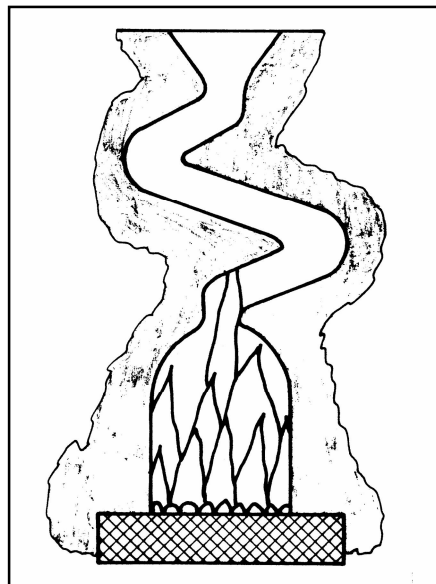
4.3.1 Kristályszelekció

Irányított kristályosítás esetében is sok csíra keletkezik a hűtött véglapon. A csíráképződés nem irányított, azaz a csírákban a kristálytani irányok a hőelvonás irányához képest véletlenszerűen helyezkednek el. A csírák növekedésének sebessége azonban irányfüggő. Különböző kristálytani irányokban a növekedési sebesség jelentősen különbözik. A növekedés abban az irányban a leggyorsabb, amelyikben az atomok a legsűrűbben helyezkednek el, a vonalkitöltés a legnagyobb. Felületen középpontos kockarács esetében ez az irány az $[110]$, térben középpontos kockarácsnál az $[111]$.

A növekedési sebesség irányfüggése miatt azok a csírák nőnek adott idő alatt hosszabbra, amelyeknek a leggyorsabb növekedést mutató iránya párhuzamos a hőelvonás irányával. A többi csíra növekedése leáll, amikor a növekedés során a gyorsabban növekvőbe ütközik. (13.ábra) Ezáltal kialakul az oszlopos (kolumnáris) szerkezet.



13. ábra. Csíranövekedés egyirányú hőelvonás esetén [31]



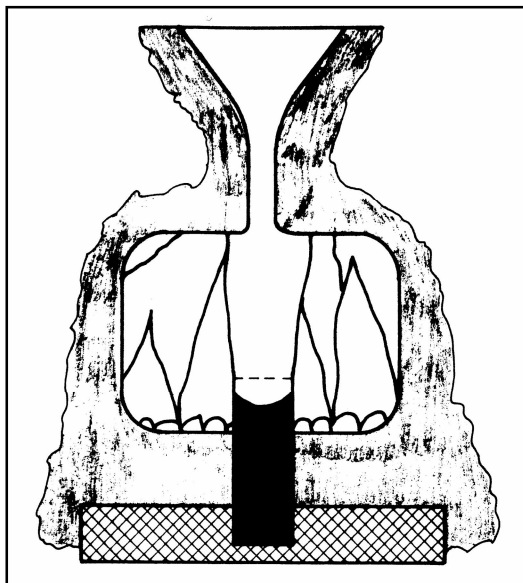
14. ábra. Kristályszelektor

A sok egy irányban növekvő kristályból azt az egyet, amelyik a növesztetni kívánt egykristály magja lesz, kristályszelektorról választjuk ki. Ennek lényege, hogy a növekedő krisztallitok zömét megakadályozzuk a további növekedésben, és szerencsés esetben csak egyetlen kristály (de legfeljebb néhány) nő bele a spirál alakú kristályszelektorba. (14.ábra)

Azoknak a kristályoknak a növekedése megáll amelyeket az egyik oldalról a kristályszelektor fala, a másik oldalról a mellette növekvő kristályok akadályoznak a növekedésben. Ezáltal a formába már csak egyetlen kristály nő bele. Ez lesz a növekvő egykristály magja.

4.3.2 Növesztés kristálymagra

Ha az olvadéknak abba a részébe, amelyik irányból a hőelvonás történik egy előre elkészített egykristályt helyezünk úgy, hogy a kristály egy részének a hőmérséklete az adott anyag olvadáspontja alatt legyen, akkor az olvadék erre az egykristályra mint csírára fog ún. epitaxiális növekedéssel ráépülni. (15.ábra) A csíráként használatos egykristály orientációja meghatározza a növekvő egykristály orientációját is. Ezáltal mód van arra, hogy a növesztett egykristály orientációját tetszőlegesen változtassuk. A kristályszelekciós eljárásnál erre nincs mód.



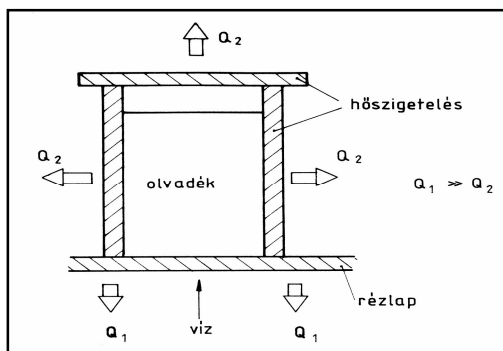
15. ábra. Növesztés kristálymagra

4.4 Eljárások egykristályok növesztésére [27, 28, 32, 33, 35]

4.4.1 Véglaphűtési eljárás

Az egyirányú kristályosítás legegyszerűbb módszere a véglaphűtési eljárás. Ennél a módszernél az olvadékot egy vízzel hűtött fémlapra helyezett jó hőszigetelő formába öntik (16.ábra). Ekkor a darabnak csak egy része kristályosodik a későbbi felhasználás szempontjából kedvező irányba mivel a kristályosodás oldalról és felülről is megkezdődik ekvixiális módon.

Ha a formát az olvadék beöntése előtt közelítőleg a kristályosítandó anyag olvadáspontjára előmelegítjük, és ezzel megakadályozzuk az oldalról történő hőelvonást azaz az oldalról történő kristályosodást, a darab teljes egészében egy irányban kristályosodhat.

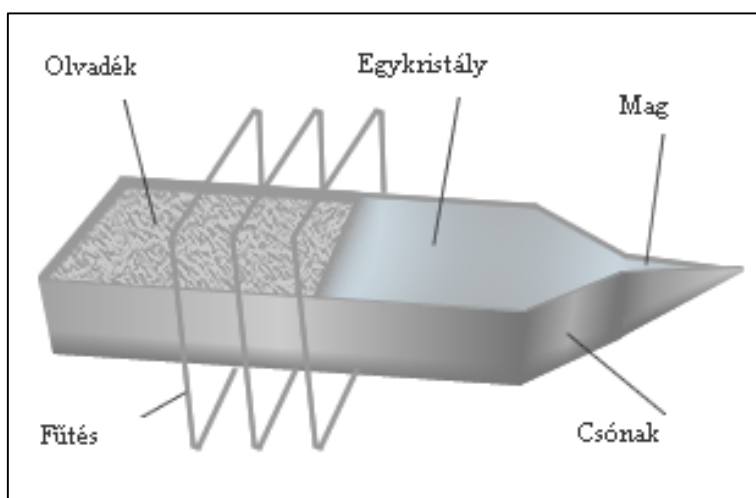


16. ábra. Egy hűtött lapon keresztüli hőelvonás

Ezeknél a módszereknél a szilárd fázis növekedési sebessége és a hőmérsékletgradiens az olvadék/szilárd határon a folyamat közben nem “szabályozható”, a darab tömege, a forma előmelegítési hőmérséklete és a hűtött lapokon keresztül elvonható hőmennyiség határozza meg azokat. A kristályosítás során mindkét paraméter folyamatosan változik a kristályosodás során, ami az eljárás nagy hátránya. A kristályszelekció valamelyik módszerét használva az eljárással egykristály is növeszthető.

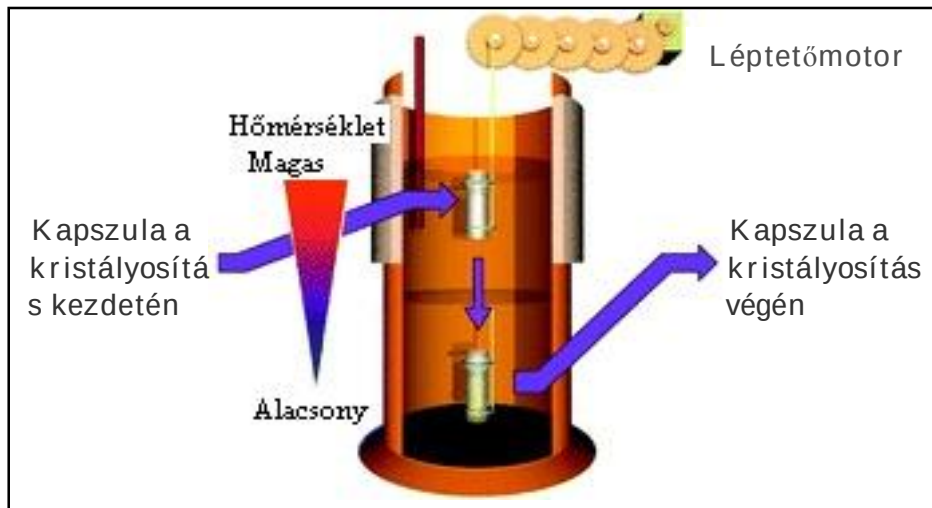
4.4.2 A Bridgman eljárás

Az egykristály gyártás során leggyakrabban a Bridgman módszer valamelyik változatát használják. Az egyszerű Bridgman eljárásnál a kristályosítandó anyagot egy csónakba (horizontális) (17.ábra) vagy az egykristály alakjának megfelelő alakú kapszulába



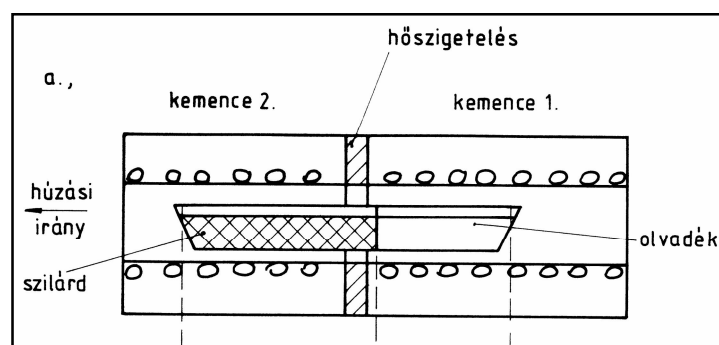
17. ábra. Horizontális Bridgman eljárás [34]

(vertikális) (18.ábra) helyezik, majd a csónakot vagy a kapszulát a felfűtött kemencébe helyezve, az anyagot megolvasztják. A megolvadást követően vagy a próbatartót a benne helyet foglaló alapanyaggal húzzák ki a kemencéből vagy a kemencét húzzák le a próbatartóról. Az eredeti Bridgman módszernél tehát a kapszula a kemence alatt, vagy mellett elhelyezett, nem szabályozott hőmérsékletű hűtőközegbe kerül.



18. ábra. Vertikális Bridgman módszer [36]

A Bridgman-Stockberger módszernél a kihúzási hőmérséklet is kontrolált, tulajdonképpen egy másik kemencébe húzzák át a kapszulát. (19.ábra) Ennek következtében a kemencéből kikerülő anyag egy irányban kristályosodik. A szilárd fázis növekedési sebességét a kemence és a csónak (kapszula) relatív elmozdulásának sebességével, a szilárd/olvadék fronton a hőmérséklet-gradienst a kemence hőmérséklet és a hűtőközeg (a második kemence hőmérséklete) változtatásával lehet szabályozni.



19. ábra. Bridgmann-Stockberger módszer [27]

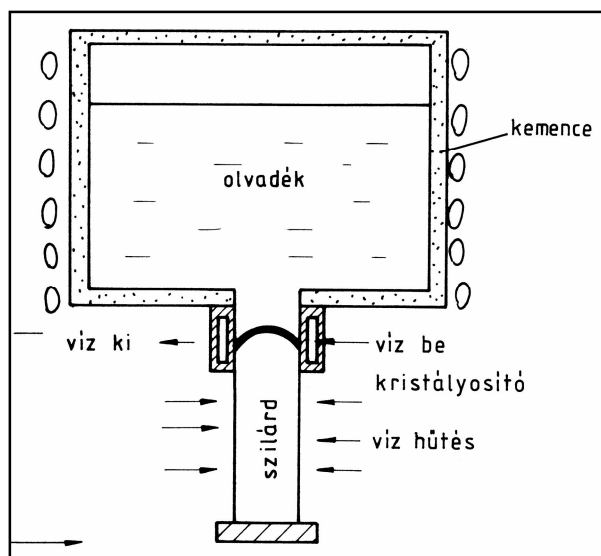
A vertikális Bridgmann eljárás egy változatával olyan alakos egykristályok is előállíthatók, amelyeket komplikált alakjuk miatt a fent vázolt módon nem. Ezekben az esetekben a kerámia formába nem tudjuk behelyezni a sokkristályos előgyártmányt. Ilyen esetben a hőálló kerámiából előállított formát a kemencébe helyezve a formát a kemencével

együtt az olvadáspont fölé hevítik. Közben vagy külön berendezésben olvasztják meg az alapanyagot és úgy öntik a kerámia formába, vagy a közvetlenül forma felett elhelyezett olvasztótégelyben olvasztják meg és folytatják át az alapanyagot. Ezután a fent vázolt módon a kerámia formát a kemencéből adott sebességgel kihúzzák vagy a kemencét a kerámia formáról lehúzzák. A szilárd fázis növekedésének sebessége és a hőmérséklet-gradiens a horizontális módszernél leírtak szerint szabályozható.

Egykristály gyártására a módszer változatait, a horizontális összeállítás kivételével használják a kristályszelekciós eljárással kombinálva.

4.4.3 Az Ohno módszer

Az Ohno módszer esetében (ami a Bridgman módszer egy folyamatosan kristályosító változatának is tekinthető) az olvadékat a kemencéből egy vízzel hűtött kristályosítón keresztül húzzák ki olyan sebességgel, hogy az olvadék/szilárd határ mindig a kristályosítóban legyen (a szilárd szál így nem szakad meg) (20. ábra). A megszilárdult szálát a kristályosító után közvetlenül vízzel is lehet hűteni (szekunder hűtés).

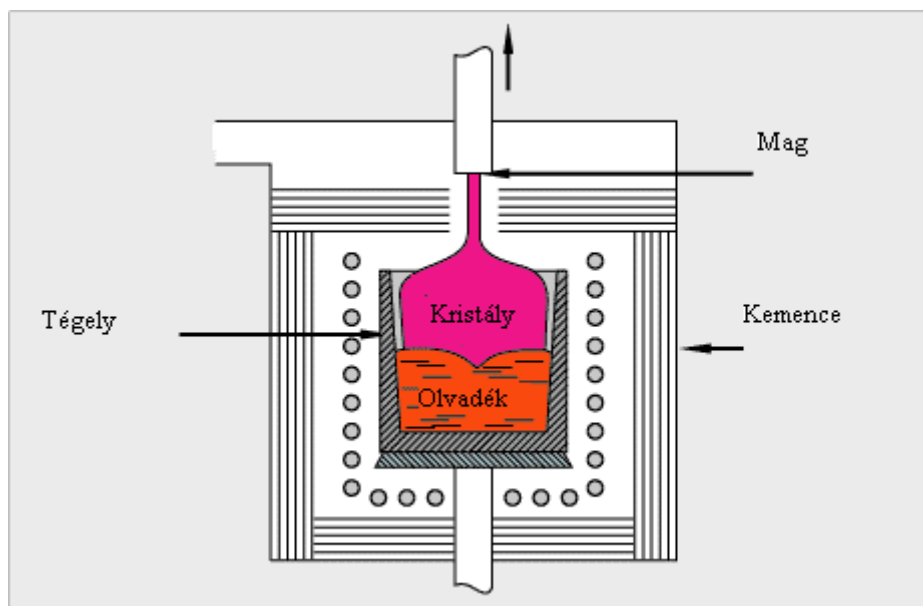


20. ábra. Ohno módszer [27]

A szilárd fázis növekedésének sebessége ekkor a kihúzás sebességével azonos, a hőmérsékletgradiens a kristályosítóban illetve a kristályosító után elvonható hőmennyiséggel befolyásolható. A kristályszelekciós eljárást használva a módszerrel egykristály is növeszthető. A folyamatosan öntött szál keresztmetszete a kristályosító keresztmetszetével fog megegyezni.

4.4.4 A Chohralsky módszer

A Chohralsky módszernél egy hűtött “ujjat” merítenek az olvadékba, majd lassan fölfelé húzzák. (21.ábra) A kristályt az eljárás közben általában lassan forgatják is. Ha a hűtött ujj egy egykristály darab (beoltásos eljárás) ezzel a módszerrel körszimmetrikus, hosszirányban változó (de nem előre meghatározott) alakú egykristályok növeszthetők. A szilárd fázis növekedési sebessége a hideg ujj kihúzási sebességével egyezik meg, azzal változtatható. A sebesség növelésének határt szab az elvonható hőmennyiség.



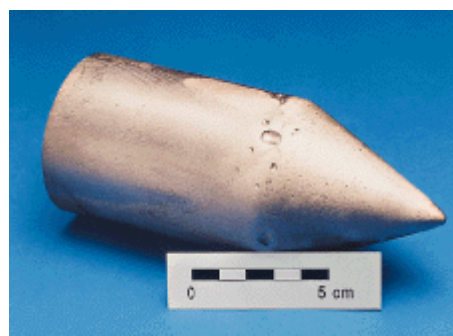
21. ábra. A Chohralsky módszer [37]

Az eljárás során – ahogy a hűtött ujj távolodik az olvadék felszínétől – a szilárd/olvadék határon uralkodó hőmérsékletgradiens folyamatosan változik, csökken. A gradiens nagysága, ami a kristály minőségét jelentősen befolyásolja, az olvadékhőmérséklet és a hideg ujj hűtésének változtatásával, de csak igen szűk korlátok között változtatható. Az eljárással alakos egykristály nem gyártható.

A Chohralsky módszer egy speciális változata a Stepanov módszer. A módszer lényege, hogy az olvadékba egy alakos formát merítenek (a forma anyagának az olvadékkal nem szabad reakcióba lépnie) és a hűtött ujjat ezen a formán keresztül érintik az olvadékhoz. A hűtött ujjat felfelé mozgatva a forma alakja által meghatározott keresztmetszetű alakos egykristály állítható elő. Az egykristály lehet tömör, de tartalmazhat “lyukakat” is. Az egykristály keresztmetszete (méret és alak) a húzás során állandó marad.

4.5 Az Institut Laue Langevin-ben előállított Heusler polarizátor [19, 20]

A grenoblei Institut Laue Langevin-ben állítanak elő Heusler polarizátorokat. A 150mm hosszú 60mm átmérőjű kúpban végződő darabokat Bridgman módszerrel növesztik. (22. ábra) A kristályosítás körülményei és paramétereit nem publikálták. A darab nem egykristály, hanem répaszerkezetű. Ez azt jelenti, hogy több csíra keletkezik, majd növekszik tovább irányítottan, minek az eredménye több nagy kristály, amit mozaikkristálynak* neveznek. Neutrodiffrakciós vizsgálattal felderítik a krisztallitok határait, majd felszeletelik úgy, hogy egy-egy szelet csak egy kristályból álljon. Ezután ezekből a szeletekből állítják össze a polarizátort.



22. ábra A répa szerkezetű darab

A vizsgálataik szerint az így készített polarizátorok (monokromátorok) egy része a célnak megfelelő minőségű, méretű és orientációjú, míg egy másik része nem. A megfelelő darabokból monokromátorokat készítenek.

5 Orientált egykristály előállításának módszere

Az előállítani kívánt monokromátorokhoz olyan egykristályból készített, minimum 5*20*50mm-es lemezekre van szükség, amelyeknek a legnagyobb, vagyis a 20*50mm-es lapja párhuzamos az {111} síksorozattal. Ilyen lapkák egyenkénti előállításánál egyszerűbb és gyorsabb, ha nagyobb térfogatú, megfelelő orientációjú darabokat növesztünk. Ezt az egykristályt aztán feldarabolva több megfelelő lemezt kapunk.

Az egykristályok előállításához szükség van a megfelelő összetételű előgyártmányra. Ez egy hétköznapi módszerrel, nagy tisztaságú összetevőkből készített polikristályos öntvény, amelyből a lentebb vázolt szabályozott módon átkristályosítással egykristály készíthető.

Ahhoz, hogy az átkristályosítás során csak egy csíra keletkezzen és nőjön tovább a darab teljes hosszában, a megfelelő alakú és anyagú kristályosító kapszulát és megfelelő kristályosítási paramétereket kell alkalmazni. Ezeknek a megtalálása volt a munkám legfontosabb része. A megfelelő paraméterekkel aztán egykristály növeszthető.

* Mozaikkristálynak nevezik a kevés nagy kristályból álló darabokat

Az ilyen módon előállított egykristályok kristálytani orientációja közel véletlenszerű, befolyásolni nem lehetséges. Ahhoz, hogy a szükséges orientációjú kristályt lehessen növesztetni, szükség volt egy magkristályra. A magkristály egy olyan 5*5*20mm-es egykristály-darab volt, amelyiket a véletlenszerű orientációjú egykristályból munkáltattam ki. Fontos, hogy a mag egyik 5*20mm-es lapja merőleges legyen az {111} kristálytani irányra. Ha a lent bemutatott módon erre a magkristályra növesztünk egykristályt, annak az orientációja meg fog egyezni a mag orientációjával.

A darabok összetételének ellenőrzésére atomabszorpciós mérések készültek. A kristályok vizsgálatára és minősítésére fénymikroszkópos és neutrondiffrakciós vizsgálatokat végeztem, orientálásukra röntgen Laue módszert alkalmaztam.

Mindezeket figyelembe véve neutron monokromátor előállításának a menete orientált Heusler egykristályból a következő:

- 1) Polikristályos előgyártmány készítése öntéssel
- 2) Előgyártmányok összetételének ellenőrzése
- 3) Véletlenszerű orientációjú egykristály előállítása az előgyártmány átolvasztásával sokzónás kristályosítóban a megfelelő paraméterek alkalmazásával
- 4) Kristályok minősítése
- 5) A egykristály kristálytani orientációjának meghatározása után magkristály kimunkálása
- 6) Magkristályok minősítése, orientáció ellenőrzése
- 7) Egykristály növesztése orientáltan a magra növesztés módszerével
- 8) Kristályok minősítése, kristálytani orientáció ellenőrzése
- 9) Monokromátor lemezek kimunkálása
- 10) Monokromátor lemezek minősítése, orientáció ellenőrzése

6 Alkalmazott vizsgálati módszerek

Az egykristályok előállításának folyamata közben többféle vizsgálatot is végeztem, gyakran több esetben is ugyan azt a vizsgálati módszert. Az áttekinthetőség érdekében dolgozatomban egy helyen találhatók az alkalmazott vizsgálati módszerek.

6.1 Összetétel ellenőrzése

Ahhoz, hogy a monokromátor a célnak megfelelően, a darabok összetételének jó közelítéssel sztöchiometrikus összetételűnek kell lennie. Amellett, hogy az ötvözet

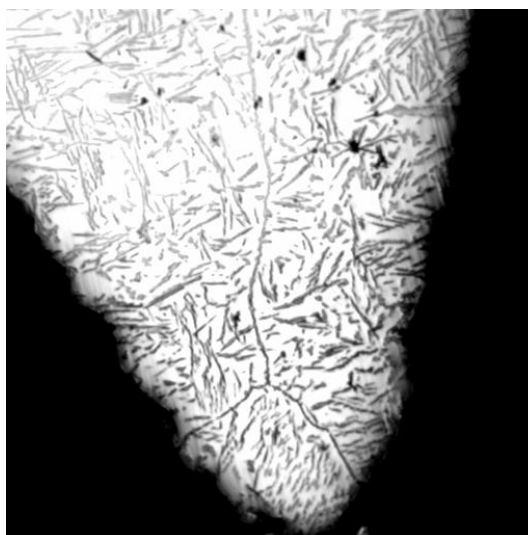
előállításához az alkotók a lehető legpontosabban lettek kimérve, a polikristályos darabok összetételét ellenőrizni kellett.

Az összetétel meghatározása kétféle képen történt. Atomabszorpciós vizsgálattal és DTA méréssel történő olvadáspont meghatározással. A mintavétel darabonként történt forgácsolással.

Ilyen mérések csak a polikristályos előgyártmányokon készültek, mert a többi lépés során a darabok összetétele nem változhat eltekintve a dúsulások okozta hatásoktól.

6.2 Fénymikroszkópos vizsgálatok

A darab hűlése közben β -mangán válik ki. A kiválások jelentős hányada a kristályhatárokon (ha van ilyen) jön létre, láthatóvá téve ezáltal a kristályhatárokat. Ez a több kristályból álló darabokon jól látszik. (23. ábra)



23. ábra Kristályhatárok a darab csúcsának közelében

Tehát a darab metallográfiai előkészítése után mikroszkóppal ellenőrizhető, hogy a vizsgált felületen hány db kristály található. Egy függőleges (kristálynövekedési iránnyal párhuzamos) és egy vízszintes (kristálynövekedési irányra merőleges) felületen elvégezve a vizsgálatot nagy valószínűséggel megállapítható, hogy a darabunk egy vagy több kristályból áll.

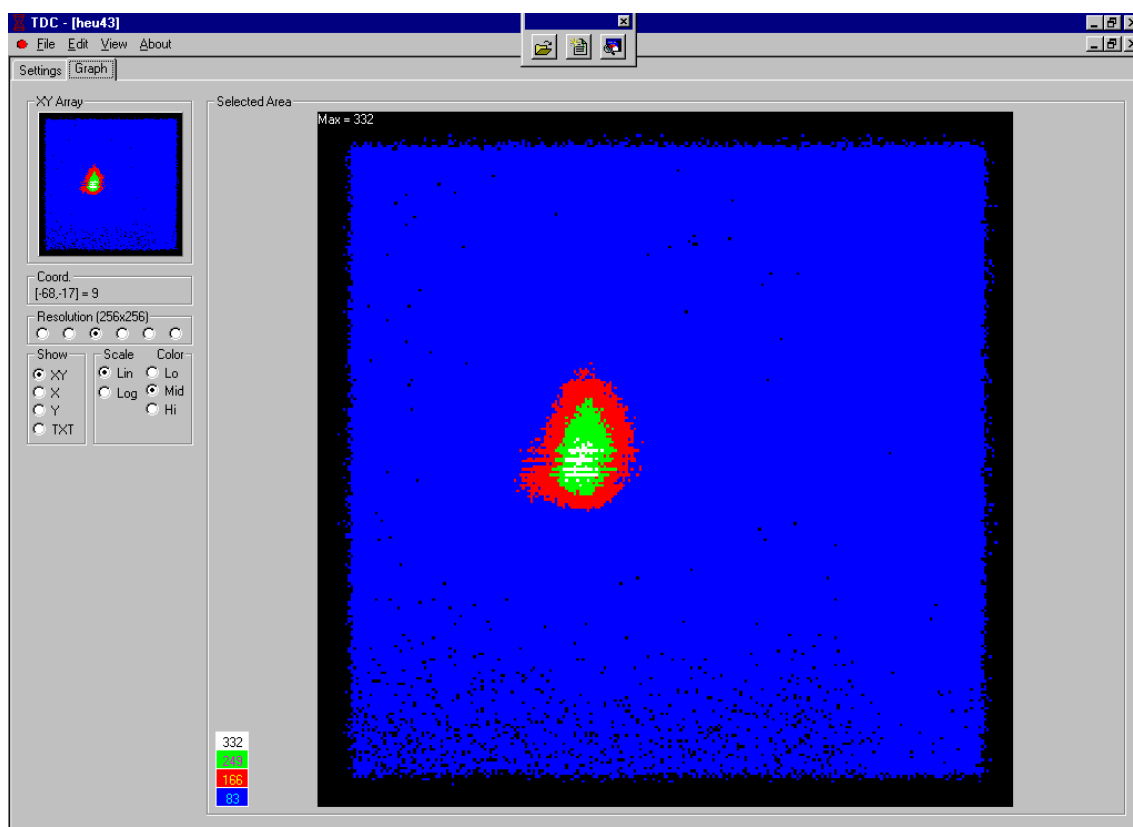
Ez a módszer egy gyors előzetes tájékoztatást ad a kristályosítás eredményéről. A pontos eredmények megállapításához el kell végezni a továbbiakban a röntgen- és neutrondiffrakciós vizsgálatokat.

A mikroszkópos vizsgálat előnye, hogy gyors és egyszerű módszer. Fénymikroszkópos vizsgálatok minden fázis után készültek.

6.3 Neutrondiffrakciós vizsgálatok [19, 20, 22]

Az elkészített darabokon neutrondiffrakciós vizsgálatokat végeztünk a Központi Fizikai Kutatóintézet területén található Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézetben. A kísérleteket a kísérleti reaktorból tangenciálisan kilépő, és neutronvezetőkkel a mérőcsarnokba vezetett hideg neutronokkal végeztük.

A mintát a neutronnyaláb útjába helyeztük és egy goniométer segítségével három irányba mozgathattuk és forgathattuk. A szórt nyalábot egy kétdimenziós detektorral érzékeltük és egy célszoftver segítségével gyűjtöttük és ábrázoltuk a beütések számát. Ezzel a módszerrel minősíteni lehet a kristályokat.



24. ábra Egykristály kétdimenziós szórási képe

A 24.ábra egy kétdimenziós szórási képet mutat be. A 128*128 db pixelből álló detektoron a pixelek színe mutatja a detektor adott pontjára érkezett beütések számát, illetve a különböző színek tartományokat jelölnek:

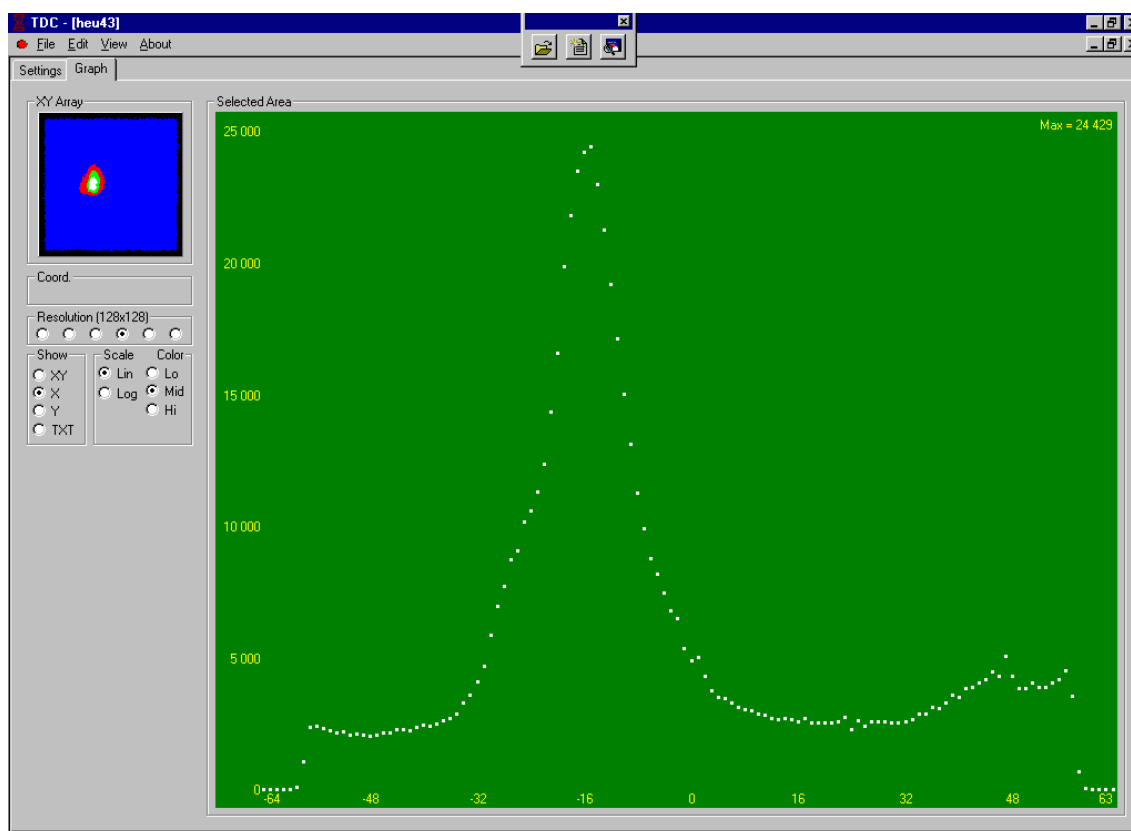
- Kék szín: 83, vagy kevesebb beütés
- Piros szín: 84-166 beütés
- Zöld szín: 167-249 beütés
- Fehér szín: 250-332 beütés

Természetesen a tartományok mérésenként változnak, az adott mérés értékeinek megfelelően.

Az ábrán jól megfigyelhető egy olyan folt, ahol a piros szín dominál és megjelenik a zöld és a fehér is, vagyis a beütések száma ott magasabb a háttérnél. Ez azt jelenti, hogy a folt egy kristálynak egy síkrendszerén reflektálódott nyalábtól származik.

A detektor által mért adatokból a program készít egy 128*128-as mátrixot, amely mátrix egy elemének koordinátái megfelelnek a detektor koordinátáinak, az értéke pedig megegyezik a beütések számával.

A darab-detektor távolság 800mm, a 128 pixel 180mm-nek felel meg.



25. ábra A mért intenzitáseloszlás a hely függvényében

A kétdimenziós detektor által gyűjtött adatokból készített mátrixban függőlegesen összeadtuk a beütés értékeket, így megkaptunk egy intenzitás eloszlás függvényt, ami a felső folthoz tartozó kristálytól származik. (25. ábra)

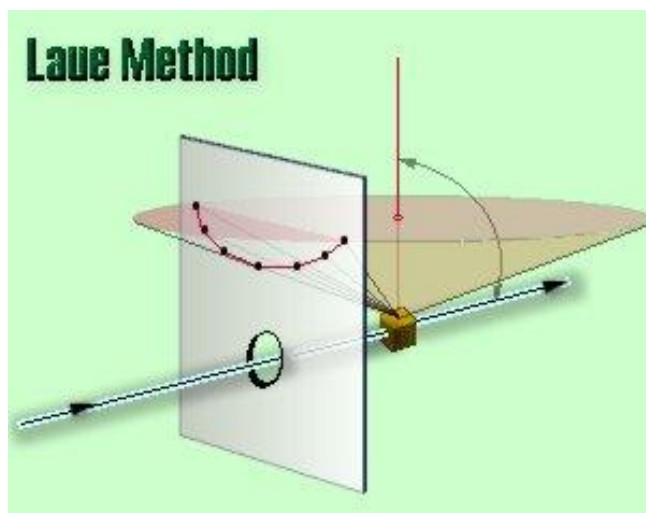
A mérési adatokból kiszámítható a félértékszélesség, ami megfelel a kristály mozaicitásának. A mozaicitás a kristály minőségét mutatja abból a szempontból, hogy mennyire tökéletes a rács. Az elméletileg egymással párhuzamos síkok a mozaicitásnak megfelelő szögben térnek el a párhuzamostól.

Neutrodiffrakciós mérések készültek az ismeretlen orientációjú, az orientáltan növesztett egykristályokról, a magkristályokról és a monokromátor lemezekről.

6.4 Orientálás röntgen Laue módszerrel [38-40, 49]

Ahhoz, hogy a kristályokból a megfelelő orientációjú (forgástengelyre merőleges (111) irány) magkristályt elő lehessen állítani, orientálni kell az ismeretlen orientációjú kristályokat. Később a magkristályra növesztett darabok orientációját is megvizsgáltam. Egyrészt ellenőrzési céllal, másrészt azért, hogy a kristályból megfelelő orientációjú monokromátort lehessen kivágni.

A vizsgálathoz egy síklapot, felületet kell létrehozni a kristályon. Erre a síklapra merőlegesen polikromatikus röntgensugarat bocsátunk, s a reflexiókat a primer sugár irányára merőlegesen detektáljuk. A primer sugár 0,5 mm blendenyíláson át jut a próbára. A filmet a próba és a sugárforrás közé helyezzük vagy a próba mögé, 30-35mm távolságra. Esetemben a röntgenforrás és a darab közé került a síkfilm. (26. ábra)



26. ábra Röntgen-Laue mérés összeállítása [41]

Az így nyert Laue felvételen minden reflexiót más hullámhosszú sugár kelt. A felvételtől a primer sugár irányában álló kristálytani irányra egyszerűen megállapíthatók a szimmetriák. Mivel ez csak szerencsés esetben valósulhat meg, általában a kristálytani síkok nem esnek egybe a csiszolat síkjával, a felvételek egy az Internetről ingyenesen letölthető program segítségével elemezhetők.

Az orientáció ilyen módon történő megállapítása után megmondható, hogy a referenciasíkokhoz képest hány fokkal kell elforgatni a kristályt, hogy a kristálytani síkok a megfelelő irányban álljanak.

6.4.1 Mérési összeállítás

A röntgen Laue mérés elvégzéséhez olyan röntgen berendezésre volt szükség, amelyik képes síkfilmes mérés elvégzésére. Az erre alkalmas berendezés goniométere nem volt megfelelőnek, ugyanis nem lehet vele a kristályt pontosan úgy beállítani, hogy a keresett (111) irány merőleges legyen a filmre.

Ezért az orientálásokhoz egy Dron-UM1-es röntgen készüléket használtam, amelyik ugyan nem volt alkalmas síkfilmes röntgenfelvételek készítésére, viszont rendelkezett a megfelelő goniométerrel. A választás oka az volt, hogy egy filmtartó kazettát egyszerűbb elkészíteni, mint egy pontos goniométert.



27. ábra Filmtartó kazetta szemből

A berendezést átalakítottam úgy, hogy alkalmas legyen a síkfilmes mérés elvégzésére. Ehhez egy filmtartó kazettát készítettem, fekete színű kartonpapírból. (27. ábra) A megfelelő rögzítésről egy réz keret, a kazetta merevségéről acél hátlap gondoskodott. A darabokat vastagságuk miatt nem tudtam átvilágítani, ezért csak a visszaszórt röntgen-fotonokat használtam a méréshez. Ehhez a röntgen nyalábot át kellett vezetni a filmen és tartóján a darabra. Erre egy hosszában átfúrt csavar szolgált. A berendezés átalakítását részletezi az 1. melléklet.

A vizsgálathoz kollimált nyalábot használtam különböző röntgencsővekkel és különböző foltokkal. Végül a Co cső pontszerű foltjával bizonyultak a mérések a legjobbaknak.

Ezzel az összeállítással jó minőségű felvételeket tudtam készíteni 4 órás expozíciós idő mellett.

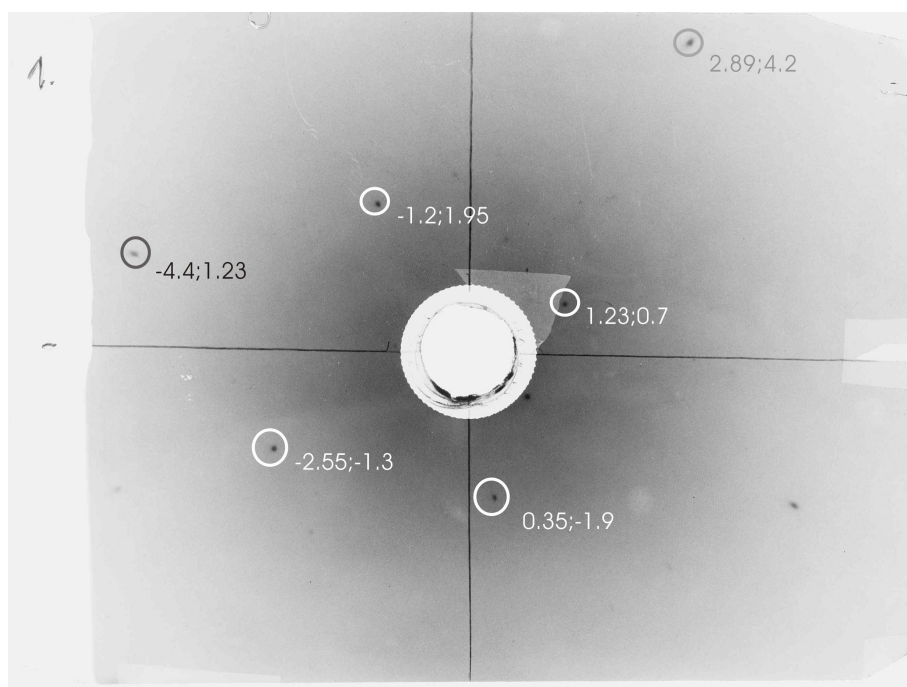
A berendezés a mérések közben tönkrement. Alkatrészt nem sikerült hozzá beszerezni. Ezért a méréseket a fentebb említett, megfelelő goniométerrel nem rendelkező HZG-3 berendezéssel folytattam. Ez a készülék is alkalmas a mérések elvégzésére, viszont elveszítettem azt a lehetőséget, hogy a darab pontos elforgatásával ellenőrizzem a mérések helyességét.

6.4.2 Mérések menete

A darabokról több felvétel készült a kristály különböző lapjairól, egyrészt a pontos orientáláshoz legalább két oldalról meg kell vizsgálni a darabot, másrészt ezzel is bizonyítani tudtam, hogy a darab egykristály. Ha ugyanarról a lapról készített felvételek ugyan azt a képet mutatták ugyanarról a kristályról készültek.

A felvételeket az orientexpres nevű program segítségével értékeltem ki.

Egy felvétel kiértékelésén keresztül mutatom be az orientálás folyamatát. A vizsgált mintasík a kristály növekedésének irányára merőleges.



28. ábra A pontok koordinátái

A síkfilmre derékszögű koordináta rendszert rajzoltam grafit ceruzával úgy, hogy a koordináta-tengelyek a film közepén messék egymást, ebben, és hogy a film a megfelelő oldalával felfelé fektetve az asztalon, a mérés előtt a kazettára felragasztott ólom-jelző háromszögek segítenek. (28. ábra)

A kiértékeléshez kiválasztom a hat legerősebb foltot a filmen és megmérem a koordinátatengelyektől való távolságát. Ezek az értékek adják a pontok koordinátáit cm-ben.

Ezeket a lépéseket a program legújabb verziója képes elvégezni digitalizált felvételtől is. Vagyis a film középpontjának megadása és a távolságok kalibrálása után megállapítja a kívánt pontok koordinátáit.

Az Orientexpres nevű programnak meg kell adni a kristály és a mérés paramétereit, valamint a megjelölt pontok koordinátáit. (29. ábra)

The screenshot shows the 'OrientExpress Main menu' with the following sections:

- Data Section:**
 - System:** Cubi (selected), Tetra, Ortho, Hexa, Rhom, Mono, Tricli.
 - Unit cell parameters:**
 - a (Å): 6.000
 - b (Å): 6.000
 - c (Å): 6.000
 - α : 90.00
 - β : 90.00
 - γ : 90.00
 - Group:** PM3
 - Geom.:** Flat (selected), Cyl.
 - Dist (Cm):** 3.30
 - Angle(°):** 180.00
 - Wavelengths:**
 - λ_1 (Å): 0.3000
 - λ_2 (Å): 2.5000
 - D. Height (Cm):** 9.0
 - D. Width (Cm):** 12.0
 - File:** heu001.dat
- Coordinates Section:**
 - Table:**

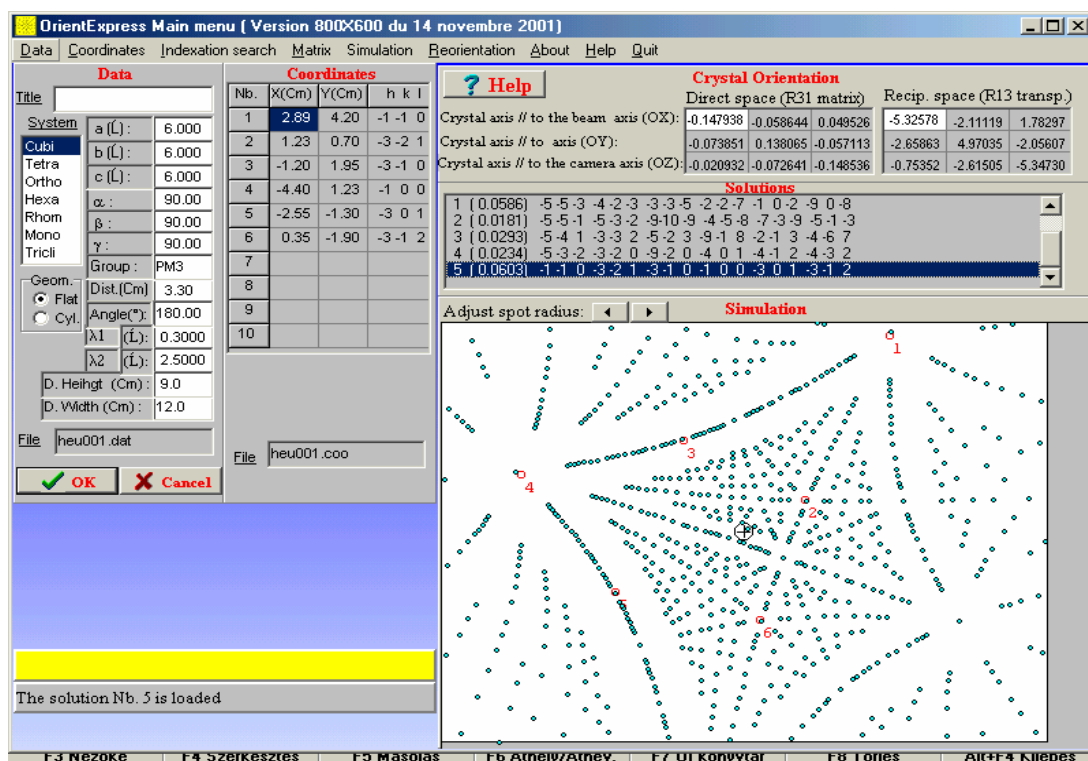
Nb.	X(Cm)	Y(Cm)	h	k	l
1	2.89	4.20			
2	1.23	0.70			
3	-1.20	1.95			
4	-4.40	1.23			
5	-2.55	-1.30			
6	0.35	-1.90			
7					
8					
9					
10					
 - File:** heu001.coo

Buttons: OK, Cancel

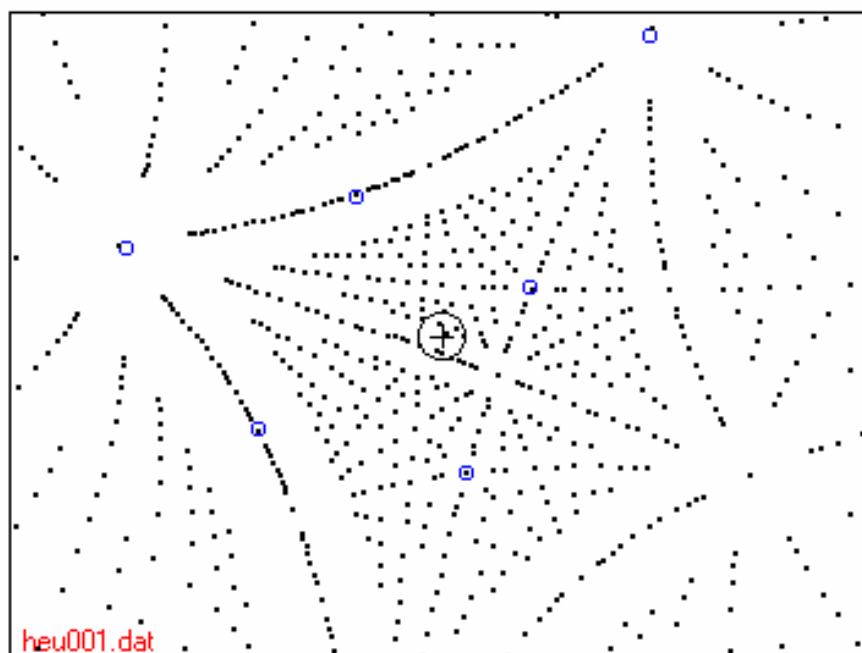
29. ábra A kiértékeléshez szükséges adatok bevitel

A bevitt adatokból a program kiszámol több lehetséges variációt, aminek a pontok megfelelnek. Az hogy ezek a variációk mennyire pontosak, illetve, hogy milyen sok van belőlük befolyásolható azzal, hogy megadjuk, hogy milyen pontossággal és milyen nagy Miller-indexekig keressen.

A megadott variációk közül kell kiválasztani azt, amelyik leginkább megfelel a valóságnak, itt segítségemre voltak azok a diffrakciós foltok, amelyeknek a koordinátáit nem adtam meg, de láthatóak a felvételen. (30. ábra)



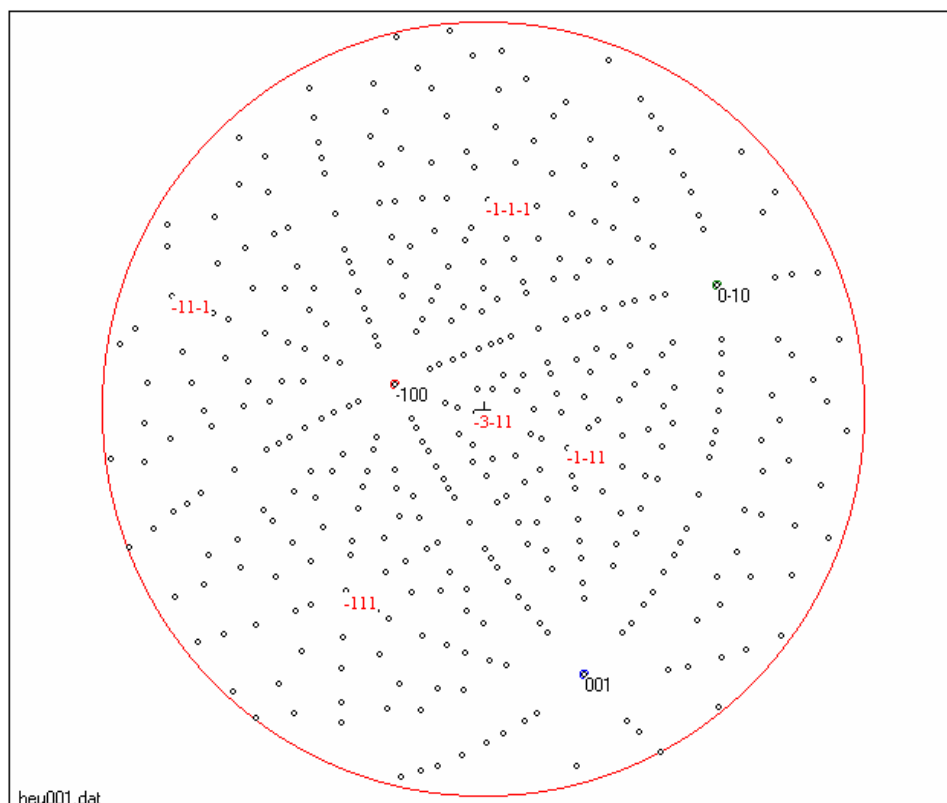
30. ábra A program által javasolt Laue kép.



31. ábra A Laue kép

Az így kapott Laue képet ki lehet nagyítani és úgy forgatni, mintha a darabot forgatnám mérés közben és mindig az aktuális felvételt látnám. Így viszonylag gyorsan meg lehet határozni a kristály helyzetét. (31. ábra)

Az így készített kép nem szögtartó, vagyis ugyanaz a szög a kristály különböző pontjain, nem ugyanakkora távolságnak felel meg a felvétel különböző helyein. Ez a probléma kiküszöbölhető, ha képezzük a mérés sztereografikus projekcióját. A program ezt megteszi automatikusan. (32. ábra)



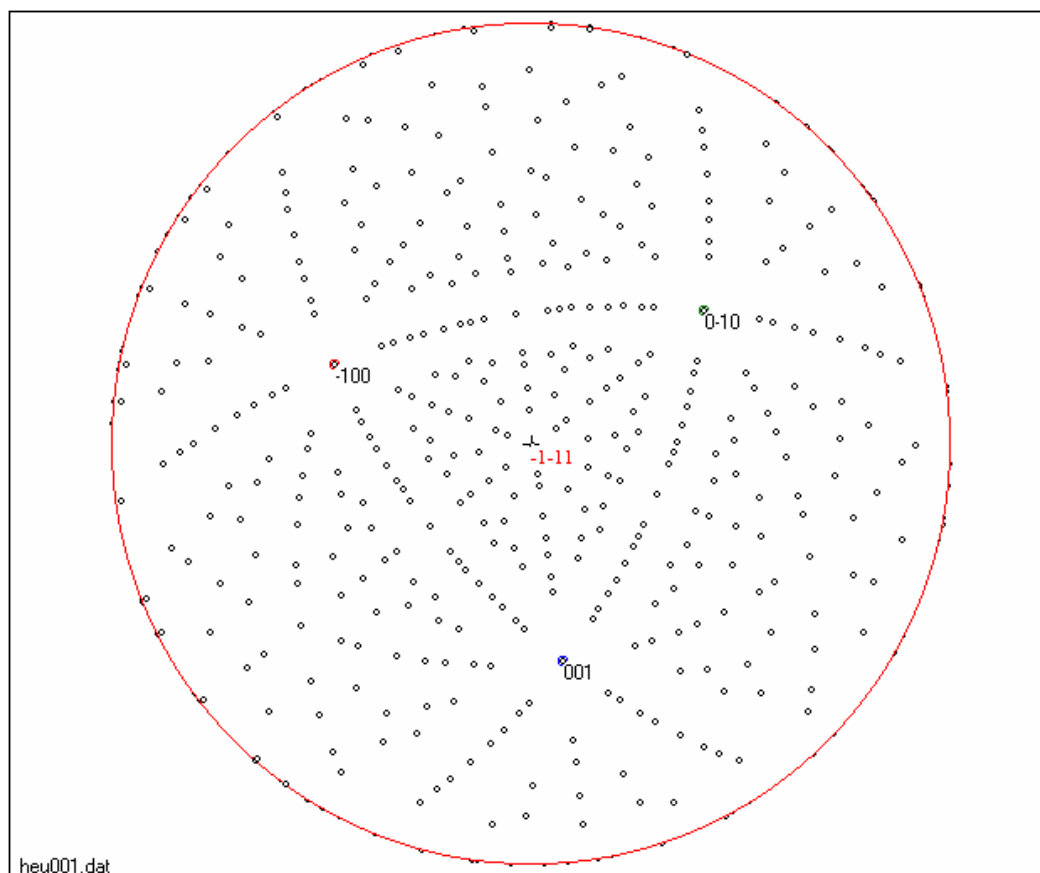
32. ábra A foltok indexelése a sztereografikus projekción

A sztereografikus projekción bármelyik pontra rámutatva a program megmutatja, hogy milyen Millerindexű síktól származik. Ezáltal megtalálható a nekünk szükséges sík, illetve az a sík, amelyik a legközelebb áll a mérés síkjához.

A program képes a diffrakciós pontokat úgy mozgatni, mintha a mintát forgatnánk a valós térben a derékszögű koordináta-rendszer tengelyei körül.

A forgatás segítségével meg lehet mondani bármelyik kívánt pont helyzetét a többihez képest, így a vizsgálat síkját jelképező középponthoz képest is. Így meg tudjuk mondani a kristálytani irányok helyzetét a darabon lévő referenciasíkokhoz képest. (33. ábra)

Ezek alapján a vizsgált felület $2,9^\circ$ -ra tér el a $[311]$ síkrendszer síkjától és $26,8^\circ$ -ra a keresett $\{111\}$ síksorozattól.



33. ábra Az $[111]$ pont középre forgatása

Ha ilyen módon elvégezzük az orientálást, a pontos orientáció meghatározható, és a három koordinát tengely körüli forgatás szögének megadásával a szikraforgácsoló ki tudja vágni a megfelelő méretű és orientációjú darabot, ami magkristályként használható.

Röntgen-Laue mérések készültek az ismeretlen orientációjú, az orientáltan növesztett egykristályokról, a magkristályokról és a monokromátor lemezekről.

7 Polikristályos előgyártmány készítése

Az egykristályok előállításához szükség volt olyan megfelelő összetételű darabokra, amelyeket a kísérletek során át lehet kristályosítani, amelyek az egykristályok alapanyagául szolgálhattak. Olyan polikristályos darabokat kellett előállítanom, amelyek összetétele pontosan megfelel a Heusler-ötvözet összetételének, alakja minimális mechanikai megmunkálás után megegyezik a kristályosító kapszula üregének alakjával. Ezért 26mm

átmérőjű, 180mm hosszú hengereket öntöttem a Schmeltz Metall kft.-nél vákuumindukciós eljárással.

7.1 A kokilla

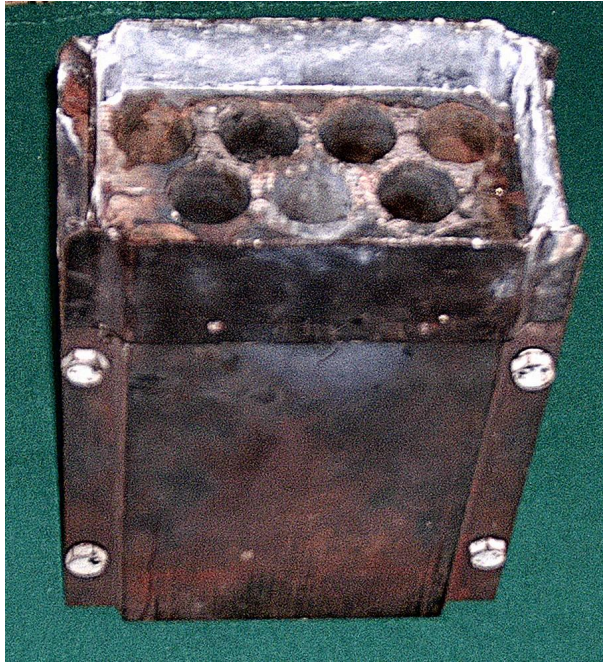
Az első darabok legyártásához homok öntőformát használtam, mégpedig úgy, hogy 9db különálló, belül kör keresztmetszetű, kívül négyzetes szelvényű kokillát csokorba fogtam össze, és egy közös beömlőn keresztül töltöttem meg olvadékkal. (34. ábra) Mivel öntés előtt a kokilla fala szobahőmérsékletű volt, a fém a felső részen az intenzívebb hűtés miatt, (itt nem csak oldalirányba, hanem felfelé is volt hőelvonás) hamarabb megdermedt, mint a középső részen, ezért a darab belsejében szívódási üregek keletkeztek, amelyek közül néhány később oxidálódott és így a darabot alkalmatlanná tette egykristály növesztésére. Ezek az oxidos részek ugyanis nem olvadtak meg az átolvasztás során és csíráképzőként viselkedtek az olvadékban, elősegítve több kristály keletkezését.



34. ábra: Homok öntőforma

Ennek elkerülése érdekében egy előmelegíthető acél kokilla készült, amely egyszerre 11 darab öntését tette lehetővé. (35. ábra) Az öntés során ott, ahol az olvadt fém beleömlött a kokillába, bemosta, beoldotta az acélkokilla tetejét, ezzel egyes előgyártmányokban 1-1,5%-nyi vasat beoldva. Ezeket a darabokat nem használtam fel a kísérleteimbemben.

Az alapanyag vassal történő szennyeződését elkerülendő, a kokilla tetején lévő acél beömlőt lecseréltem hőálló betonra, megakadályozva ezzel az olvadt fém közvetlen ráömlését az acél kokillára. Az öntéshez használt beton a furángyantas kötés miatt, a kiégetés után sem volt nagy szilárdságú, így nehéz volt vele dolgozni. Az állandó morzsálódás porlódás nehézkessé tette tiszta alapanyag előállítását, ezért visszatértem az acél beömlőhöz, amelyben a fémolvadék beérkezésének helyére alumínium-oxid kerámia lapkák kerültek. Így sikerült minimálisra csökkenteni az öntés során bekerülő szennyeződés mennyiségét.



35. ábra Acélkokilla

Az acél kokillát minden esetben 800°C-ra előmelegítettem egy ellenállás fűtésű kemencében. Bár a kokilla előmelegítése és az olvadék kokillába juttatása között kb. fél óra telt el, a kokilla nem hűlt le, mert a az indukció kemence váltakozó mágneses terében helyezkedett el, így a benne keletkező örvényáramok folyamatosan melegen tartották.

Az alapanyag gyártásának módja minden öntéskor megegyezett, kivéve a kokillák közötti különbségeket.

7.2 Alapanyag összeállítása

Az öntéshez össze kellett állítani az alkotókat a megfelelő arányban. Mivel a Heusler ötvözet egy vegyület, amelynek a képlete: Cu_2MnAl , ennek megfelelően kellett kimérni a fémeket.

$$M_{\text{Heu}} = 2 * M_{\text{Cu}} + M_{\text{Mn}} + M_{\text{Al}} \approx 209g$$

$$M_{\text{Cu}} / M_{\text{Heu}} = 60,8\%; \quad M_{\text{mn}} / M_{\text{Heu}} = 26,3\%; \quad M_{\text{Al}} / M_{\text{Heu}} = 12,9\%$$

Ahol M_{Heu} , M_{Cu} , M_{Mn} , és M_{Al} rendre a Heusler-ötvözet, a réz, a mangán és az alumínium moláris tömege. Mivel a kokilla kitöltéséhez szükséges fém tömege nem éri el a kemence minimális töltőtömegét (10kg), ezért az öntéshez a minimális tömegnek megfelelően adagoltuk az alkotókat.

7.3 Öntés

Az öntések a Schmeltz Metall kft. vákuumindukciós kemencéjében folytak. Az öntés előtt a kemencét argonnal átmostuk, majd 1,04 bar argonnyomás alatt történt az öntés.

A kemence egy légmentesen zárható henger alakú indukciós kemence, amelyben egy cserélhető betétű hengeres tégelyben olvad meg a fém. A kemence vízszintes tengely körül elforgatható, lehetővé téve ezzel az öntést a kemence terén belül. Az alkalmazott oxidos tégely három rétegű volt:

- a jobb tapadást szolgáló vízüveges Al_2O_3 réteg
- Al_2O_3 -ból és MgO -ból álló réteg
- Al_2O_3 réteg

A tégely anyagának megválasztását az összetevők befolyásolták, karbon tégely nem lehetett, mert a mangán karbidképző. Kvarc az alumínium miatt nem lehetett, mert az alumínium a szilíciumot nagymértékben redukálja a kvarcból.

Az összetevőket nem egyszerre, hanem egymás után sorban adagoltuk, mindig akkor, amikor már az előző adag megolvadt. A legnagyobb mennyiségű és nem túlságosan magas olvadáspontú rézet adagoltuk először, majd a magas olvadáspontú és kis mennyiségű mangánt, aminek így nem kellett az olvadáshoz szükséges hőmérsékletet biztosítani, hiszen a réz feloldotta. Végül az olvadékba került az alumínium, ami gyorsan feloldódik, alacsony olvadáspontú és így kevesebb ideje volt a párolgásra.



36. ábra A polikristályos előgyártmány

Az öntés és a kristályosodás a kemence argonterében történt. A darabokat lehűlésük után leválasztottam a közös beömlőről, majd forgácsolással az átkristályosításhoz megfelelő formájúra és felületi minőségűre formáltuk.

A kúpból történő növesztéses és a magra növesztéses kísérletekhez is ezzel a módszerrel készültek a polikristályos előgyártmányok.

7.3.1 Az öntés eredménye

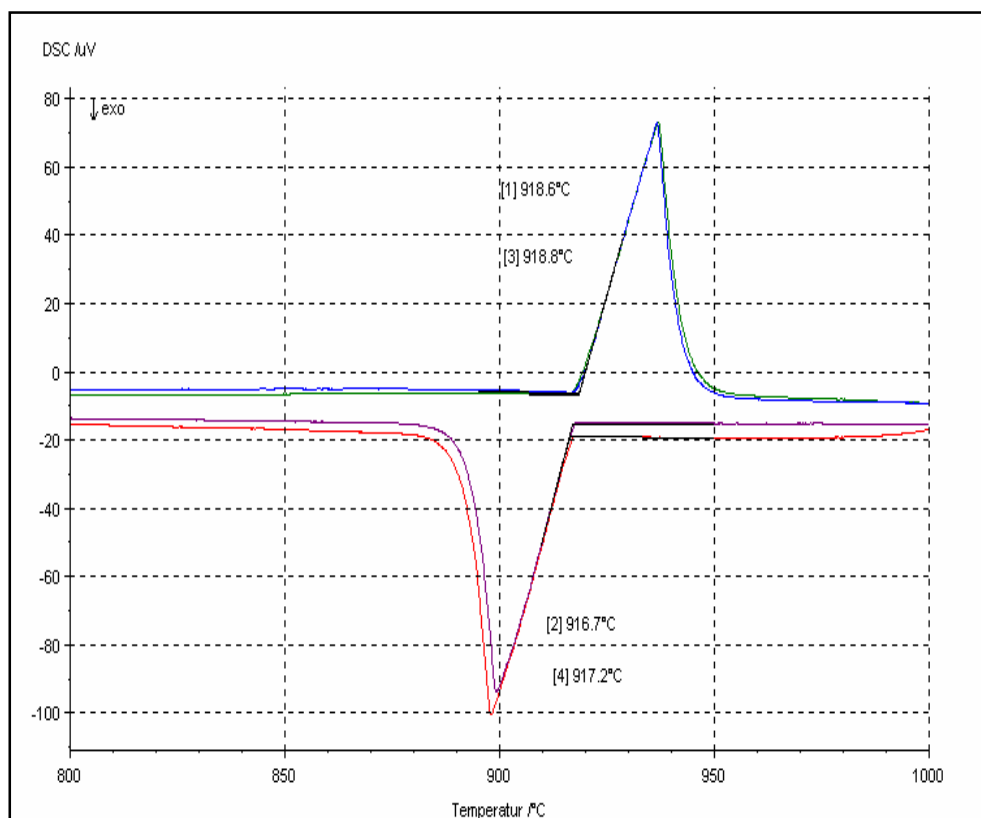
Az Analitikai Kémia Tanszéken elvégzett atomabszorpciós vizsgálatokból kiderült, hogy a gyártás során beállított összetételi értékek nagymértékben megegyeznek a számolt értékekkel.

MINTA SZÁMA	AL %	SZÓRÁS (AL)	CU %	SZÓRÁS (CU)	MN %	SZÓRÁS (MN)
1	12,82	0,68	61	0,69	26,42	0,14
2	12,9	0,13	60,75	0,64	25,9	0,12
3	12,82	0,56	60,76	0,98	25,74	0,49
4	12,87	0,43	60,86	1,35	26,53	1,28
5	12,78	0,67	60,11	0,5	26,47	0,5
6	12,49	0,14	60,06	0,17	26,74	0,49
7	12,25	0,18	60,32	0,38	26,07	0,12
8	11,98	0,37	60,7	0,31	26,16	0,27
9	13,27	0,03	59,82	0,97	26,15	0,98
10	12,15	0,84	60,98	0,31	26,33	0,28
Átlag	12,633	0,403	60,536	0,63	26,251	0,467
Számolt	12,91		60,8		26,29	

1. Táblázat. Atomabszorpciós mérések eredményei

Az 1. táblázatban néhány minta esetén az alkotók összesen többet tesznek ki, mint 100%, ez a mérés szórása miatt lehetséges, és mert minden alkotó mennyiségét külön mérték és nem számolták egyiket sem a másik kettő ismeretében.

A Fémtani Tanszéken készült DTA mérés. (37. ábra) A mérés során mérés technikai okok miatt két felfűtés és lehűtés volt. A mérések eredménye szerint az ötvözet szolidusz és likvidusz hőmérséklete nagyon közel esik egymáshoz, kicsivel az irodalomban talált érték alatt van. Ez is mutatja, hogy a darabok összetétele nagymértékben megközelíti a sztöchiometrikus összetételt.



37. ábra: DTA felvétel, a felső görbék a felfűtés, az alsó görbék a lehűlést prezentálják

8 Sokzónás kemencével történő kristályosítás elve [29]

A Miskolci Egyetem Anyagtudományi Intézetében kifejlesztett módszer a Bridgmann módszer egy speciális változata. Nagy pontossággal szabályozható berendezésben (sokzónás általános célú kemence, UMC) végezhető a betét megolvasztása, az irányított kristályosítás (egykristály-növesztés) oly módon, hogy sem a darab sem a kemence az eljárás során nem mozog. A hőmérséklet profil változtatható a technológiai lépéseknek megfelelően egy számítógépes programmal. A berendezésben kétféleképpen lehetséges egykristályt létrehozni.

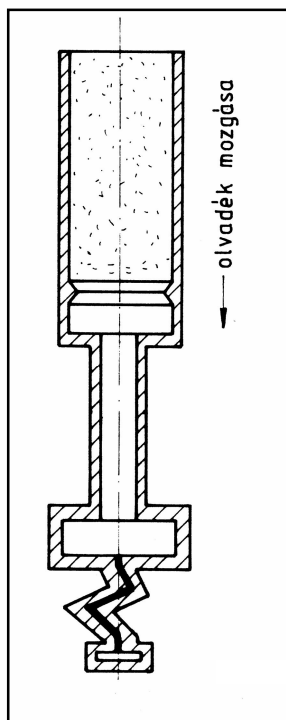
Az indirekt formakitöltésű módszer esetében az ötvözet megolvasztása egy külön tartályban történik. Az olvadék ebből a tartályból folyik le, általában gravitációs úton, az alatta elhelyezkedő kristályosító tégelybe.

A direkt formakitöltésű módszer esetében a végleges formára forgácsolással kialakított próbát vonjuk be kerámiával, vagy helyezzük a kerámia tégelybe. A megolvasztás során ekkor a próba anyaga helyben marad.

8.1 A formaüreg kitöltése olvadékkal

A technológiai folyamat első lépéseként a formát a tartályban helyezett olvasztandó anyaggal együtt a kemencébe teszik úgy, hogy a kristályszelektor vagy a magkristály a kemence aljába kerüljön, ahol az irányított kristályosítást biztosító hideg vége található a berendezésnek. Ezt követően a tartályban levő anyag megolvasztásával, a kristályszelektort és a formaüregét ki kell tölteni az olvadékkal. Az indirekt formakitöltésű módszernél a megolvasztott ötvözet eközben lefolyik a formaüregbe (38.ábra), míg a direkt módszer esetében a megolvadt ötvözet helyben maradva tölti ki a formaüregét.

A betét megolvasztásának első lépése forma hőmérsékletének az anyag szolidus-hőmérséklete (T_S) alá történő egyenletes melegítés. A felhevítés sebességét úgy kell megválasztani, hogy a forma anyaga ne repedjen meg.



38. ábra: A formaüreg feltöltése olvadékkal

Ezt követően a hideg vég felől kezdve a forma hőmérsékletét fokozatosan az olvasztandó anyag likvidusz-hőmérséklete (T_L) fölé kell emelni úgy, hogy v_1 sebességgel egy hőmérséklet "lépcsőt" végig vezetünk a formán. A lépcső alsó hőmérséklete $T_S - \Delta T_1$, felső hőmérséklete $T_L + \Delta T_2$. A megolvasztásnál alkalmazott "lépcső" meredeksége a hőmérsékletgradiens (K/mm). Amikor a betét tetején az aktuális hőmérséklet eléri a szolidusz hőmérsékletet, megkezdődik az anyag megolvadása. Amikor a hőmérséklet lépcső eléri a

tartály végét befejeződik a megolvadás. Megolvadt anyag tölti ki a kristályszelektort, a formát és megolvadt anyagnak kell maradni a tartályban is (ha van tartály).

8.2 Irányított kristályosítás

Az olvadék rövid ideig való hőntartása után a hideg vég irányából egy, a felhevítésnél alkalmazott hőmérséklet lépcsőhöz hasonló lépcsőt v_2 sebességgel (mm/s) vezetünk végig a darabon. Ez a sebesség egyenlő az olvadék/szilárd front vándorlási sebességével. A lépcső felső hőmérséklete természetesen azonos a megolvasztásnál kialakult hőmérséklettel, az alsó hőmérsékletet a megvalósítandó hőmérsékletgradiens határozza meg, de kisebbnek kell lennie, mint a kristályosodó darab nem egyensúlyi szolidusz hőmérséklete (T_s). Amikor a hőmérsékletlépcső olyan helyzetbe kerül, hogy az olvadék/szilárd front a kristályszelektor közepe környékén van (az olvadék hőmérséklete itt pontosan megegyezik a likvidusz hőmérséklettel) a hőmérsékletlépcső vándorlását megállítjuk, a v_2 sebességnél kisebb sebességgel visszafelé mozgatjuk úgy, hogy az olvadék/szilárd front a kristályszelektorban maradjon. Ezt követően ugyanezzel a sebességgel előre, visszafelé, majd ismét előre mozgatva a frontot biztosítjuk egyetlen csíra kiválasztását. A csíra kiválasztása lehetséges a front egyszerű megállításával is. A csíra kiválasztását követően a frontot ezzel a csökkentett sebességgel addig mozgatjuk, amíg a front a formaüreg alsó részén túlhalad, majd a frontot az eredeti v_2 sebességgel mozgatjuk mind addig míg a teljes megszilárdulás be nem következik, illetve a teljes forma le nem hűl a hőmérsékletlépcső alsó hőmérsékletére. Ezzel az irányított kristályosítás befejeződött.

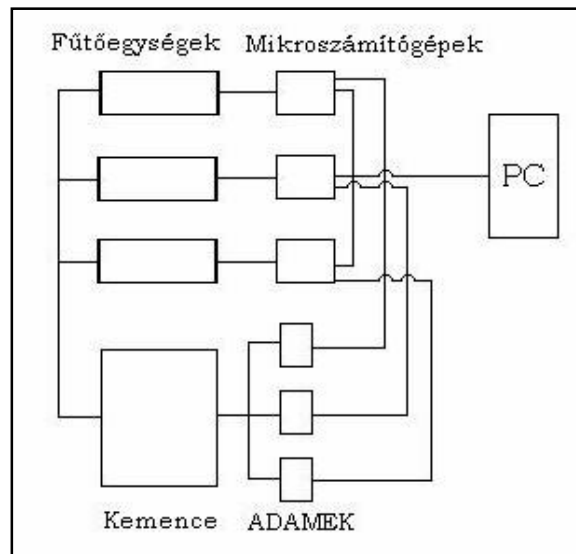
9 Az előkísérletek végzéséhez használt Univerzális Sokzónás Kristályosító Ipari változata (USKI) [42, 43]

A kutatás kezdetén nem állt rendelkezésre az UMC, ezért a kísérletek végzését az egyszerűbb kivitelű változatában, az USKI-ban kezdtem. Ez a modell felépítésében sokban megegyezik a lentebb bemutatott UMC-vel. A fő különbség, hogy ez nem csak vákuumban képes működni és a kemencetér sincs vákuum alatt. Ennek a következménye többek között, hogy a kemence terében a hőmérséklet-eloszlást csak kisebb határok között lehet szabályozni. Nem lehetséges 2 K/mm-nél nagyobb hőmérséklet-gradienst előállítani, hiszen a kemence terében lévő levegő igyekszik kiegyenlíteni a hőmérsékletkülönbséget. Ugyanezért a fűtőzónák szabályozása is pontatlanabb.

Ahhoz, hogy a kemencében kristályosítani lehessen anélkül, hogy a darab jelentősen oxidálódna, egy kvarc-üvegből készült vákuumozható kapszulával és egy rotációs elővákuum

szivattyúval kellett ellátni a berendezést, ami lehetővé tette, hogy a kísérleteket 10^{-2} mbar nyomáson végezzem.

A berendezés vázlatát a 39. ábra mutatja.

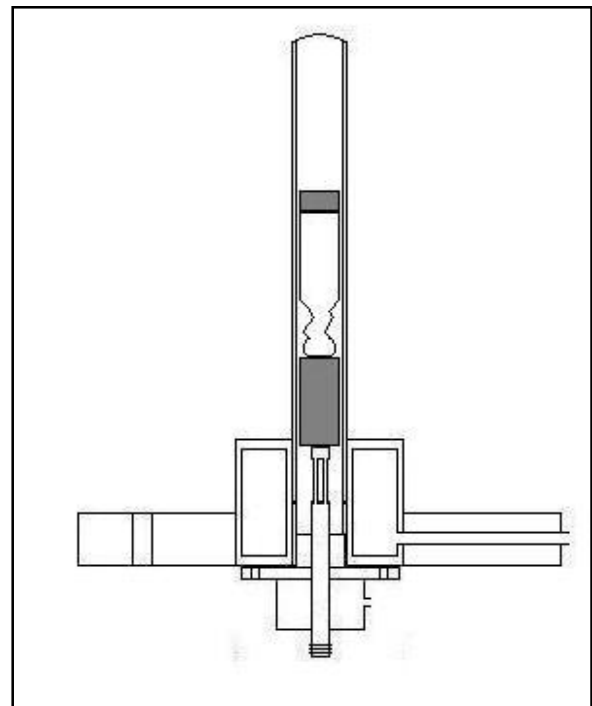


39. ábra Az USKI vázlata [27]

9.1 Kísérleti összeállítás az USKI-ban

Az USKI a kísérletek előtt nem volt alkalmas vákuumozásra. Erre a célra készült egy kapszula, ami 50 mm külső átmérőjű 1,5 mm falvastagságú, az egyik végén lezárt kvarccső, ami a kemencéből kiálló részénél hűthető, illetve vákuumozható.

Az elkészített kapszulába, illetve a hozzá csatlakozó, a vákuumozást elősegítő részbe az átkristályosítandó darabot nem lehet megfelelően elhelyezni, illetve rögzíteni. Az elhelyezéssel szembeni követelmény többretegű. Biztosítani kell, hogy a darab biztosan álljon a kísérlet során, ne mozdulhasson el. Az egyirányú hőelvonás elősegítésének érdekében minél nagyobb felületen fel kell feküdnie a darabnak. Ezek



40. ábra: A kapszula és a probadarab összeszerelve

érdekében a 40. ábrán látható módon egy grafitból készült tartó került a darab alá. A grafit károsodás nélkül elviseli a magas hőmérsékletet és a vákuumot.

A darabot felülről egy grafit dugó pozícionálta, úgy, hogy az megvezesse a kvarccső mentén és középen tartsa.

10 A kristályosító berendezés [44]

Az egykristályok előállítását az Anyagtudományi Intézetben kifejlesztett és az ADMATIS Kft.-ben továbbfejlesztett UMC (Universal Multi-Zone Crystallizator) sokzónás kristályosítóban végeztem. (41. ábra)

Az UMC egy 24 zónás csőkemence, amely 24 külön-külön fűthető, illetve szabályozható zónából áll. A zónák három darab, nyolc zónából álló egységbe vannak foglalva, így azokat a szabályozó elektronika együtt tudja kezelni. Az egységek egymástól fizikailag is elkülönülnek, szétszedhetőek, külön is működnek, de egymástól nem választja és különíti el semmi, tehát a 24 zóna folyamatosan követi egymást. A kialakított hőmérsékletmezőben a zónák határán semmilyen változás nincsen.

A berendezés fő részei a következők:

- Kemence
- Vákuum rendszer
- Tápegység
- Adatgyűjtő és szabályozó egység



41. ábra Az UMC

10.1 Kemence

A kemence három egymással szorosan összefüggő részből tevődik össze. A $\varnothing 54\text{mm} \times 360\text{mm}$ méretű *kemenceteret* a nagyrészt színterelt Al_2O_3 kerámia és szálak kerámiából álló *kemencetest* veszi körül. Ebbe a kemencetestbe vannak beágyazva a zónák megfelelő hőmérsékletét biztosító, egymástól elkülönített volfrám fűtőtekercsek. A tekercsek egymástól mért távolsága 15mm. A tekercsre kiadott fűtőtelijsítményt az adott tekercs alatt 15 mm-el elhelyezett W-WRe termoelem által szolgáltatott hőmérséklet adatok alapján szabályozza a berendezés.

A kemencetestet a *köpeny* zárja körbe. A saválló acél köpeny megtartja a vákuumot, megóvjaa a nedvességtől és összefogja a kerámia részeket, illetve biztosítja a termoelemek

fixállását. Az acél köpenyben futó csőígyó és a benne áramló víz végzi a kemencetest hűtését.

10.2 Vákuum rendszer

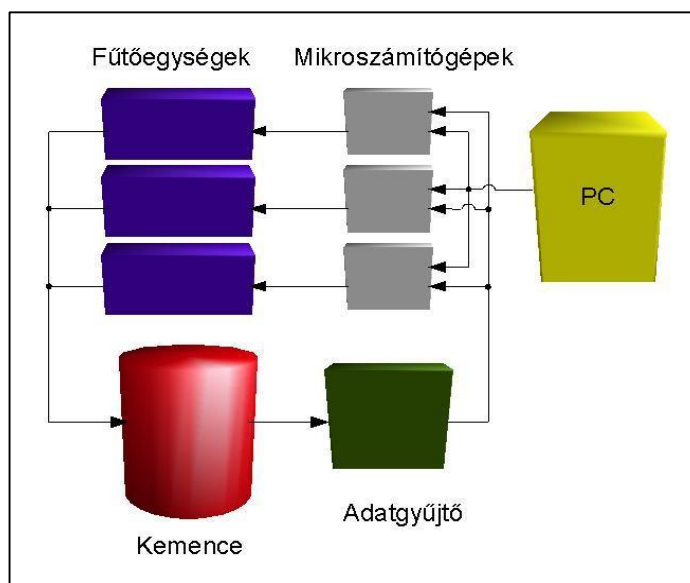
A kristályosítási kísérletek elvégzéséhez és a kemence működéséhez is 10^{-5} - 10^{-6} mBar nyomású vákuum szükséges, amelyet két lépésben állít elő a berendezés. Első lépésben egy rotációs elővákuum-szivattyú 10^{-2} mBar-os elővákuumot hoz létre, majd második lépésben turbó-molekularszivattyú hozza létre a kívánt vákuumot. A két lépcsős rendszerre azért van szükség, mert a turbószivattyú légköri nyomáson nem működtethető a forgó alkatrészek meghibásodása nélkül.

10.3 Tápegység

A berendezés energiaellátásáról egy 2,5 kW névleges teljesítményű, egy és három fázisról egyaránt működtethető tápegység gondoskodik. A tápegység 24 egymástól független egyenáramú kimenettel rendelkezik, amelyek védve vannak túláram, túlfeszültség és túlhevülés ellen is. Ezen kimeneteken keresztül táplálja a transzformátor a fűtőtekercseket.

10.4 Adatgyűjtő és szabályozó egység

A kemence hőmérsékletét folyamatosan figyeli, ellenőrzi a rendszer. A szabályozást, a mikroszámítógépek végzik, amelyek kapcsolatot tartanak az adatgyűjtővel és a szabályozó PC-vel. A PC-től kapják az utasításokat, a szabályozással és a kiadott teljesítményekkel kapcsolatosan beállított értékeket. Az adatgyűjtőtől kapja az aktuális hőmérséklet adatokat a kemencéből. A szabályozás vázlatát ábrázolja a 42. ábra.



42. ábra Az UMC vázlata

A PC feladata a rendszer irányítása és a kezelői felület biztosítása. Nyomon tudjuk követni a kísérletet, illetve beavatkozásra biztosít lehetőséget.

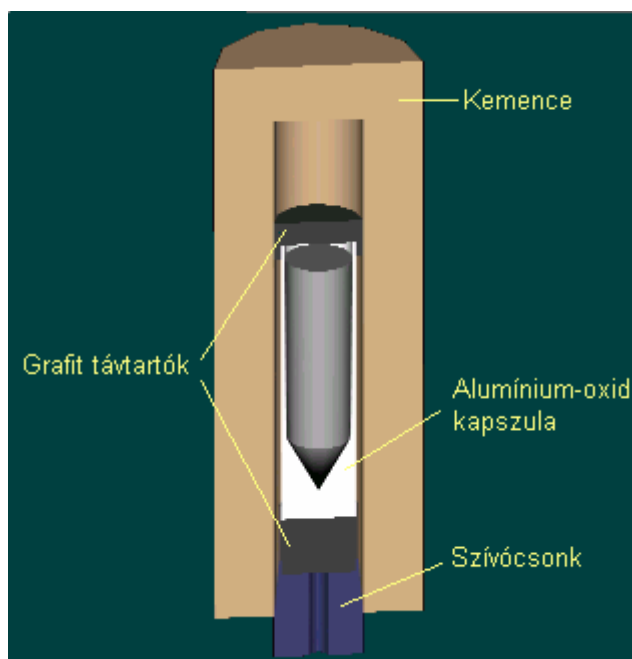
Minden zóna fűtéséért egy-egy fűtőegység felel. Nyolc fűtőegységhez tartozik egy vezérlő mikroszámítógép. A mikroszámítógépek adják az egyes fűtőegységek alapjeleit és kérdezik le a fűtőegységek státuszát.

10.5 Kísérleti összeállítás az UMC-ben

A kísérletekhez az UMC sokzónás kristályosító függőleges tengelyű, 24 külön-külön fűthető, illetve szabályozható zónából álló csökemencét használtam (43. ábra).

A kristályosításokat az UMC-val, alumínium-oxid kerámia kapszulában folytattam.

A kerámiába az előgyártmány szilárd állapotában került bele. A jobb térkihasználás végett és hogy a felület a lehető legkevésbé oxidálódjon, az előgyártmányokat a kerámia üregébe majdnem pontosan illeszthető méretűre és alakúra kell munkálni (helyet hagyva a hőtágulásnak).



43. ábra A kísérleti összeállítás

A Heusler ötvözet és az alumínium-oxid kapszula táglási együtthatója közötti különbség miatt a kúpszöget 1° -al kisebbre kell venni, mint a végtermék (és a kerámia üregének) kúpszögét.

A kristályosító kapszula és a bele helyezett előgyártmány egy, a két végén grafit dugóval lezárt kvarc-üveg csőbe kerül (44. ábra), hogy az elpárolgó fémek ne csapódjanak le a kemence falán, kárt okozva ezáltal benne. A kvarccsőben, egyúttal a kemencében a

kapszulát pontosan kellett pozícionálni. Erre a célra az USKI-nál alkalmazotthoz hasonló grafit távtartókat alkalmaztam. Így a kísérlet közben a kapszula és a kristályosítási front helye pontosan meghatározható.



44. ábra A kristályosító kapszula a kvarc csőben

A 44. ábrán olyan összeállítás látható, ahol a kristályosító kapszula hőmérsékletét is mértem a darabban kialakult hőmérséklet viszonyok vizsgálata végett. Kristályosítás sokzónás kemencével

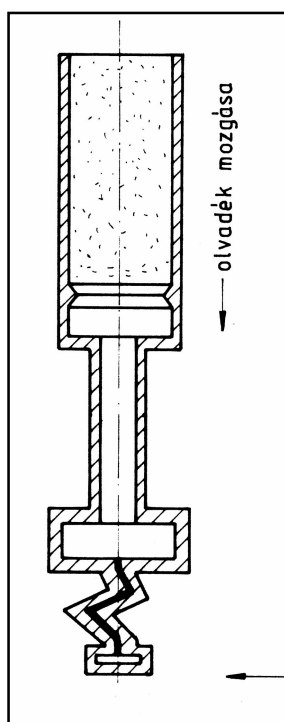
Ez az általam is használt módszer a Bridgmann módszer egy speciális változata. Nagy pontossággal szabályozható berendezésben (sokzónás általános célú kemence) végezhető a betét megolvasztása, az irányított kristályosítás (egykristály-növesztés), illetve, ha szükséges az öntött szövet homogenizáló hőkezelését és a kiválósos hőkezelést oly módon, hogy sem a darab sem a kemence az eljárás során nem mozog. A hőmérséklet profil változtatható a technológiai lépéseknek megfelelően egy számítógépes programmal. A berendezésben kétféleképpen lehetséges egykristályt létrehozni.

Az indirekt formakitöltésű módszer esetében az ötvözet megolvasztása egy külön tartályban történik. Az olvadék ebből a tartályból folyik le, általában gravitációs úton, az alatta elhelyezkedő kristályosító tégelybe. Mivel a berendezés mikrogravitációs térben is képes üzemelni (sőt erre lett kitalálva), megjegyzendő, hogy ezzel a módszerrel, mikrogravitációs körülmények között csak akkor tudunk kristályosítani, ha valamilyen különleges módszerrel gondoskodunk arról, hogy az olvadék a formaüregbe befolyjon. A direkt formakitöltésű módszer esetében a végleges formára forgácsolással kialakított próbát vonjuk be kerámiával, vagy helyezzük a kerámia tégelybe. A megolvasztás során ekkor a próba anyaga helyben marad.

A formaüreg kitöltése olvadékkal

A technológiai folyamat első lépéseként a formát a tartályban helyezett olvasztandó anyaggal együtt a kemencébe teszik úgy, hogy a kristályszelektor vagy a magkristály a kemence aljába kerüljön, ahol az irányított kristályosítást biztosító hideg vége található a berendezésnek. Ezt követően a tartályban levő anyag megolvasztásával, a kristályszelektort és a formaüreget ki kell tölteni az olvadékkal. Az indirekt formakitöltésű módszernél a megolvasztott ötvözet eközben lefolyik a formaüregbe (26.ábra), míg a direkt módszer esetében a megolvadt ötvözet helyben maradva tölti ki a formaüreget.

A betét megolvasztásának első lépése forma hőmérsékletének az anyag szolidus-hőmérséklete (T_s) alá történő egyenletes melegítés. A felhevítés sebességét úgy kell



26. ábra: A formaüreg feltöltése olvadékkal

megválasztani, hogy a forma anyaga ne repedjen meg.

Ezt követően a hideg vég felől kezdve a forma hőmérsékletét fokozatosan az olvasztandó anyag likvidusz-hőmérséklete (T_L) fölé emeljük úgy, hogy v_1 sebességgel egy hőmérséklet "lépcsőt" végig vezetünk a formán. A lépcső alsó hőmérséklete $T_s - \Delta T_1$, felső hőmérséklete $T_L + \Delta T_2$. A megolvasztásnál alkalmazott "lépcső" meredeksége a hőmérsékletgradiens (K/mm). Amikor a betét tetején az aktuális hőmérséklet eléri a szolidusz hőmérsékletet, megkezdődik az anyag megolvadása. Amikor a hőmérséklet lépcső eléri a tartály végét befejeződik a megolvadás. Megolvadt anyag tölti ki a kristályszelektort, a formát és megolvadt anyagnak kell maradni a tartályban is (ha van tartály).

10.6 Fűtési program készítése

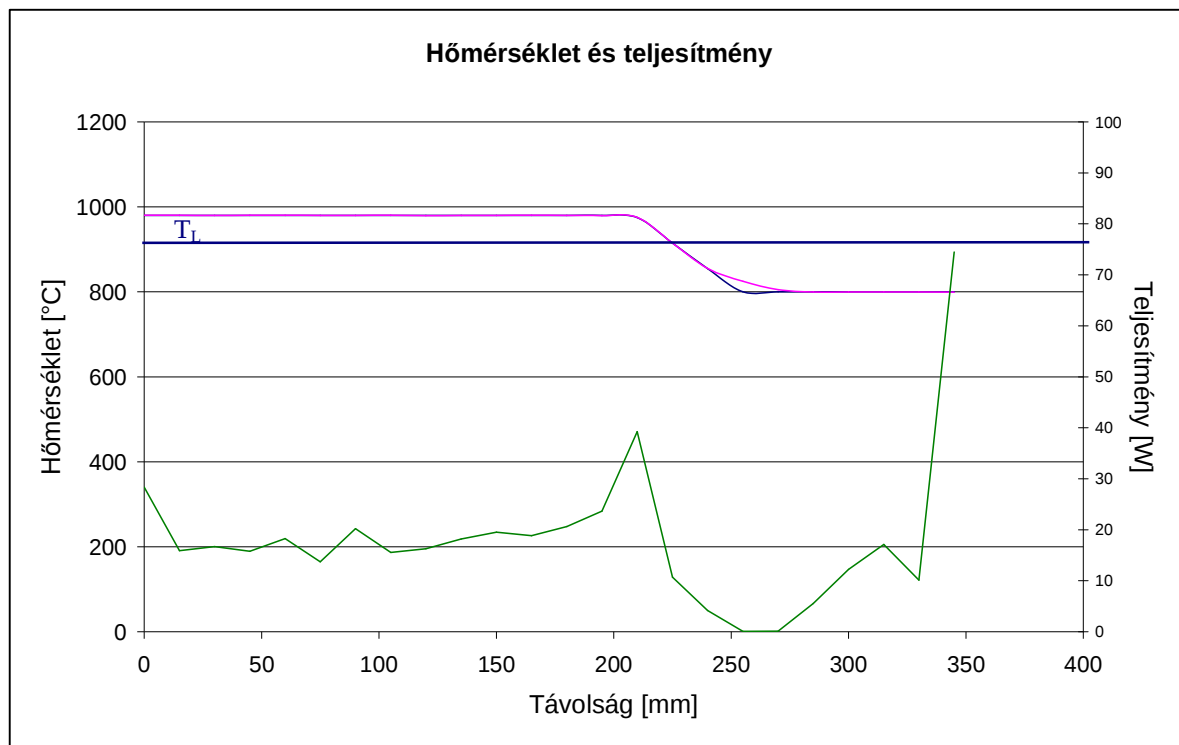
A kísérletek elvégzéséhez a kemencét szabályozó mikroszámítógépeket be kell programozni. Ez a vele összekötetésben lévő személyi számítógéppel lehetséges. A kemence szabályozását segítő programnak adatfájlban kell megadni a zónák fűtési programját külön-külön. Ennek a fájlnek a létrehozását segíti a Designer nevű program, ami a kívánt melegítést, hűtést, hőntartást, illetve a hőmérséklet-gradiens kialakítását és mozgását automatikusan elvégzi a megadott adatok alapján.

A program elkészítéséhez tudni kell, hogy a darab alja és teteje hányadik fűtőzónába esik, azaz hány milliméterre van a kemence aljától. A grafit távtartók méretének ismeretében ez könnyen megmondható, sőt azok magasságával a darab helye szabályozható.

Első lépésben fel kell melegíteni az egész darabot egy, a Heusler-ötvözet olvadáspontja alatti hőmérsékletre. A beállított hőmérséklet $800 - 860^{\circ}\text{C}$, a kísérlet többi paraméterétől függően. Ezen a hőmérsékleten már elég közel van a darab az olvasáspontjához, így kialakítható a megfelelő hőmérséklet-gradiens. de még nem olvad meg. A felfűtés sebessége 200 K/h volt, ennek oka, hogy ezzel a sebességgel még biztonságosan fűthető a kemence.

Ezután létrehoztam a kívánt nagyságú $2, 3, 4, 6$ vagy 8 K/mm -es hőmérséklet-gradienst úgy, hogy a kezdő hőmérséklet az előzőleg beállított olvadáspont (920°C) alatti hőmérséklet, míg a felső hőmérséklet az olvadáspont feletti $950-1010^{\circ}\text{C}$ volt. A hőmérsékletlépcsőt mindig úgy alakítottam, ki, hogy az legalább 4 zónán keresztül tartson. Ez azt eredményezte, hogy a kritikus zónában, a kristályosodási front közvetlen közelében a hőmérséklet-gradiens a kemencében a beállított értéken volt a kísérlet teljes ideje alatt.

A gradiens helyzete olyan volt, hogy a darab tetejénél volt az olvadáspont. A darabban lentől felfelé nőtt a hőmérséklet, tehát a darab még nem olvadt meg, de a fölötté lévő rész már az olvadáspont fölötti hőmérsékleten volt.



45. ábra A beállított program szerinti hőmérsékleteloszlás (kék), a valódi hőmérsékleteloszlás (rózsaszín) a kemencében és az egyes fűtőtekercsekre kapcsolt villamos teljesítmény (zöld)

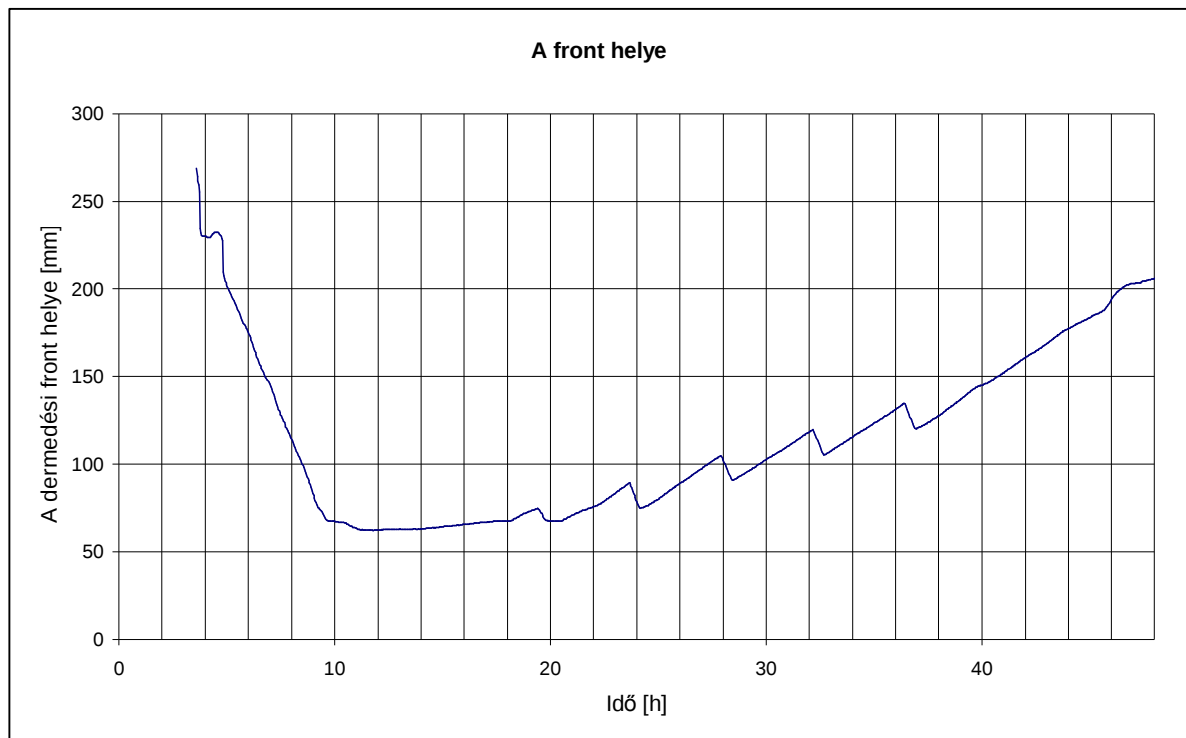
A gradienst kialakulása után elkezdtem mozgatni lefelé 20 mm/h sebességgel, felülről lefelé fokozatosan olvasztva meg így a darabot. A hőmérséklet-gradiens mozgatását egészen addig folytattam, amíg az egész darab biztosan meg nem olvadt.

A darab teljes megolvadása után, minden kísérlet esetén, 3 órán keresztül hőn tartottam a darabot.

Ezután elkezdtem a darab kristályosítását oly módon, hogy a gradienst az előzővel ellenkező irányba, felfelé kezdtem el mozgatni. A mozgítás sebessége 2, 3 vagy 4 K/mm volt minden kísérletben. A kristályosítás így a darab kúpos feléből indulva, az ott keletkezett egyetlen csíra növekedésével zajlott egészen a darab tetejéig. (45. ábra)

Az átkristályosítás után még következett egy 200 K/h-ás hűtés is a programban, de a kemence nem képes ilyen sebességű hűlésre, tehát az olyan gyors volt amilyen gyorsan a kikapcsolt kemence hűlni képes.

Készült olyan kísérlet, amelyik esetében a kristályosítás két lépésben történt. A darab alján, amíg a kúpos rész tart, a kristályosítás nem volt folytonos. A darab megolvasztása után a front két zónányit (30 mm) mozgott előre, majd egy zónányit (15 mm) vissza. Ennek az értelme az, hogy a kúpos részben esetlegesen keletkező új krisztalitok visszaolvadjanak. Mindez addig folytatódott így, amíg a front el nem érte a hengeres részt. Onnantól a kristályosítás folyamatosan, a fent leírtak szerint történt. (46. ábra)



46. ábra. A dermedési front helyét mutató diagrammon látszanak a visszaolvasztások

A kristályosodási front mozgási sebességét a hőmérsékletlépcső mozgásának sebességével, a darabban lévő hőmérséklet-gradienst pedig a kemencében beállított hőmérséklet-gradienssel lehet befolyásolni.

Kísérletek lefutása

Az összeállított kísérleti kapszulát a kemence terébe helyeztem. A kemence légmentes lezárása után elindítottam a vákuumrendszert. Először az elővákuum szivattyút bekapcsolásával a légnyomást a kemencében 10^{-2} mBar-ra kell csökkenteni. Ezután be lehet kapcsolni a nagy teljesítményű turbószivattyút, amivel 10^{-5} - 10^{-6} mBar-os nyomás elérése lehetséges. A kísérletek hossza általában 4-5 nap volt.

A szivattyú három napig működött a fűtési program indítása előtt. Erre azért volt szükség, mert nem csak a kemence terében kellett a vákuumot elérni, hanem a kemence falazatát alkotó kerámiákból is el kellett távolítani a gázokat és a párákat.

A kemencét szabályozó, adatgyűjtő PC-n a kísérlet nyomon követhető. Zónánként ellenőrizhető a beállított és a tényleges hőmérséklet, valamint a leadott teljesítmény. Menetközben a fűtési programon változtatni nem lehet, de új fűtési program betöltésével, módosítható a kísérlet menete.

A berendezés leállása és lehűlése után a kemence tere csak lassan fokozatosan levegőzhető fel. Ennek oka, hogy levegőt beengedni csak a szivattyúkon keresztül lehetséges és a turbószivattyú lapátait nem szabad nagyobb nyomásnak kitenni. A minimális légellenállás miatt azonban csak nagyon lassan áll meg.

A megfelelő kristályosító kapszula elkészítése után a kísérletek jellege megegyezett. A kísérletek csak a kialakított hőmérséklet-gradiensben és a kristályosítás sebességében tértek el egymástól. (1. táblázat)

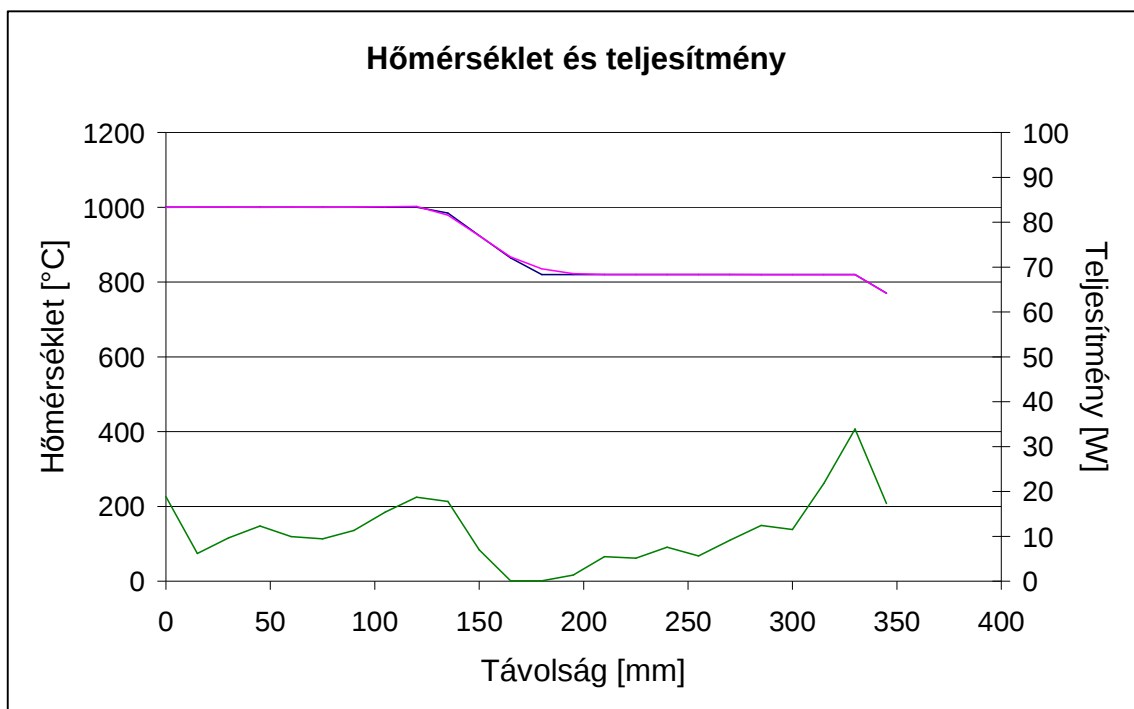
Kapszula	egyszer/többször használt kapszula.
T-gradiens	2,3,4,6,8 K/mm
Krist. Seb.	2,3,4 mm/h

2. Táblázat Az alkalmazott kristályosítási paraméterek

10.7 A kristályosító termikus viselkedése

10.7.1 Hőmérsékletviszonyok a kemence falán

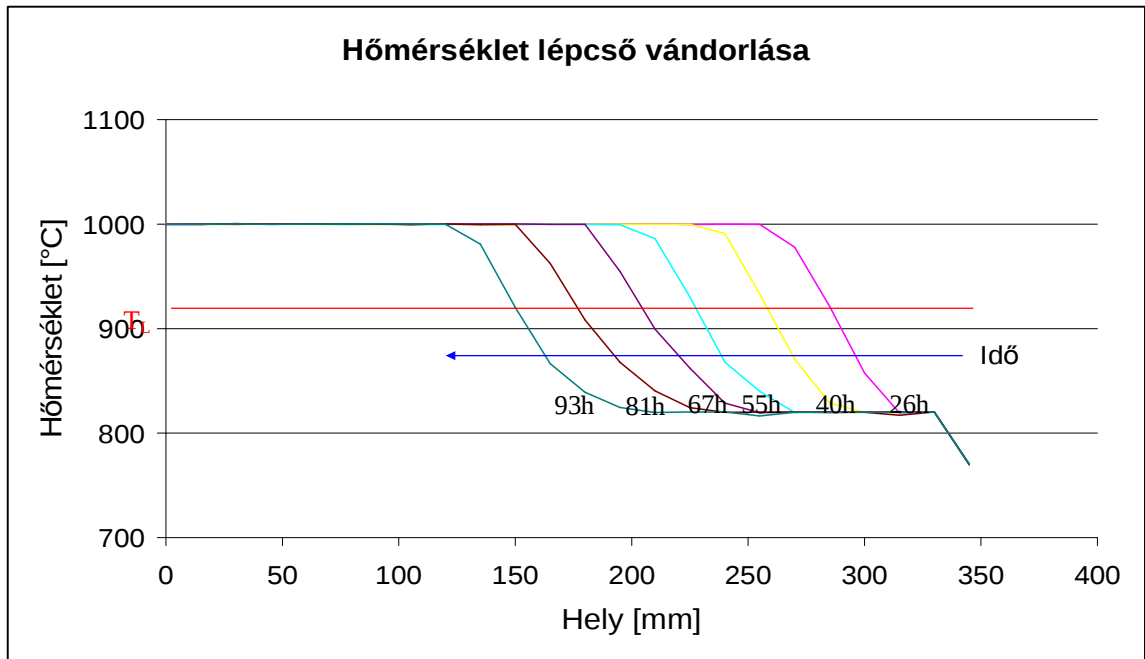
A berendezés termoelemei által mért adatokat a szabályozást végző számítógép rögzíti. Az adatgyűjtés gyakorisága 2 perc volt minden esetben. A rögzített adatokból a termoelemek helyének pontos ismeretével utólag ellenőrizhetők a hőmérsékletviszonyok a kemence terében a kísérlet során.



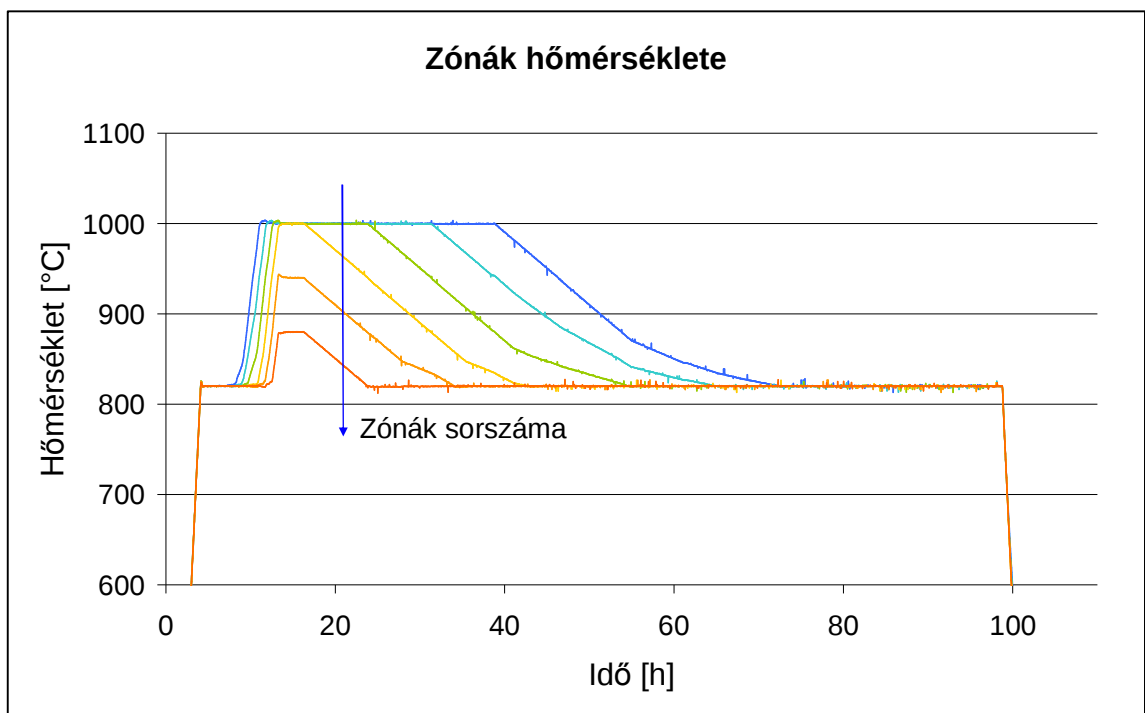
47. ábra A beállított és a tényleges hőmérsékleteloszlás a kristályosító terében, és a leadott teljesítmény mértéke zónánként.

A 47. ábrán látható a termoelemek által egy adott időpontban mért hőmérséklet eloszlás. A kék színű görbe mutatja a beállított hőmérsékleteket, a rózsaszín a mért hőmérsékleteket. Jól látszik, hogy a valós hőmérséklet a célnak megfelelő mértékben követi a beállított hőmérsékletet. A zöld görbe az egyes fűtőzónák által leadott teljesítmények értékét mutatja.

A 48. ábrán minden egyes görbe egy-egy időpontban szemlélteti a kemencefal hőmérsékletét, ezáltal a görbe-sereg segítségével nyomon követhető a kemence hőmérséklet mezejének a változása. Minden görbe olyan időponthoz tartozik, amikor a front előre vándorol, azaz a darab hűl. A görbék az olvadáspont közelében párhuzamosak egymással, tehát a hőmérséklet-gradiens a kristályosítás során állandó.



48. ábra A hőmérsékletprofil mozgása

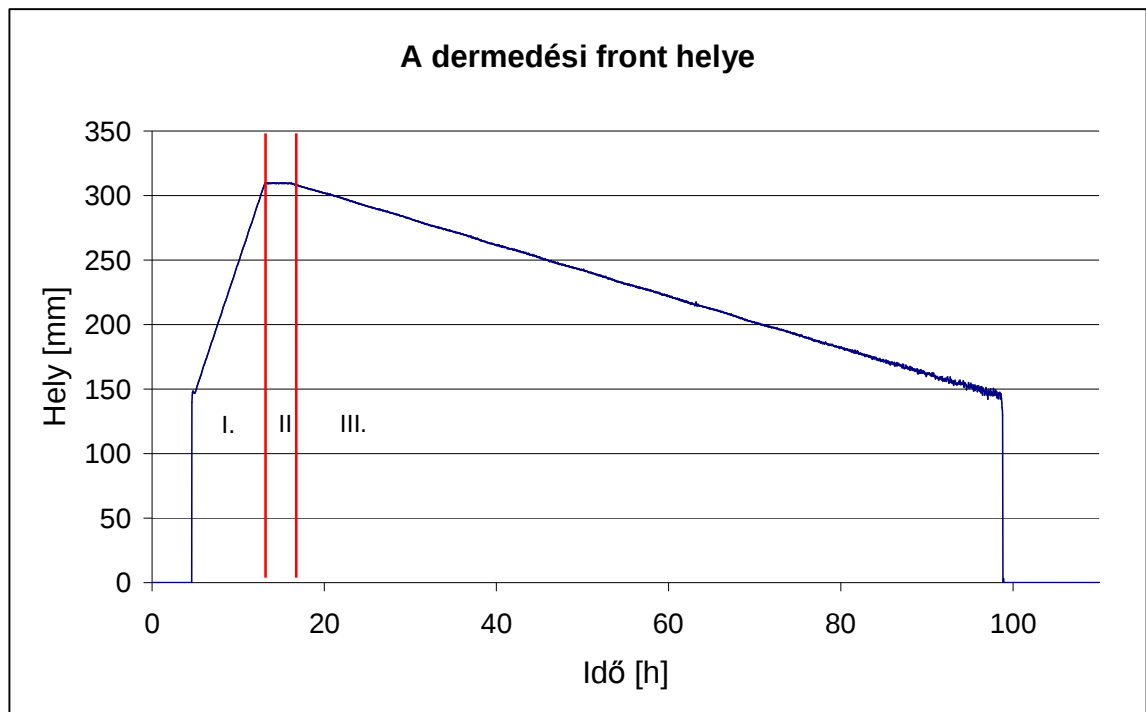


49. ábra A 17-22 zónák hőmérséklete az idő függvényében

A 49. ábrán a 17.-22. zónák hőmérsékletének a változása követhető nyomon. A zónák fűtési programja természetesen más és más volt, hiszen a hőmérséklet lépcső más időpillanatban ért az egyes zónákhoz.

A 50. ábrán a likvidusz hőmérséklethez (920 °C helyzetének változása látható a kemence hűtött végéhez képest. Ezen a görbén jól láthatóak a fűtési program alábbi szakaszai:

- I. Megolvasztás felülről lefelé, ekkor a szilárd/olvadék front is lefelé mozog
- II. Hőntartás, (az egész darab olvadt, szilárd/olvadék front nincs, a likvidusz hőmérséklet izotermája a darab alatt van)
- III. A darab kristályosítása alulról felfelé,



50. ábra A kristályosítási front távolsága a kemence tetejétől az idő függvényében

10.7.2 Hőmérsékletviszonyok a darabban

A kemencén belül a hőátadási folyamatok nem tökéletesek. Ennek az eredménye, hogy a kemence falán mért (és ez alapján szabályozott) hőmérsékletek nem egyeznek meg a darab belsejében lévő hőmérsékletekkel. Ezért és mert a darab jó hővezető, szemben a kemence falával a darabban kialakult hőmérséklet-gradiens is más, mint a beállított. Ebből kifolyólag a likvidusz hőmérséklet helye is más lesz.

Készültek olyan kísérletek, amelyeknek az volt a célja, hogy információt szolgáltatassanak a darab és a kemence hőmérséklete közötti különbségekről. Ezen kísérletek közben az eredeti kísérletekhez hasonlóan történt minden, kivéve, hogy a kristályosító kapszula külső oldalára 4db termoelement erősítettem. A termoelemeket úgy helyeztem el, hogy azok a darab alsó felében, a magkristály, a kúpos rész és a hengeres rész aljának hőmérsékletét mérik.

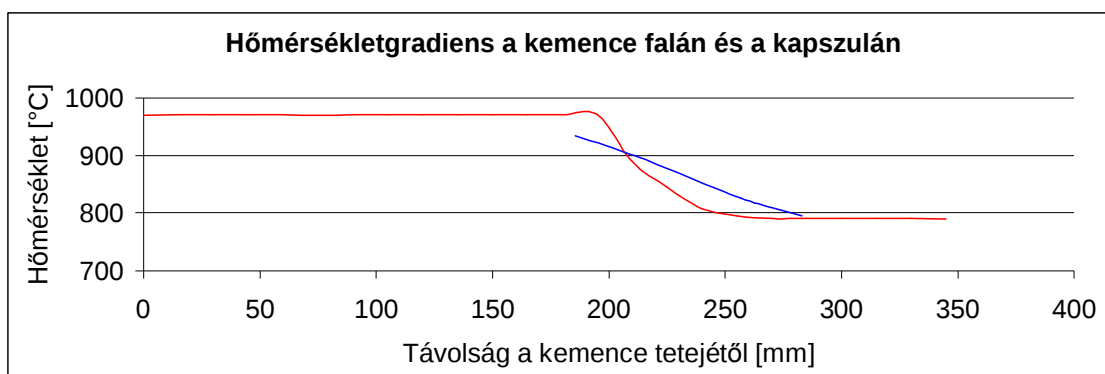
A mért különbségeket a 2. táblázat és a 3. táblázat, valamint az 51-54. ábrák tartalmazzák.

Beállított G [K/mm]	G kemence [K/mm]	G kapszula [K/mm]
6,00	5,36	1,43
3,00	3,00	1,34
2,00	2,00	0,99
1,00	1,00	0,41

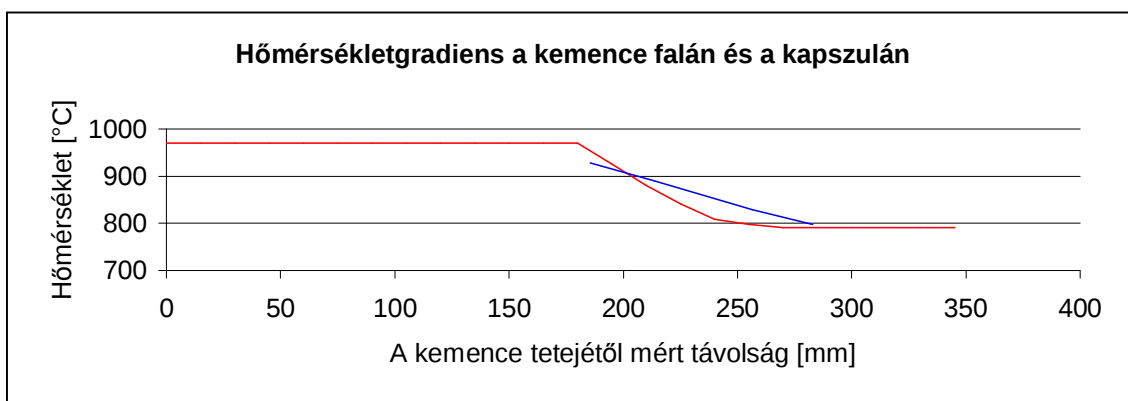
2.táblázat A kialakult hőmérsékletgradiensek

Beállított G [K/mm]	T ^l a kemence falán [mm]	T ^l a darabban [mm]
6,00	205,58	188,38
3,00	196,06	187,05
2,00	199,24	189,61
1,00	120,71	176,87

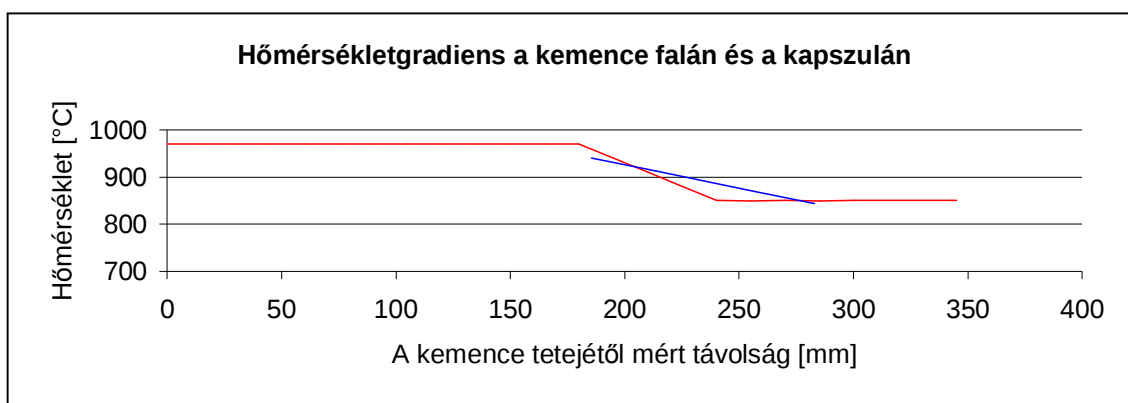
3. táblázat A likvidusz hőmérséklet a kemence falán és a darabban



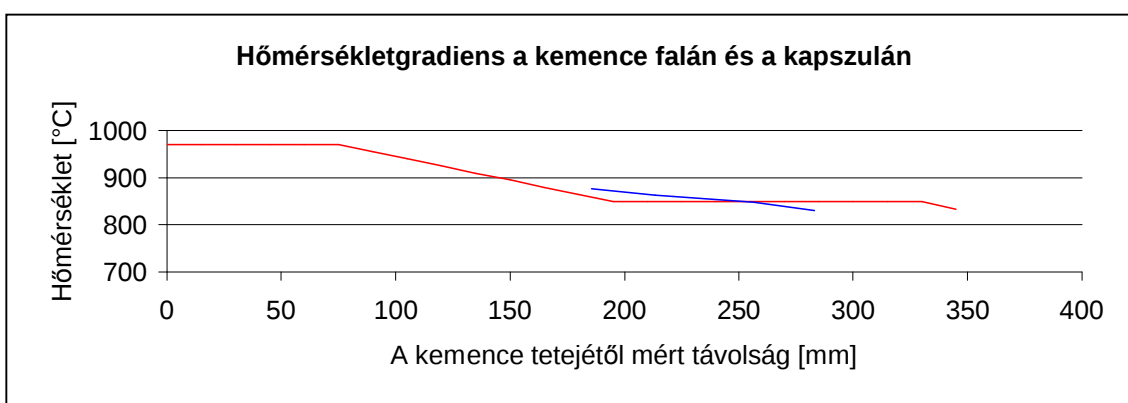
51. ábra A kialakult gradiensek 6 K/mm beállított gradiens esetén



52. ábra A kialakult gradiensek 4 K/mm beállított gradiens esetén



53. ábra A kialakult gradiensek 2 K/mm beállított gradiens esetén



54. ábra A kialakult gradiensek 1 K/mm beállított gradiens esetén

11 Előkísérletek az USKI-ban

Az UMC-ben végzett kísérletek előtti előkísérletek ugyan nem eredményeztek egykristályt, azonban olyan tapasztalatokkal szolgáltak, aminek következtében az UMC-ben szinte minden olyan kristályosítás, amelyik nem szakadt meg műszaki probléma miatt, egykristályt eredményezett. A fontosabb előkísérletek a következők voltak:

H1. kísérlet

A kísérlet adatai:

- Darab: szelektoros öntartó kerámia
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 30mm/h-val
- Kristályosítás: két lépés előre 8mm/h-val, egy vissza 30mm/h-val a tizedik zónáig, majd folyamatosan 8mm/
- Hűtés

Kiértékelés: A darab tetején kis mennyiségű salak volt található, melyben a EDS-s mérések szerint nagyrészt Mn, kisebb részben pedig Cu és Al is megtalálható. Valószínű, hogy az alkotók karbidokat alkottak a grafit záró elem anyagával, illetve a benne oldott oxigénnel oxidokat. Az elemzésre használt EDAX energia diszperz mikroszkop azonban ezeket a kis rendszámú elemeket nem tudta kimutatni, úgyhogy ezt nem sikerült bizonyítani. A kerámia belül világosszürkére színeződött, aminek az összetétele hasonlított a salakéra. A kerámia felső pereme zöldesre színeződött, ami réz-oxid jelenlétét valószínűsíti. A szelektorból két kristály nőtt, azonban nagymértékű szennyeződés miatt, kialakult egy külső réteg, amelyikről több kristály nőtt, illetve a darab belsejében lévő szennyeződések is csíráképző helyként működtek. Nagyméretű kristályok keletkeztek, amelyek irányítottak voltak.

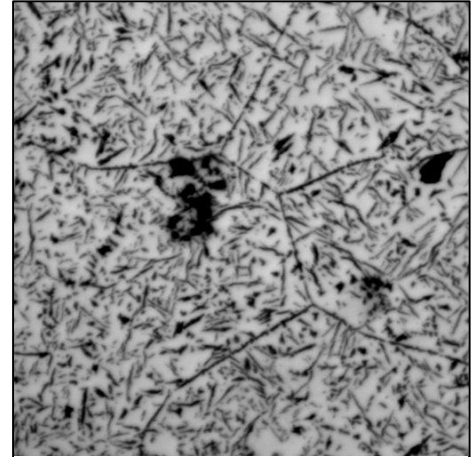
H2. kísérlet

A kísérlet célja: a polikristályos előgyártmány felületi tisztaság hatásának vizsgálata

- Darab: szelektoros, a felület esztergálással megtisztítva
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás fentről lefelé 30mm/h-val

- Kristályosítás: két lépés előre 8mm/h-val, egy vissza 30mm/h-val a tizedik zónáig, onnan folyamatosan 8mm/h
- Hűtés

Kiértékelés: A salak, illetve a kerámia elszíneződése ugyan olyan volt, mint az első kísérletnél. A szelektorból egy kristály nőtt ki, a szelektorból és a talprészben egy kristály volt, azonban a még mindig meglévő szennyeződéseken újabb krisztallitok nőttek (55. ábra), amelyek a kúpos rész végéhez érve egy kristállyá nőttek össze. Ebből arra lehet következtetni, hogy nem feltétlenül kell szelektor a darabra, elég egy megfelelő kúpszögű kúp.



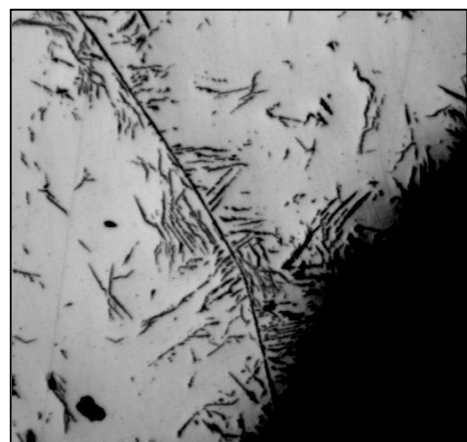
55. ábra. Szennyeződések és kristályhatárok a H2 kísérlet esetén

H3. kísérlet

A kísérlet célja: megváltoztatott (csak kúpos) kristályosító kapszula vizsgálata,

- Darab: kúpos, a felület megtisztítva, a szennyezett kúpos rész levágva
- Felfűtés 870 °C-ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 20mm/h-val
- Kristályosítás: két lépés előre 5mm/h-val, egy vissza 20mm/h-val a kilencedik zónáig, onnantól folyamatosan 5mm/h
- Hűtés

Kiértékelés: A kúp csúcsából csak egy kristály kezdett el nőni, de később, néhány milliméter után a kúp falán egy újabb csíra keletkezett és nőtt tovább (56. Ábra). Ez benőtt a darab közepéig, és a kialakult kristályhatár végighúzódott az egész kúpos részen és egy darabon a hengeres részen is. A hengeres részben a felületről néhány kristály nőtt, illetve a szennyeződéseken is új csírák nőttek. A kialakult új 4-5 kristályhatár a darab végéig párhuzamosan fut egymással és közel egyenlő távolságra vannak egymástól.



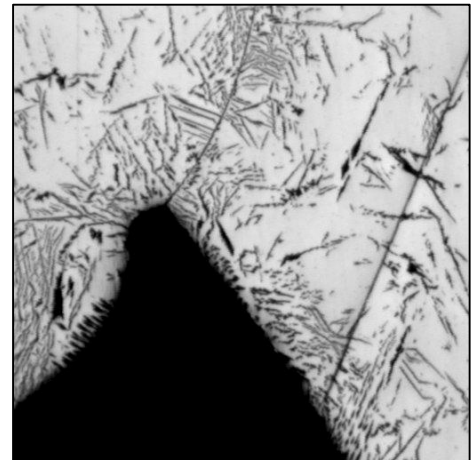
56. ábra. A kúp oldaláról kiinduló kristályhatár

H4. kísérlet.

A kísérlet célja: megvizsgálni az alulról felfelé történő olvasztás lehetőségét

- Darab: kúpos
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás: lentől felfelé 20mm/h-val
- Kristályosítás: két lépés előre 5mm/h-val, egy vissza 20mm/h-val a darab egész hosszában
- Hűtés

Kiértékelés: A kúp vége nem lett hegyes, olyan, mintha a végén egy lunker lenne, az a fordított átolvasztás eredménye lehet. A felületen is jól látható módon sok csíra keletkezett és nőtt a hengeres részbe. Valószínűleg az alulról történő olvasztás eredménye továbbá, hogy a darab egészében lunkerek, mikrolunkerek, repedések találhatók, amelyek következtében egykristály növesztése nem lehetséges az alulról történő olvasztás módszerével. (57. ábra)



57. ábra. Lunkerről induló kristályhatárok

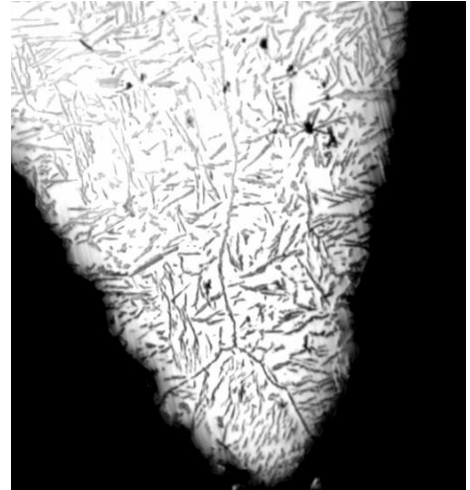
Alox01 kísérlet

A kísérlet célja: Alumínium-oxid kapszula használata

- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 30mm/h-val
- Kristályosítás: két lépés előre 5mm/h-val, egy vissza 20mm/h-val a kilencedik zónáig, onnantól folyamatosan 5mm/h
- Hűtés

Kiértékelés: A darab túlságosan jól illeszkedett a kapszulába, aminek következtében a hőtágulás hatására a darab aljától 25 mm-re szétfeszítette a kerámiát és kifolyt a darab anyaga a grafit alátétre.

A kivett darabnak így csak az alsó része volt kiértékelhető, ami kezdetben egykristályként nőtt, azonban elég hamar megjelent két újabb csíra, amelyek a kiértékelhető részen végig nőttek, mint kristályok, vagyis egykristály helyett három krisztalitból álló darabot sikerült előállítani (58. ábra). Az új csírák maguktól keletkeztek, vagyis nem valamilyen csíráképzőn, a mikroszkópos felvételen nem látni semmilyen szennyezőt vagy repedést ami az új csírák megjelenését indokolta volna. Ebből arra következtettünk, hogy valószínűleg a kristályosítási paraméterek nem megfelelőek egykristály előállításához, főleg úgy, hogy az első csíra nem orientált. A hőelvonás irányával nem egyezik meg a legkedvezőbb növekedési irány, a nem megfelelő kristályosítási paramétereken túl ez is hozzájárult a síkfront felborulásához, új csírák keletkezéséhez.



58. ábra A kúp hegye és a keletkezett krisztallitok

Alox02 kísérlet

A kísérlet célja: A kristályosítási front „két zónát előre egyet vissza,, módszerrel történő mozgatásának elhagyása, folyamatos kristályosítással helyettesítése

- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 30mm/h-val
- Kristályosítás: folyamatosan 5mm/h
- Hűtés

Kiértékelés: Megismételtük az előző kísérletet azzal a változtatással, hogy nagyobb teret hagytunk a hőtágulásnak, illetve nem alkalmaztuk a kristályosítás során a két zónát előre egyet vissza módszert.

A kivett darab tetején egybefüggő salakréteg volt található. A darab kijött a formából könnyedén, vagyis nem volt szükség a kerámia szétörésére. A kapszula belső felülete elszíneződött, sötétszürke lett, ami valószínűleg a kevés oxidációnak és a falba diffundáló részecskéknek köszönhető.

A kristályosodás során több krisztallit is keletkezett, amiből egyértelművé vált, hogy a kristályosítási paramétereket meg kell változtatni. Mivel a hőmérséklet-gradiens ezen a berendezésen tovább nem növelhető, a frontmozgatási sebességet szükséges kisebbre állítani.

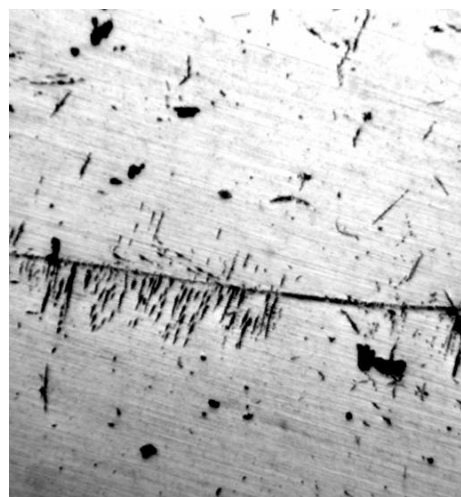
Alox03 kísérlet

A kísérlet célja: kisebb kristályosítási sebesség alkalmazása

- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés 870 °C ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 30mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

Kiértékelés: A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A tetején kevés reve volt található, por állapotú hamu nem volt a darab tetején.

A kivett darabban két krisztallit található. A kristályosítás elején csak egy kristály keletkezett, majd a kúpos részen még egy. A kristályhatár párhuzamosan fut a hengeres darab falával, vagyis a kristályhatár nem mozdul el vízszintes irányban A darab két nagy kristályra különíthető el. (59. ábra)



59. ábra. Kristályhatár a darabban

Mivel a hőmérséklet-gradiens az USKI-ban tovább nem növelhető a kristályosítási sebességet kell csökkenteni.

Alox04 kísérlet

A kísérlet célja: A kristályosítási sebesség csökkentése

- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés 870 °C-ra
- Átolvasztás: fentről lefelé 30mm/h
- Kristályosítás: 1mm/h
- Hűtés

Kiértékelés: A darabot nehéz volt kivenni a formából, bele volt szorulva. A tetején kevés hamu és vastag reveréteg volt található. Kivétel után feltűnő zöld illetve rozsdabarna részek találhatók a darab felületén, amik az energiadisziperz mikroszondás mérések alapján réz-, illetve mangán oxid. A felület nem volt sima.

A darab makroszkopikus képéből kiderül, hogy a 170 órás kísérlet lefolytatásához, illetve ezekkel a paraméterekkel az egykristály gyártására az USKI alkalmatlan. A vákuum nem elég nagy ahhoz, hogy hosszú ideig nagy hőmérsékleten használjuk.

11.1 Az előkísérletek legfontosabb eredményei

Az előkísérletek legfontosabb eredményei a fentiek alapján a következők voltak:

- 10^{-2} mBar-os elővákuum nem elég nagy mértékű ahhoz, hogy a kísérletek során ne keletkezzen hamu, illetve reve.
- A polikristályos előgyártmány felületének simának, minden szennyezőtől, felületi hibától mentesnek kell lennie. A legkisebb hiba is csíráképző helyként szerepel
- Nem szükséges a kristályszelektor alkalmazása Heusler egykristály előállításához. Egy megfelelően kis kúpszögű kúpból kiindulva növeszthető egykristály.
- A darab alulról történő megolvasztása túl sok hibát eredményez, nem alkalmazható.
- Fölösleges a „két zónát előre egy zónát vissza” típusú kristályosítási frontmozgatás.
- A polikristályos előgyártmány öntésének módszerét az előkísérletek során dolgoztam ki, az öntéshez használt kemence kiválasztása és a megfelelő öntőforma kifejlesztése egyaránt ebben a periódusban valósult meg.
- A kristályosító kapszula anyagát és formáját szintén az USKI-ban kísérleteztem ki, az UMC-ben már csak az egykristály előállításához megfelelő kapszulát használtam.

12 Kristályosító tégely kifejlesztése

Ahhoz, hogy a polikristályos előgyártmányokból egykristályt tudjak készíteni szükségem volt kristályosító kapszulákra. Mind a kapszula alakjánál, mind a kapszula anyagánál a legfontosabb szempont, a megvalósíthatóság mellett, az volt, hogy a kapszula alkalmas legyen egykristály növesztésére.

12.1 Öntartó kerámiából készült kristályszelektoros kristályosító kapszula

Az első kapszulák kialakításakor egy, a szakirodalom által ajánlott módszert, alakot valósítottam meg. Ez a módszer az úgynevezett kristályszelektoros módszer.

A kísérletekhez a darabokat előre a kívánt alakúra kellett gyártani. Ez azt jelenti, hogy a talprészt, ahol a kristályosodás, a csírák keletkezése kezdődik, és a darab testét, ami egykristályból fog állni egy kristályszelektor köti össze. A darabokat argon védőgáz alatt vákuum-indukciós kemencében héjhomok formákba öntöttük a Schmeltzmetal Kft.-ben. Az így előállított darabok felületét salétromsavval megtisztítottam a szennyeződésektől (61. ábra), majd a Magyarmet finomöntöde Bt.-ben bevontuk öntartó kerámiával.(60. ábra) [45,46]



60. ábra: Hélykerámia kapszula

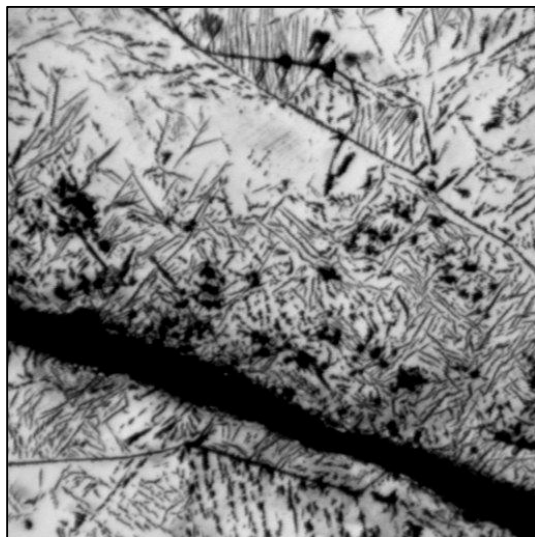


61. ábra: Salétromsavban való maratás után a polikristályos darab

A kísérletek során több probléma is felmerült, amelyekért egyértelműen vagy a kerámia anyaga, vagy a kerámia-forma elkészítésének módja a felelős.

12.1.1 Repedések a darab felületéhez közel

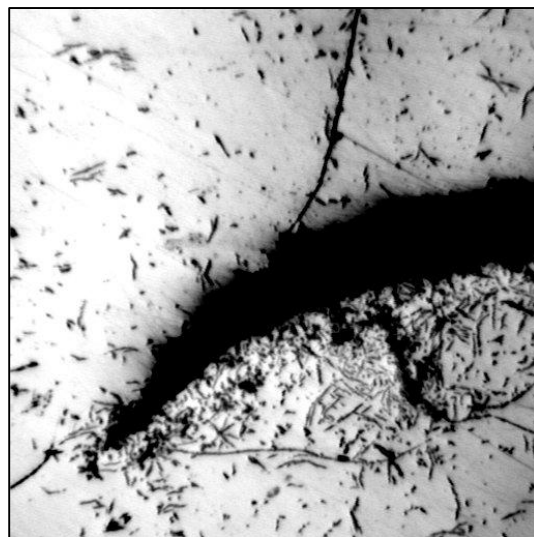
Azért, hogy a hőtágulás miatt a darab szét ne fesszítse, az öntartó kerámia felvitele előtt szükséges a darabok viaszba mártása. A felvitt viasz vastagsága nem állandó a darab felületén, a kívánt méretnél vastagabb, aminek hatására a darab felülete és a kerámia fala között egy, a szükségesnél vastagabb rés keletkezik. A darab felületén eredetileg is található oxid réteg, a magas hőmérsékleten pedig a vákuum ellenére ez a réteg megvastagodik. Ennek az oxid rétegnek jóval magasabb az olvadáspontja, mint a Heusler-ötvözetnek. A megolvadt Heusler körbefolyja az oxid-réteget, így az bekerül a darab belsejébe és a kristályosodás után is ott marad. Ennek a hártvának a hőtágulási-együtthatója nagymértékben eltér a Heusler-ötvözet hőtágulási-együtthatójától, ennek következtében a darabban az oxidhártva mentén repedések keletkeznek, másrészt ez a hártva csíráképző helyként viselkedik és meggátolja az egykristály előállítását. (62. ábra)



62. ábra A darabban található repedés

12.1.2 Oxidhártva a darab belsejében

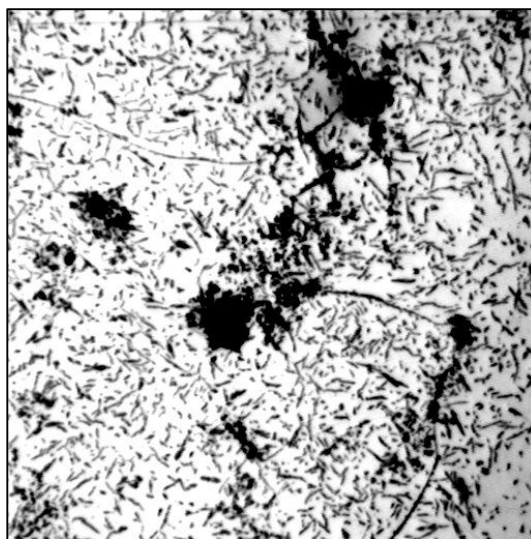
A fentebb említett okokból és módon kialakult oxidhártva nem elég vastag ahhoz, hogy az olvadákoszlop súlyát elbírja, esetleg az öntés során keletkezett belső lunkerek, szívódási üregek a minimális megmunkálás során felszínre kerültek és a levegővel érintkezve gömbháj alakú oxidhártva kialakulását tették lehetővé. (63. ábra) Ezek az oxidhártvák a felülethez közel levőkéhez hasonló effektust produkálnak a darab belsejében, és amíg azok csak a felület közeli tartományokat teszik tönkre, a belső hártvák a darab egészére hatással vannak.



63. ábra Oxidhártva a darab belsejében

12.1.3 Szennyeződések a darab belsejében

Mivel a használt kerámia bizonyos mértékben morzsolódik, apró szemcsék váltak le a belső faláról, amelyek beúsztak a darab belsejébe, valamint a már fent említett módon keletkezett oxidhártyából apró darabok letöredezték. (64. ábra) Ezek mindegyike az olvadékban úszva csíráképző helyként működik, az egykristályos szerkezet kialakítását megakadályozza.



64. ábra Kristályhatárok és szennyeződések

12.2 Öntartó kerámiából készült kúpos kristályosító kapszula

Mivel egyes kísérletek során több kisebb kristály egyesülésével néhány nagyobb keletkezett, kiderült, hogy a szelektoros rész nem feltétlenül szükséges. A kísérleteket elvégeztem azonos formaanyag és kristályosítási paraméterek mellett szelektoros és szelektor nélküli, kúpos formákban is. (65. ábra) A két formában elvégzett kísérletek azonos eredményeket hoztak.

A fénymikroszkópos vizsgálatok során kiderült, hogy a darabok sem a kristállyszelektoros, sem a kúpos öntartó kerámia formában nem egykristályok lettek.



65. ábra Kúpos öntartó kerámia

Ezen kísérletek eredménye az volt, hogy nem szükséges a kristállyszelektor használata, illetve, hogy az öntartó kerámia nem a megfelelő kapszula-anyag.

12.3 Alumínium-oxiddal beszórt kapszulák.

Az eddig leírt kísérletek nyilvánvalóvá tették, hogy más kapszulát kell alkalmaznom az egykristályok előállításához. Olyan kapszulákat terveztem, amelyek alapja grafit, illetve acél volt. Ezeket szórtuk be a Budapesti Műszaki Egyetemen alumínium-oxid porral. Alkalmunk volt párhuzamosan kísérletezni, az akkor még a NASA-nál lévő UMC-ben (Szőke János által végzett kísérletek) és az USKI-ban. Mivel az előző kísérletekből kiderült, hogy nem szükséges kristályszelektort használnom, ilyen kapszulákat csak szelektor nélkül készítettem, amelyek az egyik végükön kúposak vagy gúlában végződők voltak. A beszórást csak úgy lehetett megvalósítani, ha a formákat két összeilleszthető félből állítottam össze. A kísérletek során egy esetben sikerült egykristályt előállítani az UMC-ben. A többi esetben valamilyen probléma mindig felmerült. A legjellemzőbb hiba az volt, hogy az összeillesztésnél újabb kristályok keletkeztek a sarkok csíráképző tulajdonsága miatt. Rosszabb esetben a sarkokon a felvitt alumínium-oxid réteg meg is sérült, aminek következtében a Heusler-ötvözet beoldotta a forma anyagát, megváltoztatva így az összetételt, esetleg a két formafelet össze is növesztette.

12.4 Alumínium-oxid kapszulák

A. sikeres kísérlet és a szakirodalom valószínűsítette, hogy az alumínium oxid megfelelő formaanyag lehet. Ezért készítettem alumínium-oxidból kúpos végű kapszulákat. (66. ábra)

Ezzel a formával végeztem kísérleteket az USKI-ban és az időközben a Miskolci Egyetemre szállított UMC-ben is. Az USKI-ban kettő, illetve három kristályból álló darabok nőttek. A darabok felülete tiszta, sima volt, szennyeződések nem voltak benne találhatóak. Mivel az UMC-ben elvégzett kísérletek mindegyike során egykristály keletkezett, az USKI-ban végzett sikertelen kísérletek oka nem a forma anyagában, hanem a kemence tulajdonságaiban keresendő: nem képes az egykristály előállításához szükséges kristályosítási paraméterek biztosítására.

Végeztem kísérleteket olyan alumínium-oxid kapszulákkal is, amelyek szintén kúpban kezdődtek, de nem hengeres, hanem négyzet keresztmetszetű testben folytatódtak tovább. Ezt a formát néhány kísérlet után elvetettem, mert a



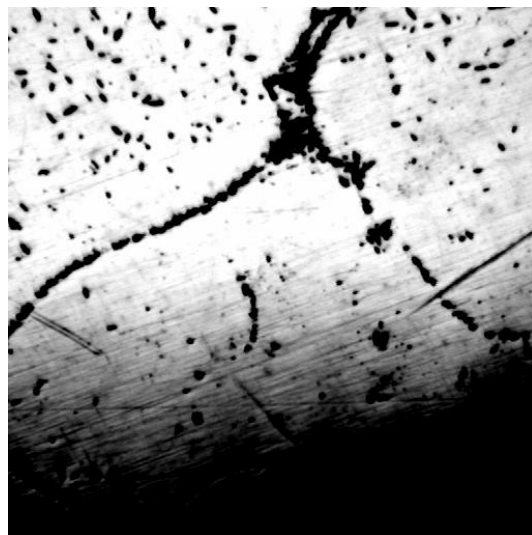
56. ábra. Alumínium-oxid kapszula

kísérletre semmilyen pozitív hatása nem volt a hengeres kapszulához képest, hátránya viszont volt. Orientálás után kisebb szeleteket vagy magkristályokat lehet belőle kivágni, mint egy hasonló méretű hengeres darabból.

12.4.1 Az alumínium-oxid kapszulák többszöri felhasználása

Végeztem kísérleteket annak kiderítése érdekében, hogy az alumínium-oxid kapszulák felhasználhatók-e több egymást követő kísérletben.

Először tisztítás nélkül, egy már előzőleg használt kapszulát használtam. Az így készített darab egy nagy kristályból, és a felületen sok apró krisztallitból állt. (67. ábra) Ezek méretére jellemző, hogy a darab felületén 0,5mm vastagságú zónát sem érik el, vagyis ezek esztergálással könnyen eltávolíthatók. Azonban a kristályosodás folyamatát kiszámíthatatlanná, nehezen befolyásolhatóvá teszik, ezért a keletkezésüket meg kell akadályozni.



67. ábra apró krisztallitok a darab szélén

Keletkezésük oka, hogy a darab hűlés közben eltávolodik a forma falától és az így keletkezett résben a magas hőmérséklet miatt a darabot alkotó fémek gőzei találhatók. Ezek a gőzök a hűlés során a kerámia falán kicsapódnak, ott egy nagyon vékony és egyenetlen fémréteget képeznek. Ez a réteg nem csak az egyenetlenségek, hanem a felületi tulajdonságok megváltozása miatt is a következő felhasználáskor csíráképző helyként működik. Ezt a két kísérlet között salétromsavval eltávolítható. [47, 48] Az így megtisztított kapszulával ismét az új, még használatlan kapszulában keletkező egykristállyal megegyezőt állítottam elő.

13 Orientálatlan egykristály növesztése

Ahhoz, hogy a végső célomnak megfelelően orientált egykristályt tudjak növeszteni, olyan orientált magkristályra volt szükségem, amelynek az egyik 5*20mm-es oldala párhuzamos az (111) Miller indexű síkkal. Ezen magkristályok előállításához egykristályokat kellett növesztenem anélkül, hogy a kristályok orientációját befolyásolni tudtam volna. Ezekből az egykristályokból orientálás után ki tudtam vágni a megfelelő magkristályokat.

Az előkísérletek elvégzése után, az UMC-ben, a kifejlesztett alumínium-oxid kapszulákban történtek a kristályosítások. Ezeknek a kristályosításoknak a szerepe a magkristályként alkalmazható, megfelelő mozaicitással rendelkező egykristályok előállítása volt. Ennek megfelelően a különböző esetekben a kristályosítás paraméterei: a kristályfront mozgás sebessége és a hőmérséklet-gradiens változtak. A kísérleti összeállítás és a kristályosítás menete minden esetben megegyezett a fent leírtakkal. A kísérletek közben a következő kristályosítási paramétereket alkalmaztam (4. táblázat):

Kísérlet jelölése	Kristályfront sebessége [mm/h]	Beállított Hőmérséklet gradiens [K/mm]
h030228	3	6
h030311	3	8
h030527	2	4
h030617	2	4
h040414	2	4
h040505	2	2

4. Táblázat. A kísérleti paraméterek az orientálatlan kristálynövesztési kísérletekben



68. ábra A darab a kristályosítás után

A kristályosítás végén a kemence teljes lehűlése és fellevegőzése után minden kísérlet befejezettnek tekinthető. A darabokat a kivétel után (68. ábra) fénymikroszkóppal és neutrondiffrakciós vizsgálatokkal vizsgáltam és minősítettem, Rtg-Laue méréssel orientáltam.

A kísérleteket és a hozzájuk kapcsolódó adatokat az alábbi jegyzőkönyv egy példán keresztül szemlélteti, a többi kísérlet adatait és kiértékelésének vázlatát a 2. melléklet tartalmazza.

H030228 kísérlet:

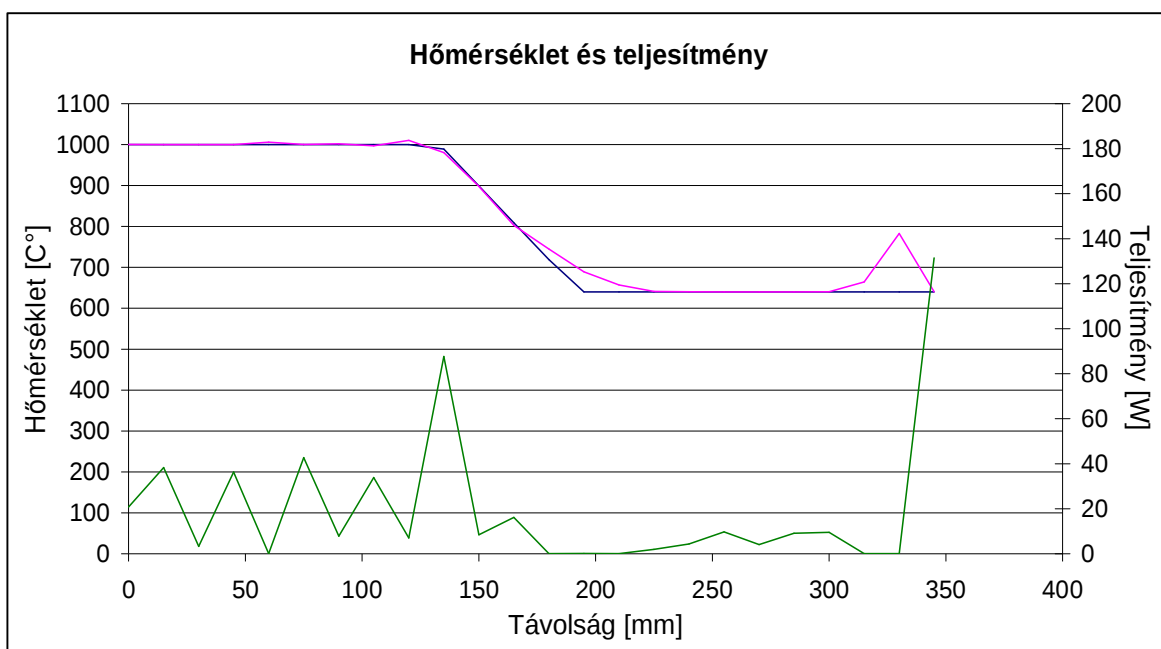
- Kapszula: hengeres, a vége kúpos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 3 mm/h-val
- Hűtés

A kísérlet adatlapja

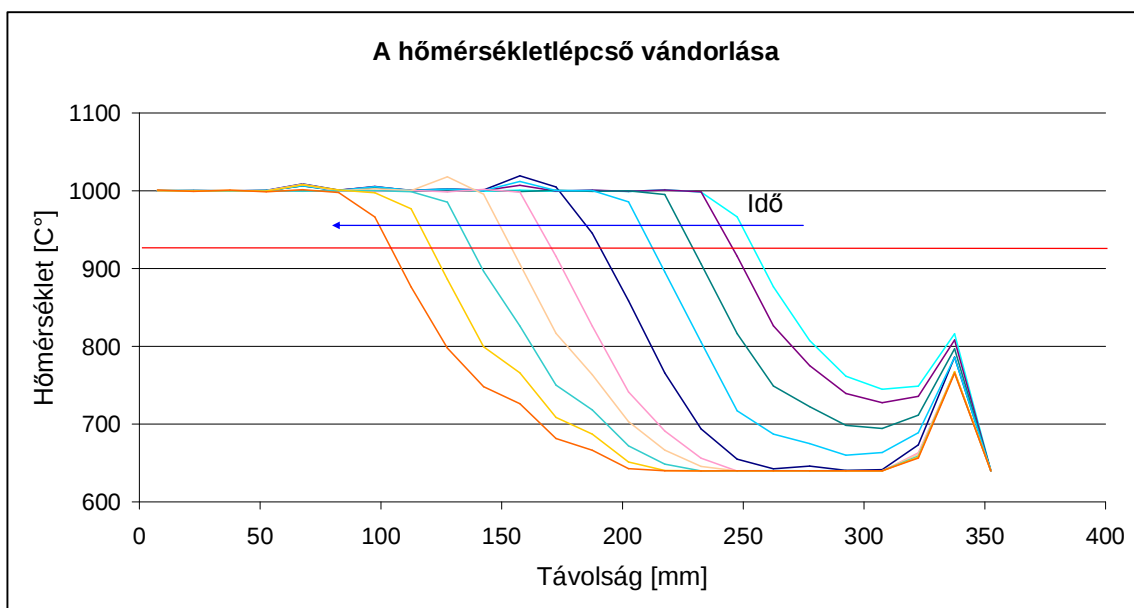
General properties	
Apparatus: UMC	Date: 28.02.2003
Operator: Zsolt Veres	Duration: 73h
Data file name: h030228	Code:
Setpoint properties	
File name: h030228	Type:
Step 1	Heat 200K/h 640 °C all zones
	Heat 200K/h 730 °C 1-11 zones
	Heat 200K/h 820 °C 1-10 zones
	Heat 200 K/h 910 °C 1-9 zones
	Heat 200 K/h 1000 °C 1-8 zones
Step 2	Translation melth 20mm/h 135mm
Step 3	Hold 10800s
Step 4	Translation growth 3 mm/h 165mm
Step 5	Cool 200H/h 0 °C

A kristályosító berendezés termikus viselkedése

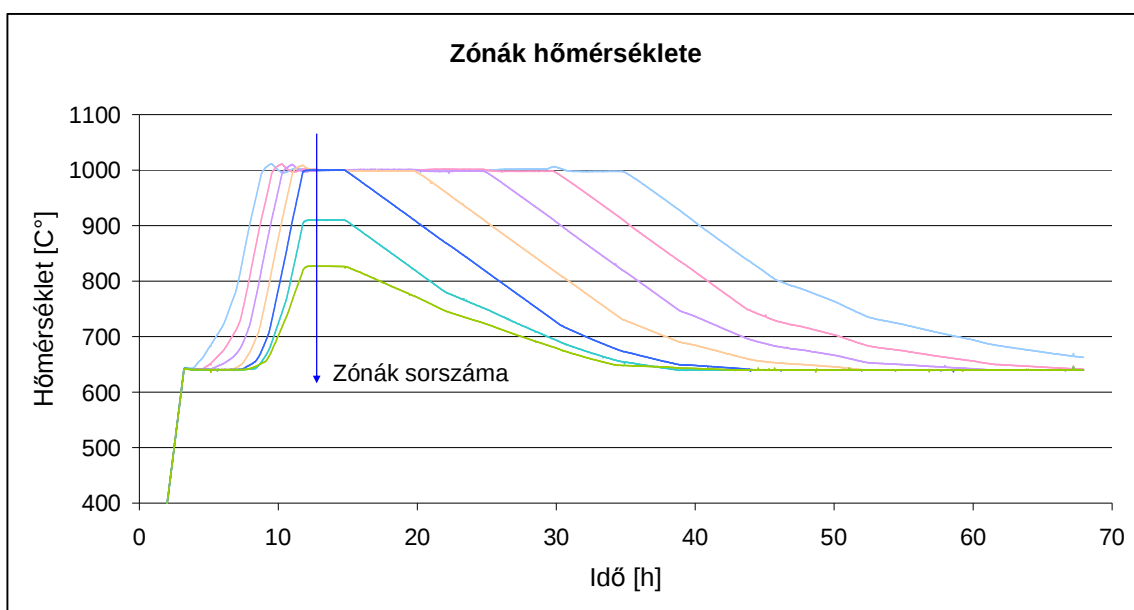
A kísérletek értékeléséhez minden esetben fontos a berendezés termikus viselkedésének ellenőrzése. Sikeres kísérlet esetén a reprodukálhatóság és az ellenőrizhetőség miatt, sikertelen kísérlet esetén pedig a hiba keresésében nyújt segítséget. A szükséges adatok rögzítése és kiértékelése a fentebb leírt módon történt.



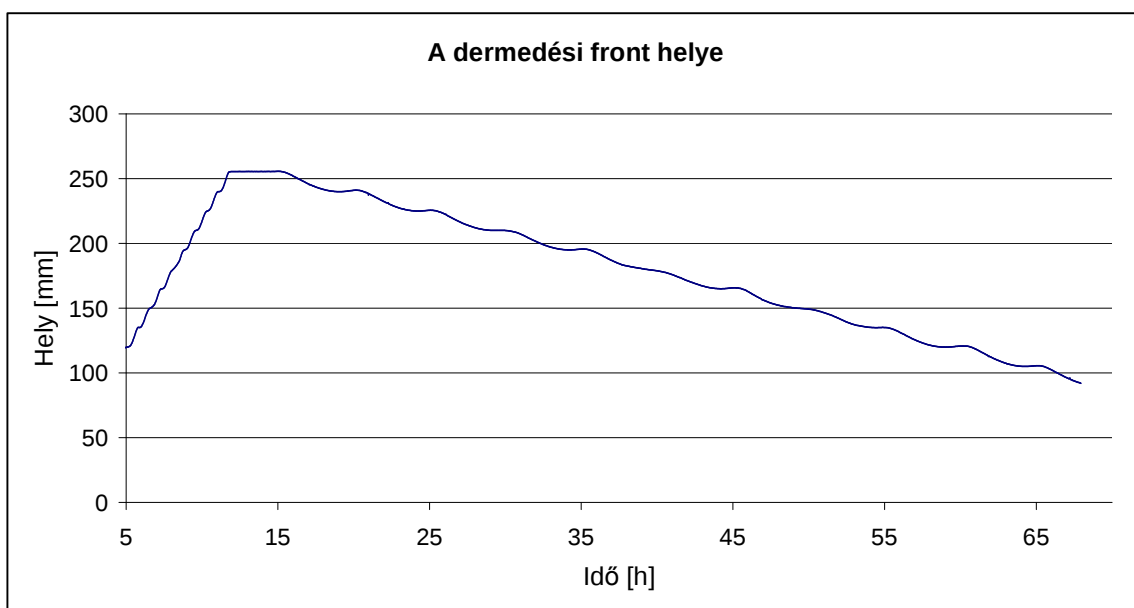
69. ábra. A beállított (kék) és a tényleges (lila) hőmérsékleteloszlás a kemence terében, valamint az egyes fűtőzónák által leadott villamos teljesítmény (zöld)



70. ábra. A hőmérséklet lépcső vándorlása



71. ábra. Az egyes zónák hőmérséklete az idő függvényében



72. ábra. A dermedési front helye az idő függvényében

A 69-72 ábrák részletes bemutatása a 10.7 „A berendezés termikus viselkedése” című fejezetben szerepel.

Megjegyzendő a 72 ábrával kapcsolatban, hogy a dermedési front a hűlési szakaszban azért hullámos, mert a berendezés és a hozzá tartozó szoftver felépítése olyan volt, hogy minden fűtőtekercset csak a hozzárendelt, közvetlen mellette lévő termoelem alapján szabályozta. Emellett a termoelem két fűtőtekercs között pontosan félúton helyezkedik el. Ezeknek az eredménye, hogy az adott termoelem által nem szabályozott, de vele szomszédos

fűtőtekercs által leadott hő megzavarja a szabályozásban. Mivel a processzor a szabályozást sorban végzi a fűtőtekercseken, minden második tekercshez rendelt termoelem ugyan olyan hőmérsékletű, mint az egyel korábbi, vagyis, ha a két zónán beállított hőmérsékletek között nincs jelentős különbség, a második termoelem mérése alapján a számítógép azt az utasítást fogja adni, hogy a második tekercsnek nem kell fűtenie. Ennek az eredménye a görbe hullámos lefutása. A görbe a kemence falán mért hőmérsékletek alapján készült. A darab belsejében a folyamat kis sebessége és az anyag jó hővezető képessége miatt a kristályosodás folyamatosan és egyenletesen zajlik. (Az ADMATIS Kft. ezt a problémát kiküszöbölte azzal, hogy a termoelemeket nem pont középre tette két fűtőtekercs között, valamint a fűtőprogram se csak egy termoelem által szolgáltatott adatok alapján szabályoz.)

A kísérlet adatlapja és a kísérlet felsorolásszerű bemutatása tartalmaz minden paramétert, ami változtatható és ami a lejátszódó folyamatok és az eredmények megértéséhez szükséges.

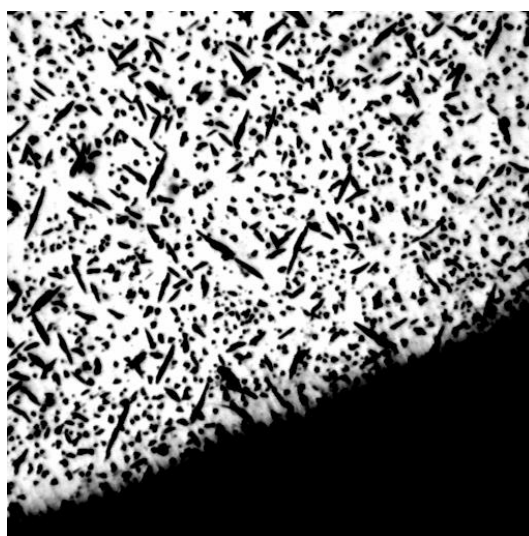
Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

A kivett darab egy kristályból áll. Ezt bizonyítják a fénymikroszkópos és a neutron-diffrakciós vizsgálatok. A darab mozaicitása a hossz mentén a növekedés irányában növekszik. Értéke $1,5-2,5^\circ$.



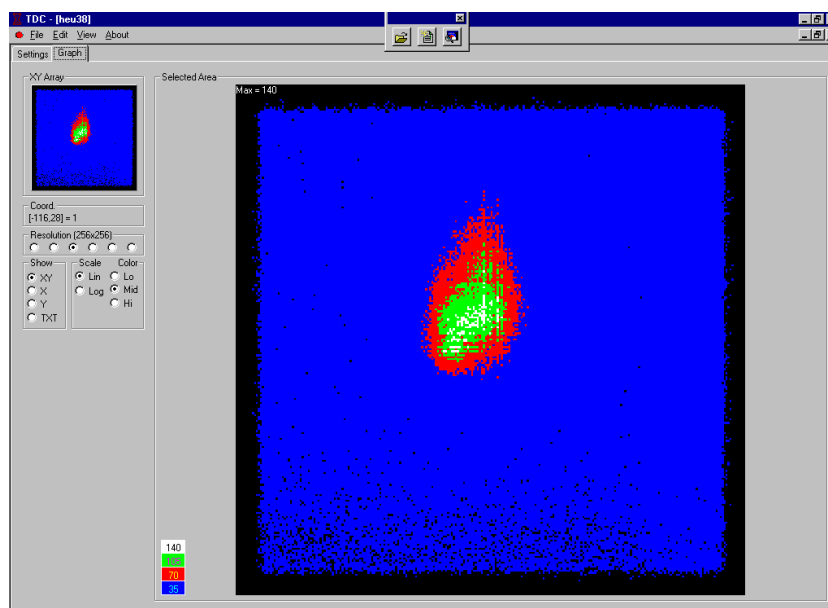
73. ábra A darab közepe



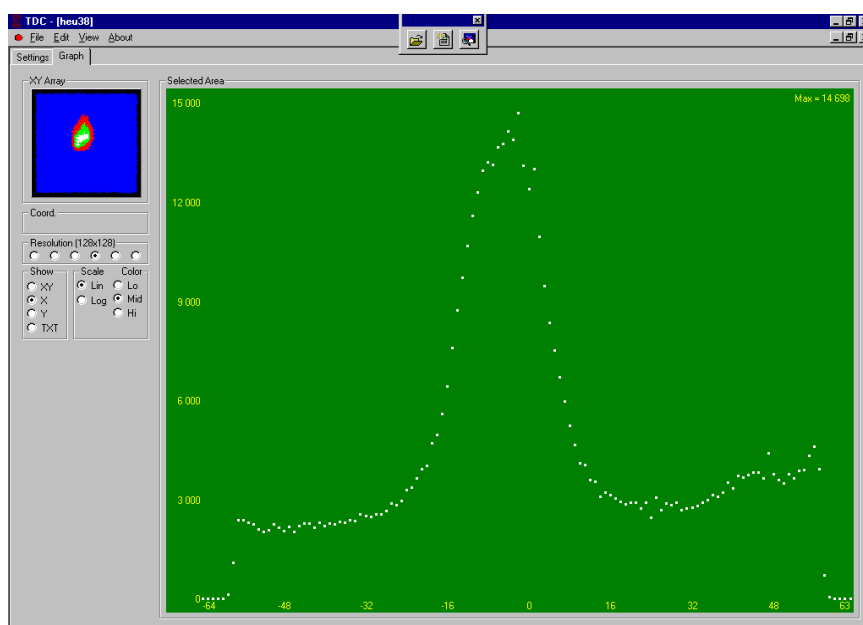
74. ábra A darab széle

A fénymikroszkópos felvételeken (73., 74. Ábra) a kristály egy-egy jellegzetes része látható, ha lenne kristályhatár akkor az szerepelne a felvételeken, különös tekintettel azokra helyekre, amelyek az új kristály keletkezésében, alakulásában szerepet játszanak.

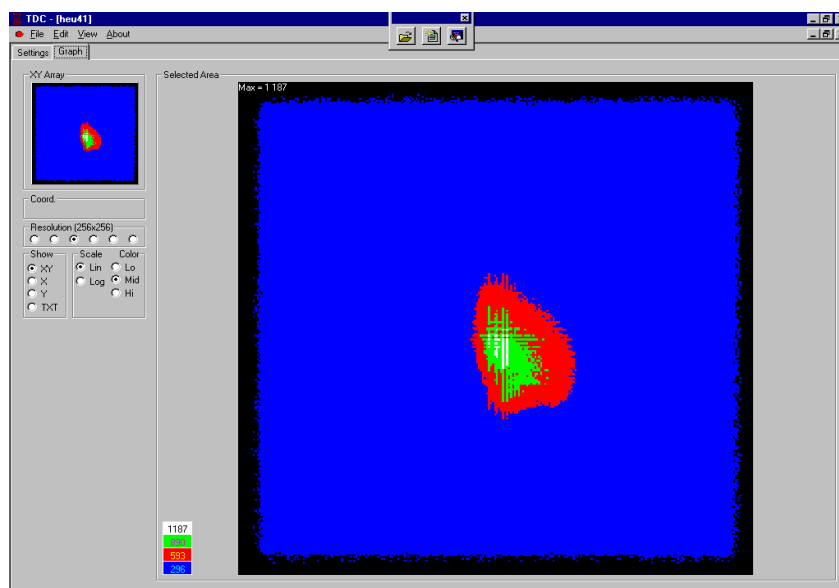
A darabokat neutrondiffrakciós módszerrel vizsgáltuk. Ezzel meggyőződhattünk arról, hogy a darab valóban csak egy kristályból áll-e, illetve meg tudtuk mondani a mozaicitását a kristálynak. A mérések a KFKI SzFKI-ban készültek, a neutrondiffrakciós vizsgálatok című fejezetben leírtak szerint a darab több helyén. (75-78. ábra)



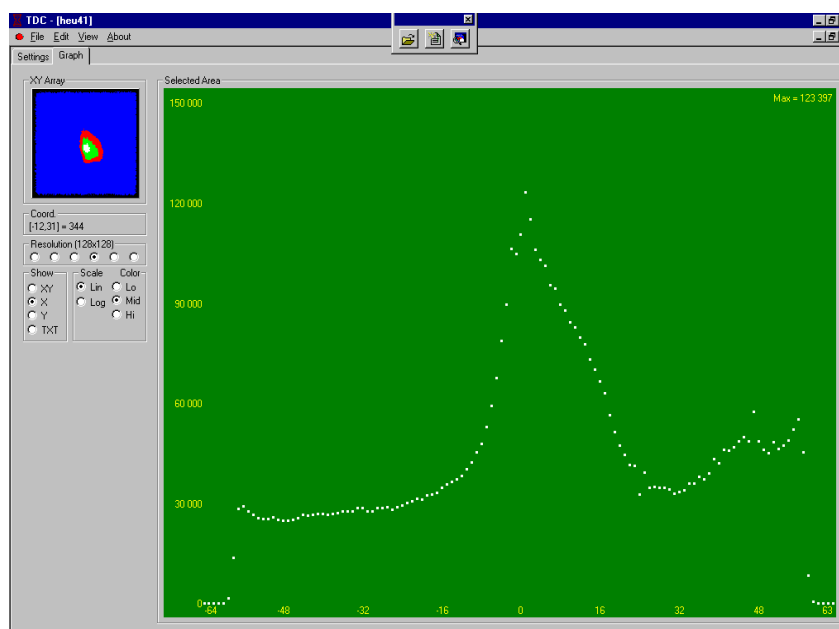
75. ábra Kétdimenziós neutronszerzési kép a darab csúcsánál



76. ábra Intenzitás-eloszlás a darab csúcsánál



77. ábra Kétdimenziós neutronszórási kép a darab végénél



78. ábra Intenzitás-eloszlás a darab végénél

Az összes elkészült darabot a fent ismertetett módszerekkel vizsgáltam, ezeknek az eredményei a következők lettek:

13.1 A fénymikroszkópos vizsgálatok eredményei

Az UMC-ben végzett kísérletek mindegyike egykristályt eredményezett. Olyan esetben keletkezett csak többkristályos darab, amikor a kísérlet valamilyen műszaki probléma (áramkimaradás, vízkimaradás, tökéletlen vákuum, adatgyűjtő meghibásodás) miatt félbeszakadt. A darab alsó része ezekben az esetekben is egy kristályból állt, addig a pontig,

ahol a kristályosító berendezés le nem állt és a darab teljes hosszában viszonylag gyorsan le nem hűlt.

13.2 A neutrodiffrakciós vizsgálatok eredménye

A neutrodiffrakciós vizsgálatok minden esetben alátámasztották a fénymikroszkópos vizsgálatok eredményeit. Vagyis a fénymikroszkópon egykristálynak látott darab valóban egykristály volt.

A neutrodiffrakciós vizsgálatok azon túl, hogy megmutatták, hogy egy darab egykristály-e, a kristályok minősítésére is alkalmasok voltak. A fentebb vázolt módon az intenzitás-eloszlásból, a mérés geometriájából (detektor-darab távolság, detektor mérete, felbontása) és a beérkező nyaláb divergenciájából ki lehet számolni a kristály mozaicitását.

A mozaicitás megmutatja, hogy egy kristály adott síksorozathoz tartozó síkjai milyen mértékben térnek el a párhuzamostól. Ha egy kristály mozaicitása 0, akkor a síkok tökéletesen párhuzamosak. Egy monokromátor kristály esetében ez nem szerencsés, ugyanis annyira kevés neutronot reflektál, hogy a nyaláb mérésre alkalmatlan lesz. Ha a kristály mozaicitása túl nagy, akkor nem kívánt energiájú neutronokat is reflektál.

Heusler monokromátor esetén a kívánt mozaicitás $0,25-1,5^\circ$ között lehet. Sem ez alatt, sem e fölött nem alkalmas a kristály monokromátornak. Megjegyzendő, hogy létezik módszer a mozaicitás kvázi növelésére. A kristályt a kívánt mértékben meg kell hajlítani, és így a reflektált energiatartományt lehet növelni.

Azon darabok esetében, ahol az eredmény 2-3 kristályból álló darab volt, a kristályok mozaicitása $0,3-0,5^\circ$ volt.

Az egykristályok mozaicitása a kristályosítási paraméterek függvényében a következőképpen alakult:

$$G_{\text{fal}} = 8 \text{ K/mm}; G_{\text{darab}} = 1,45: v = 3 \text{ mm/h} \quad \Delta\Theta = 1,6^\circ - 2,9^\circ$$

$$G_{\text{fal}} = 6 \text{ K/mm}; G_{\text{darab}} = 1,35: v = 3 \text{ mm/h} \quad \Delta\Theta = 1,5^\circ - 2,5^\circ$$

$$G_{\text{fal}} = 4 \text{ K/mm}; G_{\text{darab}} = 1,0: v = 2 \text{ mm/h} \quad \Delta\Theta = 1,2^\circ - 1,9^\circ$$

$$G_{\text{fal}} = 2 \text{ K/mm}; G_{\text{darab}} = 0,4: v = 2 \text{ mm/h} \quad \Delta\Theta = 0,9^\circ - 1,3^\circ$$

Ahol G_{fal} a kemence falán mért hőmérsékletgradiens, G_{darab} a kristályosító kapszula falán mért hőmérséklet-gradiens, $\Delta\Theta$ a kristály mozaicitása.

A mozaicitás a darabban nem állandó. A darab aljától, vagyis a kristályosodás kezdetétől felfelé nő. Megállapítható továbbá, hogy állandó frontmozgatási sebesség mellett a mozaicitás a kialakult hőmérsékletgradiens növekedésével nő.

A mérésekből megállapítható, hogy a szükséges kristályminőség eléréséhez a 2 mm/h kristályosítási sebesség esetén a beállított hőmérséklet-gradiensnek kisebbnek kell lennie az adott berendezésen, mint 4 K/mm. Ez a darabban ~1 K/mm-es gradiens kialakulását jelenti. Az USKI-ban végzett előkísérletek során a beállított hőmérséklet-gradienssel nem volt nagyobb, mint 2 K/mm. Abban a berendezésben nem készültek a valós gradiens mérésére irányuló kísérletek, így a két mérést közvetlenül nem szabad összehasonlítani. Az mindenesetre látszik, hogy a megfelelő minőségű egykristályok előállításához 1 K/mm körül kell tartani a hőmérséklet-gradienst a darabban.

13.3 A röntgen-Laue mérések eredménye

A röntgen-Laue méréseket olyan egykristályokon végeztem el, amelyek alkalmasnak bizonyultak monokromátor kristálynak. Vagyis a mozaicitásuk 0,5-1,5 között volt.

A mérések eredménye változó volt. Nem volt olyan irány, ami nagyobb valószínűséggel fordult volna elő a mérések során. Mivel a neutronnyaláb monokromatizálásához az {111} síksorozatra van szükség, igyekeztem olyan kristályokat találni, ahol ez a síksorozat a lehető legkisebb szöget zárja be a kristálynövekedés irányával. Erre azért van szükség, hogy a lehető legtöbb megfelelő méretű magkristályt tudjam kivágni a kristályból. Végül a fent bemutatott kristályt választottam, ahol ez a szög 26,8°-os.

Több olyan darab is volt, amit nem sikerült orientálni. A mérés során kevés, nagy és nehezen körülhatárolható folt keletkezett függetlenül a mérés paramétereitől. Még nem sikerült kideríteni, hogy miért. Az ELTE Általános fizika tanszékén, ahol az első méréseket végeztük és akik segítettek a miskolci berendezés megépítésében, sem tudták orientálni az adott kristályt.

14 Magra növesztés

14.1 Magkristály kivágása

Az előzőekben bemutatott módon orientált egykristályokból, magkristályt kellett készítenem ahhoz, hogy orientált egykristályt tudjak előállítani. A magkristályra történő kristályosításhoz használatos kristályosító kapszulát úgy terveztem, hogy egy 5mm*5mm*20mm-es magkristály helyezhető az aljába, úgy, hogy az 5mm*5mm-es lapja merőleges legyen a növekedés irányára.

A megfelelő méretű, alakú darabot pontosan az orientálás szerint kivágni mechanikai úton nehézkes, ezért szikraforgácsolással vágtuk ki.

A magkristályokat a Fémalk-ban készítették CNC programozású huzal szikraforgácsolóval. A magkristályokat a szükségesnél kissé nagyobb méretűre készítettem, hogy a későbbiekben a jobb illeszkedés és felületi minőség javítása miatt csiszolni tudjam anélkül, hogy a csiszolás hatására a mag mérete túlságosan lecsökkenne..



79. ábra magkristály a szikraforgácsolás után

Az előzőleg orientált egykristályból először 5mm vastag lemezeket vágunk ki úgy, hogy a lemez nagyobbik oldala párhuzamos legyen az $\{111\}$ síksorozattal. Ezután a lemezeket 5mm széles darabokra vágtuk. (79. ábra) Az 5*5mm-es oldalon köszörüléssel állítottam elő sík felületet.

A szikraforgácsoló berendezés tulajdonságai és a nyers egykristály méretei miatt összesen 4db magkristályt készítettünk, amelyek megfelelő kezelések után akár többször is felhasználhatók.

A magkristályok orientációját a kivágás után Rtg-Laue módszerrel ellenőriztem és megfelelőnek találtam.

14.2 Alumínium-oxid kapszula a magra növesztéshez

Az alumínium-oxid megfelelő kapszula alapanyagnak bizonyult az eddigi kísérletek során, az új kapszulákat is ebből terveztem és készítettem el. (80. ábra)

A már előbb említett 5*5*20mm-es magkristály befogadásra kell képesnek lennie az új kapszulának. A magkristályt a kapszula aljába helyezem, és a fölé helyezett polikristályos darabbal együtt megolvasztom, de csak a mag felső felét. A mag alsó fele kristályos állapotban marad, és erre nő rá az egykristály. Mivel a magkristályt úgy vágattam ki, hogy az

egyik 5*20mm-es oldala párhuzamos legyen az {111} síksorozattal, az egész kristály ezzel a síksorozattal párhuzamos irányban fog növekedni.

A magkristálynak kialakított rész fölött a kapszula a már bevált kúpos módon, majd hengerben folytatódik.

14.3 Kísérletek

A kísérletek során alkalmazott UMC berendezés ugyanaz volt, mint az orientálatlan növesztések esetében, azzal a különbséggel, hogy a kapszulát úgy helyeztem el a kemencében, hogy az egyik fűtőzóna pontosan a magkristály felénél helyezkedjen el. Erre ezért volt szükség, hogy az átolvasztás biztosan csak a mag feléig tartson és ne tovább. Így az UMC-t egyszerűen és pontosan tudtam programozni.



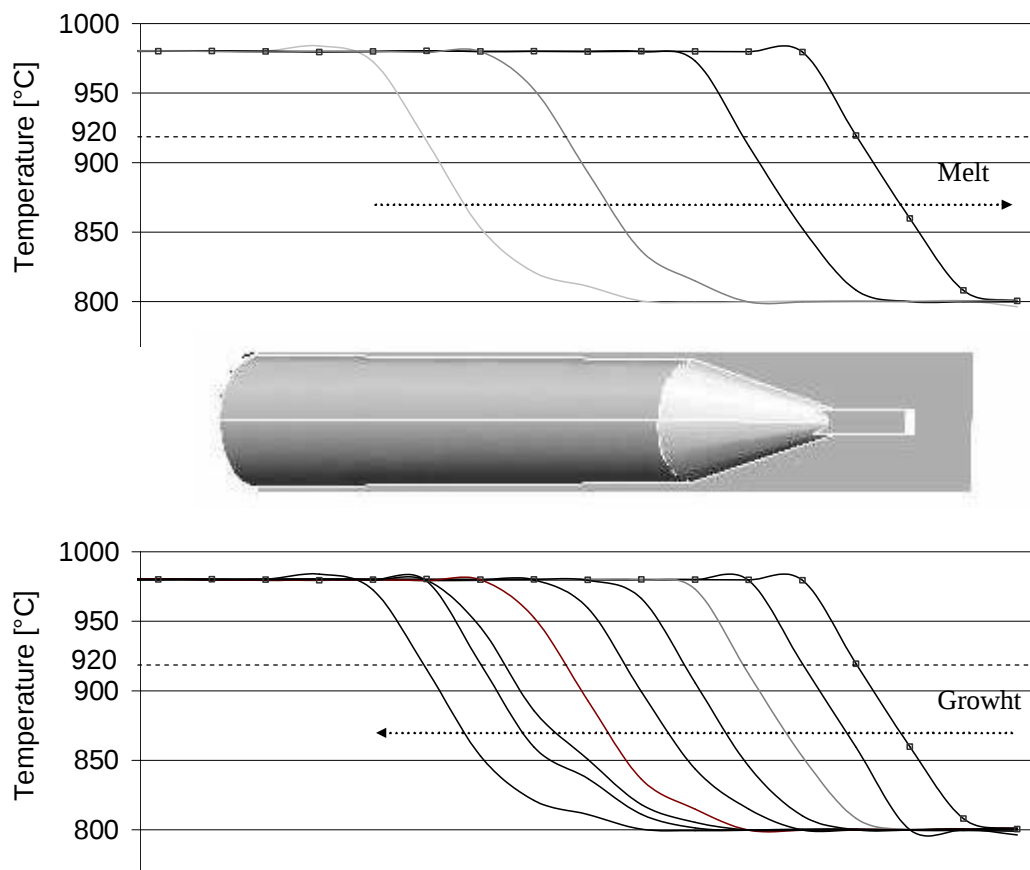
80. ábra Kapszula magra növesztéshez

Ahhoz, hogy az általam kívánt orientációval nőjön egy kristály, meg kell neki „mutatni” a kívánt orientációt. A magkristály ezt a feladatot szolgálja. Ha az olvadék közvetlenül érintkezik a magkristállyal, nem fog új csíra keletkezni, hanem a már meglévő, megfelelően orientált kristályra, a magra fog rá nőni. Az olvadék és a magkristály maradéktalan érintkezését úgy a legegyszerűbb megvalósítani, ha a polikristályos darabon kívül a magkristály egy részét is megolvasztom. Így a magon lévő esetleges módosult/sérült réteg megolvad, az olvadék a mag olyan részével érintkezik közvetlenül, ami eddig a mag belsejében volt található.

Fontos volt, hogy a magkristály jól illeszkedjen a kapszula falához, mert ha az olvadék be tud folyni a kapszula és a mag közé, akkor ott új csírat létrehozva megszilárdul. Ez a csíra aztán tovább növekedhet a darab teljes hosszában.

A 81. ábra felső részén az olvasztás menetét szemléltetem. Fontos, hogy a hőmérséklet-lépcső mozgása a megfelelő helyen álljon meg, hisz a mának csak egy része olvadhat meg. Ellenkező esetben vagy több kristály keletkezhethet, vagy a keletkező egykristály orientációja nem befolyásolható. Ehhez úgy kellett megállítani a hőmérsékletlépcsőt, hogy a szolidusz hőmérséklet helye a mag felénél legyen.

A 81. ábra alsó részén a kristályosítás folyamata figyelhető meg.



81. ábra A darab olvasztása és kristályosítása

A kristályosítások menetét és az elvégzett vizsgálatokat a következő jegyzőkönyv szemlélteti.

Hm051219

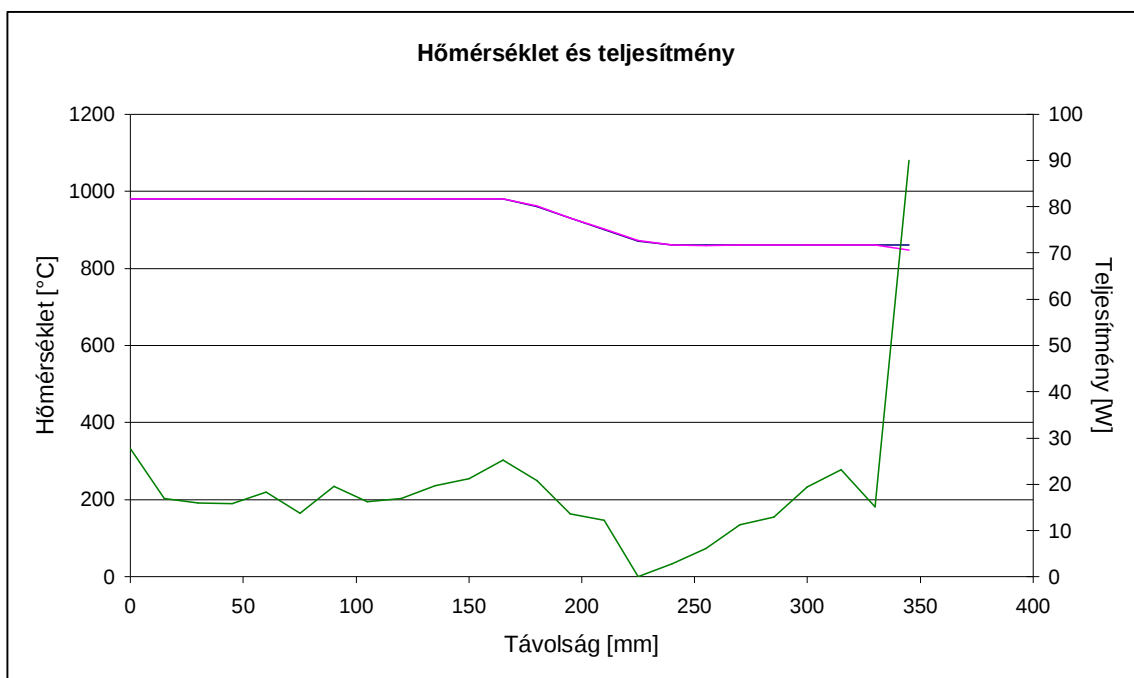
- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, jól illeszkedik a kapszulába
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

Kísérleti adatlap

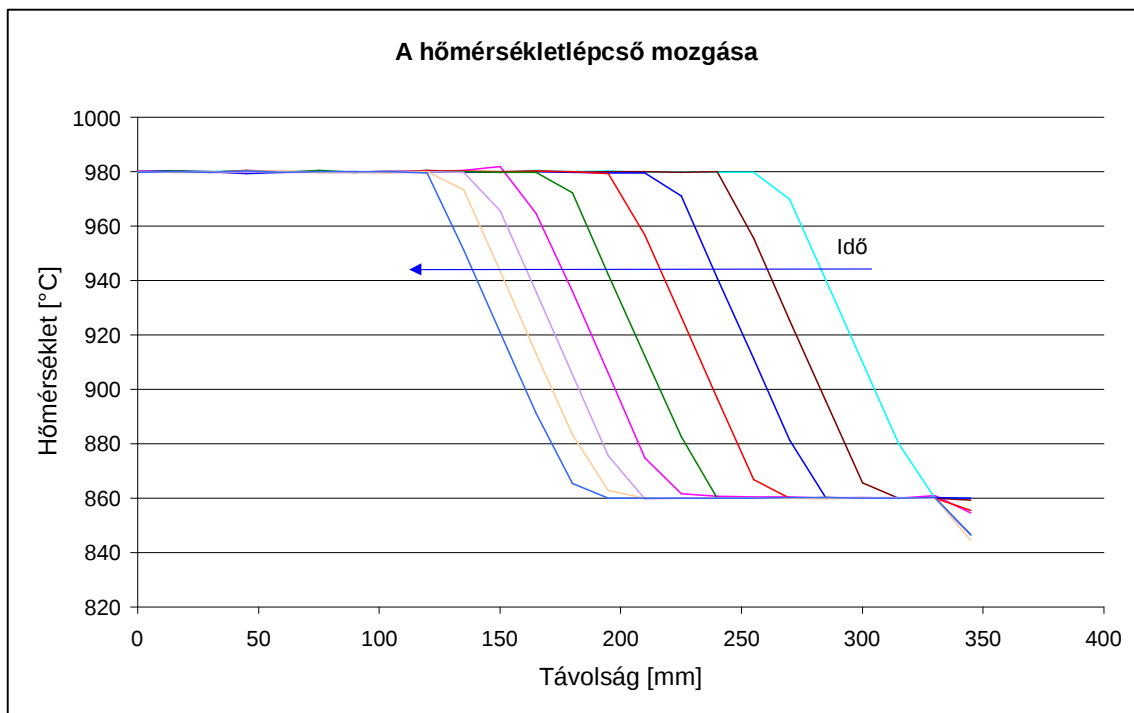
1.1.1. General properties	
Apparatus: UMC-HT	Date: 2005.12.19
Operator: Szirovicza Péter	Duration: 99h 42min
Data file name: hm051219.dat	Code:
1.1.2. Sample properties	
Code: Heusler	Composition: Heusler
Dimensions: 150*25 mm	Weight:
1.1.3. Setpoint properties	
File name: hm050718.dat	Type: data
Step 1	Heat up with 100K/h to 860 °C
Step 2	Making the profile from 9. to 13. zone
Step 4	Moving profile (melt) to zone 23. with 20 mm/h
Step 5	Hold temperature for 3 hours
Step 6	Moving profile (growth) with 2 mm/h through 150 mm
Step 7	Cool down with 200K/h

Notes:

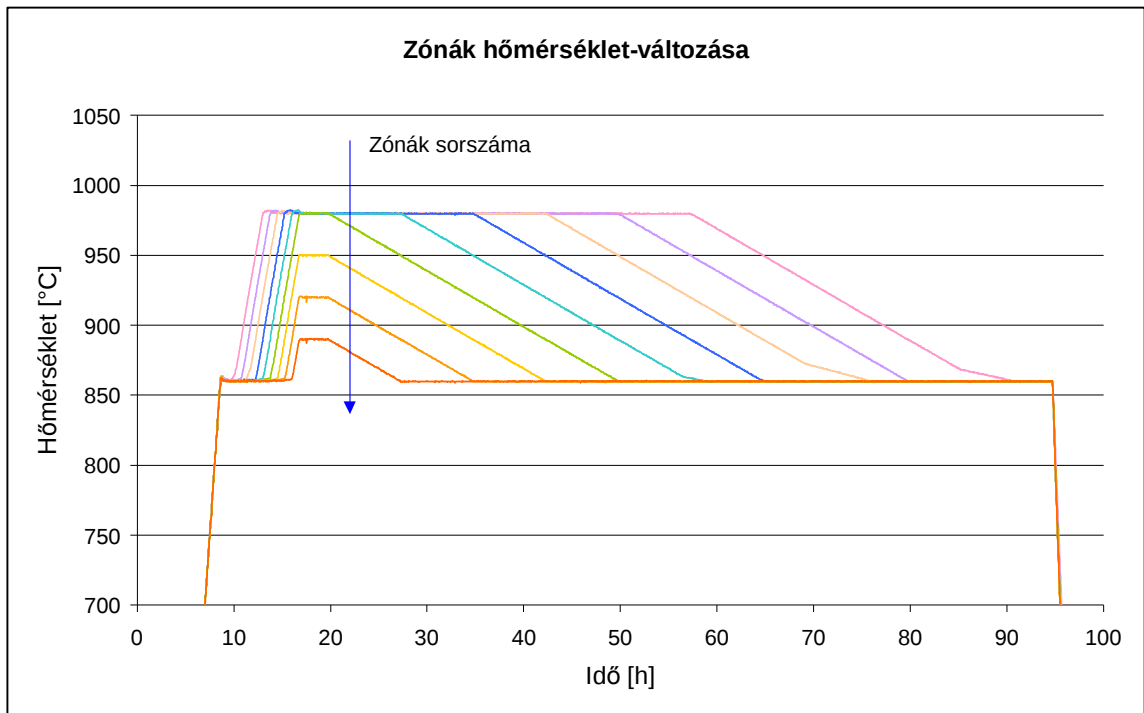
Step 3: the gradient is 2 K/mm; zone 9. at 980 °C, zone 13 at 860 °C



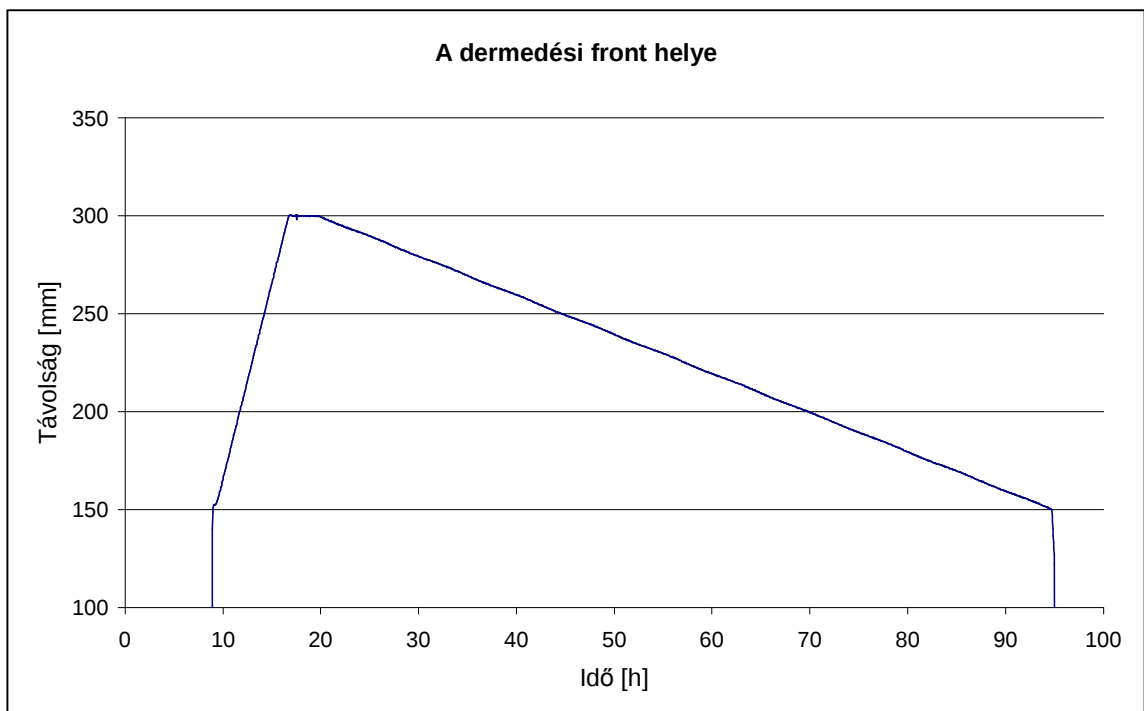
82. ábra. A hőmérséklet eloszlása a kemence terében, valamint a fűtőzónák által leadott teljesítmények.



83. ábra. A hőmérsékletlépcső előrehaladása a kemencében.



84. ábra. Az egyes zónák hőmérsékletének lefutás



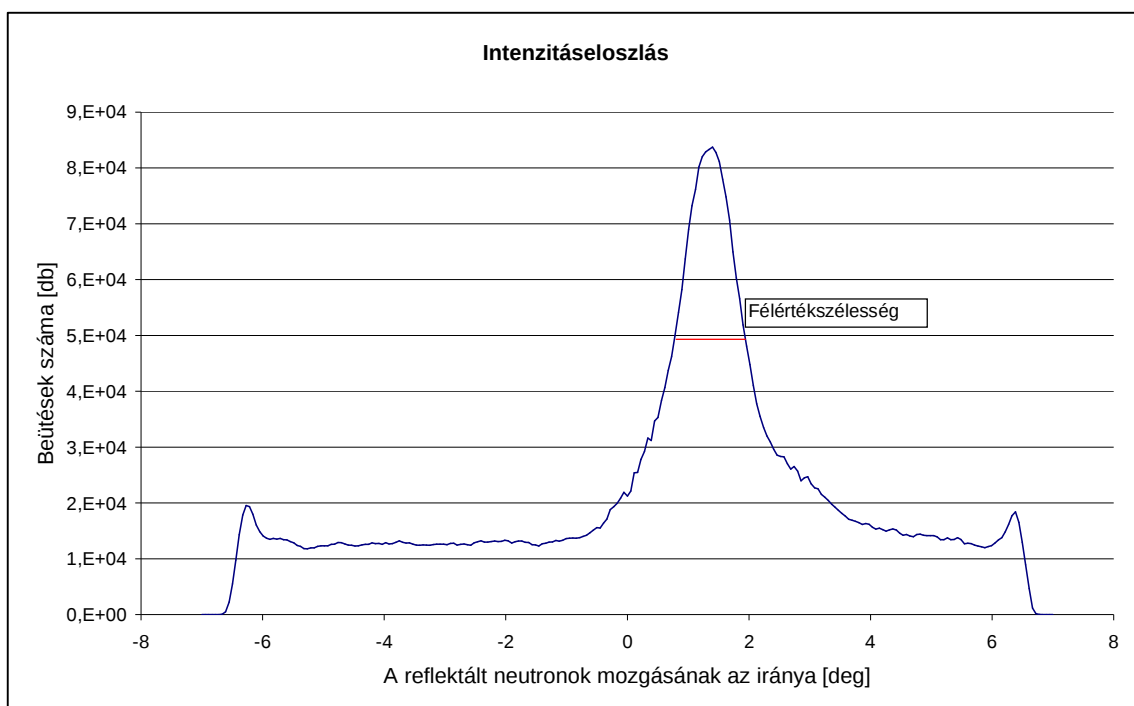
85. ábra A dermedési front helye a kemencében az idő függvényében

A 82-85 ábrák részletes bemutatása a 10.7 „A berendezés termikus viselkedése” című fejezetben szerepel. Az ábrákon látszik, hogy a berendezés szabályozásából adódó ciklikus hiba megszűnt a berendezés és a szabályozó szoftver fentebb tárgyalt módosítása után.

Kiértékelés

A darab teljes hosszában átolvadt, a magnak több mint a fele megolvadt, a kapszula alján 4-5mm hosszan maradt szilárd rész.

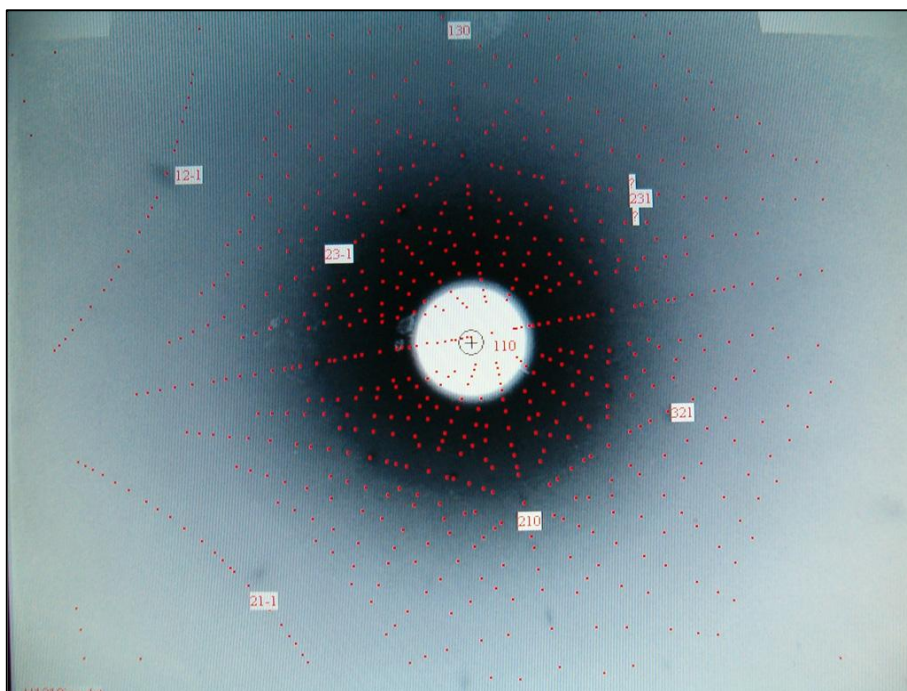
A kristály egykristály. A neutroddiffrakciós vizsgálatok szerint (86. ábra*) a mozaicitás $0,8^\circ$. Mind a neutroddiffrakciós kísérletek, mind a Röntgen-Laue vizsgálatok igazolták, hogy a kristály orientációja a mag orientációjával megegyezik. Az (111) sík párhuzamos a kristály növekedésének irányával.



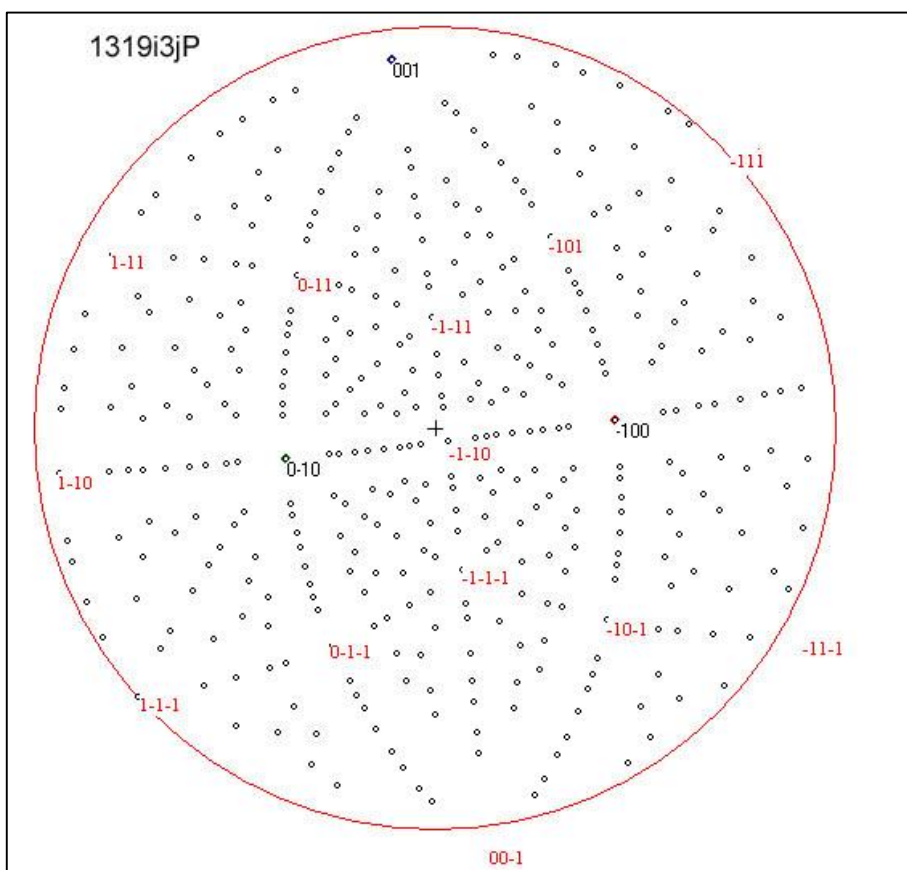
86. ábra. A neutroddiffrakciós vizsgálat eredménye*

Az orientálatlanul növesztett darabokkal szemben itt neutroddiffrakciós mérések előtt a darab orientációját már ismertük, ezért tudni lehetett, hogy a darabot hogyan kell beállítani, hogy a reflexió egy adott hullámhossz esetén maximális legyen. Ezért nem volt szükség fehér nyaláb használatára, pirograffal monokromatizált neutronnyalábot használtunk. Azonban a darabot nem lehetséges tökéletesen pontosan felfogatni a goniométerre, ezért szükség volt több mérés elvégzésére. A mérések között a darabot $0,25^\circ$ -al elforgattuk a z tengely körül, megkeresve ezzel az (111) síkok pontos helyzetét. Az így elvégzett mérésekből készített rocking görbéből nagy pontossággal meghatározható a kristály mozaicitása. [19, 20]

* Az ábra vízszintes tengelyén a reflektálódott neutronok detektorra esési szöge és a detektor érzékelő felületére merőleges egyenes által bezárt szög van ábrázolva



87. ábra A hm051219-es darabról készült Laue felvétel



88. ábra Hm051219-es darabról készült sztereoprojectios felvétel

A darabról készített Laue-felvétel (87. ábra) és az abból származtatott sztereografikus kép (88) megmutatja, hogy a darabot hogyan kell elforgatni ahhoz, hogy az (111) síksorozathoz tartozó folt pont középre essen. Mivel az elkészült darab

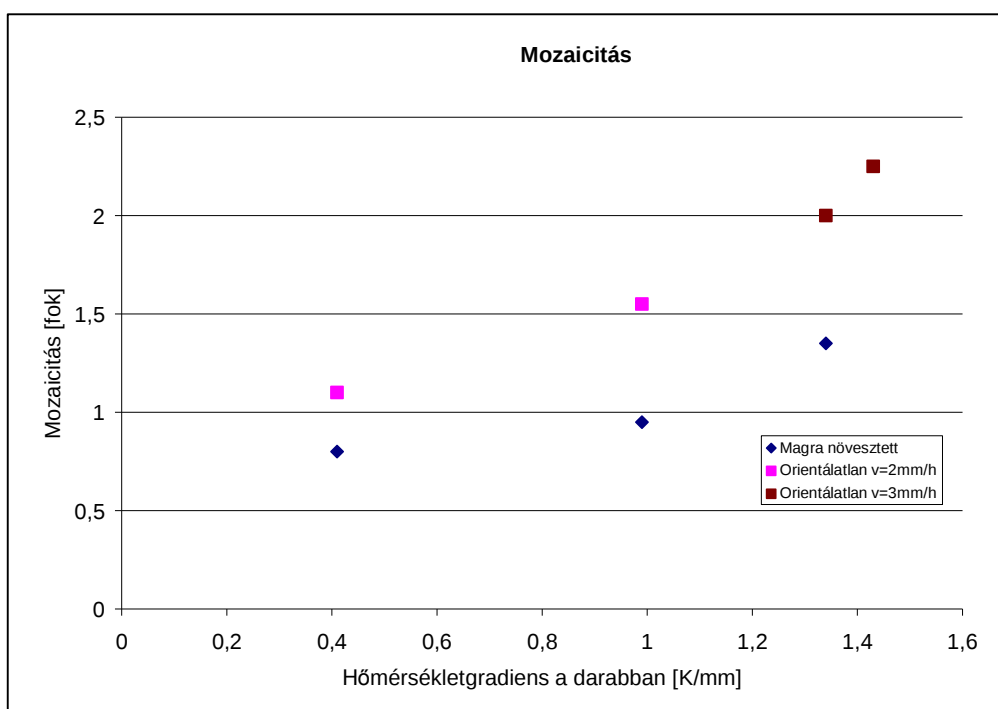
forgásszimmetrikus, és a röntgen berendezésen fektetve helyezkedett el, csak a függőleges tengely körüli elforgatás szöge határozza meg, hogy megfelel-e a kristály orientációja a megfelelő méretű lemezek gyártásához. Ez a szög $2,4^\circ$, ami megfelelő. Az eltérést több hiba is okozhatja. Egyrészt az orientálás pontossága nem jobb, mint 1° , másrészt a magkristály mechanikai megmunkálása is hibaforrás lehet. A további kísérletek leírását a 3. melléklet tartalmazza.

14.4 A kísérletek eredménye

A kísérleteket 2, 4 illetve 6 K/mm-es gradiens mellett 2 mm/h-s frontmozgatási sebességgel végeztem. A darabokat neutrodiffrakciós és Rtg.-Laue módszerrel vizsgáltuk.

A röntgenes mérések során sajnos csak a 2 K/mm-es hőmérsékletgradiens és 2 mm/h kristályosítási sebesség mellett növesztett kristályt sikerült orientálni. A többit sem én, sem az ELTE Általános Fizika tanszékén nem tudták orientálni, ezek orientálása még megoldandó feladat. Valószínűleg neutrodiffrakciós úton lehetséges.

A neutrodiffrakciós vizsgálatok során kiderült, hogy a kristály testének az orientációja megegyezik a magkristályok orientációjával, minőségük azonban jobb, mozaicitásuk kisebb, mint annak a kristálynak, amiből a magkristályt előállítottam.



89. ábra Mozaicitások a kristályosítás során használt hőmérsékletgradiens függvényében

A hőmérséklet-gradiens növekedésével az alábbiak szerint változik a mozaicitás:

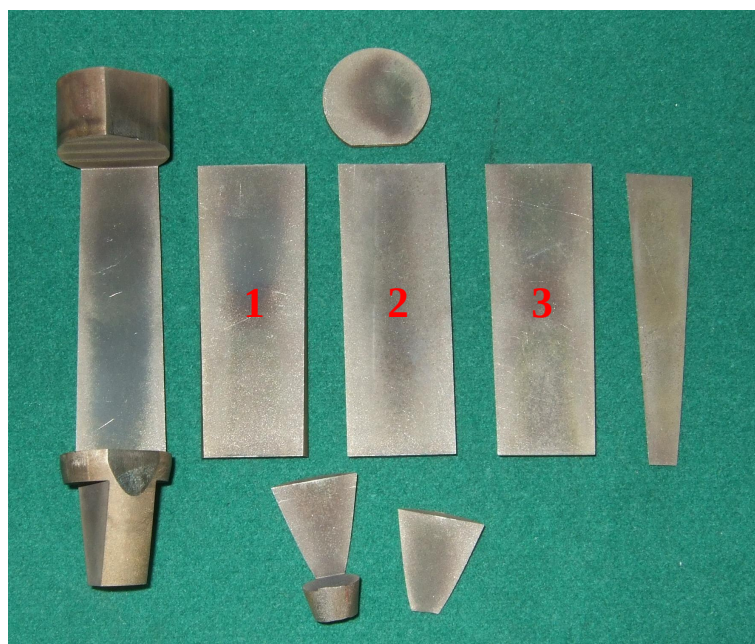
- 6 K/mm-es hőmérséklet-gradiens esetén $\Delta\Theta = 1,3^\circ\text{-}1,4^\circ$
- 4 K/mm-es hőmérséklet-gradiens esetén $\Delta\Theta = 0,9^\circ\text{-}1,0^\circ$
- 2 K/mm-es hőmérséklet-gradiens esetén $\Delta\Theta = 0,8^\circ$

Szembevetendő, hogy a magkristályra növesztett egykristályoknak nem csak a mozaicitása kisebb, mint a nem orientáltan növesztett kristályoké, hanem a darabon belül a mozaicitás változásának a mérete is.

15 Monokromátor lemezek készítése és minősítése

15.1 A lemezek kivágása

Az orientáltan növesztett kristályok minősítése és orientálása után a hengeres kristályokból lemezeket kellett kimunkálni, hogy monokromátorként alkalmazni lehessen. A monokromátor lemezekkel szemben az volt a kíváncsiság, hogy 5 mm vastagság mellett a lehető legnagyobb mérettel rendelkezzenek. A kristályok ridegsége, keménysége miatt, és mert az orientálás közben megállapított szögeket pontosan tartani kellett, a kristályok darabolását szikraforgácsolással végeztük el. (90. ábra)

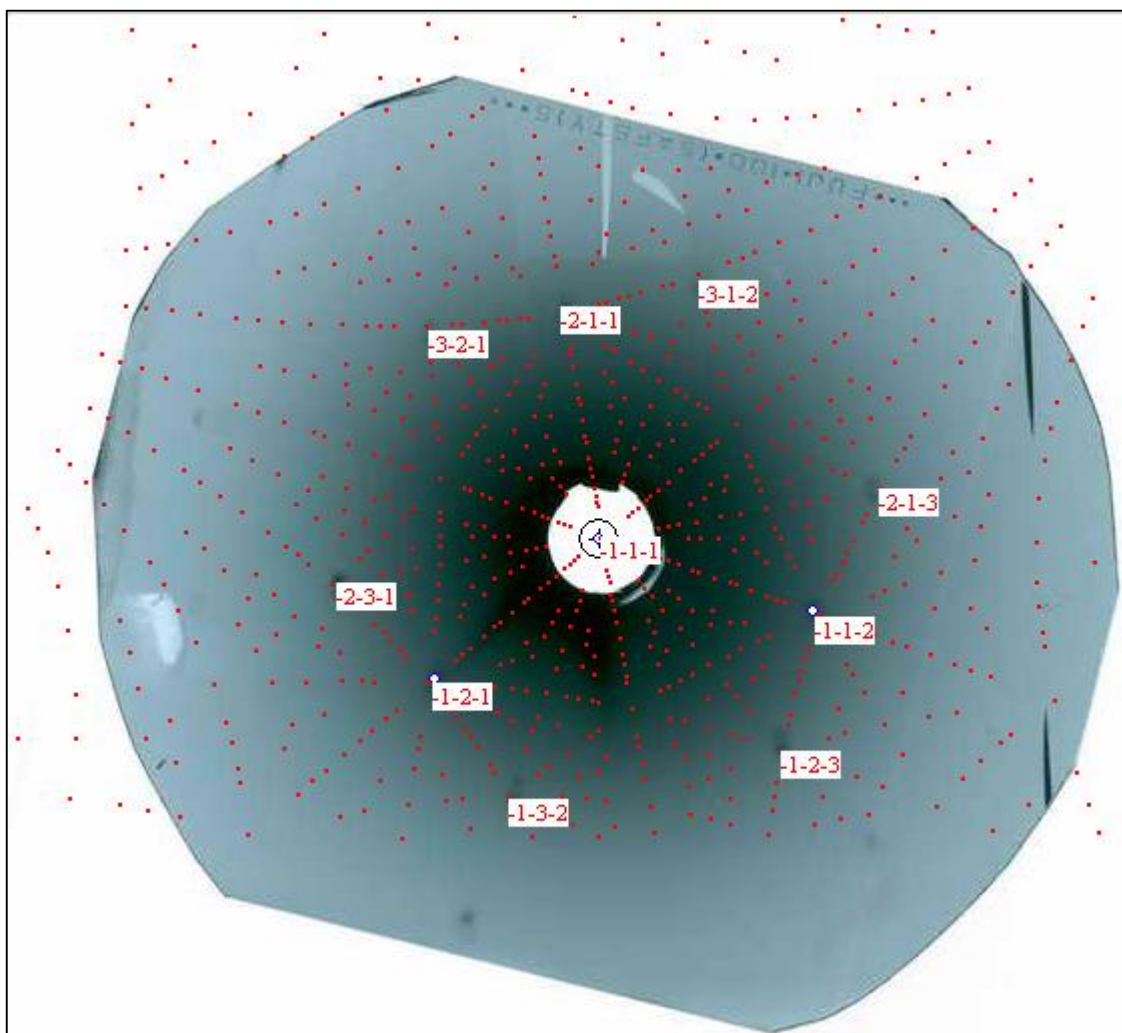


90. ábra. A szikraforgácsolással feldarabolt egykristály

A monokromátor lemezek kimunkálása hm051219 számú kísérlet során előállított egykristályból a „14.1 Magkristály kivágása” fejezetben leírtak szerint történt a Fémalkban CNC programozható .huzal szikraforgácsolóval.

15.2 A monokromátor lemez minősítése

Az elkészült monokromátor lemezek orientációját ellenőriztem rtg.-Laue méréssel. A mérés eredmény az lett, hogy a lemez legnagyobb sík oldala, a lemez lapja párhuzamos az (111) síksorozattal. Ez azt jelenti, hogy úgy vágtuk ki az egykristályból, ahogy a darab orientálásakor az Orientexpres program segítségével kiszámoltam.



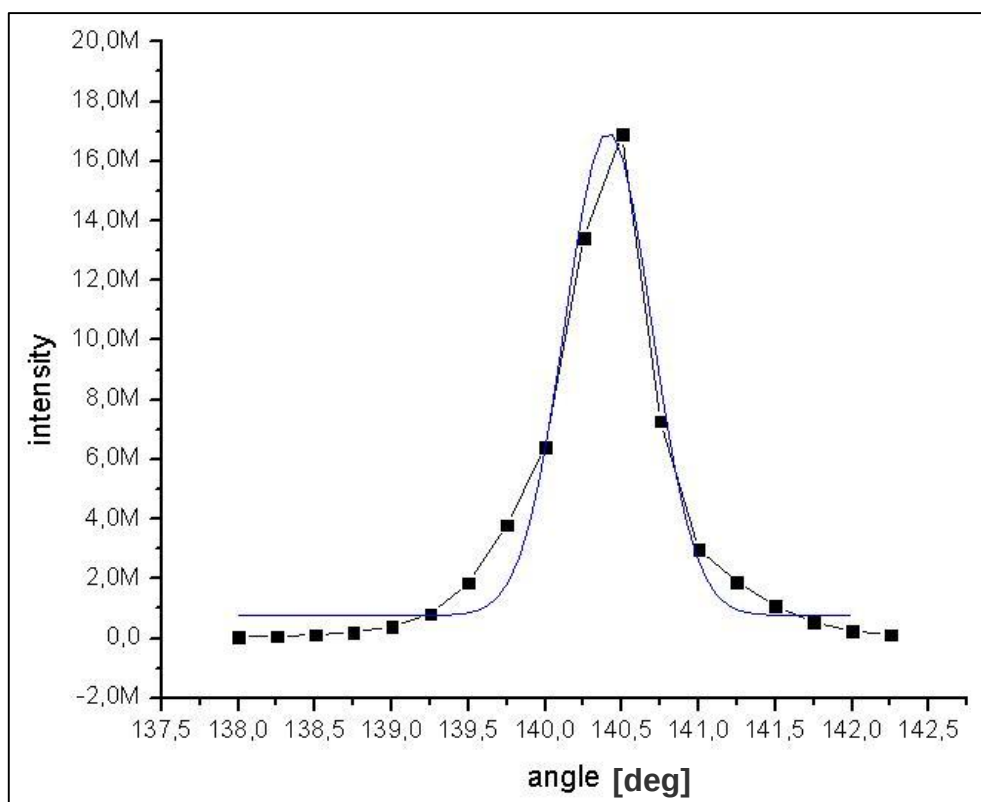
91. ábra A monokromátor lemezről készített Laue felvétel kiértékelése

A 91. ábrán látszik, hogy az (111) sík által reflektált rtg. fotonok a film közepén okoznának feketedést. Ez azt jelenti, hogy az [111] irány merőleges a röntgenfilmre, de mivel kockarács esetén merőleges a darab (111) síkjára is, a fim párhuzamos az (111) síkkal. Mindebből és a mérési összeállításból következik, hogy az (111) síksorozat párhuzamos a monokromátor lemez vizsgált lapjával.

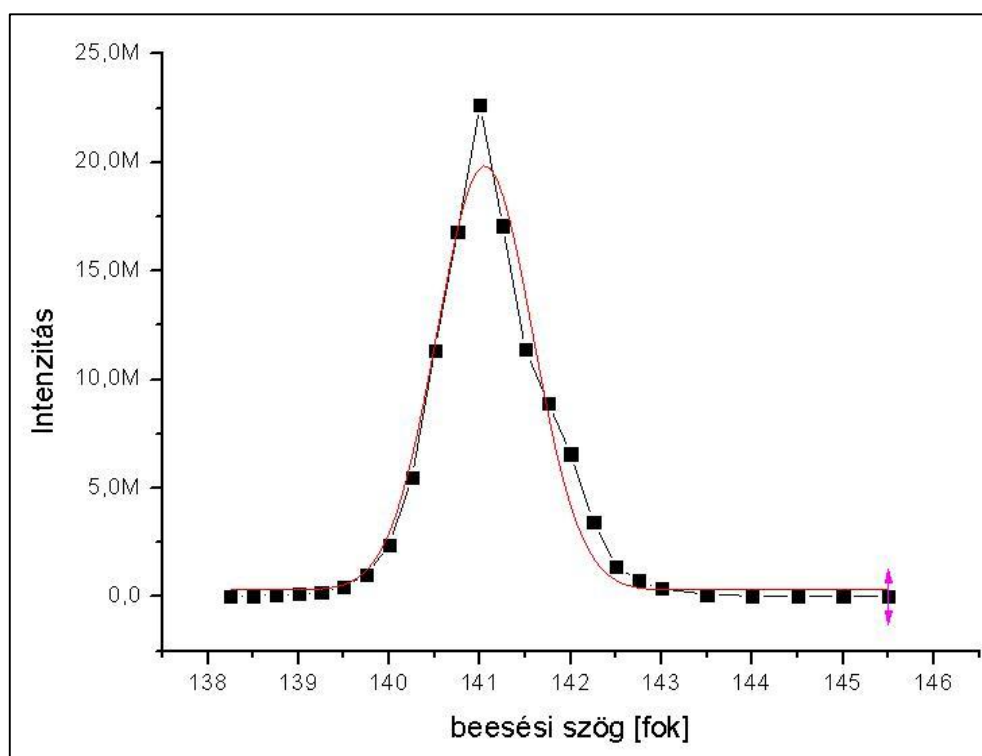
A lemezek orientációjának ellenőrzése után neutrondiffrakciós vizsgálatok is készültek pirografittal monokromatizált neutronnyaláb alkalmazásával.

A 91. ábrán 1-el jelölt lemez rocking görbéje és a ráillesztett gauss eloszlás függvény látható a 92. ábrán. Az illesztett görbe félérték szélességéből és a mérési összeállításból a kristály, illetve a monokromátor lemez mozaicitása számolható. A számítások alapján az 1-es lemez mozaicitása 18 szögperc, ami az elvárásoknak megfelel.

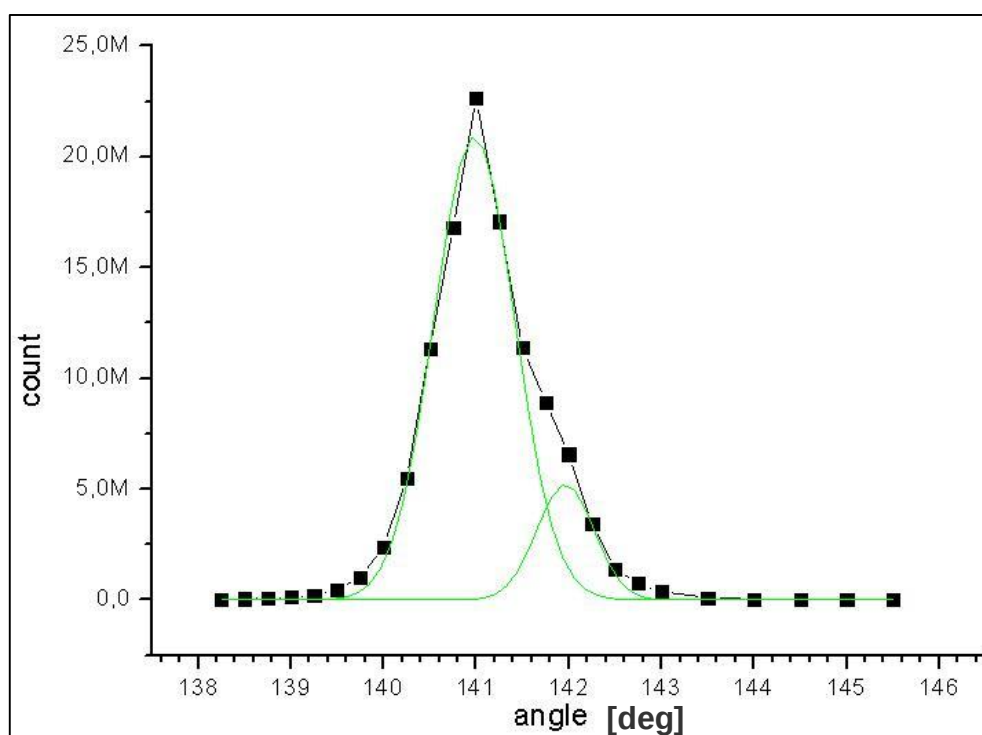
A 93. ábra a 2-es monokromátor lemezről készült rocking görbét és a ráillesztett gauss eloszlás függvényét mutatja. Az látszik a diagrammon, hogy 142,5°-nál a görbe lefutásában törés van. Ez arra enged következtetni, hogy a lemezben ksiszögű szemcsehatárral elválasztott részek találhatók. A két részre jellemző csúcsok matematikailag szétválaszthatók ugyan (94. ábra), de ez a lemez minőségén nem változtat. A lemez mozaicitása a kettős csúcs ellenére belül esik a megkívánt 0,25°-1,5°-os mozaicitás tartományba. Értéke 55 szögperc.



92. ábra Az 1-es monokromátor lemez (111) síkjáról készített rocking görbe és gauss illesztés (KFKI által készítve)

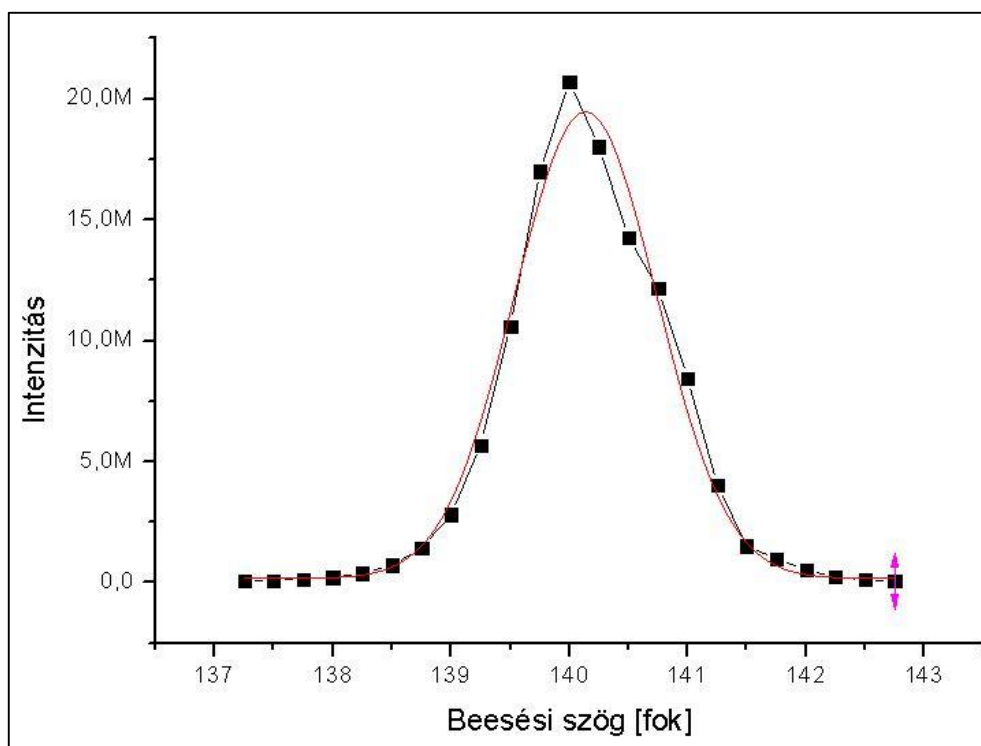


93. ábra A 2-es monokromátor lemez (111) síkjáról készített rocking görbe és gauss illesztés

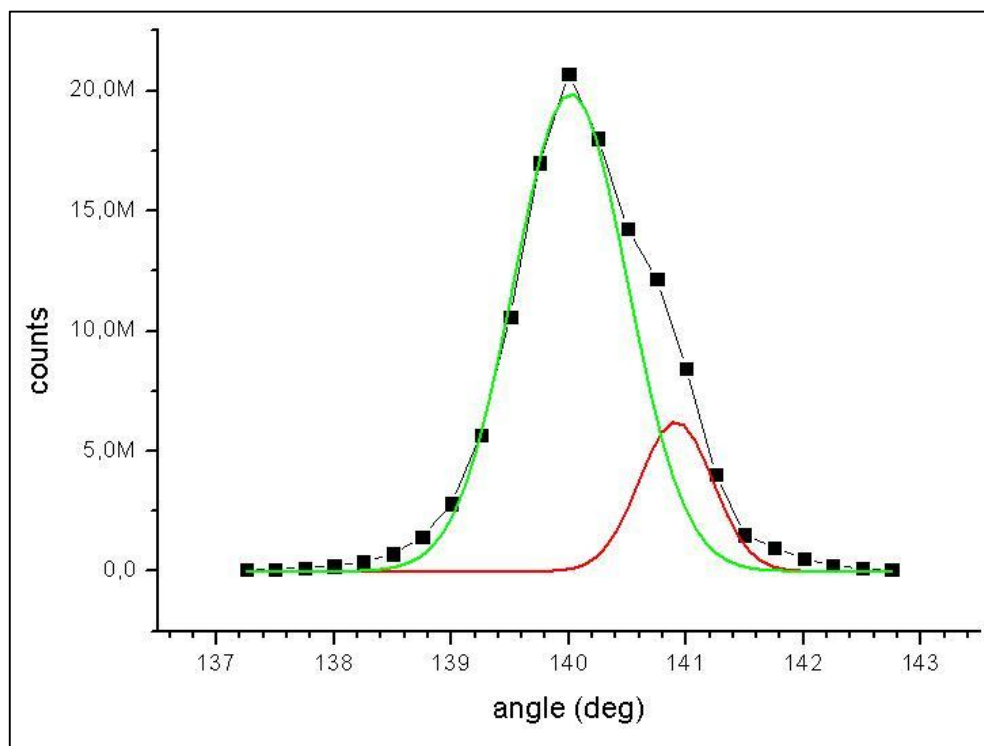


94. ábra A 2-es monokromátor lemez esetén a csúcsok szétválasztása

A 95. ábra a 3-as monokromátor lemezről készült rocking görbét és a ráillesztett gauss eloszlás függvényét mutatja. Az látható a diagrammon, hogy $140,5^\circ$ -nál a görbe lefutásában törés van. Ez arra enged következtetni, hogy ebben a lemezben is megtalálható az a kisszögű szemcsehatár, amelyik a 2. lemezben is. Itt jelenléte erősebb, nagyobb térhányadot foglal el a második szemcserész, mint a 2. lemez esetében. A két kristályra jellemző csúcsok matematikailag itt is szétválaszthatók (96. ábra), de ez a lemez minőségén nem változtat. A lemez mozaicitása a kettős csúcs ellenére belül esik a megkívánt $0,25^\circ$ - $1,5^\circ$ -os mozaicitás tartományba. Értéke 65 szögperc.



95. ábra A 3-as monokromátor lemez (111) síkjáról készített rocking görbe és gauss illesztés



96. ábra A 2-es monokromátor lemez esetén a csúcsok szétválasztása

Annak ellenére tehát, hogy a kristály amiből a monokromátor lemezeket készítettem kisszögű szemcsehatárral elválasztott részekből áll, a lemezek a szokásos minősítő mérések szerint monokromátornak/polarizátornak tökéletesen megfelelnek.

16 A Heusler egykristályok szerkezete

A tökéletes egykristály mozaicitása 0° . Ilyen kristály növesztése mai tudásunk szerint Heusler ötvözetből nem lehetséges, de nem is kívánatos. Egy ilyen ideális, tökéletes szerkezetű kristály annyira kevés neutronot reflektálna, hogy neutrondiffrakciós vizsgálatok során használhatatlan lenne. A valóságban a kristályok nem tökéletesek, a kristálytani síkok nem párhuzamosak egymással a darab teljes térfogatában.

A kísérletek és a mérések alapján a kristályok következő felépítését tartom valószínűnek.

A kristályok mozaik blokkokból állnak, amelyeknek a kristálytani orientációja kismértékben eltér egymástól. Ezekből az eltérésekből adódik, hogy a kristály más-más mozaikhoz tartozó része más-más hullámhosszúságú neutronokat reflektál azonos kristálytani síkok esetén is. Az, hogy ezek a síkok egymással milyen szöget zárnak be megadja a kristály mozaicitását. A síkok normálisainak eredője pedig megadja a kristály átlagos orientációját. A

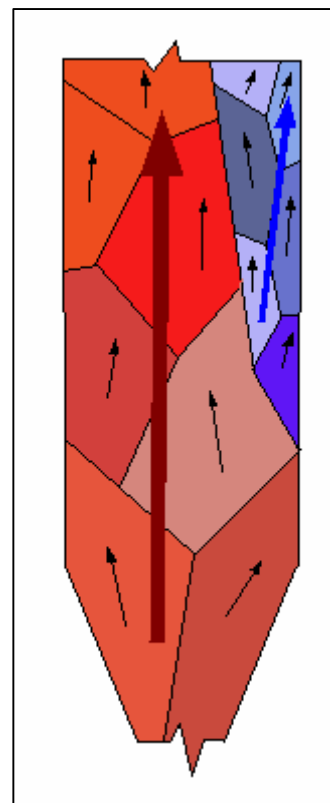
mérések alapján ez a mozaicitás a 23-26mm átmérőjű darabok esetén nem nagyobb, mint 20 szögperc.

Az, hogy a kristály mozaicitása ennél nagyobb is lehet, a fentebb már bemutatott kisszögű szemcsehatárok kialakulásának tulajdonítható. A kristály egy, esetleg több részének az orientációja nagyobb mértékben eltér az átlagos orientációtól létrehozva egy úgynevezett primer mozaik blokkot. Ez a blokk is szekunder mozaik blokkokból áll, de azok eredő normálisának iránya eltér a másik primer mozaikblokk eredő normálisának irányától. Akkor beszélhetünk kettő vagy több primer mozaik blokkról, ha azok az intenzitás eloszlás függvényen egyértelműen elkülöníthetők.

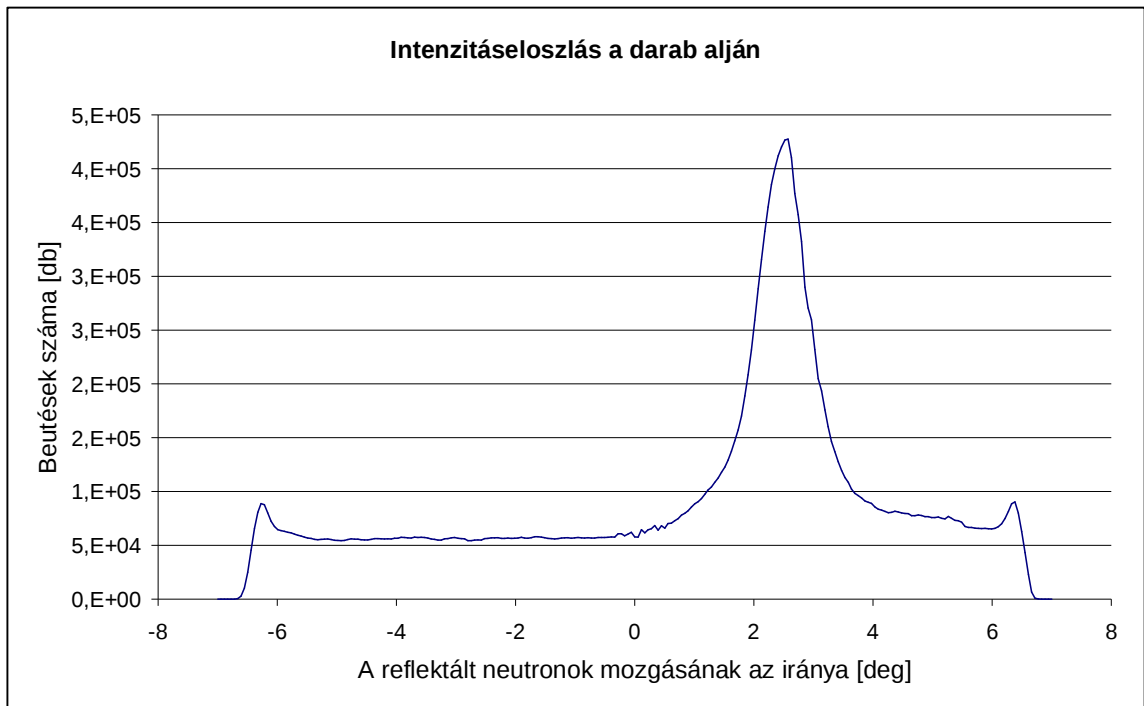
A 97. ábrán a fekete nyilak szemléltetik az (111) sík normálisát, a bordó nyíl a piros árnyalatú szekunder mozaikblokkok (111) normálisának eredőjét, a kék nyíl a kék árnyalatú blokkok (111) normálisának eredőjét.

Azt a tényt, hogy a Heusler egykristály monokromátor által reflektált nyaláb intenzitás-eloszlásának a félérték szélessége, és így a mozaicitása miért nagyobb, mint nulla, az magyarázza, hogy a keletkező szekunder mozaikblokkok orientációja nem azonos. A vizsgált sík normálisa nem párhuzamos a különböző blokkokban. A különböző mozaikblokkokhoz tartozó normálisok egymással bezárt szöge megegyezik a visszaszórt szögek közötti különbségével.

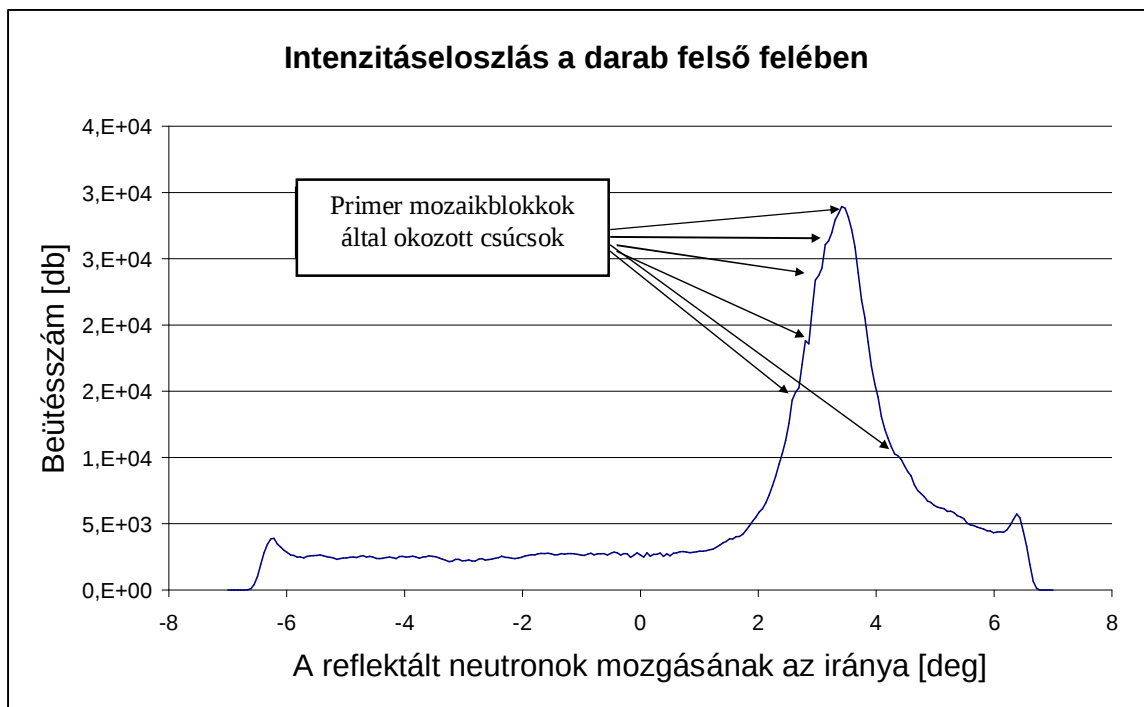
A mérések szerint az egykristály hosszában lentől felfelé haladva egyre több primer mozaikból állhat. Ez megmagyarázza azt, hogy a mozaicitás a darabban lentől felfelé (a kristályosítás kezdeti helyétől a vége felé) monoton növekszik.



97. ábra Mozaikblokkok az egykristályban



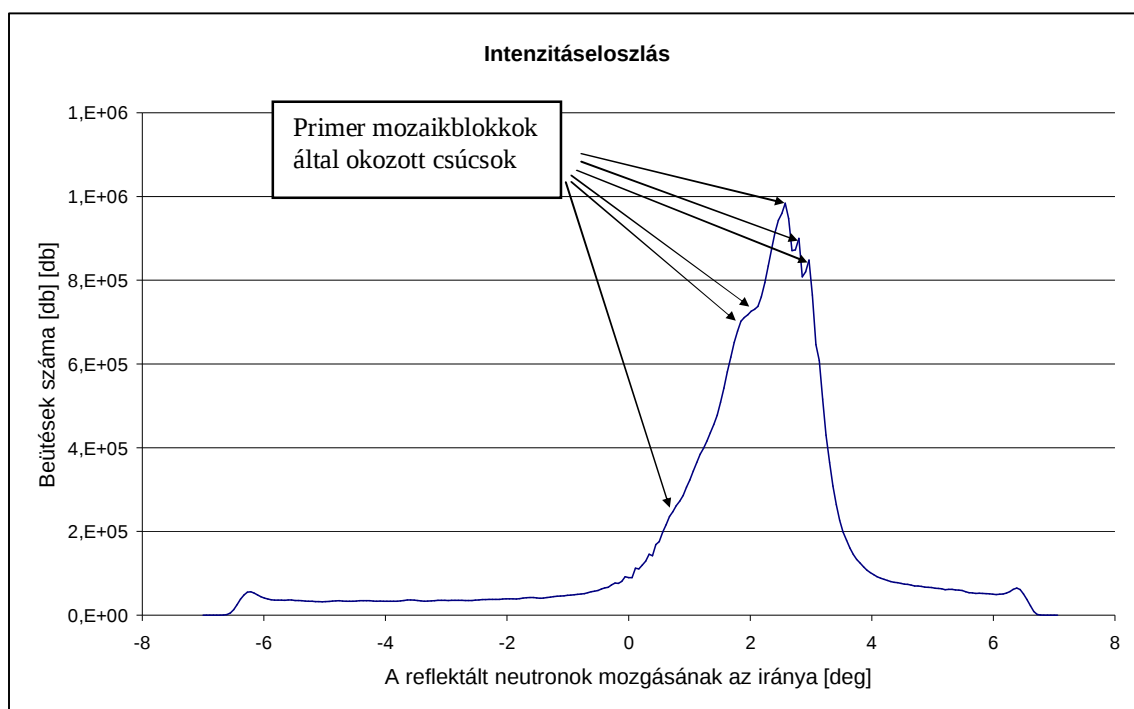
98. ábra Intenzitáseloszlás a hm051121 kristály alján



99. ábra Intenzitáseloszlás a hm051121 kristály $\frac{3}{4}$ részénél

Ennek megfelelően a kristály aljáról készült neutrodiffrakciós felvételeken nem lehet egyértelműen több csúcsot elkülöníteni (98. ábra), azonban a méréssel felfelé haladva egyre

több és egyre jobban elkülöníthető csúcs található. (99., 100. ábra) Minden ilyen csúcs, ahol az intenzitás-eloszlás függvénynek lokális maximuma van, vagy ahol a diagrammon törés látható külön primer mozaikbloktól származik.



100. ábra Intenzitáseloszlás a hm051121 kristály felső részén

Ezzel a modellel magyarázatot adtam arra, hogy:

- a Heusler egykristályok mozaicitása miért nagyobb nulla foknál
- miért változik a darabok hosszában a mozaicitás monoton növekvő módon állandó kristályosítási paraméterek esetén,
- egyes neutrondiffrakciós felvételeken miért látszik több intenzitáscsúcs egymáshoz nagyon közel.

17 Összefoglalás

Mágneses térbe helyezett ferromágneses anyagokból készült egykristály neutron monokromátorok képesek a neutron nyálábot nem csak monokromatizálni, hanem polarizálni is. Így az egy lépésben elvégzett monokromatizálás és polarizálás lehetővé teszi az intenzitásvesztes mértékének csökkentését, miközben nagyban leegyszerűsíti a mérési összeállításokat.

Ilyen monokromátor egykristályok előállítása eddig nem volt megoldott. A Fém-tani tanszéken kifejlesztett, majd az ADMATIS Kft. által továbbfejlesztett Univerzális Sokzónás Kristályosító (UMC, „Úrkemence”) berendezéssel lehetséges a szükséges feltételek biztosítása.

Kristályosítási kísérleteimet praktikus okokból a Cu_2MnAl képletű Heusler vegyülettel végeztem. A kísérleti program első szakaszában előállítottam megfelelő minőségű és méretű, de nem szabályozott orientációjú egykristályokat. Tettem ezt úgy, hogy a nemzetközi szakirodalom szerint eddig alkalmazott eljárásoktól eltérően nem alkalmaztam csíracsapdát, amely csíracsapdának a feladata, hogy a sok növekedni szándékozó kristály közül csak egyet enged nőni. Ehelyett egy megfelelően hegyes kúpként kezdődő alumínium-oxid kapszulát használtam. A hegyes kúpszög csak egyetlen kristály keletkezésére adott lehetőséget.

A zónánként szabályozható fűtésű 24 zónás berendezésben a sikeres kísérletek a polikristályos előgyártmány fentről lefelé történő átolvasztásával kezdődtek. A kristályosítást lentől felfelé haladva végeztem 2-8 K/mm-es hőmérséklet-gradienssel, illetve 2-4 mm/h frontmozgatási sebességgel.

Az így előállított egykristályokat röntgen-Laue módszer segítségével orientáltam, majd huzal szikraforgácsolással megfelelő orientáltságú magkristályokat vágattam ki belőlük.

A program második szakaszában az 5*5*20mm-es magkristályokat elhelyeztem az alumínium-oxid kapszula aljában kialakított vájatban. A kísérletek az első fázisban alkalmazott módszer szerint folytak le azzal a különbséggel, hogy a magkristályok felső felét is megolvasztottam. Ennek az lett az eredménye, hogy az egész kristály a magkristály orientációja szerint nőtt.

Mind a véletlenszerű orientációjú, mind az orientáltan növesztett egykristályokat neutrondiffrakciós vizsgálatokkal minősítettem a KFKI-ban. A megfelelő minőségű orientált kristályból szikraforgácsolással állítottam elő a monokromátorhoz szükséges lemezeket.

Kidolgoztam egy olyan eljárást, amellyel a Cu_2MnAl Heusler ötvözetből neutrondiffrakciós vizsgálatokhoz egykristályt lehet növesztetni, amely alkalmas neutronsugár

egyidejű monokromatizálására és polarizálására. Kísérleti eredmények alapján megalkottam egy modellt, amely a Heusler egykristály szerkezetét hivatott bemutatni.

Summary

The single crystal neutron-monochromator made from ferromagnetic materials located in magnetic field are able not only to monochromatize the neutron beam but to polarize it as well. So the monochromatizing and polarizing performed in one step makes it possible to decrease the extent of loss of intensity while the measurements will become very simple.

The making of such monochromator single crystals hasn't been solved yet. The necessary conditions can be ensured by the Universal Multizone Crystallizer (UMC „Space Furnace”) equipment developed at the Department of Physical Metallurgy and developed further by the ADMATIS Co. Ltd.

From practical points of view, I performed my solidification experiments by using a Heusler compound having a formula of Cu_2MnAl . In the first part of my experimental program, the single crystals of suitable quality and size without a regulated orientation were made. Unlike the processes described in the references, I didn't use a grain selector in the course of making the single crystals (the task of the grain selector is to allow to grow only one of the many crystals that want to grow). Instead, I used an aluminium-oxide capsule starting with an acicular cone. Only one crystal could be developed by the acicular cone angle.

The successful experiments started by the remelting of polycrystal pre-products from the top towards the bottom in the 24 zone equipment having a controllable heating in each zone. The solidification was made from the bottom to the top by a temperature gradient range of 2-8 K/mm and a front movement velocity range of 2-4 mm/h.

The single crystals made such a way were oriented by using the X-ray – Laue method and seed crystal with a suitable orientation were cut from them by using the electric spark machining method.

In the second part of my program, the seed crystal of a size of 5*5*20mm were placed in the hollow formed at the bottom of the aluminium-oxide capsule. The experiments were performed in accordance with the method used in the first phase with the only difference that the first half of seed crystal was also melt. It resulted in growing the whole crystal according to the orientation of seed crystal.

Both the single crystals with random orientation and the single crystals grown in an oriented way were qualified by means of neutron diffraction tests in the KFKI. The planes necessary for the monochromator were made from the crystal with suitable orientation by means of electric spark machining method.

I worked out a method by which a single crystal can be grown for the neutron diffraction tests by using the Cu_2MnAl Heusler alloy and this single crystal is suitable for the simultaneous monochromatization and polarization of the neutron beam. On the basis of my experimental results, a model has been developed by means of which the structure of Heusler single crystal can be demonstrated.

18 Új tudományos eredmények

- 1) Kidolgoztam egy komplex technológiát, amellyel a Cu_2MnAl Heusler ötvözetből neutrondiffrakciós vizsgálatokhoz olyan orientált egykristályt lehet növesztetni amely képes a neutronsugár egyidejű monokromatizálására és polarizálására. A kidolgozott technológia az alábbi lépésekből áll:
 - a. előötvözet készítés vákumindukciós berendezésben
 - b. orientálatlan egykristály növesztés magkristály készítés céljára
 - c. az egykristály orientációjának megállapítása rtg diffrakcióval
 - d. orientált magkristály kivágása szikraforgácsolással
 - e. orientált egykristály növesztése a mag részleges visszaolvasztásával
 - f. az egykristály pontos orientációjának meghatározása rtg diffrakcióval
 - g. a polarizátor/monokromátor eszközhöz szükséges lemezek orientált kivágása szikraforgácsolással
 - h. a lemezek bevizsgálása neutron diffrakcióval.
- 2) Kísérletekkel igazoltam, hogy a Cu_2MnAl képletű Heusler ötvözetből 2 mm/h front mozgási sebességgel a darabban mért 0,4 - 1,4 K/mm átlagos hőmérséklet gradiens tartományban 25°-os kúpszögű alumínium-oxid kristályosító tégelyben egykristály növeszthető az irodalomból ismert kristályszelektor alkalmazása nélkül.
- 3) Kísérleteim alapján megállapítottam, hogy a keletkezett egykristály mozaicitása 2 mm/h frontmozgási sebesség és 0,4 - 1,4 K/mm átlagos hőmérséklet gradiens alkalmazása mellett a hőmérséklet gradiens növekedésével szigorúan monoton növekvő függvény szerint nő. A függvénykapcsolat felhasználható adott mozaicitással rendelkező egykristály készítéséhez szükséges hőmérséklet gradiens tervezéséhez.

A darab hosszában a kristályosítás helyének kezdetétől a vége felé a kristály mozaicitása nő.
- 4) A monokromátor/polarizátor lemezek akkor használhatók, ha a kristály mozaicitása 0,25 és 1,5 fok közötti érték. Megállapítottam, hogy olyan egykristályokat melyekből monokromátor/polarizátorként használható lemezeket lehet készíteni 2 mm/h front mozgási sebesség alkalmazása esetén a darabban mért 0,4 és 1,4 K/mm közötti átlagos hőmérséklet gradiens alkalmazásával lehet előállítani.
- 5) Méréseim alapján megállapítottam, hogy a Heusler ötvözetből növesztett egykristály kristályos szerkezete primer és szekunder mozaikblokkokból áll. A primer mozaik blokkokat szekunder mozaikblokkok alkotják. A szekunder mozaikblokkokon belül egy

adott kristálytani síksorozatot alkotó síkok normálisai egymással párhuzamosak. Az azonos primer mozaikblokkhoz tartozó különböző szekunder blokkok normálisai egymással akkora szöget zárnak be, hogy az eltérés által okozott mozaicitás nem nagyobb, mint 20 szögperc. A normális vektorok összege adja az adott primer blokk eredő normálisát. A primer mozaikblokkok normálisai által bezárt szög nagyobb mint 20 szögperces mozaicitást okoz. A kristály mozaicitását a primer és a szekunder mozaikblokkok együttesen eredményezik.

Köszönetnyilvánítás

Ezúton is szeretném megköszönni a segítséget mindazoknak, akik segítettek munkám során. Köszönetet mondok Bárczy Pálnak, Sólyom Jenőnek és Zsoldos Lehelnek a röntgen diffrakcióval kapcsolatos segítségükért, Lengyel Attilának az abszorpciós vizsgálatok elvégzéséért, Tranta Ferencnek a DTA mérésekért!

Szeretném továbbá megköszönni az ADMATIS kft., a Fémalk Zrt., a Központi Fizikai Kutatóintézetnek és a Shmelzmetall Hungária Kft. munkatársainak, hogy segítettek a kísérletek, mérések elvégzésében!

Külön köszönetet szeretnék mondani tudományos vezetőmnek, Roósz Andrásnak!

19 Irodalomjegyzék

- [1] G. Kádár, L. Rosta, Neutron Scattering, KFKI-1999-04/e
- [2] Vértes Attila, Magkémia, Nemzeti tankönyvkiadó, Budapest, 1944
- [3] Charles Kittel, Bevezetés a szilárdtest fizikába, Műszaki könyvkiadó, Budapest, 1966
- [4] Tichy Géza, Szilárdtest-fizika elmélet, kézirat
- [5] V. L. Aksenov, A. M. Balagurov, Neutron time-of-flight diffractometry, Physics - Uspekhi 39 (9) 897 - 924 (1996)
- [6] Zs. Sánta, Instalation of High Resolution TOF diffractometer at the Budapest Research Reactor, kézirat
- [7] www.npp.hu/mukodes/lancreakcio.htm
- [8] <http://www.regtron.kfkipark.hu/neutronfizika.htm>
- [9] <http://physchem.ox.ac.uk/~rkt/tutorials/surfaces/solids.html>
- [10] S. Tomiyoshi, Physica B 213 & 214 1995 932-934
- [11] Werner Köster, Das Dreistoffsystem Kupfer-Mangan-Aluminium, Zeitschrift für Metallkunde, Bd. 57, 1966 H12 889-901
- [12] H. Bach, Thin-film epitaxial growth of the Heusler alloy Cu_2AlMn , Journal of Crystal Growth 237–239 (2002) 2046–2049
- [13] Ming Zhang, Guodong Liua, Yuting Cuia, Haining Hua, Zhuhong Liua, Jinglan Chena, Guangheng Wua, Yu Suib, Zhengnan Qianb, Xixiang Zhang Journal of Magnetism and Magnetic Materials 278 (2004) 328–333
- [14] M. Nishi, K. Kakurai, Physica B 311 (2002) 70–77
- [15] D.J. Goossens, L.D. Cussen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 490 (2002) 316–333
- [16] R.M. Moon, Physica B 267}268 (1999) 1}8
- [17] O. Zimmer, T.M. Muller, P. Hautle, W. Heil, H. Humblot, Physics Letters B 455 1999 62–68
- [18] S. Bednarski, K. Siemensmeyer, M. Slepowronski, E. Garcia-Matres, M. Winkelmann, Physica B 234-236 (1997) 1074-1075
- [19] P. Courtois, Physica B 267}268 (1999) 363}366
- [20] P. Courtois, B. Hamelin, K.H. Andersen, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 529 (2004) 157–161
- [21] L.D. Cussen, D.J. Goossens", T.J. Hicks, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 440 (2000) 409}420
- [22] M. Loewenhaupt!, N.M. Pyka, Physica B 267}268 (1999) 336}340
- [23] W. A. Tiller, The Science of Crystallization, 1991, Cambridge University Press
- [24] Verő József, Káldor Mihály, Fémtan, Tankönyvkiadó, Budapest, 1977
- [25] W. Kurtz, D. J. Fisher, Fundamentals of solidification Trans tech publications, 1989
- [26] W. Kurtz, P. R. Sahn, Gerichtet erstarrte eutektische Werkstoffe, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1975
- [27] Veres Zsolt, Kristálynövesztés Heusler ötvözetből sokzónás kemencében, 2001, diplomamunka
- [28] Roósz A., Gácsi Z., Fuchs E.: Solute redistribution during solidification and homogenization of binary solid solution. Acta Met., 32, 1984., 1745-1754.
- [29] Roósz András, Teleszky Ilona, Tóth Levente: Egykristály Turbinalapát előállítás egyirányú kristályosítással űrkemencében, részjelentés, Miskolci Egyetem, Miskolc, 1995

- [30] D. Goldschmidt: Einkristalline Gasturbinenschaufeln aus Nickelbasis-Legierungen, Mat.-wiss. und Werkstofftech, 1994, 25, 311-320
- [31] mse.mcmaster.ca/faculty/provatas/solid.html
- [32] M. Ishiia, Y. Kuwanao, T. Asaia, N. Senguttuvanb, T. Hayashib, M. Kobayashic, T. Okud, K. Sakaid, T. Adachid, H.M. Shimizud, J. Suzuki, Journal of Crystal Growth 257 (2003) 169–176
- [33] Hiroaki Matsushitaa, Koji Mitakeb, Takeo Takizawa, Journal of Crystal Growth 275 (2005) e445–e450
- [34] www.bagdasarovcrystals.com/v1
- [35] O.V. Parasyuka, Y.E. Romanyukb, I.D. Olekseyuk, Journal of Crystal Growth 275 (2005) e159–e162
- [36] www.rsc.org/ejga/JM/2007/b614001g-ga.gif
- [37] www.atlas-pcf.ru/graph/Kyrop1-sm.gif
- [38] Babcsán Norbert, Röntgendiffrakciós vizsgálatok, Miskolc, kézirat
- [39] Bárczy P., Fuchs E., Metallográfia I, Tankönyvkiadó, Budapest, 1981
- [40] E. Preuss, B. Krah-Urbán, R. Butz, Laue Atlas 1974, Düsseldorf
- [41] http://www.matter.org.uk/diffraction/x-ray/laue_method.htm
- [42] Geleji Frigyes, Buza Gábor: Az univerzális sokzónás kristályosító ipari változatának csereszabatos kemenceelem készítése, zárójelentés, BAYATI, Budapest, 1996
- [43] Infotronic Kft: Az univerzális sokzónás kristályosító elektronikai fejlesztése, Miskolc, 1997
- [44] www.admatis.com
- [45] Majer Tamás: Diplomaterf feladat, Miskolci Egyetem, Miskolc, 1993
- [46] C. C. Feldman: Precíziós öntés, Akadémiai kiadó, Budapest 1952
- [47] Vander Voort: Metallography, USA, 1994
- [48] M. Beckert, H. Klemm: Handbuch der metallographysen Ätzverfahren, Verlag, Leipzig 1962
- [49] O. Brümmer, J. Heydenreich, K. H. Krebs, H. G. Schneider, Szilárd testek vizsgálata elektronokkal, ionokkal és röntgensugárzással, Műszaki Könyvkiadó, Budapest, 1984

20 Mellékletek

1. Melléklet

Rtg.-Laue mérőhelykialakítása

Mivel nem állt rendelkezésemre olyan precíz mechanikával ellátott röntgen berendezés, amelyik alkalmas síkfilmes Laue felvételek készítésére, az ELTE Általános Fizika tanszék szakmai segítségével átalakítottam egy a Miskolci Egyetem Fémtechnológiai Tanszékén Található DRON UM1 típusú röntgen diffraktométert. (1.1. ábra)



1.1 ábra DRON röntgen berendezés

Mivel a szükséges goniométert és a filmkazettát magam kívántam elkészíteni, az eredeti berendezésből csupán a generátorra és a röntgenforrásra volt szükségem, a mechanikára nem.

Az eredeti berendezés digitálisan gyűjtötte az adatokat, úgyhogy készíteni kellett egy filmtartó kazettát, amelyik közepén lyukas, hogy átengedje a primer nyalábot. A kazettának készült egy réz keret, ami segít a filmet fix helyzetben rögzíteni.

Mivel a keresett [111] síksorozat nagy valószínűség szerint nem párhuzamos a darabnak azon síkjával, amelyikre a röntgennyaláb esik, a vizsgálni kívánt darabot nem elég fixen rögzíteni, hanem legalább két tengely körül forgatni is kell tudni, hogy az [111] síkokat merőlegessé lehessen tenni a nyalábbal. Ebben az esetben ugyanis ismerjük a kívánt sík

helyzetét a darabon létrehozott referenciasíkokhoz képest. Ezen ismeret segítségével kivágható a kívánt méretű magkristály.

A röntgen berendezéshez tartozó egyik kéttengelyű goniométert alakítottuk át a célnak megfelelően, úgy, hogy ne csak a két tengely körüli forgatást lehessen megvalósítani, hanem háromirányú mozgatást is.

A röntgenfilm tartókazettájának elkészítése

A röntgenfilm tartókazettájának a következő követelményeknek kellett megfelelnie:

- Stabilan felszerelhető legyen a DRON-UM1-es röntgengép blendenyílása elé
- Változtatható legyen a blendenyílástól való távolsága
- A röntgenfilm stabilan rögzíthető legyen benne
- Fény ne érhesse a filmet, de a röntgensugarat engedje át

Az alkatrészt úgy terveztük meg, hogy egy fém keret rögzíthető legyen a merőberendezésre, amely keret kicsivel nagyobb méretű, mint a felhasznált röntgenfilmek mérete. A röntgenfilm egy fekete papírtokba kerül, ami a fényt nem eresztí át, de a röntgensugarat igen. A röntgenfilm úgy kerül a papírtokba, hogy a film egyik alsó sarka szorosan a tok azonos sarkába kerül, és középen egy csavar rögzíti a filmet a tokhoz. Ez a csavar pontosan a röntgenfilm közepén van, épp ott, ahol a röntgensugár kilép a blendenyíláson. A csavar hosszában át van fúrva, így a blendenyílásból érkező röntgensugár áthalad a csavar hosszán anélkül, hogy feketedést okozna a filmen. Ezután a röntgensugár a



1.2. ábra A röntgenfilm-tartó kazetta

vizsgálandó darabra jut és onnan a tér különböző irányába visszaverődve, a röntgenfilmen reflexiókat okoz. A röntgenfilm közepén, ahol a csavar van, információvesztés van ugyan, de így is megfelelő mennyiségű reflexió keletkezik a filmen. (1.2. ábra)

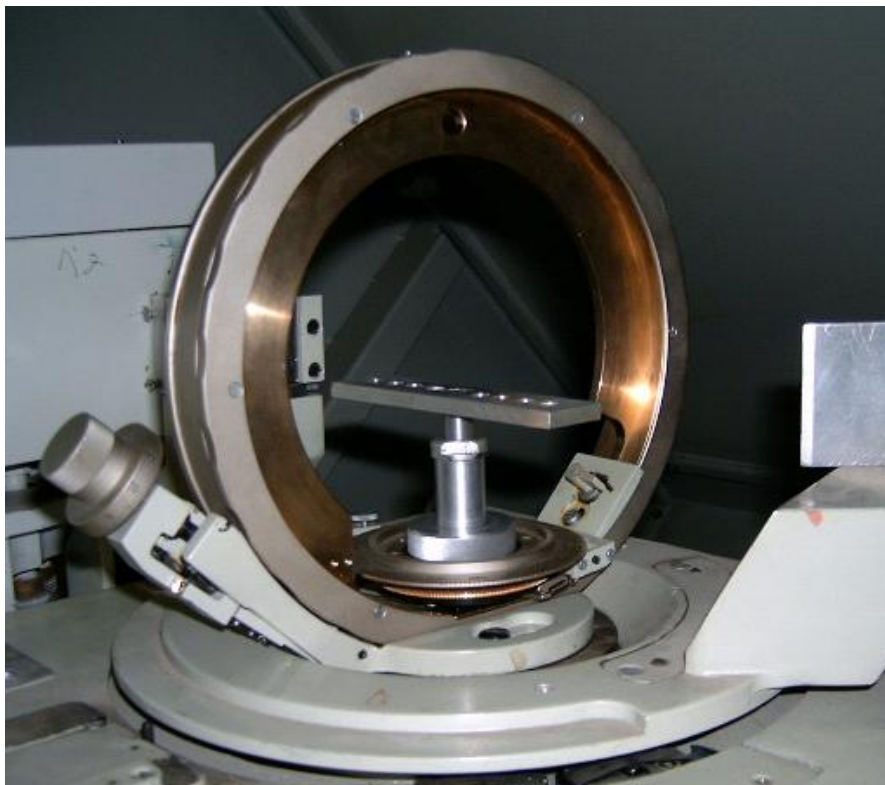
Figyelembe véve azt, hogy a film és a blendenyílás távolságának változtathatónak kell lennie, az alkatrészen hosszúkás furatok készültek, így az egész alkatrész csúsztatásával lehet állítani bizonyos intervallumban a távolságot.

A röntgenfilm-tartó kazetta vörösrézből készült el. Ebbe kerül a fekete papírtok, benne rögzítve a röntgenfilmmel. A mérés pontossága érdekében a papírtok is szorosan feszül a rézkeretbe.

A goniométer átalakítása

Ennek az eszköznek el kell látnia a vizsgálandó darab stabil rögzítésének, és a röntgensugárhoz valamint röntgenfilmhez képesti megfelelő elhelyezését.

Mivel különböző geometriájú próbadarabok vizsgálatára használtam az eszközt, és az egyes próbadaraboknak is több felületét vizsgáltam, rögzített állású eszköz nem felelt meg arra a célra, hogy a darab megfelelő felülete mindig megfelelő magasságban és a filmtől megfelelő távolságra legyen .

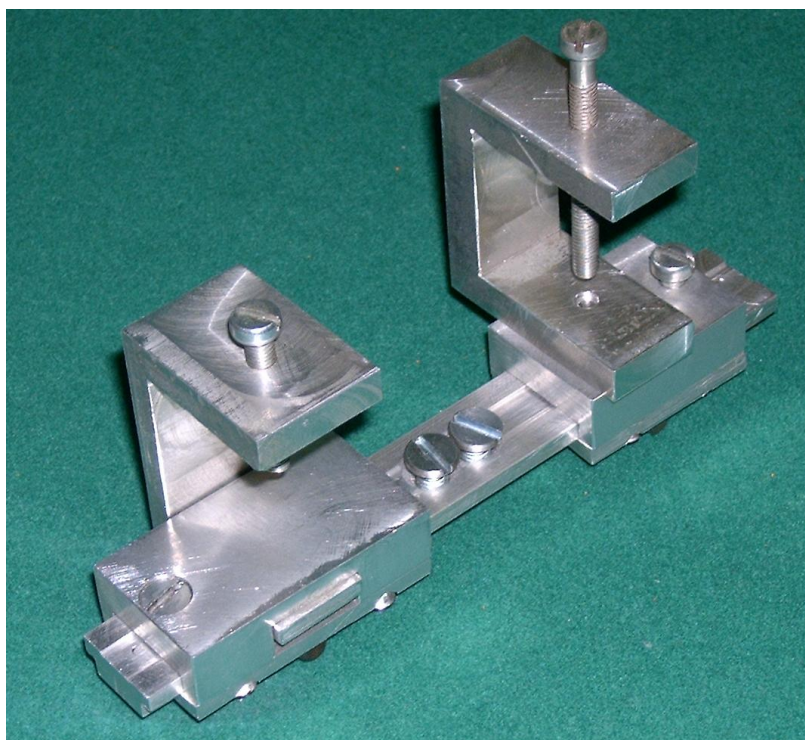


1.3. ábra A goniométerre szerelt talapzat

Az eszköznek állítható magasságúnak kellett lennie. Ezt úgy oldottuk meg, hogy az eszköznek a goniométerhez csatlakozó talapzatára, egy hosszában menetes furattal ellátott fémcső került, és egy ebbe csavarható csavar biztosítja a magasság állíthatóságát. A csavar tulajdonképpen egy menetes rúd, amelynek a tetejére egy kisebb csavarral rögzíthető a következő eleme az eszköznek. (1.3. ábra)

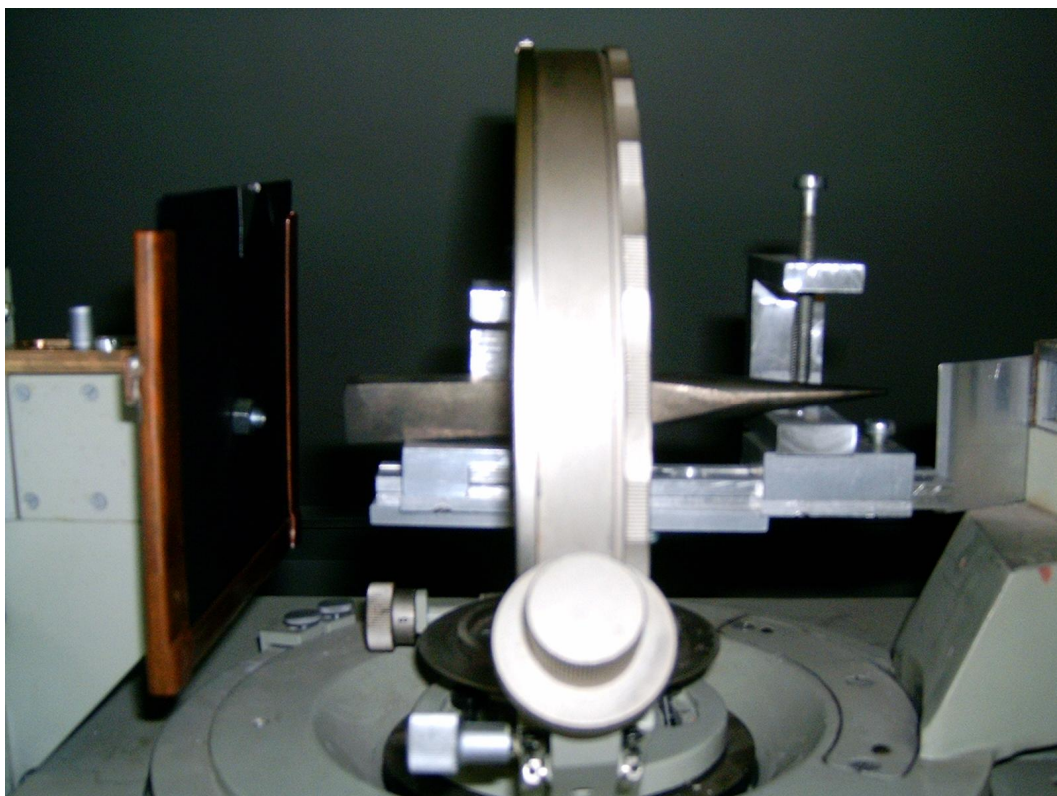
Azt, hogy a darab távolsága a síkfilmtől változtatható legyen sínen csúsztatható kocsikkal oldottam meg. A sín a magasság állító csavarhoz egy közbenső elemen keresztül csatlakozik.

A sínt a közbenső elemre két csavar rögzíti, melyeknek a sínen lévő furatai bele vannak sülyesztve a sínbe annak érdekében, hogy a sínen futó kocsik mozgását ne akadályozza kiálló csavarfej.



1.4. ábra A befogó szerkezet

A sínre két kocsi készült el. A kocsikhoz csavarokkal lehet rögzíteni a vizsgálandó darabot, és a kocsik szintén egy-egy csavarral rögzíthetők a sínhez. Rövidebb, két párhuzamos felülettel rendelkező darabokat lehet csak az egyik kocsi használatával rögzíteni. Hosszabb, kúpos felülettel rendelkező daraboknál mindkét kocsit használni kell a stabil rögzítéshez. Ezt a stabilitást a kocsik mozgásával, bármely próbadarabnál biztosítani lehet, és a darab megfelelő felületének a filmtől való távolsága is állítható. A befogó eszköz alumíniumból készült el. (1.4. ábra)



1.5. ábra Az összeszerelt mérőhely

A nem orientáltan növesztett egykristályok

H030228 kísérlet:

- Kapszula: hengeres, a vége kúpos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 3 mm/h-val
- Hűtés

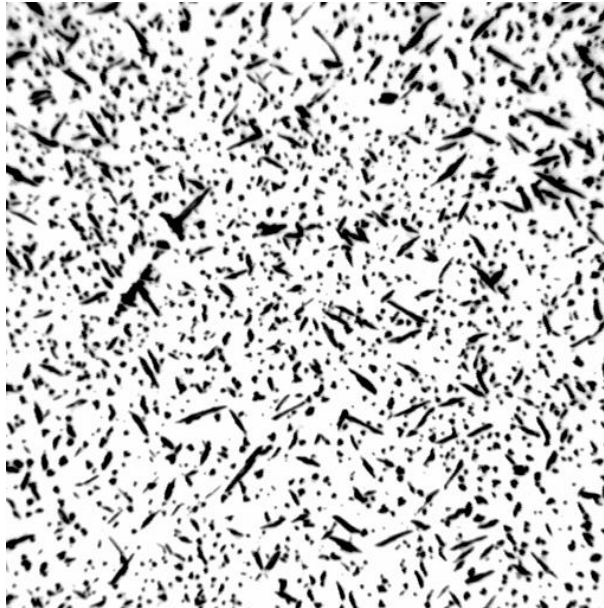
A kísérlet adatlapja

1.1.4. General properties	
Apparatus: UMC	Date: 28.02.2003
Operator: Zsolt Veres	Duration:
Data file name: h030228	Code:
1.1.5. Setpoint properties	
File name: h030228	Type:
Step 1	Heat 200K/h 640 °C all zones
	Heat 200K/h 730 °C 1-11 zones
	Heat 200K/h 820 °C 1-10 zones
	Heat 200 K/h 910 °C 1-9 zones
	Heat 200 K/h 1000 °C 1-8 zones
Step 2	Translation melth 20mm/h 135mm
Step 3	Hold 10800s
Step 4	Translation growth 3 mm/h 165mm
Step 5	Cool 200H/h 0 °C

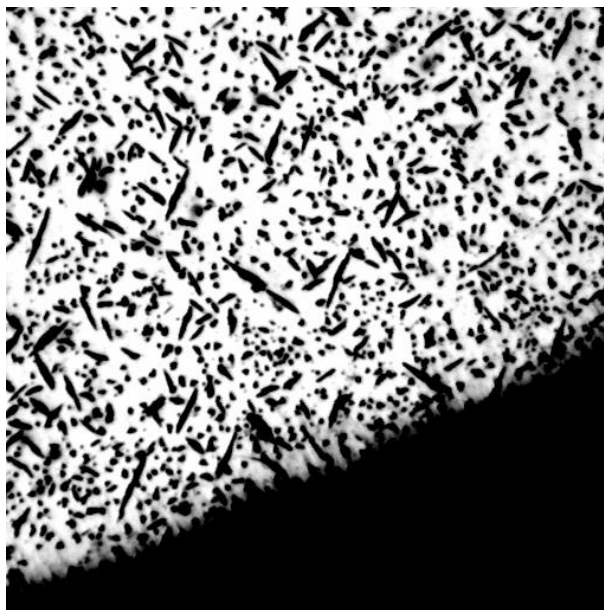
Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

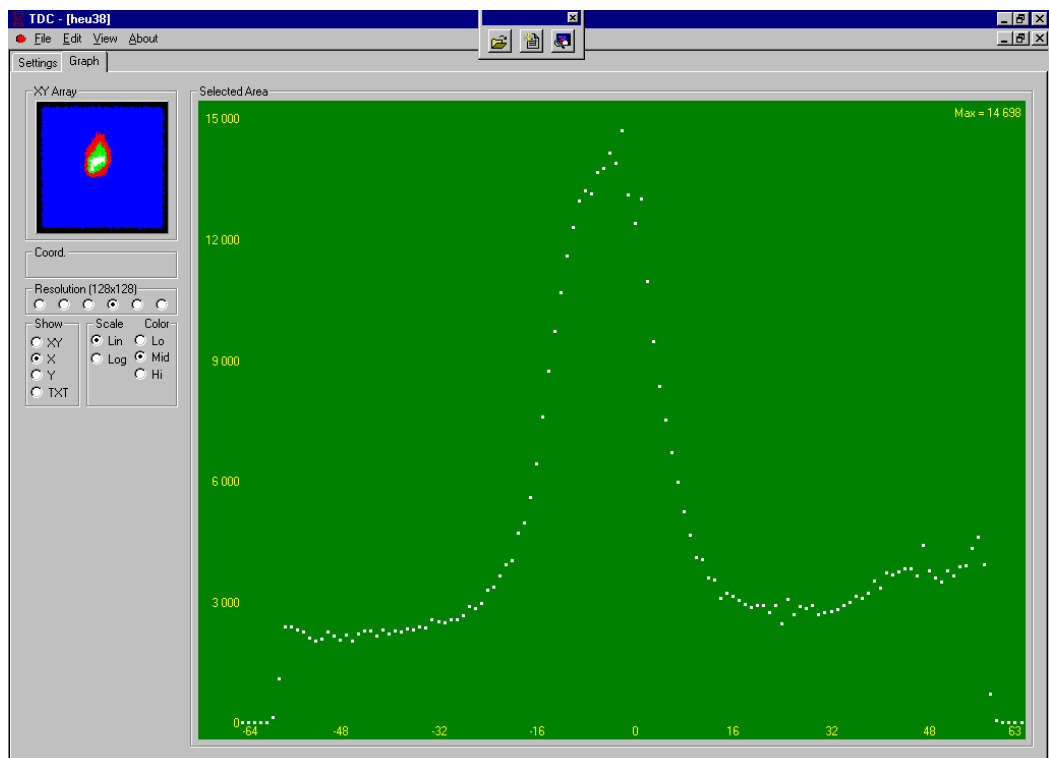
A kivett darab egy kristályból áll. Ezt bizonyítják a fénymikroszkópos és a neutron-diffrakciós vizsgálatok. A darab mozaicitása a hossz mentén a növekedés irányában növekszik. Értéke $1,5-2,5^\circ$.



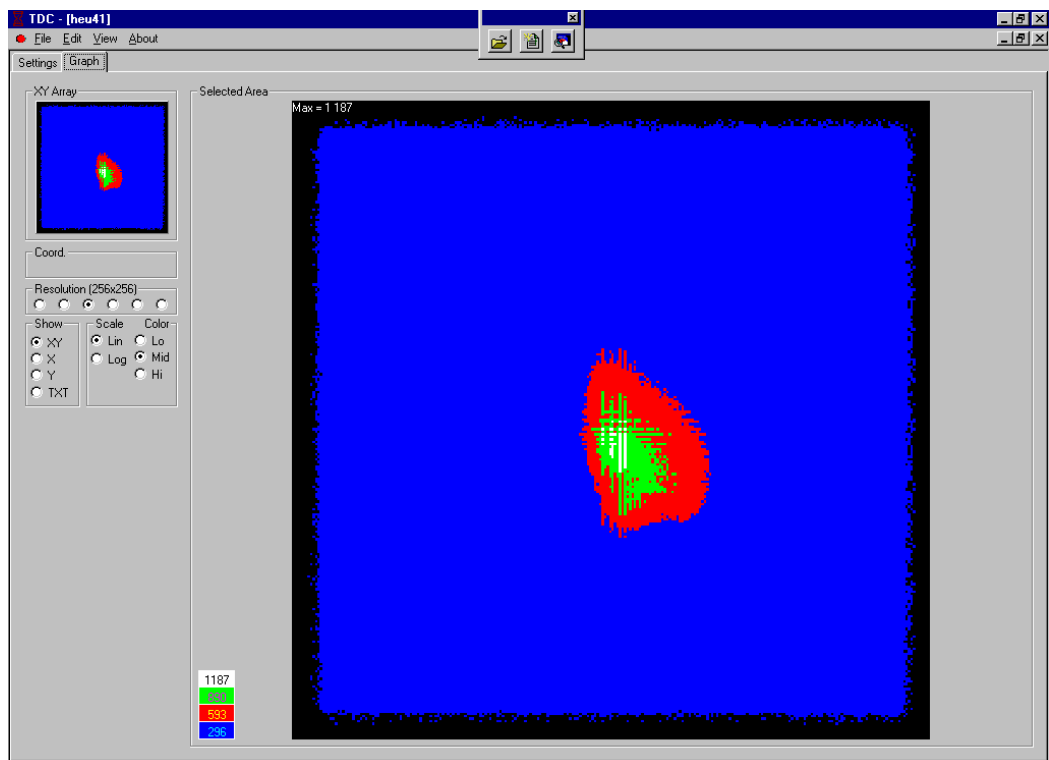
2.1. ábra A darab közepe



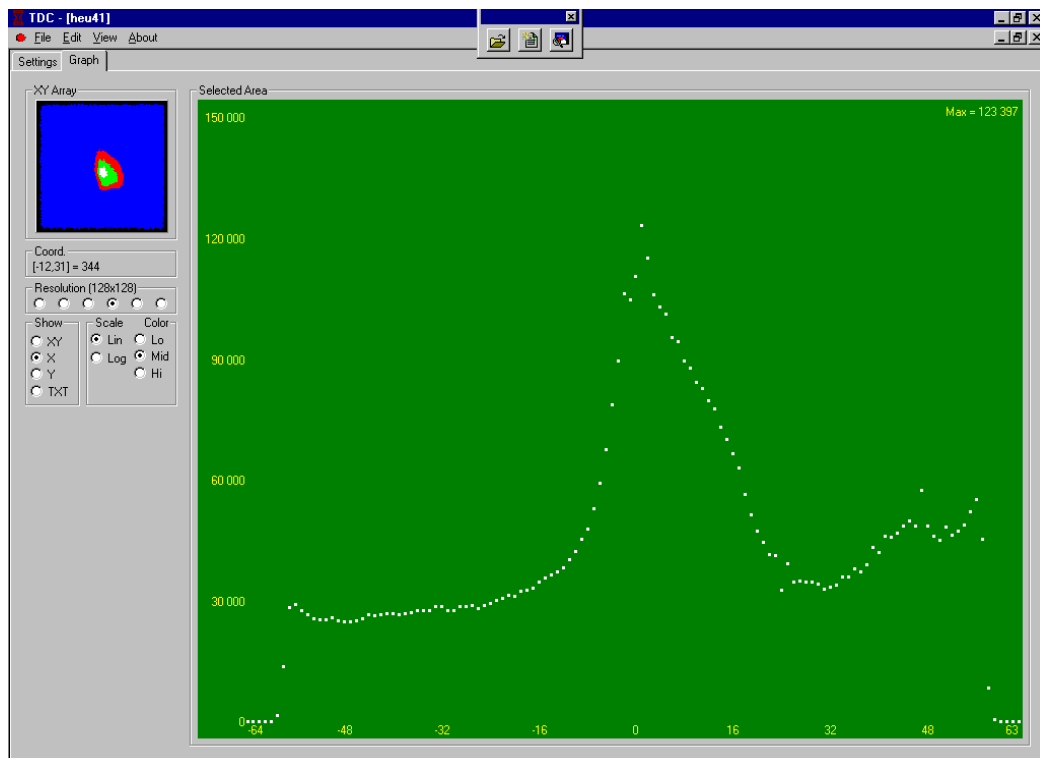
2.2. ábra A darab széle



2.3. ábra Intenzitás-eloszlás a darab csúcsánál



2.4. ábra Kétdimenziós neutronszórási kép a darab végénél



2.5. ábra Intenzitás-eloszlás a darab végénél

h030311 kísérlet

- Kapszula: hengeres, a vége kúpos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 3 mm/h-val 60mm-en keresztül, majd 5 mm/h
- Hűtés

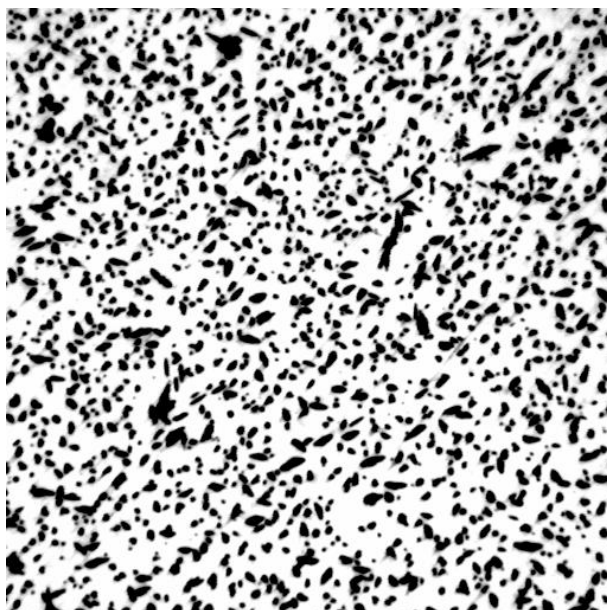
A kísérlet adatlapja:

1.1.6. General properties	
Apparatus: UMC	Date: 11.03.2003
Operator: Zsolt Veres	Duration:
Data file name: h030311	Code:
File name: h030311	Type:
Step 1	Heat up 200K/h 520 °C all zones
	Heat up 200K/h 640 °C 1-7 zones
	Heat up 200K/h 760 °C 1-6 zones
	Heat up 200 K/h 880 °C 1-5 zones
	Heat up 200 K/h 1000 °C 1-4 zones
Step 2	Translation melth 20mm/h 165mm
Step 3	Hold 10800s
Step 4	Translation growth 3 mm/h 60mm
Step 5	Translation growth 5mm/h 105mm
Step 5	Cool down 200H/h 0 °C

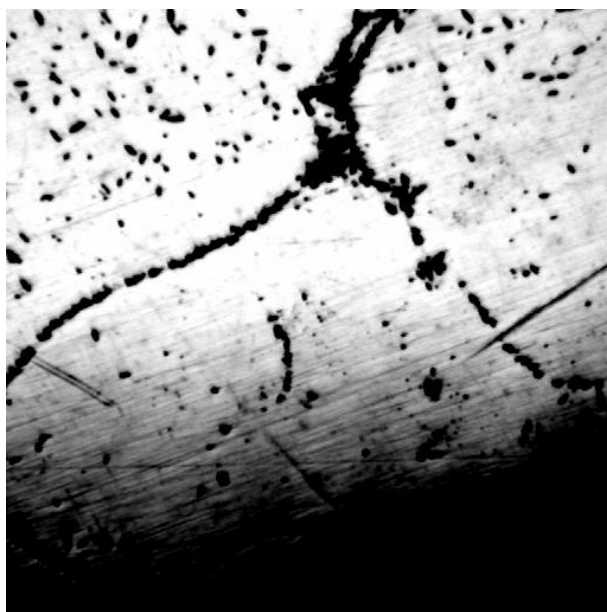
Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

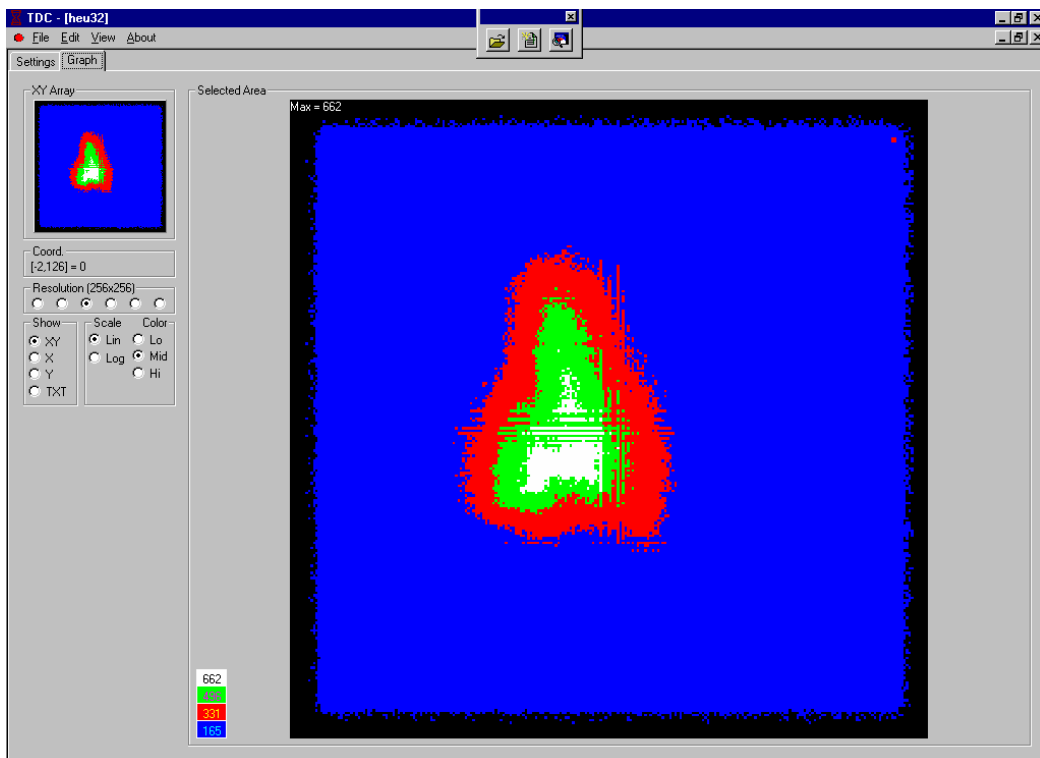
A kivett darab egy nagy kristályból és a darab tetején néhány nagyon apró kristályból áll. Ezek keletkezésének az oka, hogy a kerámia, amit a kísérlet során használtunk már két alkalommal volt használva, aminek következtében a falán apró csíráképző szennyeződések voltak találhatóak. A kísérletek alapján ezek salétromsavval eltávolíthatók.



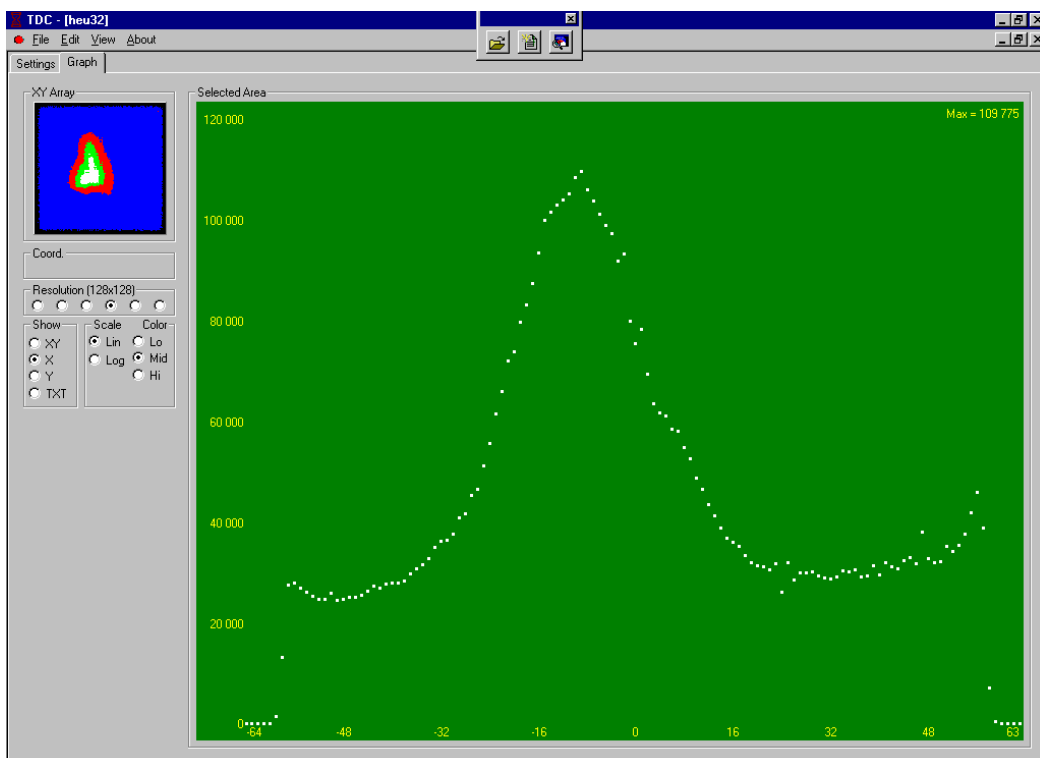
2.6. ábra A darab közepe



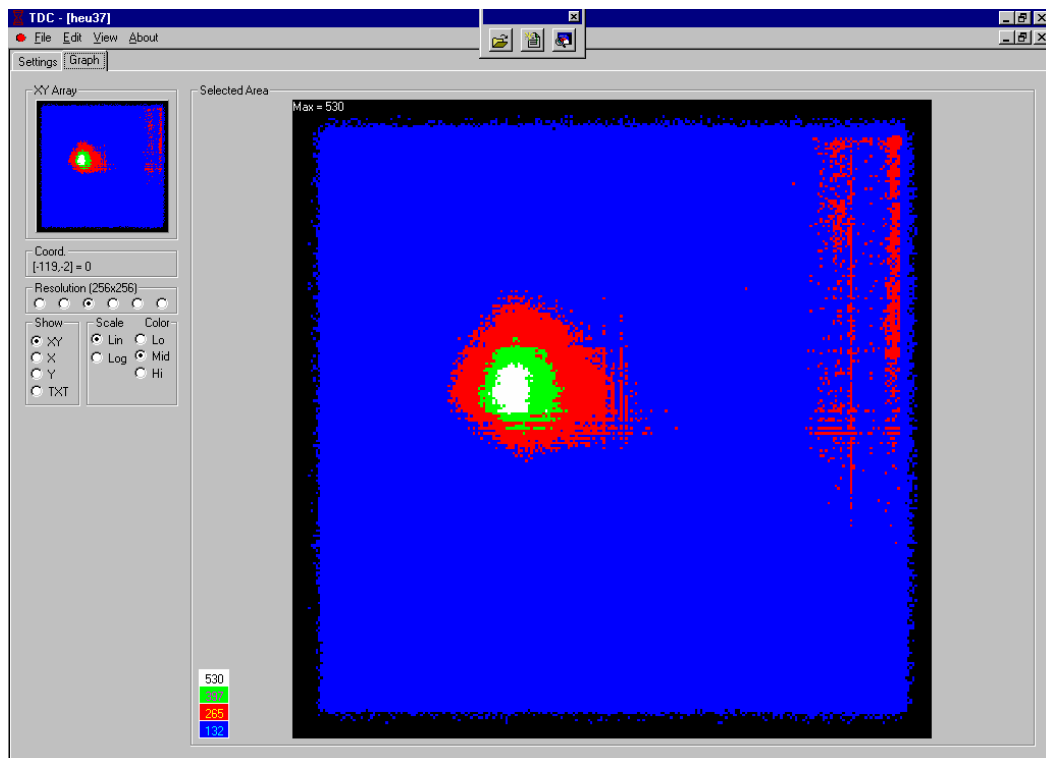
2.7. ábra A darab széle



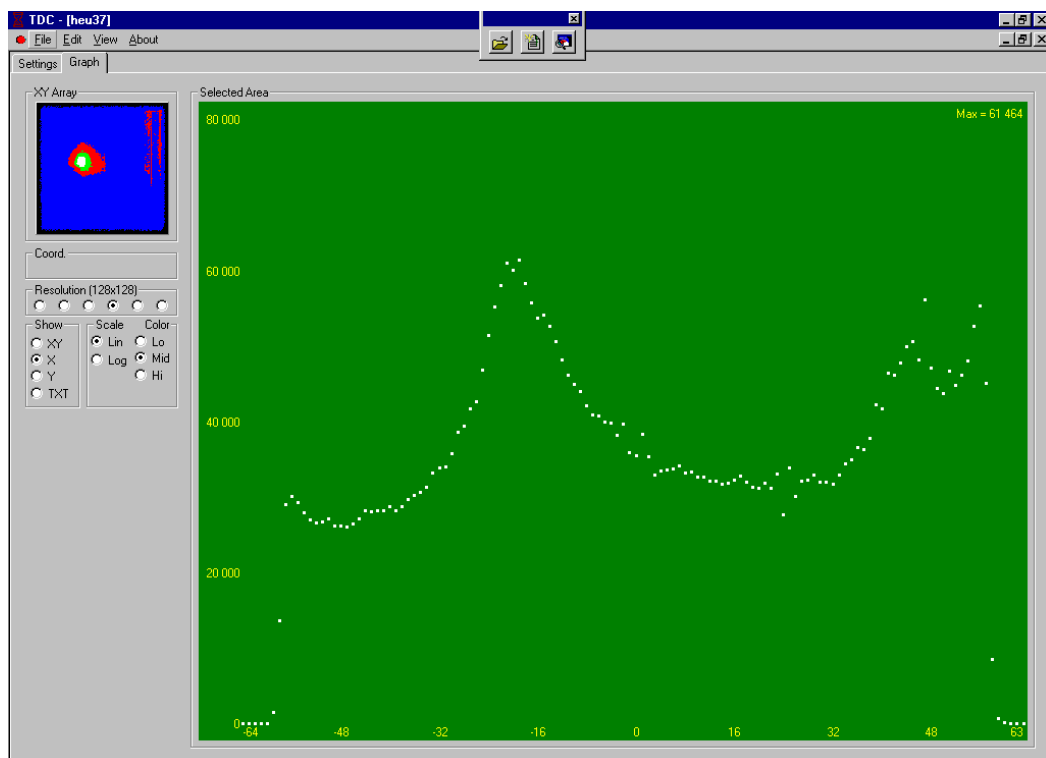
2.8. ábra Kétdimenziós neutronszerési kép a darab csúcsánál



2.9. ábra Intenzitás-eloszlás a darab csúcsánál



2.10. ábra Kétdimenziós neutronszerési kép a darab végénél



2.11. ábra Intenzitás-eloszlás a darab csúcsánál

h030527 kísérlet

- Kapszula: szögletes, a vége kúpos
- Darab: szögletes, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

A kísérlet adatlapja:

Experimental datasheet

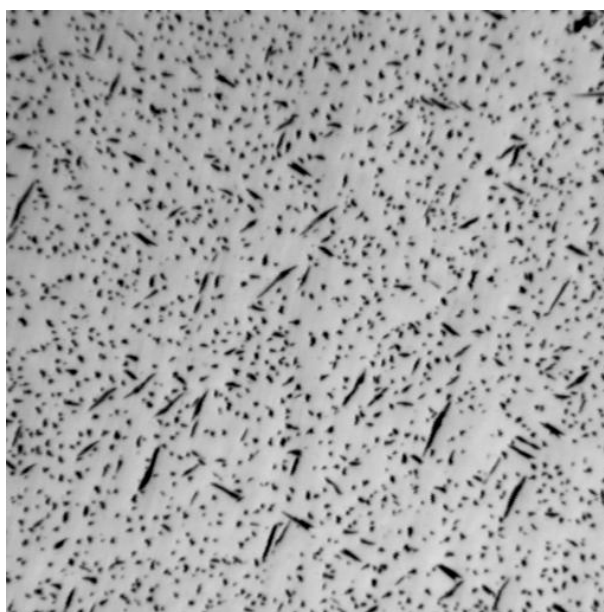
1.1.7. General properties	
Apparatus: UMC	Date: 27.05.2003
Operator: Zsolt Veres	Duration: 103 h
Data file name: h030527	Code:
Code: h030527	Composition:
1.1.8. Setpoint properties	
File name: h030527	Type:
Step 1	Heat up 200K/h 620 °C 24 zones
	Heat up 200K/h 720 °C 23 zones
	Heat up 200K/h 820 °C 1-22 zones
	Heat up 200K/h 880 °C 1-6 zones
	Heat up 200K/h 940 °C 1-5 zones
	Heat up 200 K/h 1000 °C 1-4 zones
Step 2	Translation melth 20mm/h 165mm

Step 3	Hold 10800s
Step 4	Translation growth 2 mm/h 165mm
Step 5	Cool down 200H/h 0 °C

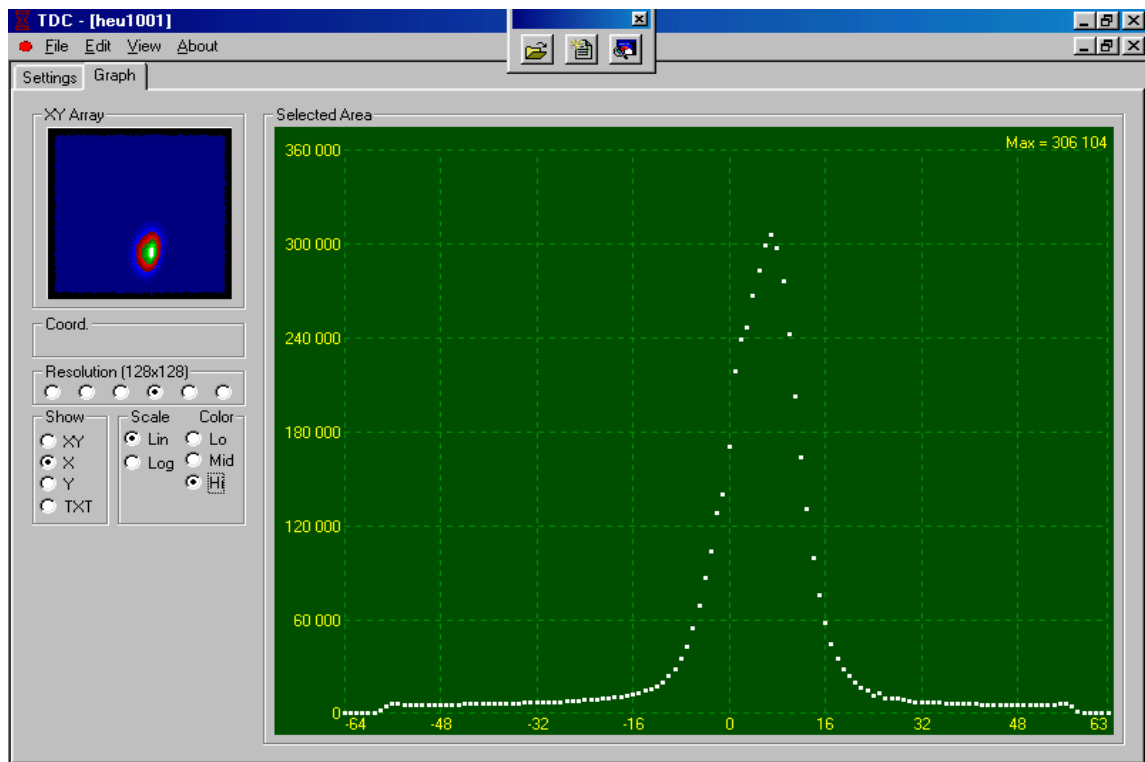
Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

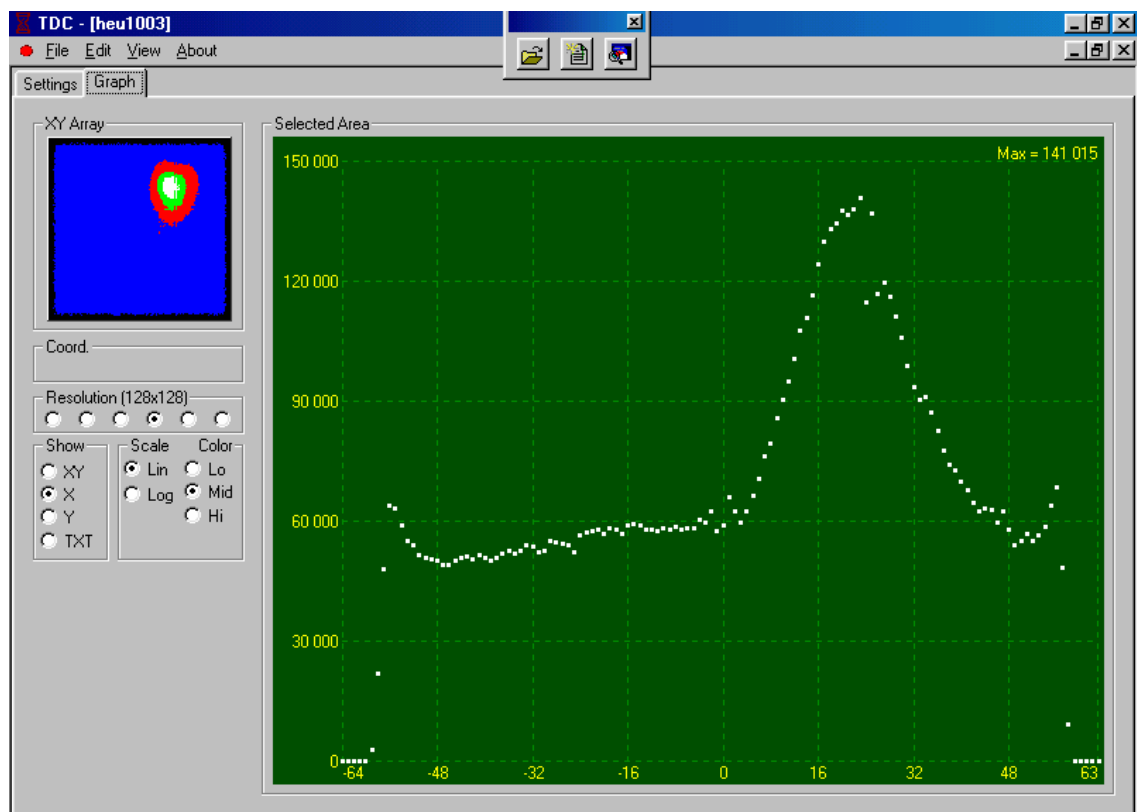
A kivett darab egy kristályból áll. Ezt bizonyítják a fénymikroszkópos és neutrondiffrakciós vizsgálatok.



2.12. ábra A darab belseje



2.13. ábra A [024] síksorozatról készült intenzitás eloszlás diagramm



2.14. ábra A [224] síksorozatról készült intenzitás eloszlás diagramm

h030617 kísérlet

- Kapszula: szögletes, a vége kúpos
- Darab: szögletes, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

A kísérlet adatlapja:

Experimental datasheet

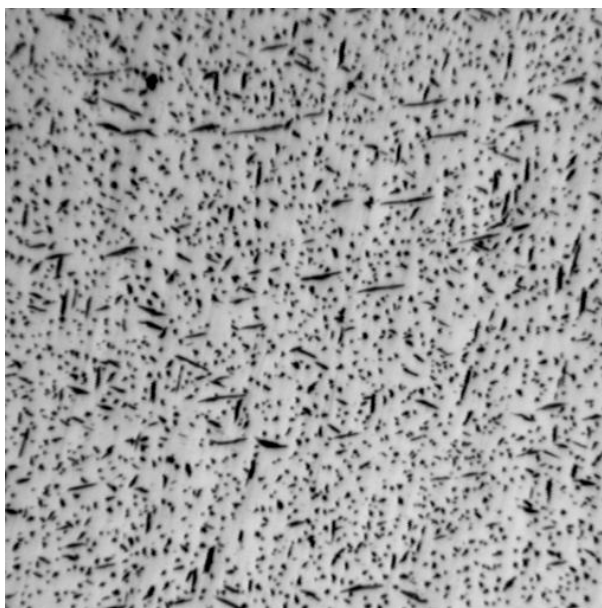
1.1.9. General properties	
Apparatus: UMC	Date: 17.06.2003
Operator: Zsolt Veres	Duration: 103 h
Data file name: h030617	Code:
Code: h030617	Composition:
1.1.10. Setpoint properties	
File name: h030617	Type:
Step 1	Heat up 200K/h 520 °C 24 zones
	Heat up 200K/h 720 °C 23 zones
	Heat up 200K/h 820 °C 1-22 zones
	Heat up 200K/h 880 °C 1-6 zones
	Heat up 200K/h 940 °C 1-5 zones
	Heat up 200 K/h 1000 °C 1-4 zones
Step 2	Translation melth 20mm/h 165mm
Step 3	Hold 10800s

Step 4	Translation growth 2 mm/h 165mm
Step 5	Cool down 200H/h 0 °C

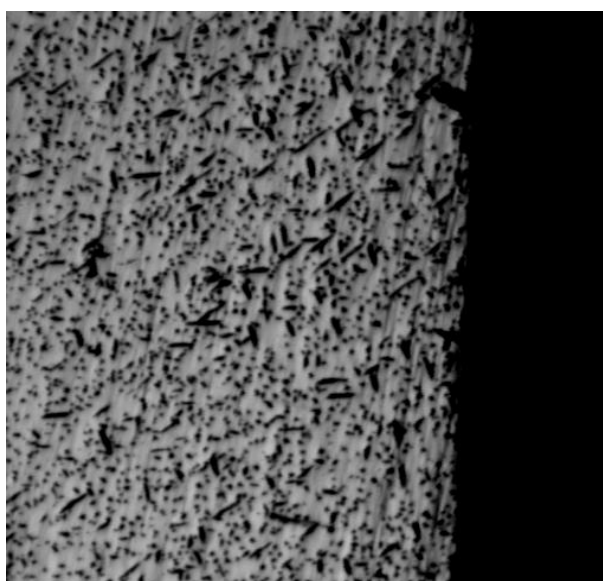
Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

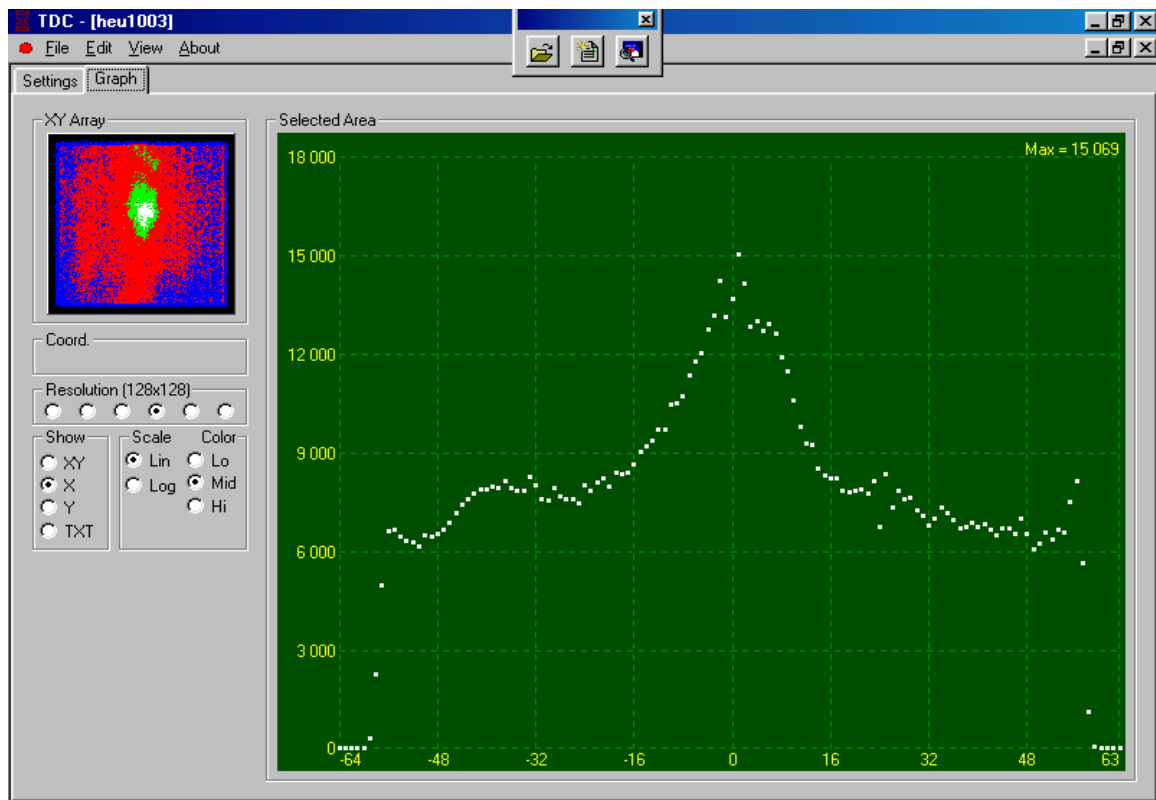
A kivett darab egy kristályból áll. Ezt bizonyítják a fénymikroszkópos és a neutrondiffrakciós vizsgálatok.



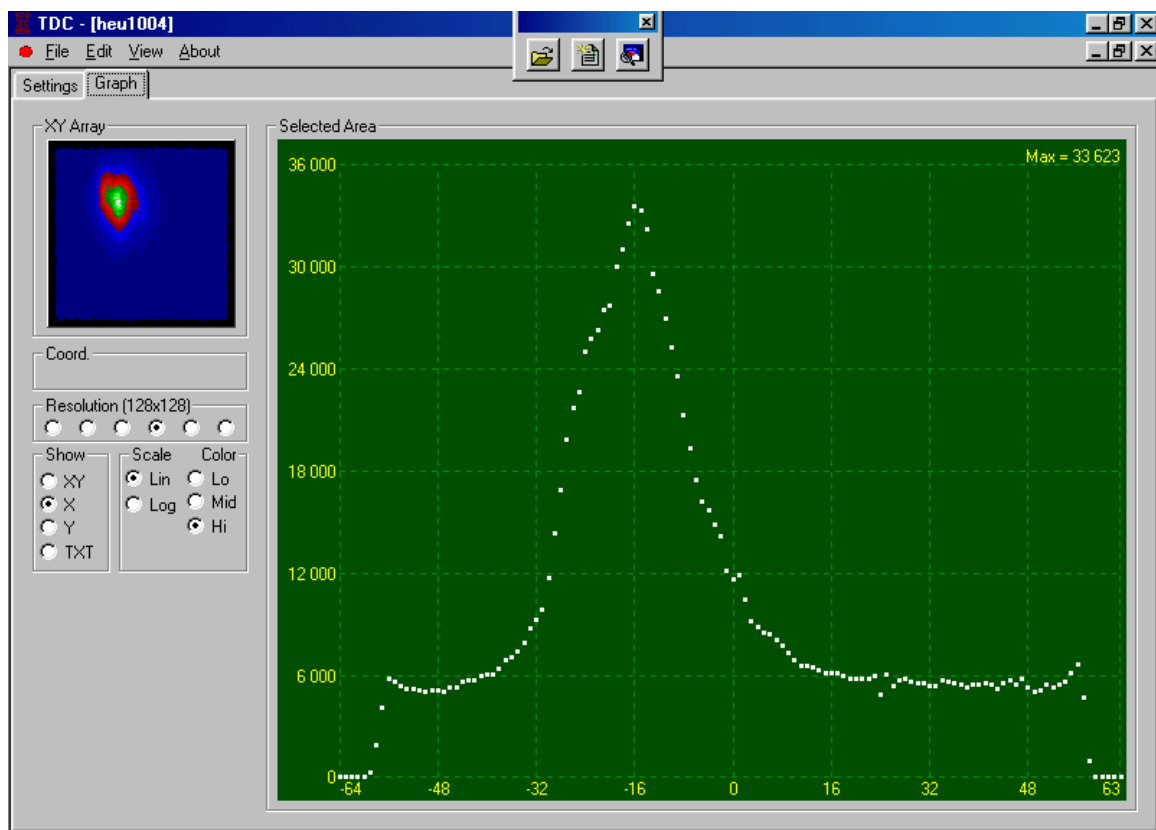
2.15. ábra A darab belseje



2.16. ábra A darab széle



2.17. ábra A darab [222] síksorozatáról készült intenzitás eloszlás diagramm



2.18. ábra Intenzitás eloszlás diagramm

H040414 kísérlet:

- Kapszula: szögletes, a vége kúpos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

1.1.11. General properties	
Apparatus: UMC	Date: 14.04.2004
Operator: Zsolt Veres	Duration: 103 h
Data file name: h040414	Code:
1.1.12. Sample properties	
Code: h040414	Composition:
Dimensions:	Weight:
1.1.13. Setpoint properties	
File name: h040414	Type: dat
Step 1	Heat up 200K/h 770 °C 1-24 zones
	Heat up 200K/h 820 °C 1-23 zones
	Heat up 200K/h 880 °C 1-11 zones
	Heat up 200K/h 940 °C 1-10 zones
	Heat up 200 K/h 1000 °C 1-9 zones
	Translation melth 20mm/h 165mm

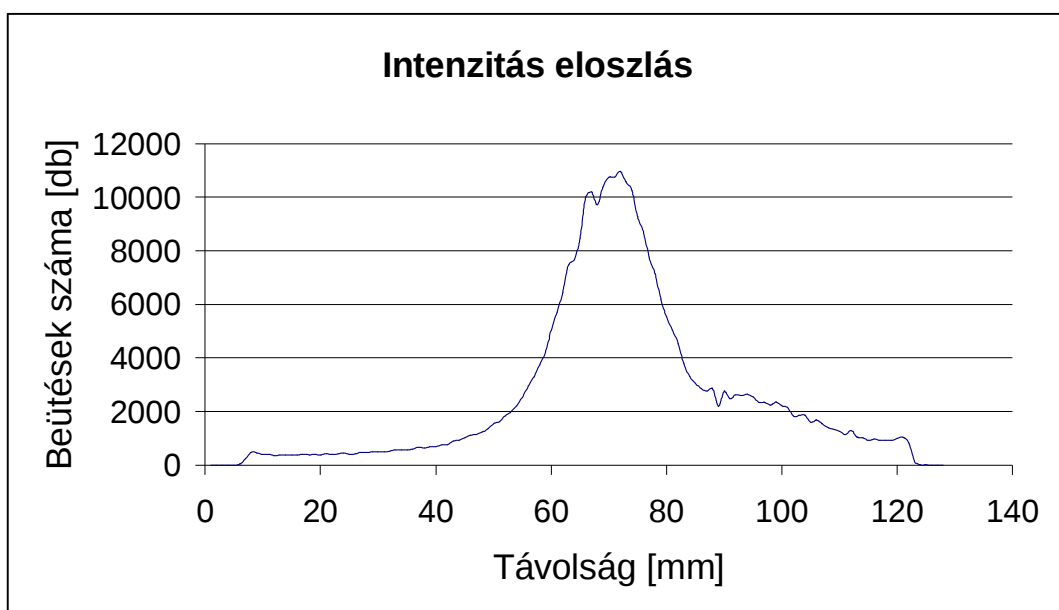
Step 2	Hold 10800s
Step 3	Translation growth 2 mm/h 165mm
Step 4	Cool down 200H/h 0 °C

Notes:

G=4 K/mm

Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.



2.19. ábra Intenzitás eloszlás a darabban

H040505 kísérlet:

- Kapszula: szögletes, a vége kúpos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

1.1.14. General properties

Apparatus: UMC

Date: 05.05.2004

Operator: Zsolt Veres

Duration: 103 h

Data file name: h040505

Code:

1.1.15. Sample properties

Code: h040505

Composition:

Dimensions:

Weight:

1.1.16. Setpoint properties

File name: h040505

Type: dat

Step 1 Heat up 200K/h 800 °C 1-24 zones

Heat up 200K/h 850 °C 1-23 zones

Heat up 200K/h 880 °C 1-12 zones

Heat up 200K/h 910 °C 1-11 zones

Heat up 200 K/h 940 °C 1-10 zones

Heat up 200 K/h 970 °C 1-9 zones

Step 2 Hold 10800s

Step 3	Translation growth 2 mm/h 165mm
Step 4	Cool down 200H/h 0 °C
Step 5	

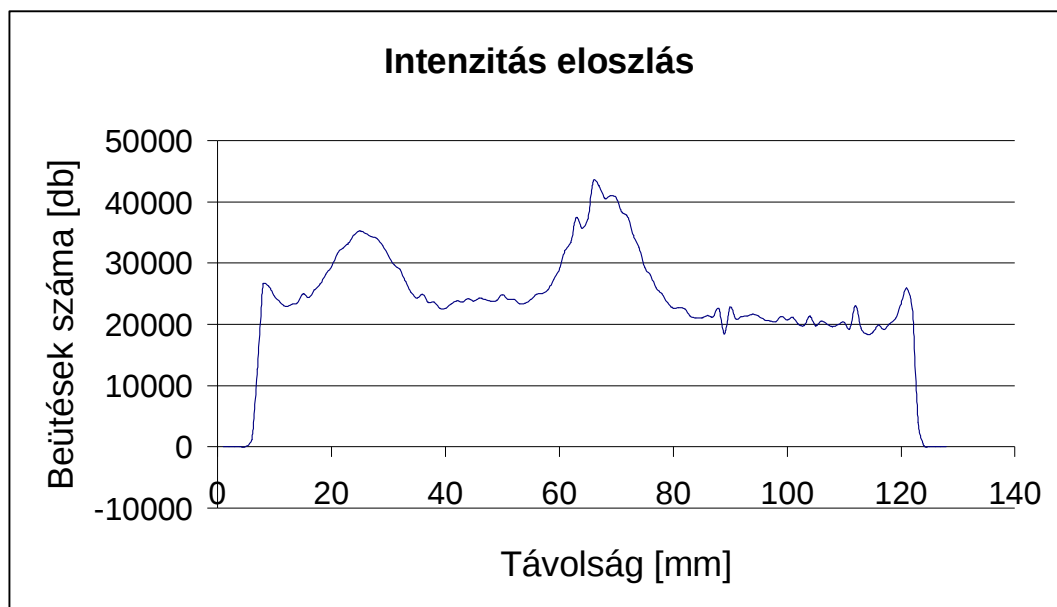
Notes:

G=2 K/mm

Kiértékelés:

A darab kivételkor tiszta, sima felszínű volt, a kapszulából könnyedén kicsúszott. A kemence belsejében a grafit alkatrészek és a kerámia külső falán fémes bevonat volt található. A Mn egy része elpárolgott a kristályosítás során, és az alacsonyabb hőmérsékletű felületeken kicsapódott.

A darab mozaicitása 1,3°, de két ikerkristályból áll, amelyek között 4°-os eltérés található.



2.20. ábra Intenzitás eloszlás a darabban

3. Melléklet

Orientáltan növesztett egykristályok

Hm041221 kísérlet:

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, erősen lötyög a kapszulában
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

1.1.17. General properties

Apparatus: UMC

Date: 21.12.2004

Operator: Zsolt Veres

Duration: 110 h

Data file name: h041221

Code:

1.1.18. Sample properties

Code: hm041221

Composition:

Dimensions:

Weight:

1.1.19. Setpoint properties

File name: hm041221

Type: dat

Step 1 Heat up 50K/h 800 °C 1-24 zones

Heat up 50K/h 860 °C 1-12 zones

Heat up 50K/h 920 °C 1-11 zones

Heat up 50 K/h 980 °C 1-10 zones

Step 2 Translation melth 20K/h 165mm

Step 3 Hold 10800s

Step 4 Translation growth 2 mm/h 165mm

Step 5 Cool down 200H/h 0 °C

Kiértékelés

A darab teljes hosszában átolvadt. A magnak nem volt átolvadt része, ennek az oka, hogy más a hőmérséklet-eloszlás a darab belsejében, mint a kemence falán. A kemence szabályozása a kemence falán elhelyezkedő termoelemek által szolgáltatott adatok alapján történik.

A darab teste és a mag összehegedt, de nem a teljes érintkezési felületen.

Az előzőek miatt a darab sokkristályos lett.



3.1. ábra Az összehegedt darab és magkristály

Hm050601 kísérlet:

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, erősen lötyög a kapszulában
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

A kísérlet adatlapja

1.1.20. General properties

Apparatus: UMC-HT

Date: 2005.06.01.

Operator: Janos Szoke

Duration: 72h 18min

Data file name: hm050601.dat

Code:

1.1.21. Sample properties

Code: Heusler

Composition: Heusler

Dimensions: 150*25 mm

Weight:

1.1.22. Setpoint properties

File name: hm050601.dat

Type: data

Step 1 Heat up with 100K/h to 400 °C

Step 2 Heat up with 200K/h to 800 °C

Step 3 Making the profile from 10. to 13. zone

Step 4 Moving profile (melt) to zone 23. with 20 mm/h

Step 5 Hold temperature for 3 hours

Step 6 Moving profile (growth) with 2 mm/h through 60 mm

Step 7 Moving profile (growth) with 3 mm/h through 60 mm

Step 8 Cool down with 200K/h

Notes:

Step 3: the gradient is 4 K/mm; zone 10. at 980 °C, zone 13 at 800 °C

Material TCs: distance from sample holder bottom: TC1: 150 mm

TC2: 120 mm

TC3: 105 mm

TC4: 95 mm

Kiértékelés

A kristályosító kapszula a kísérlet során széttört.

A darab teljesen átolvadt, a magkristálynak legfeljebb a felső felülete olvadt meg annyira, hogy a darabbal teljes egészében összenőjön. Ennek az oka az lehetett, hogy bár az előző kísérletből okulva a kristályosítási frontot egy zónányival lejjebb mozgattam, a kapszula szétrepedése miatt, az olvadt fém kívülről körbe vette a kapszula alját és ismét más hőviszonyokat teremtett (2. ábra).

Mint utóbb .kiderült a kapszulák töréséért a kapszulák pontatlan gyártása volt a felelős. A kúpos rész kúpszöge 1° -al kisebb volt a terven szereplőnél, ezért a darab egy ponton felült a kapszulában. Mivel a fém hőtágulási együtthatója nagyobb, mint a kerámiáé, a melegítés hatására a Heusler szétnyomta a kapszulát.

Először arra gondolta, hogy a darab helytelen megmunkálása miatt feszítette szét a kapszulát, csak miután még egy kapszula összetört, öntöttem wood fémet egy ép kapszulába. Ekkor tudtam lemérni a kerámia kapszula belsejének a méreteit.



3.2. ábra A hm050601-es kísérlet szétszedése

Hm050718 kísérlet:

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, jól illeszkedik a kapszulába
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

A kísérlet adatlapja

1.1.23. General properties	
Apparatus: UMC-HT	Date: 2005.07.18
Operator: Janos Szoke	Duration: 96h 18min
Data file name: hm050718.dat	Code:
1.1.24. Sample properties	
Code: Heusler	Composition: Heusler
Dimensions: 150*25 mm	Weight:
1.1.25. Setpoint properties	
File name: hm050718.dat	Type: data
Step 1	Heat up with 100K/h to 400 °C
Step 2	Heat up with 200K/h to 800 °C
Step 3	Making the profile from 10. to 13. zone
Step 4	Moving profile (melt) to zone 23. with 20 mm/h
Step 5	Hold temperature for 3 hours
Step 6	Moving profile (growth) with 2 mm/h through 150 mm
Step 7	Cool down with 200K/h

Notes:

Step 3: the gradient is 4 K/mm; zone 10. at 980 °C, zone 13 at 800 °C

Material TCs: distance from sample holder bottom: TC1: 150 mm

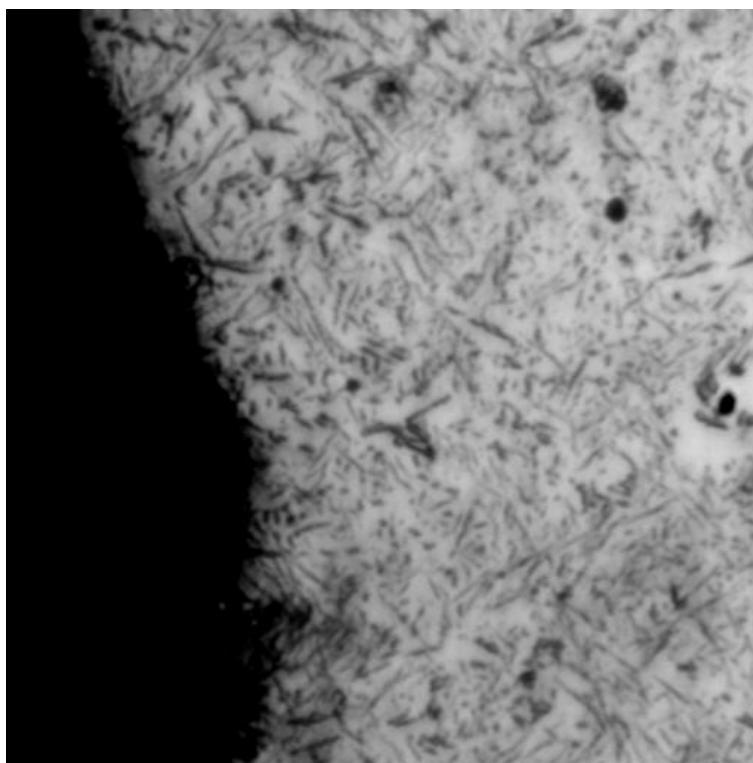
TC2: 120 mm

TC3: 105 mm

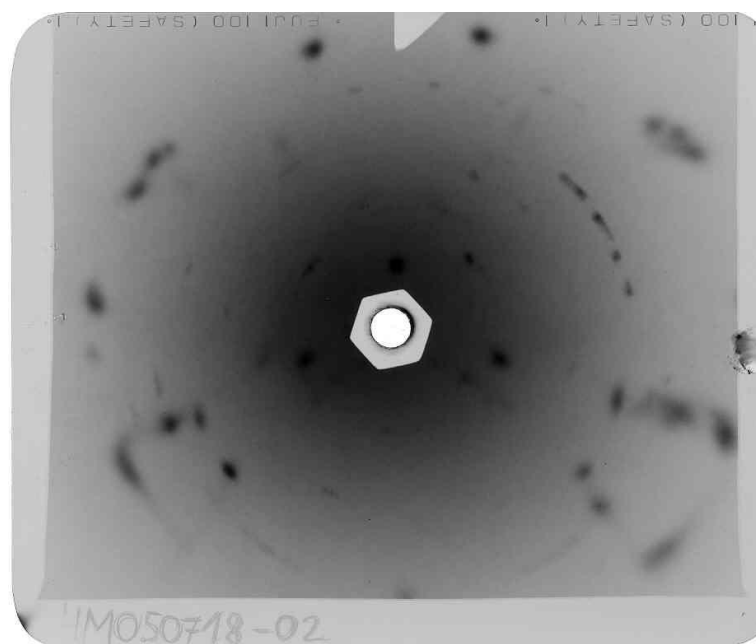
TC4: 95 mm

Kiértékelés

A kapszula ezúttal is szétrepedt a fentebb tárgyalt ok miatt. A darab teljesen átolvadt, a mag felső fele átolvadt, ez szabad szemmel is jól látható. A darabnak az a része, amelyik megmaradt, tehát a kapszula repedésének a helye alatti rész, a magkristályával megegyező orientációjú egykristály lett. Ezt bizonyítják a fénymikroszkópos (3. ábra) és az előző kísérlet esetében már ismertetett módon készült Laue felvételek is (4., 5. ábra).



3.3. ábra A darab teste és a magkristály találkozása



3.4. ábra A magkristály át nem olvadt, alsó részéről készült Laue-felvétel



3.5. ábra A darab testéről készült Laue-felvétel

Hm051121

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, jól illeszkedik a kapszulába
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

1.1.26. General properties

Apparatus: UMC-HT

Date: 2005.11.21.

Operator: Peter Szirovicza

Duration: 97h 18min

Data file name: hm051121.umc

Code: hm051121

1.1.27. Sample properties

Code: Heusler

Composition: Heusler

Dimensions: ø25*150 mm

Weight:

1.1.28. Setpoint properties

File name: hm051121.dat

Type: gradient

Step 1 Heat up with 100K/h to 400 °C

Step 2 Heat up with 200K/h to 800 °C

Step 3 Making the profile from 10. to 13. zone

Step 4 Moving profile (melt) to zone 23. with 20 mm/h

Step 5 Hold temperature for 3 hours

Step 6 Moving profile (growth) with 2 mm/h through 150 mm

Step 7 Cool down with 200K/h

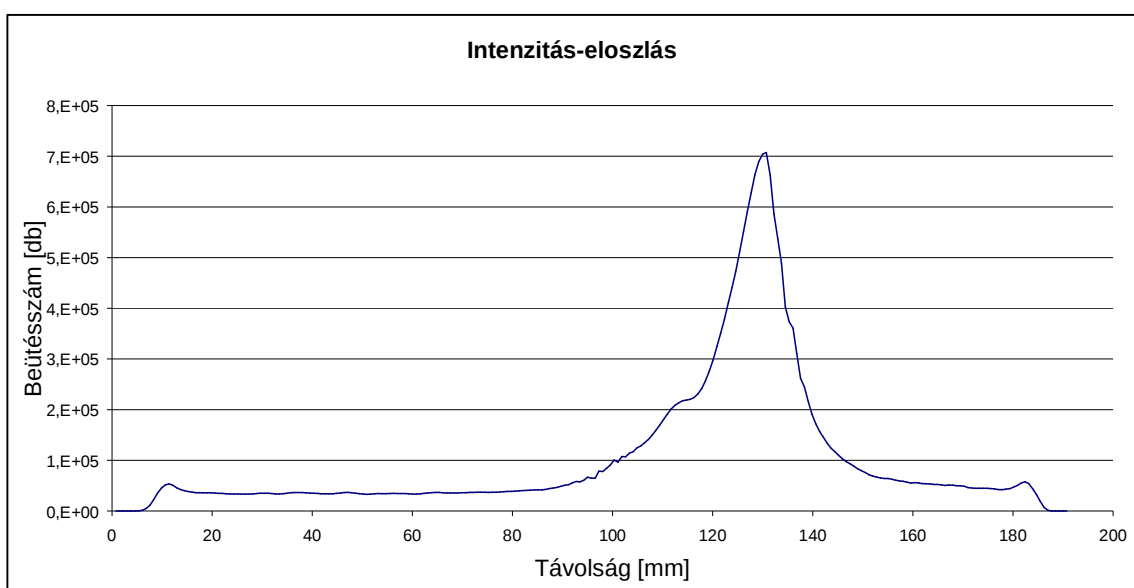
Notes:

Step 3: the gradient is 4 K/mm; zone 10. at 980 °C, zone 13 at 800 °C

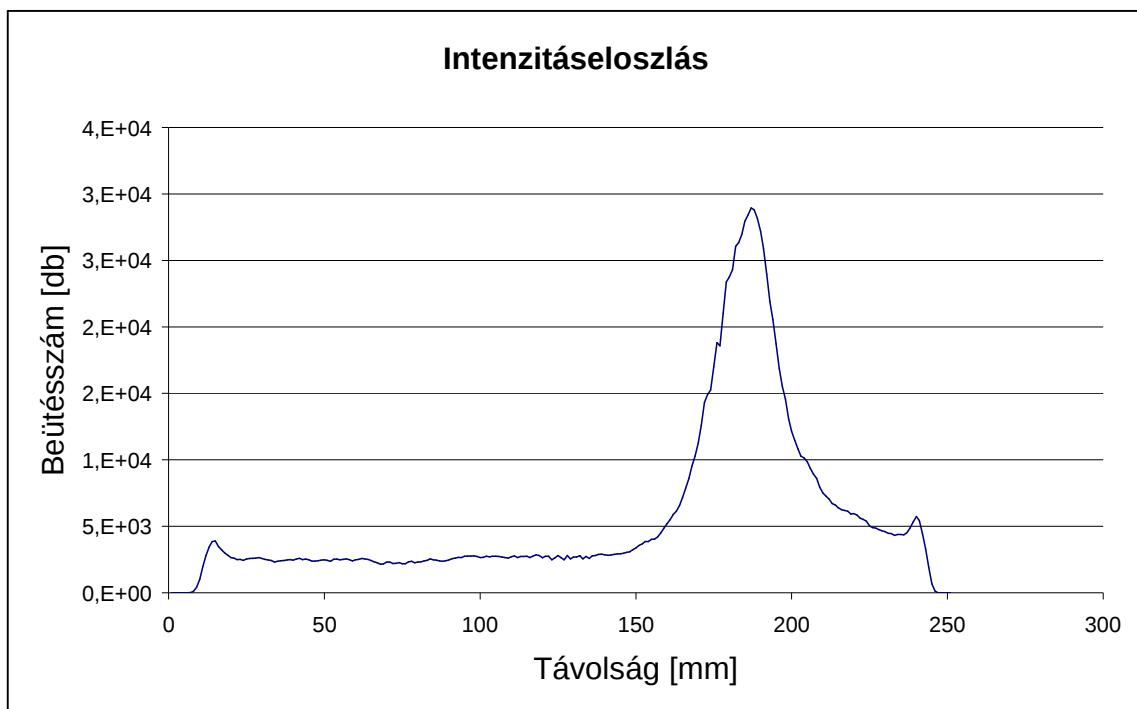
Kiértékelés

A darab teljes hosszában átolvadt, a magnak több mint a fele megolvadt, de az alján 4-5mm hosszan maradt szilárd rész is. Az előre bejelentett áramszünet miatt a kísérlet idejét le kellett rövidíteni, emiatt a darab felétől felfelé a kristályosítási sebességet 2 mm/h-ról 3 mm/h-ra növeltem. A sebességváltás határa látszik a fénymikroszkópos felvételeken is. Egy vízszintes vonal formájában jelentkezik. Neutrondiffrakciós vizsgálatoknál ez abban érzékelhető, hogy e fölött a vonal fölött indult el egy ikerképződés, ami a kisebb sebesség mellett nem volt tapasztalható.

Ettől eltekintve a kristály egykristály. A neutrondiffrakciós vizsgálatok szerint a darab alján, ahol még nem képződött iker, a mozaicitás $0,9-1,0^\circ$ között változik, alulról felfelé monoton növekvő módon.



3.6. ábra Intenzitáseloszlás a darab aljánál



3.7. ábra Intenzitáseloszlás a darab tetejénél

Hm051206

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, jól illeszkedik a kapszulába
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

1.1.29. General properties

Apparatus: UMC-HT

Date: 2005.07.18

Operator: Janos Szoke

Duration: 98h 15min

Data file name: hm051206.dat

Code:

1.1.30. Sample properties

Code: Heusler

Composition: Heusler

Dimensions: 150*25 mm

Weight:

1.1.31. Setpoint properties

File name: hm050718.dat

Type: data

Step 1 Heat up with 100K/h to 650 °C

Step 2 Making the profile from 10. to 14. zone

Step 4 Moving profile (melt) to zone 24. with 20 mm/h

Step 5 Hold temperature for 3 hours

Step 6 Moving profile (growth) with 2 mm/h through 150 mm

Step 7 Cool down with 200K/h

Notes:

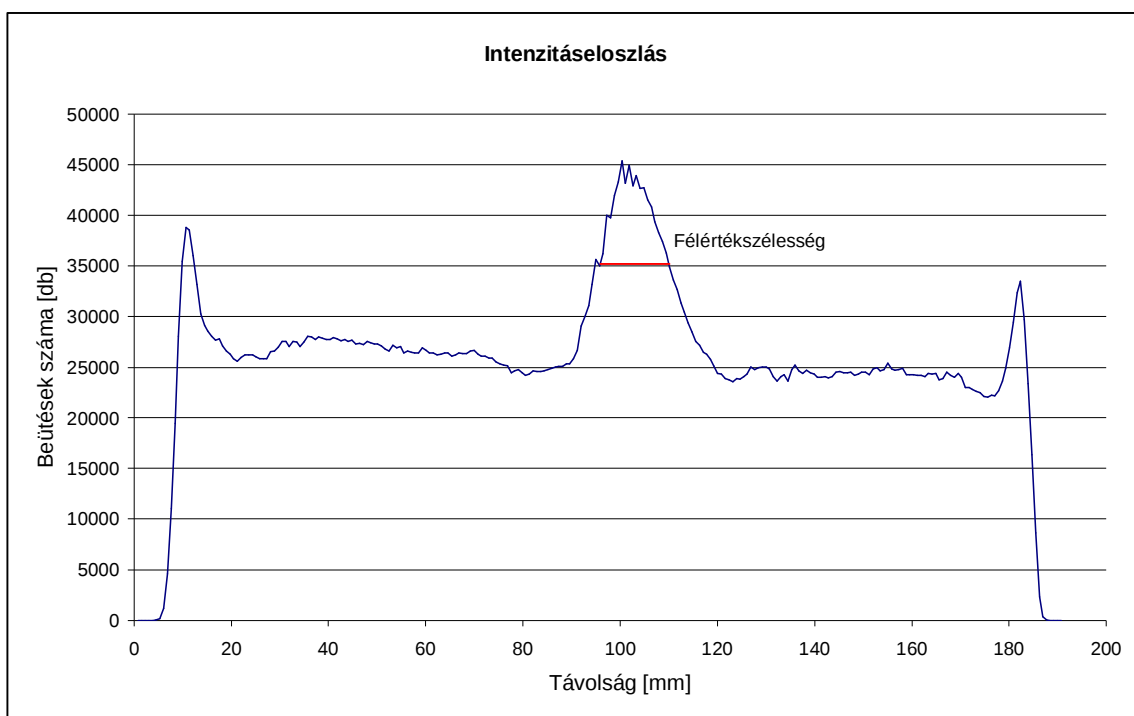
Step 3: the gradient is 6 K/mm; zone 10. at 1010 °C, zone 14 at 650 °C

Kiértékelés

A darab teljes hosszában átolvadt, a magnak több, mint a fele megolvadt, de az alján 4-5mm hosszan maradt szilárd rész is.

A kristály egykristály. A neutrondiffrakciós vizsgálatok szerint a mozaicitás 1,3-1,4° között változik, alulról felfelé monoton növekvő módon.

Mind a neutrondiffrakciós kísérletek, mind a Röntgen-Laue vizsgálatok igazolták, hogy a kristály orientációja a mag orientációjával megegyezik. Az (111) sík párhuzamos a kristály növekedésének irányával.



3.8. ábra Intenzitáseloszlás a darabban

Hm051206

- Kapszula: hengeres, magkristályos
- Darab: kúpos, a felület tiszta, a formához jól illeszkedik, 5*5*20mm-es mag, jól illeszkedik a kapszulába
- Felfűtés
- Átolvasztás: 20mm/h-val
- Kristályosítás: 2 mm/h-val
- Hűtés

Kísérleti adatlap

1.1.32. General properties

Apparatus: UMC-HT

Date: 2005.12.19

Operator: Szirovicza Péter

Duration: 99h 42min

Data file name: hm051219.dat

Code:

1.1.33. Sample properties

Code: Heusler

Composition: Heusler

Dimensions: 150*25 mm

Weight:

1.1.34. Setpoint properties

File name: hm050718.dat

Type: data

Step 1 Heat up with 100K/h to 860 °C

Step 2 Making the profile from 9. to 13. zone

Step 4 Moving profile (melt) to zone 23. with 20 mm/h

Step 5 Hold temperature for 3 hours

Step 6 Moving profile (growth) with 2 mm/h through 150 mm

Step 7 Cool down with 200K/h

Notes:

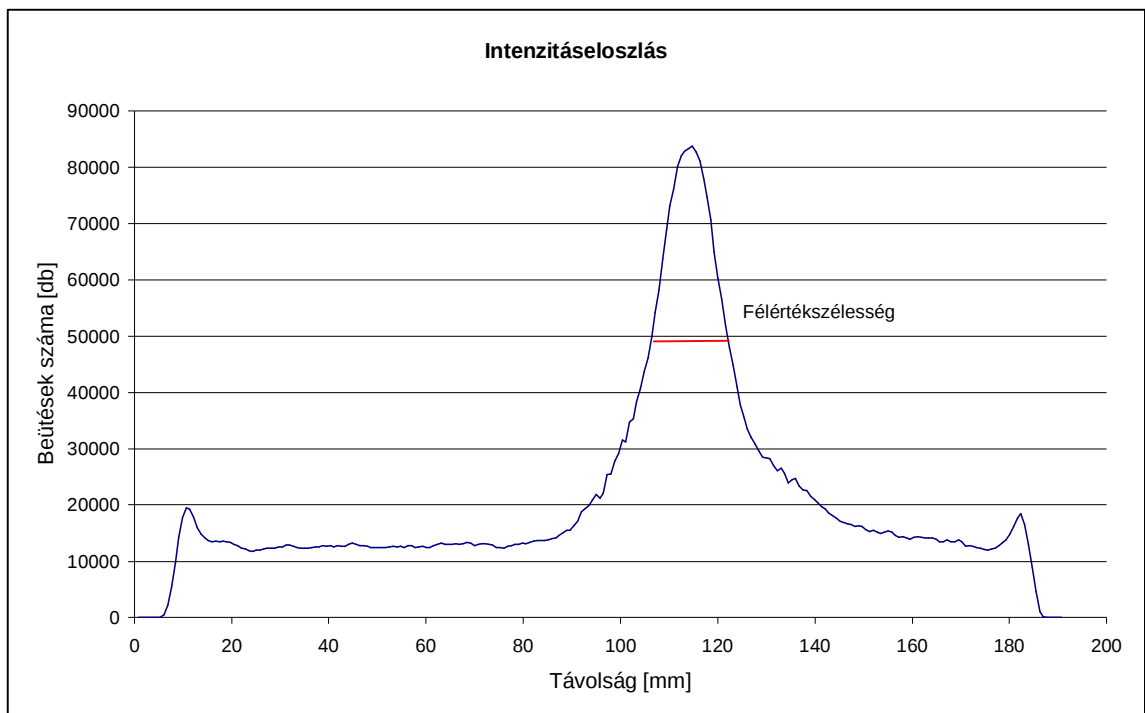
Step 3: the gradient is 2 K/mm; zone 9. at 980 °C, zone 13 at 860 °C

Kiértékelés

A darab teljes hosszában átolvadt, a magnak több, mint a fele megolvadt, de az alján 4-5mm hosszan maradt szilárd rész is.

A kristály egykristály. A neutrodiffrakciós vizsgálatok szerint a mozaicitás $0,8^\circ$.

Mind a neutrodiffrakciós kísérletek, mind a Röntgen-Laue vizsgálatok igazolták, hogy a kristály orientációja a mag orientációjával megegyezik. Az (111) sík párhuzamos a kristály növekedésének irányával.



3.9. ábra Intenzitáseloszlás a darabban