

# Struktur von Aluminium-Indium-Schmelzen mittels Röntgen-Weitwinkelbeugung

Jochen Hoehler \* und Siegfried Steeb

Max-Planck-Institut für Metallforschung, Institut für Werkstoffwissenschaften, Stuttgart

(Z. Naturforsch. 30 a, 771–774 [1975]; eingegangen am 19. April 1975)

*Structure of Aluminium-Indium-Melts by Means of X-Ray-Wide Angle Diffraction*

By transmission of Mo-K $\alpha$ -radiation, intensity curves were obtained from molten Al and molten In as well as from Al-In alloys containing 10, 20, 30, 40, 70, 80, 90, and 95.3 a/o Al. Radial distribution functions were calculated from these experimental curves. From the RDF's the concentration dependency of the number  $N_1$  and the distance  $r_1$  of nearest neighbours was obtained. The concentration dependency of nearest neighbours reveals the segregation tendency of molten Al-In alloys. The small angle scattering observed in the intensity curves is in agreement with this result and will be treated in a subsequent paper.

## 1. Einleitung

In jüngster Zeit wurden die Schmelzen des in Abb. 1 gezeigten monotektischen Systems Al-In mittels Röntgen-Beugung untersucht, und zwar im Weitwinkel- und im Kleinwinkelgebiet. Die letztgenannten Untersuchungen werden in<sup>2</sup> behandelt, die Weitwinkeluntersuchungen dagegen in vorliegender Arbeit.

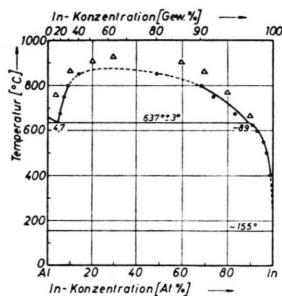


Abb. 1. System Al-In: Zustandsdiagramm nach<sup>1</sup> ( $\Delta$  = in vorliegender Arbeit untersuchte Schmelzen).

## 2. Versuchsdurchführung

### 2.1. Präparation

Als Ausgangsmaterial zur Probenherstellung dienten Barren aus Aluminium (99,99%; Fluka AG, Buchs) und Indium (99,99%; Hohlfeld, Frankfurt). Die Legierungen wurden im Induktionsofen unter Argonatmosphäre erschmolzen und aus den Gußkörpern durch Walzen und Schleifen die durchstrahlbaren Proben angefertigt. Die Überprüfung

\* Teil der Dissertation von J. Hoehler.

Sonderdruckanforderungen und Priv.-Doz. Dr. S. Steeb,  
MPI-Metallforschung, D-7000 Stuttgart 1, Seestraße 92.

der Probenzusammensetzung erfolgte durch die Methode der Röntgen-Fluoreszenzanalyse.

### 2.2. Beugungsexperimente, Korrekturverfahren und Anpassung

Die Beugungsexperimente wurden in einer früher<sup>3</sup> beschriebenen Apparatur in Durchstrahlung durchgeführt, wobei monochromatische Mo-K $\alpha$ -Strahlung verwendet wurde. Die Proben befanden sich dabei in einer Küvette mit zwei Glimmerfenstern. Die Korrektur der gemessenen Intensitätskurven auf Nulleffekt, Absorption, Polarisation und inkohärente Streuung erfolgte sinngemäß wie in<sup>4</sup>. Für die Anpassung wurde die Weitwinkelmethode<sup>5</sup> und das Verfahren nach Krogh-Moe<sup>6</sup> verwendet.

## 3. Versuchsergebnisse

### 3.1. Intensitätskurven

Die untersuchten Legierungen sind im Zustandsdiagramm (Abb. 1) mit Dreiecken gekennzeichnet. Die Untersuchungstemperaturen liegen 50 bis 100 Grad über der Liquiduslinie. Üblicherweise untersucht man Schmelzen bei Temperaturen, die nur rund 20 Grad über der Liquiduslinie liegen, da bei größerer Temperaturdifferenz die strukturellen Besonderheiten der Schmelzen immer mehr verschwinden. Da aber beim System Al-In der Verlauf der Liquiduslinie von Autor zu Autor (Hansen<sup>1</sup>, Hultgren<sup>7</sup>) etwas verschieden ist, muß die Temperaturüberhöhung so gewählt werden, daß die Messungen bestimmt im einphasigen Gebiet erfolgen.

In den Abb. 2 und 3 sind die an den verschiedenen Proben erhaltenen und normierten Intensitätskurven wiedergegeben. Dabei ist jeweils die kohä-



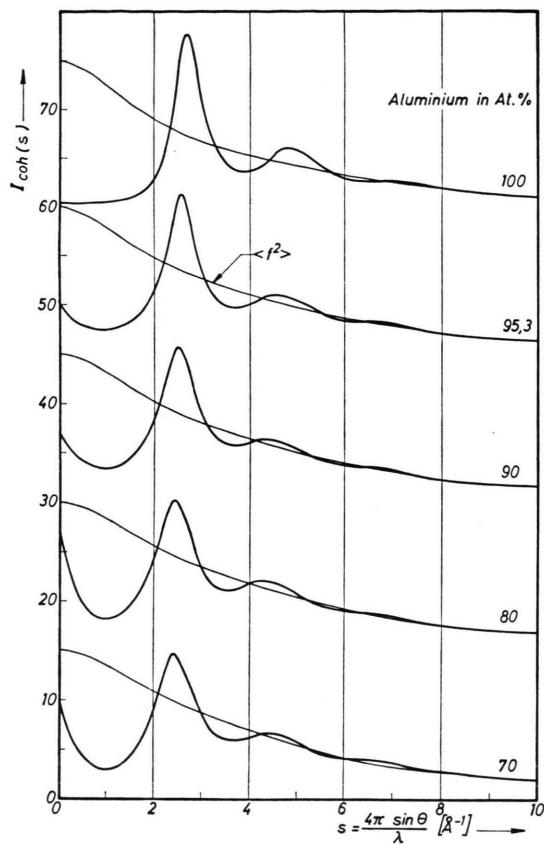


Abb. 2. System Al-In: Kohärenz gestreute Intensität.

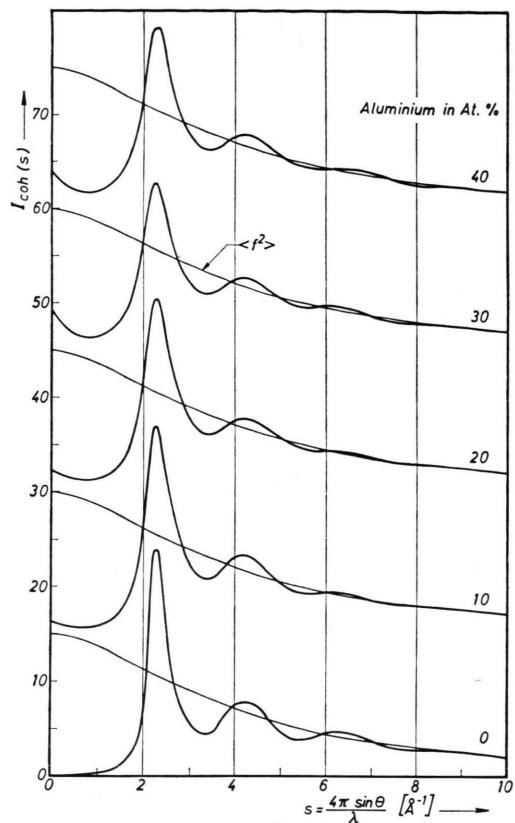


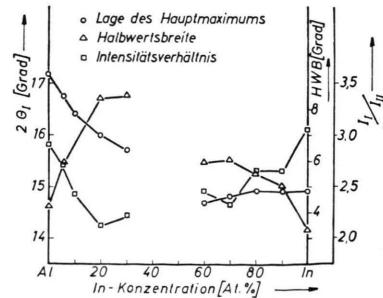
Abb. 3. System Al-In: Kohärenz gestreute Intensität.

rent gestreute Intensität aufgetragen. Sie ist angeglichen an die jeweilige  $\langle f^2 \rangle$ -Kurve. Der Ordinatenmaßstab ist in relativen Einheiten angegeben. Für deren Umrechnung in e.u.-Einheiten diene der Hinweis, daß die  $\langle f^2 \rangle$ -Kurven jeweils bei 15, 30, ... in die Ordinate einmünden. Die Anpassung mußte bei relativ kleinen  $s$ -Werten vorgenommen werden, da aus apparativen Gründen nur Streuwinkel bis  $2\theta \leq 60^\circ$  erfaßt werden konnten. Diese Kurven zeigen im Bereich kleiner Streuwinkel einen Intensitätsanstieg, die sogenannte Kleinwinkelstreuung. Diese Streuung wird noch gesondert untersucht und diskutiert werden<sup>2</sup>. Sie hat jedoch auf die folgende Weitwinkelauswertung kaum einen Einfluß.

Vergleicht man die Intensitätskurven, so fällt auf, daß die Kurven der Elemente ein wesentlich schmäleres Hauptmaximum aufweisen als die der Legierungen und daß außerdem die Lage der Hauptmaxima sich von  $s = 2,65 \text{ Å}^{-1}$  für das reine Al bis zu  $s = 2,25 \text{ Å}^{-1}$  für das reine In verschiebt. Bei entmischt Schmelzen können die Intensitätskurven der

Legierungen stets aus denjenigen der Elemente mit entsprechender Wichtung zusammengesetzt werden, woraus sich die beobachtete Verbreiterung erklärt. Eine Auflösung in die beiden ursprünglichen Peaks würde bei Entmischungssystemen erst erfolgen, wenn die Halbwertsbreite der Elementpeaks ( $\sim 3^\circ$ ) kleiner als der Abstand der Maxima ( $2^\circ 15'$ ) wäre.

In Abb. 4 ist der Verlauf der Halbwertsbreiten jeweils des ersten Maximums über der Konzentra-

Abb. 4. System Al-In: Lage des Hauptmaximums, Halbwertsbreite und Intensitätsverhältnis  $I_I/I_{II}$ .

tion aufgetragen. Hier ist die schnelle Zunahme der Halbwertsbreite mit wachsenden Indiumgehalten bis zu 40 Atom-% Indium besonders bemerkenswert. Bei dieser Zusammensetzung weist der Kurvenverlauf ein Maximum auf, um dann wesentlich flacher wieder abzufallen. Auch das Intensitätsverhältnis zwischen dem 1. und 2. Maximum nimmt, wenn auch nicht so ausgeprägt, im Bereich der kritischen Zusammensetzung einen Extremwert, in diesem Fall ein Minimum, an.

Bezüglich der Lücke in Abb. 4 sei vermerkt, daß sich bei der Herstellung der Proben im Bereich der kritischen Zusammensetzung, die nach Predel<sup>8</sup> bei 40 At.-Proz. In liegt, Schwierigkeiten ergeben: Die Proben mit 40 und 50 At.-Proz. Indium sind mit den zur Verfügung stehenden Techniken nicht herstellbar, da diese Legierungen sich trotz raschen Abschreckens makroskopisch entmischen und die für die Untersuchungen benötigten kleinen Probenmengen dadurch nicht mehr die richtige Zusammensetzung besitzen.

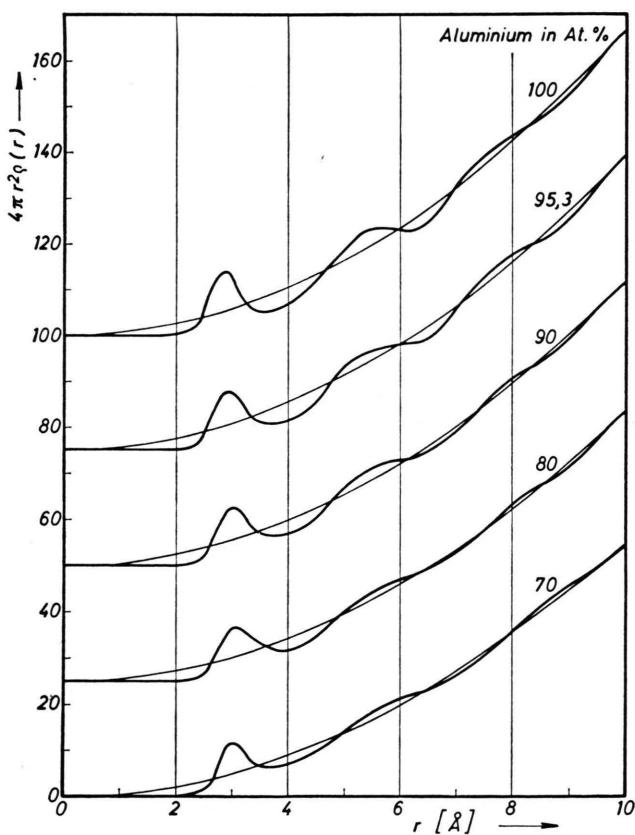


Abb. 5. System Al-In: Atomverteilungskurven.

### 3.2. Atomverteilungskurven

Die Abb. 5 und 6 zeigen die aus den Intensitätskurven nach den üblichen Beziehungen erhaltenen Atomverteilungskurven.

## 4. Diskussion der Ergebnisse

### 4.1. Radius $r_I$ der ersten Koordinationssphäre

Trägt man die Radien  $r_I$  der ersten Koordinationssphären über der Konzentration auf, so ergibt sich der in Abb. 7 wiedergegebene Verlauf. Die Radien der Randkomponenten für Al mit  $r_I = 2,88 \text{ \AA}$  und In mit  $r_I = 3,25 \text{ \AA}$  stimmen mit den von ande-

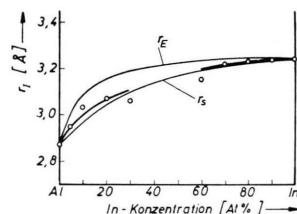


Abb. 7. System Al-In: Radius der ersten Koordinationssphäre.

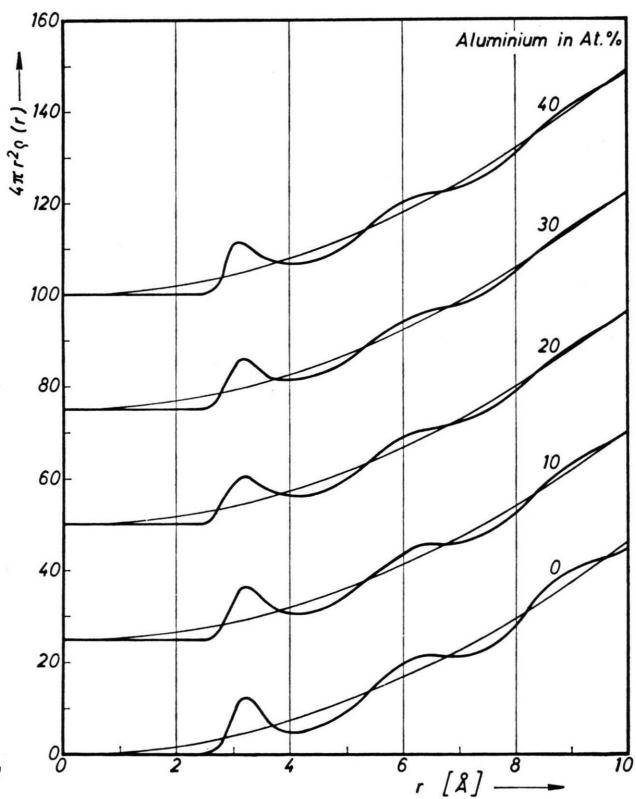


Abb. 6. System Al-In: Atomverteilungskurven.

ren Autoren angegebenen zufriedenstellend überein (vgl. <sup>9</sup>).

In Abb. 7 sind in Anlehnung an <sup>4</sup> noch die für statistische Verteilung der Atome beider Sorten zu erwartende Kurve  $r_s$  und die für extreme Entmischung zu erwartende Kurve  $r_E$  eingetragen. Die Kurve, die den theoretisch aus Röntgen-Experimenten zu erwartenden Radienverlauf einer Al-In-Legierung mit fiktiver statistischer Verteilung wiedergibt, weist einen stark nach oben gekrümmten Verlauf auf. Die aus den Experimenten erhaltenen Werte  $r_1$  liegen teilweise wenig über der statistischen Kurve bzw. bei hohen In-Konzentrationen auf der statistischen Kurve. Damit ergibt sich aus dieser Auftragung kein Hinweis auf eine in den Schmelzen evtl. vorhandene Entmischungstendenz. Dies ist verständlich, wenn berücksichtigt wird, daß die Schmelzen, wie in <sup>2</sup> noch auszuführen, zwar entmischt sind, jedoch nur zu einem relativ geringen Prozentsatz von etwa 10 bis 20%.

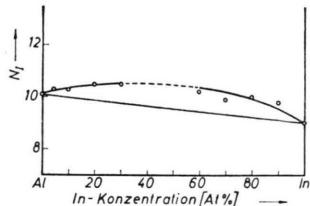


Abb. 8. System Al-In: Koordinationszahl  $N_1$ .

- <sup>1</sup> M. H. Hansen, K. Anderko, Constitution of Binary Alloys, McGraw Hill Book Co., Inc., New York 1958.
- <sup>2</sup> J. Hoehler u. S. Steeb, Z. Naturforsch. **30a**, 775 [1975].
- <sup>3</sup> R. Hezel u. S. Steeb, Z. Naturforsch. **25a**, 1085 [1970].
- <sup>4</sup> R. Hezel u. S. Steeb, Phys. kond. Materie **14**, 314 [1972].
- <sup>5</sup> N. S. Gingrich, Rev. Mod. Phys. **15**, 90 [1943].
- <sup>6</sup> J. Krogh Moe, Acta Cryst. **9**, 951 [1956].

#### 4.2. Zahl $N_1$ nächster Nachbarn

Die Koordinationszahlen  $N_1$  der ersten Koordinationssphäre wurden jeweils der Fläche unter dem ersten Maximum der Atomverteilungskurven entnommen und in Abb. 8 über der Konzentration aufgetragen. Die zusätzlich eingezeichnete Gerade, welche die Werte der beiden Randkomponenten verbindet, stellt die statistische Gerade dar. Dieser Verlauf wäre zu erwarten, wenn die Atome dem Konzentrationsverhältnis entsprechend statistisch verteilt in der ersten Koordinationsschale vorliegen würden. Nach <sup>10</sup> folgt aus der Abweichung nach größeren Koordinationszahlen hin, daß die Schmelzen des Systems Al-In eine Entmischungstendenz aufweisen.

Aus dieser Entmischungstendenz wird die in den Abb. 2 und 3 zu beobachtende Kleinwinkelstreuung verständlich, die zu weitgehenden Einblicken in die Struktur dieser Schmelzen führt (vgl. dazu die weiterführende Arbeit <sup>2</sup>).

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit gedankt.

- <sup>7</sup> R. Hultgren, P. D. Orr, P. D. Anderson u. K. K. Kelly, Selected Values of Thermodynamic Properties of Metals and Alloys, John Wiley and Sons, New York, London 1963.
- <sup>8</sup> B. Predel, Z. Metallkunde **56**, 791 [1965].
- <sup>9</sup> J. Hoehler, Dissertation, Universität Stuttgart 1975.
- <sup>10</sup> S. Steeb u. R. Hezel, Z. Phys. **191**, 398 [1966].