

ویخته‌گری آلیاز تکفاژ بین فلزی منظم Ni_3Al و کاربید آن به جای ابرآلیازها در دماهای بالا اکرم السادات حسینی، کامبیز رضاییان پور، محمد مهدی تقی‌ثی^۱، مسعود امامی^۲

بخش مواد هسته‌ای

مرکز تحقیقات کشاورزی و پژوهشی هسته‌ای

سازمان انرژی اتمی ایران

چکیده

نیکل آلومیناید $Al-Ni$ یک ترکیب بین فلزی است که دارای خواص مکانیکی مطلوبی برای کاربردهای ساختاری در دماهای بالا می‌باشد. نیکل آلومیناید که از لحاظ درصد اتمی حاوی ۲۵٪ آلمینیوم است، در هوا به دلیل تشکیل لایه نازک اکسید چسبنده‌ای که آلیاز را محافظت می‌کند، در برابر خوردگی مقاوم می‌باشد. برخلاف ابرآلیازها متدالو، تشن تسلیم Ni_3Al اساساً با افزایش دما افزایش می‌باشد. نیکل آلومیناید مهمترین عامل استحکام دهنده ابرآلیازها نیکل-پایه تجاری است و عامل اصلی مقاومت آنها در برابر «خزش»^۳ و استحکام حتی در دماهای بالا بشمار می‌رود. علاوه بر این، چگالی آلیاز Ni_3Al در حدود ۱۰٪ از ابرآلیازها کمتر است و حاوی عنصر استراتئیکی نظیر کروم و کبالت هم نیست. بنابراین، با توجه به عملهایی مانند دوام، کارایی و قیمت، لزوم طراحی آلیازها نوبن به خوبی احساس می‌شود. در آلیازهایی که ترکیب منظم دارند به علت قابلیت تحزیک اتمی پایین، نفوذپذیری^۴ به کندی صورت می‌گیرد و در نتیجه مقاومت قابل توجهی در برابر خزش و اکسید شدن از خود نشان می‌دهند. در این کار پژوهشی ضمن بررسی روش‌های مختلف ذوب آلیاز تکفاژ Ni_3Al ، انتخاب نوع کوره، فرایند ذوب و ریخته گری، عملیات حرارتی و بررسیهای ریز ساختاری آلیاز نیز مورد نظر بوده‌اند و درباره نتایج حاصل بحث شده است.

۱- مقدمه

ابرآلیازها نیکل-پایه، مقاومت خستگی بیشتر نسبت به ابرآلیازها نیکل-پایه به دلیل حذف شدن ذرات فاز دوم نظیر کاربیدها، استحکام خوشی بیشتر (که بستگی زیادی به ابعاد دانه‌ها دارد)، مقاومت سایشی عالی در دماهای بالا، مقاومت بیشتر در برابر سایش کاواک-زاپی (کاوبوتاسیون)^۵ نسبت به مواد مشابه و تشکیل اکسید آلمینیوم (Al_2O_3) روی سطح آلیاز (که محافظت خوبی در برابر بسیاری از محیط‌های خورنده است) [۳].

آلومیناید نیکل ترکیب بین فلزی منظمی است که دارای ساختار بلوری نوع L1₁ با استحالت فازی پریتکتیک در دمای ۱۳۹۷°C می‌باشد. Ni_3Al متشکل از یک عنصر از گروه VIII و یک عنصر از زیرگروه IIIb در جدول تناوبی عناصر است. در ترکیب آمیزه

بکی از بارزترین عرصه‌های تحقیقاتی پژوهشگران علم مواد در سالهای اخیر، فعالیت در زمینه تولید و گسترش آلیازها جدید برای جایگزین کردن ابرآلیازها نیکل-پایه است که در ساخت پرده‌های سورین گازی و دستگاههای انتقال قدرت بکار می‌روند. ابرآلیازها نیکل-پایه محلولهای جامدی هستند با فاز Ni_3Al بخش شده که در دماهای فراتر از ۱۱۰۰°C بکار می‌روند.

آلومیناید های بین فلزی با پایه نیکل، آهن، تبتانیوم و کبالت مدتی است که به عنوان مواد ساختاری مناسب برای کار در دمای بالا پیشنهاد شده‌اند [۱ و ۲]. مزیتهای عمدۀ آلومیناید های نیکل عبارتند از مقاومت در برابر کربوره شدن هم در محیط‌های اکسیدکننده و هم در محیط‌های احیاکننده فراتر از ۱۱۰۰°C، افزایش استحکام تسلیم - که با بالا رفتن دما افزایش یافته و بسته به ابعاد دانه‌ها در آلیاز در دامۀ دمایی ۶۵۰-۸۵۰°C به حد اکثر می‌رسد -، استحکام تسلیم فشاری خوب در دامۀ دمایی ۶۵۰-۱۱۰۰°C در مقایسه با

۱- استادیار دانشکده مهندسی مواد - دانشگاه علم و صنعت

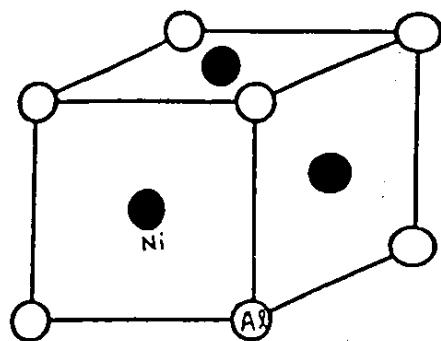
۲- استادیار استیتو مواد دانشکده فنی - دانشگاه تهران

3- Creep

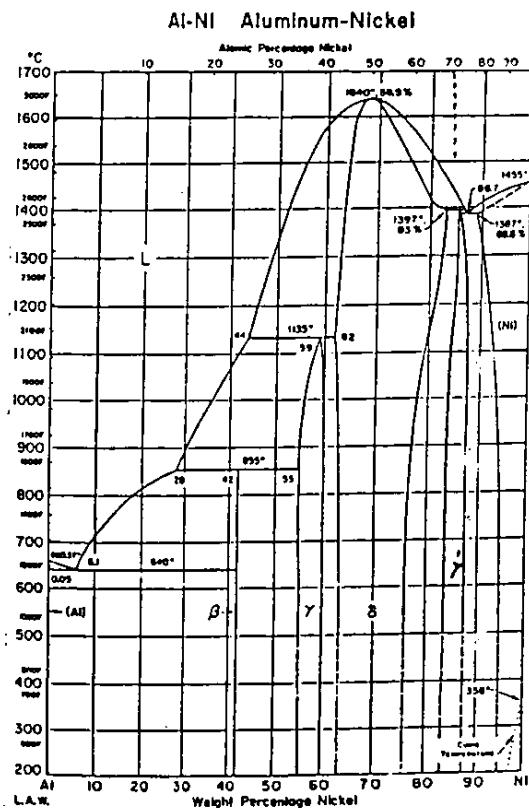
4- Diffusion

5-Cavitation

آمریکا برای ذوب و ریخته گری این گونه ترکیبات آلیاژی بکار رفت [۵]. در این روش از گرمایش بودن واکنش استفاده شده و یک محفوظه عایق برای ذوب طراحی گردیده است.



شكل ١: ساختار بلوری (f.c.c.) و سلول واحد آلیاژ منظم Ni_3Al



شکل ۲: دیاگرام فازی سیستم دوتایی Ni-Al

شناختی (استوکیومتریک^۳، اتمهای نیکل و آلمینیوم به ترتیب
مراکز سطوح و گوشهای بلورهای مکعب شکل را در ساختار
بلوری آلیاژ اشغال می‌کنند (شکل ۱). نمودار فازی Ni-Al (شکل ۲)
نشان می‌دهد که فاز Ni₃Al دارای یک محدوده باریک در نزدیکی
ترکیب آمیزه شناختی می‌باشد که درصد اتمی آن در ۱۲۰۰°C
حدود ۳٪ و در دمای محیط ۴٪ پهنا دارد. پارامتر شبکه ترکیب آمیزه
شناختی Al₃Ni برابر ۳۵۸۹ nm است که با افزایش درصد
نیکل کاهش می‌یابد و بر عکس. این تفاوت ناشی از اختلاف اندازه
اتمهای نیکل و آلمینیوم می‌باشد. چگالی Ni₃Al در ۲۹۶ کلوین
برابر ۷/۴۹۱ gr/cm^۳ است که حدود ۱۰٪ پایین‌تر از ابرآلیاژهای
نیکل-پایه می‌باشد. این آلیاژ منظم در دامنه دمایی ۵۵۰°C تا
۷۷۰°C دارای افزایش غیر عادی «تنش سیلان»^۴ با افزایش دما
می‌باشد (شکل ۳) که رفتاری قابل توجه در این ترکیب به شمار
می‌رود. وجود «نظم پردازه»^۵ در ساختار بلوری Ni₃Al سبب
می‌شود که این ترکیب دارای خواص بسیار مناسبی برای کار در
دهماهی بالا باشد؛ اما با وجود این خواص مناسب، کاربرد گستردۀ
ترکیب Al₃Ni به عنوان یک ماده مهندسی، در اثر دو مشکل عمدۀ:
یعنی انعطاف پذیری ضعیف و تردی بین دانهای محدود است. در
سالهای اخیر اقدام اساسی برای انعطاف پذیر ساختن این ترکیب با
استفاده از روشهای اصلاح ابعاد دانه‌ها، انجام‌دادهای سریع، آلیاژسازی،
که مؤثرترین این روشهای است برداشته شده است [۴].

خواص ویژه ترکیبات بین فلزی سبب شده است که پژوهشگران راههای تازه‌ای برای ذوب و ریخته گری آلیاژهای بین فلزی بیانند. حضور Al و گرمایابون و اکنشها از جمله مسائل مورد توجه در این زمینه است. چون تشکیل ترکیبات بین فلزی گرمایاب است پژوهشگران توانسته‌اند کوره‌هایی طراحی کنند که در آنها از گرمای اکنش برای کمک به ذوب بین فلزی استفاده شود. این کار باعث صرفه‌جویی در مصرف انرژی، افزایش عمر بوته و کاهش مدت ذوب می‌شود. از آنجاکه ریخته گری یک روش پایه برای تهیه قطعات پیچیده و تولید انبوه با ارزش اقتصادی مناسب مطرح می‌باشد روشهای مختلفی برای ذوب و تولید شمش آلیاژ تکفاراز Ni، Al و بکار گرفته شده است، از جمله ذوب القابی در محیط گاز آرگون و در خلاء، روش ذوب مجدد (ESR)، انجامد سریع و روش جدید melt - Exo که در ۱۹۹۵/۱۳۷۴ در آزمایشگاه ملی،

6- Stoichiometric

7- Anomalous Flow Stress

8- Long Range Order(LRO)

9- Electro Slag Remelting

باشد. برای این منظور از نیکل و آلمینیوم به صورت ساچمه با درجه های خلوص به ترتیب $99/99\%$ و $99/999\%$ از محصولات شرکت میرک استفاده شد. پس از انتخاب ترکیب شیمیایی آلیاز، عمل ذوب صورت گرفت. فرایند ذوب در مدت ۵۰ دقیقه کامل و به مدت ۵ تا ۸ دقیقه در دمای 1460°C نگهدارشده شد. سپس تمام آلیاز مذاب در قالهای فلزی ریخته شد. شمش های بدست آمده دوبار دیگر نیز ذوب شدند. در دامنه دمایی ۹۰۰ تا 1000°C درجه سانتی گراد و در هنگام ذوب، واکنش گرمای اصورت می گیرد که باعث بالارفتن دمای مواد درون بوته می شود. نمونه های $\text{Ni}_{76}\text{Al}_{24}$ نیکل و 24% آلمینیوم) و $\text{Ni}_{75}\text{Al}_{25}$ به این روش تهیه شدند. چون ترکیب آلمینیايد نیکل در اثر یک تحول پرینتکنیک حاصل می شود با توجه به غیر تعادلی بودن فرایند، محتمل بود که ساختار مذاب پس از انجام از یک محلول جامد اولیه و یک جامد پرینتکنیک تشکیل شود که یک ساختار ناهمگون است. علاوه بر این، به دلیل زمان کوتاه نگهداری مذاب در دمای ذوب احتمال انجام نگرفتن واکنش کامل می رفت. بنابراین، لزوم انجام عملیات حرارتی پس از ذوب احساس می شد؛ به همین دلیل نمونه در یک لوله کوارتز که یک سر آن بسته بود گذاشته شد و خلاء 10^{-3} میلی بار در لوله با استفاده از پمپ خلاء ایجاد و سپس سر دیگر لوله به وسیله حرارت دادن بسته شد و نمونه ها در جریان چرخه عملیات حرارتی قرار گرفتند (شکل ۴). عملیات حرارتی شامل دو بخش همگن کردن و بازیخت^{۱۱} برای دستیابی به ساختاری پایدار با دانه های درشت و انبساط قلمرو ضد فازی (APB)^{۱۲}) بر مز دانه ها بوده است. نتیجه حاصل از تجزیه و تحلیل عنصری نمونه $\text{Ni}_{75}\text{Al}_{25}$ ریخته گری شده در کوره القایی در شکل ۵ نمایش داده شده است.

بررسی های ریز ساختاری و شناسایی ساختار بلوری به وسیله روش های فلزنگاری (متالوگرافی)، میکروسکوپ الکترونی، دستگاه پراش پرتوهای ایکس انجام گرفت: ریز ساختار ترکیب آلیاز با روش متداول فلزنگاری بررسی شد. نمونه های صیقلی شده با استفاده از محلول $\text{H}_3\text{PO}_4/22/22$ ، $\text{H}_2\text{O}/22/22$ ، $\text{HNO}_3/11/1$ ، $\text{HF}/11/1$ و $\text{HCOOH}/11/1$ «حکا کی^{۱۳}» گردیدند و ریز ساختار های آشکار شده در اثر حکا کی، به وسیله میکروسکوپ نوری با نور قطبیده تجزیه و تحلیل شدند؛ سپس

از روش انجام سریع برای ذوب Ni_{76}Al بسیاری از پژوهشگران سود جسته اند: انجام سریع در کاستن ابعاد دانه، افزایش یکنواختی و گسترش دامنه محلول جامد موثر است. روش انجام سریع در مورد Ni_{76}Al برای «ایجاد نوار^{۱۰}» تبدیل به ذره کردن برای تولید پودر و ریخته گری قطره ای بکار می رود [۶/۷]. یکی از مسائل عمدی که در ریخته گری Ni_{76}Al باید بدان توجه شود مسئله تخلخل حاصل از انجام است. آلمینیوم و نیکل هر دو خاصیت انقباض پذیری بالایی دارند و تخلخلی که در طی انجام در آنها ایجاد می شود به سه صورت تخلخل گازی، تخلخل درشت ناشی از سیالیت و تخلخل ریز انقباضی می باشد [۸]. پژوهشگران متعددی در این زمینه کار کرده اند و بر اساس گزارش های آنان، ظهور تخلخل به علت وجود انقباض مرکزی است و تخلخل ریز به علت عدم جریان سیال درین شاخه ها (دندریتها) می باشد. انقباض، تش سطحی و حضور گاز، در ابعاد خلل و فرج تاثیر می گذارند و برای ایجاد تخلخل گازی باید گاز در درون مذاب به یک مقدار بحرانی برسد.

۲- روش کار

در این تحقیق انتخاب نوع کوره، چگونگی فرایند ذوب و ریخته گری، عملیات حرارتی و همچنین مسئله «ریز ساختاری» مطالعه و بررسی شده اند. در مورد انتخاب نوع کوره، به طوری که قبلاً اشاره شد، چون ناحیه تکفاز ترکیب Ni_{76}Al دامنه بسیار محدودی دارد برای دستیابی به این ترکیب در فرایند ذوب و ریخته گری و رعایت آمیزه شناسی آلیاز، چندین عامل از جمله متزوی بودن مذاب (به دور از هوا بودن)، تسریع در انجام گرفتن واکنشها، به هم زدن مذاب، تکرار پذیری تولید محصول، و قابلیت تغییر پذیری با هر مقدار بار، مورد نظر بوده اند و به همین جهت کوره های خلاء و کوره های دارای جو کنترل شده، مناسبترين آنها برای ذوب و تهیه این ترکیب تشخیص داده شدند. کوره مورد استفاده در این پژوهش کوره القایی تحت خلاء با بسامد متوسط بوده است که در خلاء $(10^{-5}-10^{-6})$ میلی بار مورد استفاده قرار می گیرد. در این کوره از سیستم دو بسامدی یکی برای ذوب و دیگری برای هم زدن مذاب استفاده شده است.

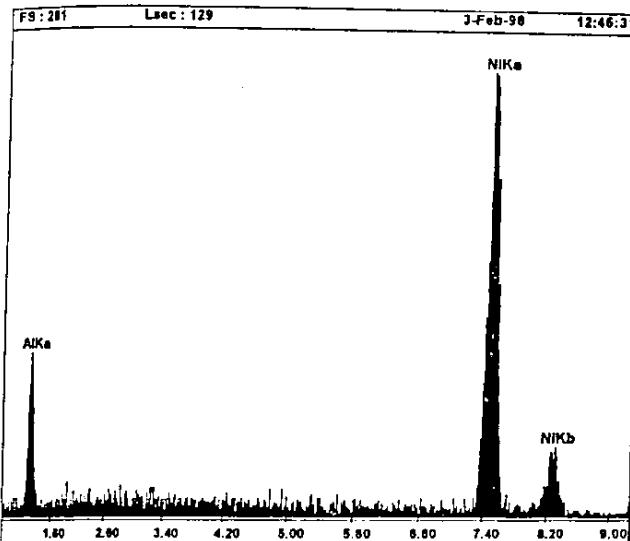
به منظور پایداری شیمیایی (عدم واکنش با کربن) از بوته های آلمینیایی استفاده شد و عمر مفید هر بوته ۳ تا ۴ دفعه ذوب بود. چون برای ذوب در خلاء لازم است کنترل دقیقی بر مقدار بار کوره صورت گیرد مواد اولیه باید دارای درجه خلوص شیمیایی بالا

10- Ribbon

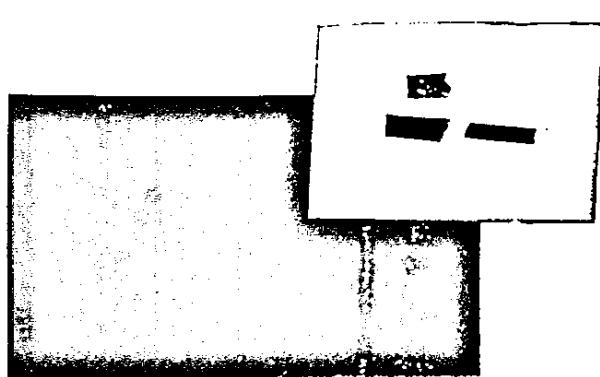
11- Annealing

12- Antiphase boundary

13- Etch



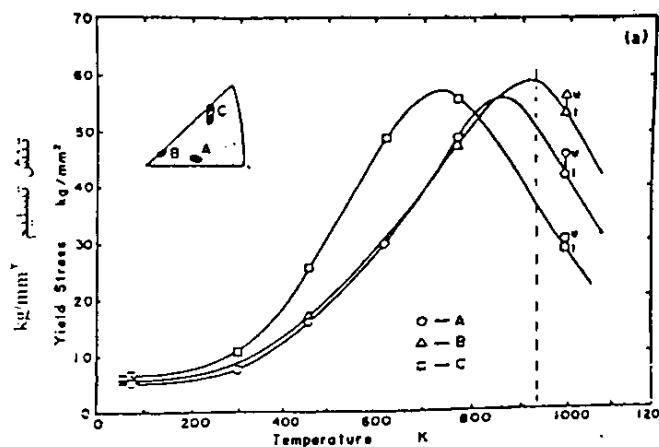
شکل ۵: نتیجه حاصل از تجزیه و تحلیل عنصری نمونه $Ni_{75}Al_{25}$ ریخته گری شده در کوره مقاین که نشان دهنده ترکیب عاری از ناخالصی است.



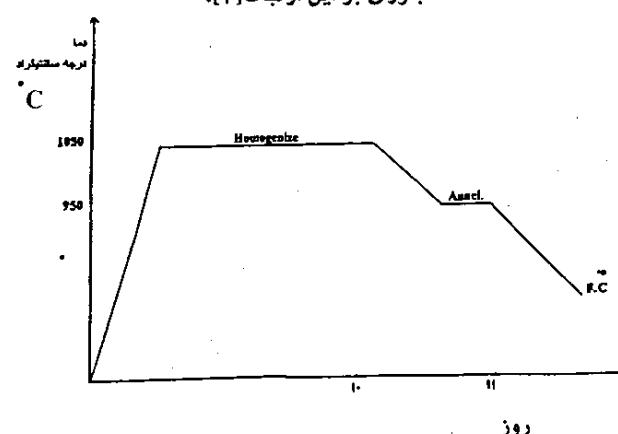
شکل ۶ - الف: نتیجه حاصل از آزمایش خمسم سه نقطه‌ای آلیاز $Ni_{75}Al_{25}$ که نشان دهنده انعطاف‌پذیری ناچیز این آلیاز و شکننده بودن آن است.

استحکام بین دانه‌ای و رفتار آلیاز در برابر شکست به وسیله آزمایش خمسم سه نقطه‌ای در دمای محیط صورت گرفت. نمونه‌های خمسم سه نقطه‌ای در اندازه $25 \times 2 \times 2\text{ mm}$ با ازه الماسه بریده شدند و بعد از انجام آزمایش روی مقطع‌های شکست به وسیله SEM بروزی شدند. همچنین «ریزسختی» نمونه‌ها بواسیله دستگاه سختی سنج Shimodzu با اعمال ۱۰۰۰ گرم نیرو در مدت ۱۵ ثانیه انجام گرفت.

نمونه‌های ریخته شده برای بررسی ساختار بلوری و اثبات تکفاز بودنشان، به وسیله دستگاه پراش پرتوهای X (ساخت کمپانی فیلیپس مدل PW1800) مورد مطالعه قرار گرفتند. تجزیه و تحلیل شیمیایی نمونه‌ها و چگونگی سطح مقطع شکستگی آنها با میکروسکوپ الکترونی روبشی مجهز به دستگاه EDX انجام گرفت. سپس نظم موجود در شبکه بلوری و اثبات وجود نقاط ابر شبکه در زمینه پراش نمونه‌ها و همچنین حضور و یا عدم حضور فاز دوم در ترکیب آلیاز به وسیله میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) با انرژی الکترون 100 KeV بررسی شد. به منظور بررسی مکانیکی نمونه‌ها آزمایشهای دیگری بر روی نمونه‌های ریخته شده، از جمله آزمایشهای خمسم و سختی سنجی انجام گرفت.



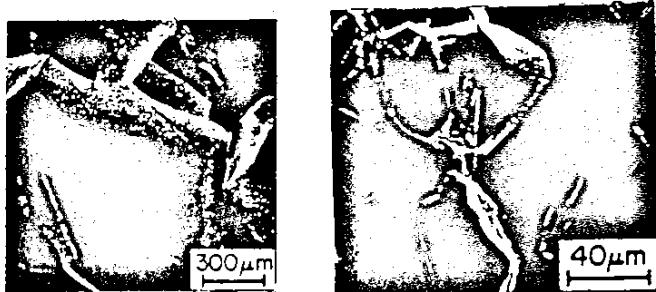
شکل ۳: ارتباط میان نقطه تسخیم و دما و تأثیر جهات مختلف بلوری بر این ارتباط [۲].



شکل ۴: چرخه عملیات حرارتی انجام شده بر روی ترکیب Ni_3Al بعد از ریخته گری

- 14- Transmission Electron Microscope
- 15- Scanning Electron Microscope
- 16- Microhardness

نتایج

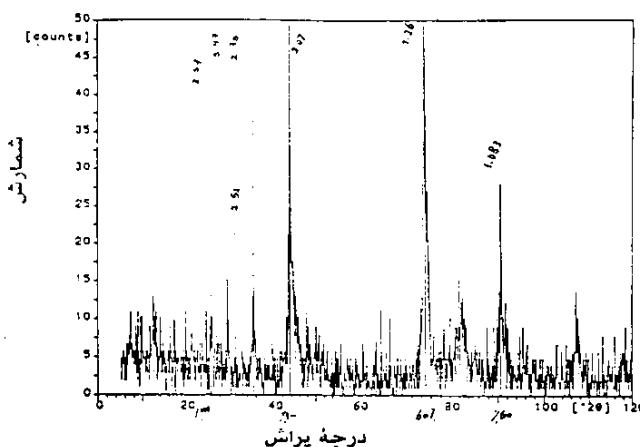


شکل ۶ - ج: سطح شکست ترکیب $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ که نشان دهنده شکست در امتداد مرز دانه به صورت پیچ دار می باشد.

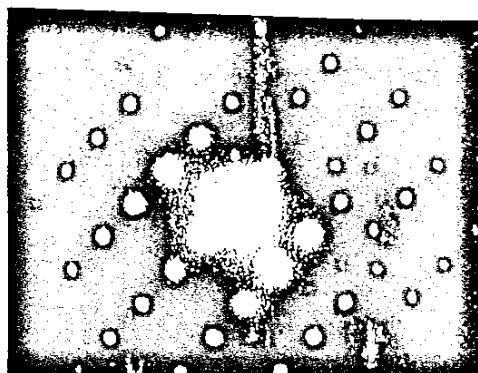
نتایج حاصل از آزمایش خمش، فلزنگاری، و سطح مقطع شکستگی در مورد نمونه های $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ در شکل های ۶-الف، ب، ج نشان داده شده است. شکل ۶ - ب، که نتیجه حاصل از فلزنگاری نمونه است نشان می دهد که دانه هایی با مرز دانه مسطح وجود دارد. آزمایش خمش و شکل شناختی (مورفولوژیک) محل شکست نشان می دهد که انعطاف پذیری در این ترکیب ناچیز و شکست به صورت ترد و از میان مرز دانه ها رخ داده است. شکل ۶ - ج نشان می دهد که در این شکست، مرز دانه به صورت «پیچ دار^{۱۱}» است. نتایج حاصل از SEM، فلزنگاری، و XRD^{۱۲} (شکل ۷) بیانگر تکفاز بودن ترکیب است و از طرفی نتیجه حاصل از TEM (شکل ۸) مؤید نظم موجود در شبکه و حضور ابر شبکه در ساختار می باشد؛ به بیانی دیگر ترکیب $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ ریخته شده، یک ترکیب میان فلزی منظم تکفاز است.

بحث و نتیجه گیری

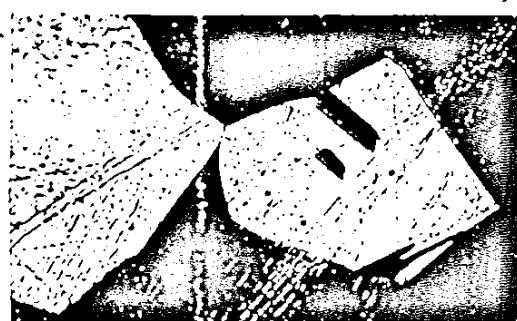
روشهای مختلفی برای تولید آلیاژ $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ وجود دارند: متالورژی پودر، انجماد سریع و ریخته گری از جمله این روشهای است. بکارگیری روشهای متالورژی پودر و انجماد سریع، امکانات بسیار پیشرفته ای را طلب می کنند که باعث بالا رفتن هزینه تمام شده قطعات می شود. از طرف دیگر، دستیابی به ترکیب شبیه ای آمیزه شناختی در فرایند ذوب اهمیت بسیار دارد و عاملهای مؤثر دیگر در ذوب از جمله گازهای باقی مانده، آخالها و دیگر ناخالصیهای نیز تأثیر زیادی بر خواص این ترکیبات میان فلزی دارند. با توجه به این موارد و امکانات موجود، نخستین بار است که در این کار پژوهشی روش ریخته گری در خلاء در بوتة آلومینایی به منظور ساختن «ترکیب میان فلزی منظم تکفاز $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ » در کشور آزمایش می شود.



شکل ۷: نتیجه حاصل از تجزیه و تحلیل ساختار بلوری نمونه $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ ریخته شده در کوره القایی که نشان دهنده تکفاز بودن نمونه و تطابق اطلاعات آن با کارت کریستالوگرافی ASTM این ترکیب است.



شکل ۸: میکروگراف میکروسکوپ الکترونی عبوری حاصل از بررسی ساختار بلوری ترکیب $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ ریخته شده در کوره القایی که نشان دهنده نقاط ابر شبکه بلوری به روش TEM است.



شکل ۹ - ب: نتیجه حاصل از فلزنگاری نمونه $Ni_{7.5}Al_{2.5}$ به وسیله میکروسکوپ نوری که نشان دهنده دانه بندی مسطح این ترکیب می باشد.

تشکر و قدردانی

با توجه به استفاده بسیار مفید و موثر از کوره های القایی خلاه در انجام این کار تحقیقی وظیفه خود می دانیم از همکاری و مساعدت همه جانبیه جناب آقای دکتر مسعود امامی مستول محترم امکانات ریخته گری انسیتو مواد دانشکده مواد دانشگاه تهران صمیمانه تشکر و قدردانی نماییم.

از آنجاکه شرایط قابل دسترسی برای انجام فرایند ذوب مطلوب، از جمله کنترل جهش دما به علت گرمای زیاد و اکشن، تنظیم سرعت ذوب، زمان کوتاه نگهداری مذاب در نقطه ذوب به منظور جلوگیری از تبخیر آلمینیوم و اجرای عملیات حرارتی مناسب بعد از ذوب مورد نظر بوده اند موفق شده ایم، با توجه به نتایج حاصل، به یک ساختار تکفارز منظم دست یابیم.

References:

- 1 - J. H. Westbrook; "Intermetallic compounds: Their past and promise", Metallurgical transcriptions A, Bol. 8A, p 1327 , 1977.
- 2 - N. S. Stoloff; "Ordered alloys; Physical metallurgy and structural applications", International metals reviews, Vol. 29, No.3, p 123,1984.
- 3 - D.P.Pope and R.Darolia, "High temperature applications of intermetallic compounds", MRS Bulletin May 1996.
- 4 - K. Aoki and O.Izumi; Improvement in room temperature ductility of the L 12 type intermetallic compound Ni₃Al by boron additions, J. Jpn.Inst. Metals, Vol. 43, P. 1190, 1979.
- 5 - S. C. Deevi and V. Sikka; "Safer and more cost - effective process for melting and casting intermetallic alloys enhances their commercial potential" , Mat. Tech., p.97, 1995.
- 6 - J. A. Horto and C.T.Liu; "Anisotropic antiphase boundaries in rapidly solidified Ni₃Al Acta Metall. vol. 33, No. 12, p. 2191, 1985.
- 7 - C. C. Koch; "Rapid solidification of intermetallic compounds", International materials reviews, Vol.33, No.4, p.201, 1988.
- 8 - C.T.Ho, C. J. Cheng, J. A. Sekhar; " Solidification microporosity in directionally solidified multicomponent nickel aluminide" Metall. transcriptions A, Vol.22A, p.225, 1991.

Casting of Single Phase Ordered Intermetallic -/- Compound of Ni₃Al, a Substitution for Nickel - base Superalloys for high temp. Structural Application

A. A. Hosseini, K. Rezaeianpour, M.M.Taghiee

and M. Emammi

Nuclear Materials Group

Nuclear Research Center for Agriculture &

Medicine Atomic Energy Organization of Iran

Abstract

Ni₃Al phase is the most important strengthening constituent (γ phase) of commercial nickel - base superalloys and is responsible for their good high temperature strength and creep resistance. The Ni_xAl alloys are resistant to air oxidation because of their ability to form adherent oxide films that protect the base metal from excessive attack. Ni_xAl is an ordered intermetallic phase with L12 structure which have very interesting mechanical properties at high temperatures. One outstanding characteristic of most intermetallics is that their strength does not decline rapidly with increasing temperature. In many cases, the yield stress of these alloys increases rather than decreases with test temperature, in contrast to conventional alloys such as austenitic stainless steels. This behavior referred as anomalous behavior of most aluminides makes intermetallic alloys particularly suitable for use at elevated temperatures. In addition density of single phase Ni_xAl is free from two strategic elements of Co and Cr. Hence with respect to factors like lifetime and efficiency and price the need for design of new material is well established. In this research work casting of single phase Ni_xAl ordered intermetallic compound, as the main aim, has been done and after casting characterization of ingots to prove it's chemical composition as well as its ordered structure have been carried out.