

# Abbildung von Erstarrungsprofilen mit Hilfe kurzer Ultraschallimpulse

K. BUXMANN und S. DÜRR

Institut für Metallphysik und Metallkunde der Universität des Saarlandes, Saarbrücken

(Z. Naturforsch. 23 a, 687—688 [1968]; eingegangen am 6. Februar 1968)

Es wird eine Methode zur Aufzeichnung der zeitlichen Entwicklung der Phasengrenze festflüssig während der Erstarrung von Metallen mit Hilfe kurzer, periodischer Ultraschallimpulse beschrieben. Die damit ermittelten Erstarrungsprofile stimmen in wesentlich höherem Maße mit den theoretisch geforderten überein als die nach dem üblichen Verfahren, dem Dekantieren, erzielten. In diesem Zusammenhang werden die Fehlereinflüsse beim Dekantieren kurz diskutiert.

Läßt man eine Metallschmelze bei gerichtetem Wärmeentzug erstarren, so findet eine wechselseitige Beeinflussung zwischen der Temperaturverteilung bzw. der Verteilung der Konzentration gelöster Verunreinigungen in der Umgebung der Erstarrungsfront einerseits und der Form der Phasengrenzfläche andererseits statt. Um derartige Erstarrungsvorgänge genauer verstehen und rechnerisch erfassen zu können, ist daher eine eingehende Untersuchung der zeitlichen Entwicklung der Erstarrungsfront erforderlich.

Die Standardmethode hierzu ist das Dekantierungsverfahren. Hierbei werden flüssige und bereits erstarrte Phase ruckartig voneinander getrennt, so daß die Form der Grenzfläche sichtbar wird. Besonders eingehende Untersuchungen mit dieser Methode wurden beim Ziehen von Einkristallen durchgeführt und in zahlreichen Arbeiten veröffentlicht; insbesondere sei auf die unter <sup>1-4</sup> zitierten Arbeiten verwiesen.

Abb. 1 zeigt schematisch eine derartige Erstarrungsfront, wie sie mit dem Dekantierungsverfahren ermittelt wurde. Man erkennt jene charakteristischen

säulenartigen Zellen. Die hier abgebildete Terrassenstruktur, von ELBAUM und CHALMERS <sup>3</sup> erstmalig beschrieben, ist je nach Orientierung der Wachstumsrichtung im Kristallgitter unterschiedlich ausgebildet.

Bereits RUTTER und CHALMERS <sup>1</sup> begründeten die Form dieser Grenzfläche qualitativ mit der konstitutionellen Unterkühlung der Schmelze vor der Erstarrungsfront, die mit einem Diffusionsprozeß von in der Schmelze gelösten Verunreinigungen vor die Randzonen der einzelnen Säulen verbunden ist.

Quantitative theoretische Untersuchungen, vor allem von TILLER <sup>5</sup> sowie BOLLING und TILLER <sup>6</sup>, lieferten etwas abweichende Ergebnisse. Sie fordern ein Profil, wie es in Abb. 1 gestrichelt eingezeichnet ist: eine Grenzfläche ohne Terrassenstruktur mit tiefen, spitz zulaufenden Einbuchtungen zwischen den Zellen.

Experimentell wurde allerdings bisher ein derartiges Erstarrungsprofil lediglich von JACKSON <sup>7</sup> bei der Erstarrung von Kohlenstofftetrabromid zwischen zwei Deckgläsern gefunden. Hierbei konnte JACKSON nachweisen, daß diese Substanz insbesondere infolge ihrer niedrigen Erstarrungsentropie ein den Metallen sehr ähnliches Erstarrungsverhalten zeigt.

Untersuchungen von CHADWICK <sup>4</sup> zeigten nun, daß das Dekantierungsverfahren erhebliche Mängel aufweist. Auch bei Dekantierungsbeschleunigungen, die um eine Zehnerpotenz größer sind als die Erdbeschleunigung, bleibt stets ein flüssiger Film auf der Erstarrungsfront haften, dessen Erstarrung die Form der Oberfläche der dekantierten Probe weitgehend beeinflussen kann. Die in Abb. 1 dargestellte Oberflächenstruktur kann also durchaus von der Erstarrung eines Flüssigkeitsfilmes oberhalb der

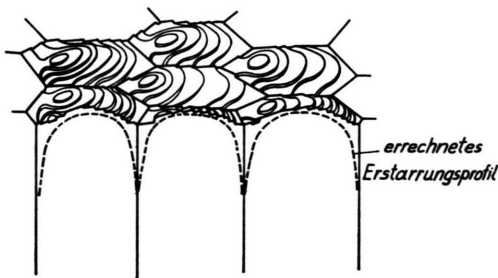


Abb. 1. Schematische Darstellung einer dekantierten Fläche.

- <sup>1</sup> J. W. RUTTER u. B. CHALMERS, Can. J. Phys. 31, 15 [1953].
- <sup>2</sup> W. A. TILLER u. J. W. RUTTER, Can. J. Phys. 34, 96 [1956].
- <sup>3</sup> C. ELBAUM u. B. CHALMERS, Can. J. Phys. 33, 196 [1955].
- <sup>4</sup> G. A. CHADWICK, Acta Met. 10, 1 [1962].

- <sup>5</sup> W. A. TILLER, Proc. Intern. Conf. on Crystal Growth, Copperstown 1958, 332.
- <sup>6</sup> G. F. BOLLING u. W. A. TILLER, J. Appl. Phys. 31, 2040 [1960].
- <sup>7</sup> K. A. JACKSON, J. Phys. Chem. Solids, Suppl., 17 [1967].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

gestrichelten Linie herrühren, wodurch die tiefen Spalten verschwinden. Die Terrassenstruktur wird von CHADWICK mit der Anisotropie der Oberflächenenergie des Festkörpers erklärt, die dafür sorgt, daß an der Oberfläche die Tendenz zur Ausbildung niedrig indizierter Flächen mit niedriger Oberflächenenergie besteht.

Diese möglichen Verfälschungen machen es notwendig, nach einem neuen Verfahren zur Ermittlung der Struktur der Phasengrenzfläche zu suchen. Nun ist aber schon aus älteren Untersuchungen<sup>1,3</sup> bekannt, daß man zur Ermittlung der Erstarrungsgeschwindigkeit die Erstarrungsfront zu bestimmten Zeitpunkten durch Rühren der Schmelze markiert. Dabei verändert sich die Konzentrationsverteilung der Verunreinigungen vor der Phasengrenzfläche und damit auch im erstarrten Festkörper. Leider zeigte es sich, daß die dadurch auf einem Metallschliff sichtbaren Seigerungslinien ("banding structure") zu unscharf waren, um Aussagen über die Form der Phasengrenzfläche zu erhalten.

### Experimentelle Methode

Es gelang uns nun, das vorstehend erwähnte Verfahren mit Hilfe kurzer Ultraschallimpulse wesentlich zu verfeinern. Abb. 2 zeigt den Versuchsaufbau. An die schallabstrahlende Fläche eines 20 kHz-Ultraschallschwingers ließen wir Zinn vom Reinheitsgrad 99,9% ankristallisieren. Bei fortschreitender Erstarrungsfront wurde die Schmelze dicht unterhalb der Kavitationsschwelle mit kurzen, periodischen Impulsen erregt. Dauer und Abstand der Impulse konnten vorgegeben und auf 0,1% genau bestimmt werden. Dazu wurden die Dickenschwingungen des Koppelgliedes von einem Meßquarz aufgenommen und auf einen Frequenzzähler gegeben.

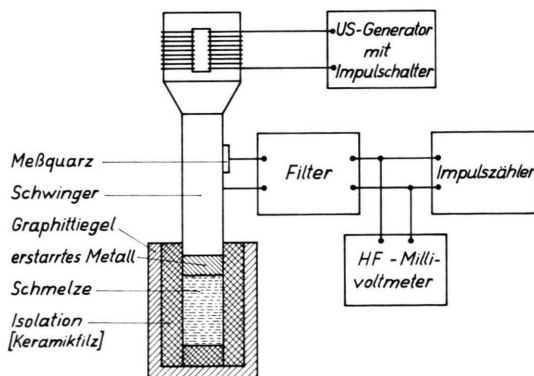


Abb. 2. Versuchsaufbau.

### Versuchsergebnisse

Abb. 3 \* zeigt Schliffbilder (Villela-Ätzung) einer so erstarrten Probe parallel bzw. senkrecht zur Erstarrungsrichtung; die Impulsdauer betrug 70,5 msec, der Impulsabstand 968 msec. Man erkennt in Abb. 3 a zahlreiche geschwungene Linien mit etwa konstantem Abstand, die alle etwa dem von TILLER berechneten Erstarrungsprofil bei gerichteter zellulärer Erstarrung entsprechen. Diese Analogie wird durch Abb. 3 b bestätigt, wo die hexagonale Struktur mit zusätzlichen „Höhenlinien“ sichtbar ist. Wir können daher annehmen, daß es sich hier um Abbildungen von Wachstumsprofilen mit Ultraschall handelt. Daß tatsächlich jeder angeätzten Linie ein Ultraschallimpuls entspricht, zeigt Abb. 4. Hier wurden durch eine etwas unregelmäßiger fortschreitende Erstarrungsfront genau 10 Impulse (Dauer und Abstand wie oben) hindurchgeschickt. Damit ergibt sich ein sehr genaues Verfahren zur Messung der normalen Wachstumsgeschwindigkeit an jedem Punkt der Erstarrungsfront.

Da eine quantitative experimentelle Untersuchung über den Einfluß von Ultraschallimpulsen auf den Kristallwachstumsmechanismus noch aussteht, sind vorläufig nur qualitative Betrachtungen über die Ursache der beschriebenen Erscheinungen möglich. Wir vermuten, daß sie durch geringfügige Konzentrationsschwankungen von gelösten Verunreinigungen hervorgerufen werden<sup>8</sup>. Diese können durch Strömungen in der Schmelze vor der Erstarrungsfront auf Grund des Schallstrahlungsdruckes entstehen, wozu bemerkt sei, daß der Einfluß einer Strömung der Schmelze auf die Konzentration der Verunreinigungen in der festen Phase bereits beim Zonenschmelzen eingehend untersucht worden ist<sup>9</sup>. Nach Beendigung eines Impulses klingen die Strömungen wieder ab, und die Konzentrationsverhältnisse nähern sich wieder denjenigen bei ruhender Schmelze, bis eine erneute Störung durch den folgenden Impuls eintritt.

Diese Arbeit wurde im Rahmen von Untersuchungen über den Einfluß von Ultraschall auf Erstarrungsgefüge durchgeführt. Dem Institutsdirektor und Leiter dieses Forschungsvorhabens, Herrn Prof. Dr. H. J. SEEMANN, sei für seine wohlwollende Unterstützung gedankt.

\* Abb. 3 a, b und 4 auf Tafel S. 688 a.

<sup>8</sup> Ein Versuch, diese Konzentrationsschwankungen mit Hilfe einer Mikrosonde zu erfassen, scheiterte: die maximalen Konzentrationen liegen also unterhalb des Auflösungsvermögens.

<sup>9</sup> C. WAGNER, Trans. AIME **200**, 154 [1954].

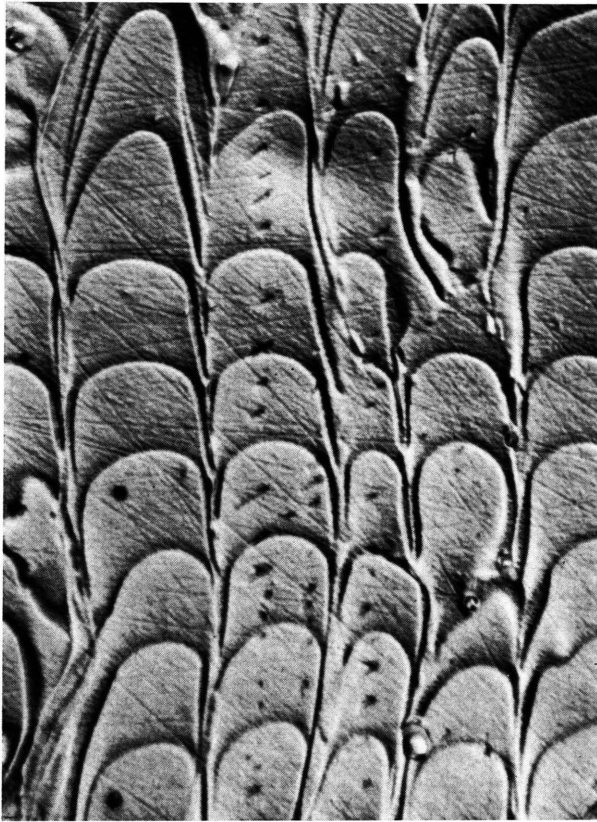


Abb. 3 a.

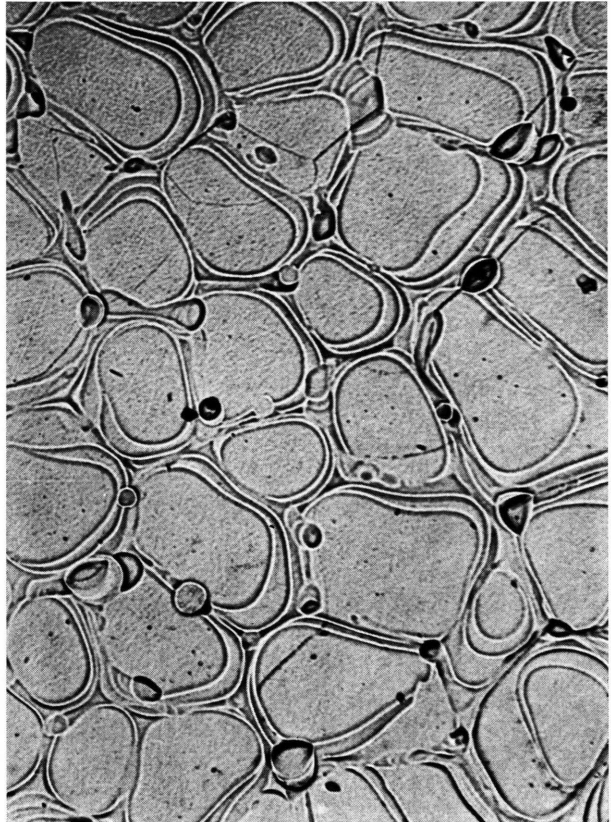


Abb. 3 b.

Abb. 3. Schliffbilder von impulsweise beschallten Proben  
(a: Wachstumsrichtung von unten nach oben; b: Wachstums-  
richtung senkrecht zur Bildebene). Vergr. 250 $\times$ .



Abb. 4. Abbildung komplizierterer Erstarrungsprofile mit  
10 Ultraschallimpulsen. Vergr. 250 $\times$ .

