ETH zürich Research Collection

Doctoral Thesis

Decomposition in aluminium alloys diffuse scattering and crystal modelling

Author(s):
Aslam-Malik, Alexander

Publication Date:
1995

Permanent Link:

https://doi.org/10.3929/ethz-a-001448421 →

Rights / License:

In Copyright - Non-Commercial Use Permitted →

This page was generated automatically upon download from the ETH Zurich Research Collection. For more information please consult the Terms of use.

ETH Library

Diss. ETH Nr. 11029

Decomposition in Aluminium Alloys: Diffuse Scattering and Crystal Modelling

A dissertation submitted to the
Swiss Federal Institute of Technology
Zürich

For the degree
Doctor of Natural Sciences
presented by

Alexander Aslam-Malik
Dipl. Phys. (U Bayreuth)
born March 27, 1963
citizen of the Federal Republic of Germany

accepted on recommendation of:
Prof. Dr. G. Kostorz, examiner
Prof. Dr. W. Pitsch, co-examiner
PD Dr. B. Schönfeld, co-examiner

1995

Summary

In the present study the microstructure of metastable precipitates in Al-Ag and Al-Cu, so called pre-precipitates or Guinier-Preston (GP) zones, was investigated. In both systems important aspects of the microstructure are still controversially discussed. In Al-Ag two forms of GP zones are suggested; depending on the aging temperature above or below about 443 K, ϵ- or η-zones should evolve. Differences between these two types of zones may be due to differences in internal order and/or composition. In Al-Cu the characterization of GP I zones is difficult because of the strong atomic displacements around the zones. The proper separation of short-range order and displacement scattering within a diffuse scattering experiment is still under discussion.

The technique used to determine the short-range order in both alloys was diffuse scattering with neutrons and X-rays. To separate short-range order and displacement scattering, the methods of Georgopoulos-Cohen (X-ray scattering) and Borie-Sparks (neutron scattering) were used. Of main importance is the optimization of the scattering contrast and thus the scattering contribution due to short-range order. Short-range order scattering is rationalized in terms of pair correlations. Crystals may subsequently be modelled to visualize the microstructure.

The Al-Ag system was investigated by diffuse X-ray wide-angle scattering and small-angle neutron scattering. The small-angle neutron scattering measurement was necessary since the GP zones in Al-Ag are almost spherical and the main scattering contribution is found close to the origin of reciprocal space. The small-angle scattering is not that important in the case of Al-Cu because the main scattering extends along $\langle 100 \rangle$ owing to the planar character of the GP I zones on $\{100\}$ lattice planes. This morphology is due to the large difference in size between Al and Cu atoms (size effect). Using neutrons instead of X-rays for wide-angle scattering offered the advantage to eliminate thermal diffuse scattering experimentally, to enhance the scattering contrast by using the ^{65}Cu isotope and to measure the elastic diffuse scattering within a volume closest to the origin of reciprocal space. The latter item is most important, since the large size effect will render any separation of short-range order scattering and displacement scattering the less reliable the more the displacement scattering becomes dominant (with increasing magnitude of the scattering vector).

An Al-3 at.% Ag single crystal was aged at 413 K for four hours to set up a state with η-zones. From the modelled crystals an average silver concentration of (80 ± 5) at.% and a depleted silver core of (72 ± 3) at.% were found. These results do not differ from those obtained from the same Al-3 at.% Ag single crystal aged at 453 K for four

minutes to set up a state with ϵ-zones. Since no signs of order were detected in the η-zones and no differences in composition as well as in chemical order of ϵ- and η-zones were found in crystal modelling, a distinction between η- and ϵ-zones seems no longer compelling.

For the investigation of the GP I zones in Al-Cu an Al-1.75 at.% ^{65}Cu single crystal was aged at 353 K for one hour. The crystal modelling showed that the GP I zones have an average composition of $(84 \pm 2)\%$ copper and mainly monolayers are formed; about 25% of the copper atoms are still in the matrix, which corresponds to a solubility limit of about 0.4 at.% copper ($T = 353$ K). In the modelled crystals a non-negligible amount of intersecting GP zones is observed. These intersecting zones did not allow the fraction of monolayers to be determined precisely.

To estimate the fraction of monolayer GP zones, the Warren-Cowley short-range order parameters were simulated in a planar stacking model of (100) planes. This model gives a fraction of 5% triplelayers, consisting of a central layer of pure copper and adjacent layers containing 40% copper, while 95% of all zones are monolayers with a copper concentration of 40%.

The different values for the copper content in the monolayer GP zones stem from the different procedures applied; in crystal modelling a sharp boundary between particle and matrix is defined, whereas in the planar stacking model a diffuse boundary is possible. The results represent an estimate of the upper and lower limit for the copper concentration in the monolayer GP I zones. The incorporation of aluminium in the GP I zones as well as the intersection of GP zones is interpreted as a means to reduce the strong displacement fields of the GP zones.

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Mikrostruktur der metastabilen Ausscheidungen in Al-Ag und Al-Cu – sogenannter Vorausscheidungen oder Guinier-Preston-Zonen (GP-Zonen) – untersucht. In beiden Systemen werden bedeutende Gesichtspunkte der Mikrostruktur nach wie vor kontrovers diskutiert. In Al-Ag werden zwei Arten von GP-Zonen vorgeschlagen. Abhängig davon, ob die Auslagerungstemperatur grösser oder kleiner als 443 K ist, bilden sich ϵ- oder η-Zonen. Unterschiede zwischen diesen beiden Zonenarten können von unterschiedlicher lokaler Ordnung und/oder Zusammensetzung herrühren. In Al-Cu ist die Beschreibung der GP-Zonen I wegen der grossen atomaren Verschiebungen in der Nähe der Zonen schwierig. Die optimale Trennung von Nahordnungs- und Verzerrungsstreuung in einem diffusen Streuexperiment wird noch immer diskutiert.

Zur Bestimmung der Nahordnung in den beiden Legierungen wurde die diffuse Streuung von Röntgenstrahlen und Neutronen verwendet. Nahordnungs- und Verzerrungsstreuung wurden nach den Methoden von Georgopoulos-Cohen (Röntgenstrahlung) und Borie-Sparks (Neutronen) getrennt. Von grösster Bedeutung ist dabei die Optimierung des Streukontrasts und damit die Optimierung des Streubeitrags, der von der Nahordnung herrührt. Die Nahordnungsstreuung wird in Form von Paarkorrelationsparametern dargestellt. Damit können Kristalle modelliert werden, um die Mikrostruktur im Ortsraum zu veranschaulichen.

Das Al-Ag-System wurde mittels diffuser Röntgenweitwinkelstreuung und Neutronenkleinwinkelstreuung untersucht. Die Neutronenkleinwinkelstreuung war notwendig, da die GP-Zonen in Al-Ag nahezu kugelförmige Gestalt besitzen und daher der Hauptstreubeitrag nahe am Ursprung des reziproken Raums gefunden wird. Im Falle von Al-Cu ist die Kleinwinkelstreuung nicht von so kritischer Bedeutung, da der Hauptstreubeitrag sich weit entlang ⟨100⟩ ausdehnt, infolge des planaren Charakters der GP-Zonen I auf den {100}-Gitterebenen. Diese Morphologie tritt wegen des grossen Unterschieds der Atomradien ('size effect') zwischen Al und Cu auf. Die Verwendung von Neutronen in der diffusen Weitwinkelstreuung erlaubte im Gegensatz zur Röntgenweitwinkelstreuung die experimentelle Abtrennung der thermisch diffusen Streuung, die Erhöhung des Streukontrasts durch Verwendung des ^{65}Cu Isotops und die Messung der diffusen Streuung innerhalb eines Volumens nahe am Ursprung des reziproken Raums. Der letzte Punkt ist besonders wichtig, da auf Grund des 'size effects' die Trennung von Nahordnungs- und Verzerrungsstreuung umso unzuverlässiger wird, je mehr der Beitrag der Verzerrungsstreung (bei grösseren Streuvektoren) überwiegt.

Ein Al-3 at.% Ag-Einkristall wurde für vier Stunden bei 413 K ausgelagert, um einen Zustand mit η-Zonen einzustellen. Aus den Kristallmodellierungen erhält man einen mittleren Silberanteil von (80 ± 5) at.% und einen silberverarmten Kern mit (72 ± 3) at.%. Diese Werte unterscheiden sich nicht von denjenigen, die man für denselben Al-3 at.% Ag-Einkristall erhält, nachdem er für vier Minuten bei 453 K ausgelagert worden war, um ϵ-Zonen einzustellen. Da keine Anzeichen von Ordnung innerhalb der η-Zonen beobachtet wurden und weder ein Unterschied in der Zusammensetzung noch in der chemischen Ordnung für ϵ- und η-Zonen gefunden wurde, scheint eine Unterscheidung zwischen ϵ- und η-Zonen nicht länger zwingend zu sein.

Für die Untersuchung der GP-Zonen I in Al-Cu wurde ein Al-1,75 at.% Cu-Einkristall eine Stunde lang bei 353 K ausgelagert. Die Kristallmodellierung ergab, dass die GP-Zonen I eine mittlere Zusammensetzung von (84 ± 2)% Kupfer haben und dass dominant Einschichter vorliegen; ungefähr 25% der Kupferatome befinden sich weiterhin in der Matrix, was einer Löslichkeitsgrenze von ungefähr 0,4 at.% Kupfer (T=353 K) entspricht. Bei der Kristallmodellierung wurde ein nicht vernachlässigbarer Anteil sich schneidender Einschichter beobachtet. Auf Grund dieser sich schneidenden Zonen konnte der genaue Anteil an Einschichtern nicht bestimmt werden.

Um den Anteil an einschichtigen GP-Zonen abzuschätzen, wurden die Warren-Cowley-Nahordnungsparameter in einem planaren Stapelmodell von (100)-Ebenen modelliert. Dieses Modell liefert einen Anteil von 5% Dreischichtern, die aus einer reinen zentralen Kupferschicht und angrenzenden Ebenen mit einem Kupfergehalt von 40% bestehen, während 95% aller Zonen Einschichter mit einem Kupferanteil von 40% sind.

Die unterschiedlichen Werte für den Kupfergehalt in den einschichtigen GP-Zonen rühren von den unterschiedlichen Auswertemethoden her; in der Kristallmodellierung gibt es eine fest definierte Grenze zwischen Teilchen und Matrix, während im planaren Stapelmodell eine verschwommene Grenze vorhanden sein kann. Die Ergebnisse stellen daher eine Abschätzung für den oberen und unteren Grenzwert des Kupferanteils in den einschichtigen GP-Zonen I dar. Sowohl der Einbau von Aluminium in die GP-Zonen I als auch das Schneiden von GP-Zonen wird als Möglichkeit angesehen, die Verzerrungsfelder um die GP-Zonen möglichst niedrig zu halten.