

Brevet N°

87 192

du 07.04.88

Titre délivré

GRAND-DUCHÉ DE LUXEMBOURG



Monsieur le Ministre  
de l'Économie et des Classes Moyennes  
Service de la Propriété Intellectuelle  
LUXEMBOURG

7-10-88  
d. 18 m.

# Demande de Brevet d'Invention

## I. Requête

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE (EURATOM)

Bâtiment Jean Monnet

Plateau du Kirchberg

2920 LUXEMBOURG

dépose(nt) ce 7 AVR. 1988

à heures, au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, à Luxembourg:

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant:

Vorrichtung zum Herstellen amorpher Keramikstoffe oder Metallegierungen

2. la description en langue allemande de l'invention en trois exemplaires;

3. une planches de dessin, en trois exemplaires;

4. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg, le 7 AVR. 1988;

5. la délégation de pouvoir, datée de le;

6. le document d'ayant cause (autorisation);

declare(nt) en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sont):

Jacobus VAN GEEL, Waldenburgerstraße 10, D-7500 KARLSRUHE

Paul WERNER, Veilchenweg 9, D-7521 DETTENHEIM-(Ru)

Jean-Pol HIERNAUT, Hermine Maierheuser Straße 8, D-7515 LINKENHEIM

Joseph MAGILL, Fritz-Erlar-Straße 9, D-7500 KARLSRUHE

revendique(nt) pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de

déposée(s) en (8)

le (9)

sous le N° (10)

au nom de (11)

élit(élisent) domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg la Commission des Communautés européennes, DG XIII C/1, 2920 LUXEMBOURG

solicite(nt) la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes susmentionnées, avec ajournement de cette délivrance à dix-huit mois.

Le déposant / mandataire:

## II. Procès-verbal de Dépôt

A. STRUB, Fondé de pouvoir

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie et des Classes Moyennes, Service de la Propriété Intellectuelle à Luxembourg, en date du: 07.04.88

à 15.00 heures

Pr. le Ministre de l'Économie et des Classes Moyennes,

Le chef du service de la propriété intellectuelle,

A 68007

EXPLICATIONS RELATIVES AU FORMULAIRE DE DÉPÔT.

(1) s'il y a lieu "Demande de certificat d'addition au brevet principal, à la demande de brevet principal No ..... du .....". (2) inscrire les nom, prénom, profession, adresse du demandeur, lorsque celui-ci est un particulier ou les dénomination sociale, forme juridique, adresse du siège social, lorsque le demandeur est une personne morale - (3) inscrire les nom, prénom, adresse du mandataire agréé, conseil en propriété industrielle, muni d'un pouvoir spécial, s'il y a lieu: "représenté par ..... agissant en qualité de mandataire" - (4) date de dépôt en toutes lettres - (5) titre de l'invention - (6) inscrire les noms, prénoms, adresses des inventeurs ou l'indication "(voir) désignation séparée (suivra)", lorsque la désignation se fait ou se fera dans un document séparé, ou encore l'indication "ne pas mentionner", lorsque l'inventeur signe ou signera un document de non-mention à joindre à une désignation séparée présente ou future - (7) brevet, certificat d'addition, modèle d'utilité, brevet européen (CBE), protection internationale (PCT) - (8) Etat dans lequel le premier dépôt a été effectué ou, le cas échéant, Etats désignés dans la demande européenne ou internationale prioritaire - (9) date du premier dépôt - (10) numéro du premier dépôt complété, le cas échéant, par l'indication de l'office récepteur CBE/PCT - (11) nom du titulaire du premier dépôt - (12) adresse du domicile effectif ou élu au Grand-Duché de Luxembourg - (13) 2, 6, 12 ou 18 mois - (14) signature du demandeur ou du mandataire agréé.

B01 J  
C04 B  
C22 C

P/2229

Vorrichtung zum Herstellen amorpher  
Keramikstoffe oder Metallegierungen

Die Erfindung bezieht sich auf eine Vorrichtung zum Herstellen amorpher Keramikstoffe oder Metallegierungen mit einem Hochdruck-Autoklaven, in dem zuerst ein Rohling der Probe mittels Laserstrahlen bis zur Schmelztemperatur aufgeheizt und anschließend rasch abgekühlt wird.

Amorphe Metallegierungen, auch metallische Gläser genannt, sind seit etwa zwanzig Jahren bekannt. Man versteht darunter einen nicht kristallin erstarrten Festkörper, der eine ungeordnete Struktur besitzt, die durch Abkühlen einer Schmelze erreicht wird. Dabei erfolgt die Abkühlung mit großer Geschwindigkeit (in der Größenordnung von  $10^6 \text{ Ks}^{-1}$ ) auf einen Temperaturwert, bei dem keine Kristallisation mehr möglich ist.

Solche amorphe Substanzen zeigen neue mechanische, elektrische und chemische Eigenschaften, die von den entsprechenden kristallisierten Varianten nicht erreicht werden.

Entscheidend für die Herstellung solcher amorpher Substanzen ist die hohe Abkühlgeschwindigkeit des schmelzflüssigen Materials. So ist ein Verfahren bekannt, in dem das Schmelzgut aus einem induktiv erhitzten Schmelztiegel auf den Umfang einer sich um eine horizontale Achse drehenden Kupferscheibe mit Bandabstreifer fließt. Es ist auch möglich, das Schmelzgut zwischen zwei um horizontale Achsen drehende schmale Kupferscheiben einzuführen oder auf die Scheibenfläche einer um ihre senkrechte Achse drehenden Kupferscheibe aufzubringen.

Es wurde auch bereits vorgeschlagen, elektrisch leitfähiges Schmelzgut behälterfrei magnetisch in der Schwebe zu halten und induktiv so zu erhitzen, daß Unreinheiten aus dem Schmelztiegel die Legierung nicht beeinträchtigen können. In Welt- raumversuchen wurden auch bereits Tropfen eines nicht leitenden Stoffes ohne Schmelztiegel mithilfe von Laserstrahlen erwärmt. Die Tropfen wurden im Raum mithilfe von Luftdüsen in einer definierten Position gehalten.

Abgesehen von dem Aufwand, der mit der Verlegung der Produktion solcher Legierungen in den Weltraum verbunden ist, sind auch die Probleme der Probenpositionierung und der Probenstabilität noch nicht befriedigend gelöst. Aufgabe der Erfindung ist es daher, eine Vorrichtung zum Herstellen amorpher Substanzen anzugeben, die im Schwerfeld der Erde solche amorphen Substanzen, und zwar selbst elektrisch nicht leitfähige Substanzen, in großer Reinheit herzustellen erlaubt. Diese Aufgabe wird durch die im Anspruch 1 gekennzeichnete Vorrichtung gelöst. Bezüglich von Merkmalen bevorzugter Ausführungsformen der Erfindung wird auf die Unteransprüche verwiesen.

Nachfolgend wird die Erfindung anhand eines bevorzugten Ausführungsbeispiels mithilfe der einzigen Figur erläutert, die schematisch und in Perspektive eine erfindungsgemäße Vorrichtung zeigt.

Die Vorrichtung enthält als wesentliches Element einen Autoklaven 1 von im wesentlichen zylindrischer Form, in dessen Mittelpunkt sich die Prozeßposition 2 befindet, d.h. die Stelle, an der eine kugelförmige Probe erhitzt und abgekühlt werden soll. Die Probe stammt aus einer Kugelfuhrvorrichtung 3, die axial an den Autoklaven 1 angebaut ist und eine Folge von Kugeln oder Rohlingen mit der Zusammensetzung der ge-

wünschten Legierung einzeln hintereinander für den Transport in die Prozeßposition 2 bereithält. Hierzu enthält diese Vorrichtung einen Schrittschaltmotor 4 und eine von diesem angetriebene Vereinzellerscheibe 5 sowie einen hohlen Schaft 6, durch den eine aus einem Magazin 7 freigegebene Kugel in die Prozeßposition 2 fallen kann.

Bezüglich der Prozeßposition der Kugelzufuhrvorrichtung 3 entgegengesetzt ist an den Autoklaven 1 ein Gehäuse 8 angebaut, das einen Behälter 9 zum Auffangen der fertigen Proben sowie einen Hubmotor 10 enthält, der über eine Spindel 11 eine akustische Resonanz-Levitationseinrichtung 12 trägt. Letztere befindet sich unter der Prozeßposition 2 und besitzt mehrere elektrisch anregbare Piezokeramikscheiben.

Zwischen der Prozeßposition 2 und der Levitationseinrichtung 12 ist noch ein akustisch durchlässiger Fangkorb 26, und oberhalb der Prozeßposition ist eine Reflektorscheibe 13 eingefügt, durch deren zentrales Loch die Kugel aus dem Magazin 7 zugeführt wird. Die von der Levitationseinrichtung ausgehenden Schallwellen werden in einem resonanzfähigen Abstand von der Reflektorscheibe 13 reflektiert, so daß eine genaue, driftlose, stabile, wiederholbare und schwingungsfreie Positionierung der Kugel ermöglicht wird, ohne daß die Kugel durch Kontakt mit einer Wand verunreinigt würde. Diese Methode arbeitet bei Autoklaven-Drücken von 10 Bar bis 1000 Bar und bei Temperaturen von 1000 K bis 4000 K und mehr sowie mit beliebigen Inertgasen und ermöglicht die berührungsfreie Halterung von sowohl metallischen als auch elektrisch nicht leitenden Materialien. Die Kugeldurchmesser können zwischen 0,2 und 2 mm Durchmesser liegen und die Levitationsdauer kann beliebig ausgedehnt werden und erfordert nur eine geringe Leistung, verglichen etwa mit elektromagnetischer Induktionslevitation. Durch Nachstellen des Hubmotors 10 kann die Kugel exakt in

die Prozeßposition levitiert werden.

Die Aufheizung einer Kugel in der Prozeßposition 2 erfolgt über zwei Laserstrahlen 14 und 15, die von einem gemeinsamen Nd-YAG-Generator abgeleitet sein können. Die beiden Laserstrahlen werden je über einen Strahlteilerspiegel 16 und 17 in jeweils zwei Strahlen aufgeteilt, die über Umlenkspiegel 18 und durch Fenster 19 in der Wand des Autoklaven 1 auf die Prozeßposition 2 gerichtet werden, und zwar so, daß sich gegenüberliegende Strahlen nicht blenden und somit nicht die Generatoren durch Blendlicht zerstört werden können. Vorzugsweise verlaufen je zwei Laserstrahlen entlang den Kanten von zwei gedachten einander gegenüberliegenden vierseitigen Pyramiden, deren Spitzen von der Prozeßposition gebildet werden und deren Kanten ineinander übergehen. Je zwei einer Pyramide zugeordnete Laserstrahlen liegen in einer Ebene, die zur entsprechenden Ebene der anderen Laserstrahlen senkrecht verläuft.

Ebenfalls auf die Prozeßposition, aber senkrecht zur Achse des Autoklaven ausgerichtet, sind zwei Stempel 20 und 21 zueinander fluchtend beweglich gelagert, deren Stirnflächen als Kühlköpfe wirken und einander diametral gegenüber zu beiden Seiten der Prozeßposition liegen. Der Führungskanal für den Stempel 20 bzw. 21 ist dicht in die Wand des Autoklaven 1 eingebaut und befindet sich unter dessen hydrostatischem Gasdruck. Durch gleichzeitiges Anlegen eines elektrischen Impulses an auf die Stempel einwirkende Tauchspulen 22 und 23 werden die beiden Stempel gegenläufig beschleunigt und prallen mit einer Aufprallgeschwindigkeit von z.B.  $12,0 \text{ msec}^{-1}$  aufeinander. Dabei wird eine schmelzflüssige Kugel, die sich in der Prozeßposition befindet, zwischen den Stirnflächen der Stempel zerquetscht und mit hoher Geschwindigkeit (größer als  $10^6 \text{ Ksec}^{-1}$ ) abgekühlt und zu einem flachen Zylinder von 10

bis 50  $\mu\text{m}$  Dicke gepreßt. Die Abkühlgeschwindigkeit ist über dem Beschleunigungsweg variierbar.

Um den Prozeß genau verfolgen und ggfs. beeinflussen zu können, ist ein Sechswellenlängen-Pyrometer 24 vorgesehen, das durch ein weiteres Fenster 25 in der Autoklavenwand auf die Prozeßposition ausgerichtet ist und die kontinuierliche Messung von Temperaturen zwischen 1200 und 5000 K erlaubt. Es werden beispielsweise die Lichtwellenlängen 500 nm, 600 nm, 680 nm, 800 nm, 960 nm und 1040 nm ausgewertet. Das Gerät kann eine Messung in Mikrosekunden ausführen und räumlich, die minimale Meßfleckgröße betreffend, 50  $\mu\text{m}$  auflösen. Ein solches Pyrometer ist in der Zeitschrift Temperature, 1982, Vol. 5, Seiten 439 bis 446, beschrieben.

Eine nicht dargestellte elektronische Ablaufsteuerung koordiniert die Funktion der Lasergeneratoren, der Levitationseinrichtung und der Abkühlstempel und zwar folgendermaßen:

Zuerst wird das Kugelmagazin 7 der Zufuhrvorrichtung 3 mit etwa 50 kugelförmigen Rohlingen der Probe gefüllt und dann gasdicht verschlossen. Dann wird der Autoklav mit dem für den Prozeß geeigneten Gas gefüllt und auf den gewünschten Druck gebracht. Als nächstes wird durch Betätigen des Motors 4 eine Rohlingskugel in den Zuführungskanal 6 gebracht, von wo sie in den Fangkorb 26 knapp unter der Prozeßposition 2 fällt. Schaltet man nun die piezokeramische Levitationseinrichtung 12 ein, dann gerät der Rohling in der Prozeßposition in einen Schwebezustand, der ggfs. durch Nachjustieren mithilfe des Hubmotors 10 verändert werden kann. Nun werden kurzzeitig und gleichzeitig die beiden Laser 14 und 15 aktiviert, wobei die Impulsdauer und die Impulsenergie von der gewünschten Temperatur abhängen. Der Rohling schmilzt dann in einer reproduzierbaren kurzen Zeit, so daß nun die Tauchspulen 22 und 23

aktiviert werden können und die Stempel 20 und 21 die schmelzflüssige Probe zwischen sich zerquetschen können. Nach dem Zurückschnellen der Stempel und dem Abschalten der Levitationseinrichtung fällt die fertige Probe über einen Trichter in den Auffangbehälter 9 im unteren Teil der Vorrichtung.

Der ganze Prozeß kann über das Pyrometer 24 verfolgt werden.

Danach kann sofort der zweite Rohling aus dem Magazin 7 in die Prozeßposition 2 befördert und dort in gleicher Weise bearbeitet werden.

Es ist zu bemerken, daß die Herstellung einer Probe nur Bruchteile einer Sekunde in Anspruch nimmt und daß ebensoviele Proben ohne Unterbrechung hergestellt werden, wie das Magazin 7 und der Auffangbehälter 9 fassen. Durch Optimierung des zeitlichen Ablaufs zwischen Erhitzen und Abkühlen kann die Verdampfung der Probe vor dem Abkühlen nach Wunsch völlig verhindert werden.

Die Vorrichtung eignet sich für Forschungslabors, in denen beispielsweise Serien von Rohlingen unterschiedlicher Zusammensetzung in amorphe Legierungen für Reihenuntersuchungen umgewandelt werden. Auch die Temperatur- und Zeitparameter können von Kugel zu Kugel durch geeignete Programmierung der Ablaufsteuerung variiert werden. Die Erfindung ist aber auch zur Herstellung von glasartigen Legierungen in Plättchenform für industrielle Zwecke geeignet, sofern dem Magazin 7 und dem Auffangbehälter 9 ausreichend große Kapazitäten verliehen werden.

P/2229

# PATENTANSPRÜCHE

1. Vorrichtung zum Herstellen amorpher Keramikstoffe oder Metallegierungen, mit einem Hochdruck-Autoklaven, in dem zuerst ein Rohling der Probe mittels Laserstrahl bis zur Schmelztemperatur aufgeheizt und anschließend rasch abgekühlt wird, **dadurch gekennzeichnet**, daß

- unterhalb einer Prozeßposition (2), in der die Probe aufgeheizt wird und abgekühlt wird, eine akustische Levitations-einrichtung (12) liegt, die von einer piezoelektrisch angeregten Schallquelle gebildet wird und die Probe berührungsfrei in der Prozeßposition (2) hält,
- die Prozeßposition (2) im Schnittpunkt von mindestens zwei Laserstrahlen (14, 15) liegt, die durch Fenster (19), in den Autoklaven eindringen, um die Probe aufzuheizen,
- zwei Stempel (20, 21) einander zu beiden Seiten der Prozeßposition (2) gegenüberliegend im Autoklaven (1) angeordnet sind, die elektromagnetisch gegeneinander gestoßen werden können, um die Probe zwischen sich zu zerquetschen und dabei rasch abzukühlen.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Prozeßposition (2) im Schnittpunkt von vier Laserstrahlen liegt, wobei jeder der Laserstrahlen entlang der Kante einer gedachten vierseitigen Pyramide verläuft.

3. Vorrichtung nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß je zwei gegenüberliegende Laserstrahlen von einem gemeinsamen Lasergenerator (14 bzw. 15) abgeleitet werden.

4. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß ein Mehrwellenlängen-Pyrometer (24) durch ein Fenster (25) in der Wand des Autoklaven (1) hindurch auf

die Prozeßposition (2) gerichtet ist.

5. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß eine programmierbare Ablaufsteuerung vorgesehen ist, die die Lasergeneratoren, die Levitationseinrichtung (12) und die Stempel (20, 21) steuert.

6. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß ein akustisch durchlässiger Fangkorb zwischen der Levitationseinrichtung (12) und der Prozeßposition (2) angeordnet ist.

