

DISS. ETH Nr. 9801

Electron Quasicrystallography

ABHANDLUNG
Zur Erlangung des Titels

Doktor der Naturwissenschaften

der
EIDGENÖSSISCHEN TECHNISCHEN HOCHSCHULE ZÜRICH
vorgelegt von

Conradin Martin Hans Beeli
dipl. Phys. ETH Zürich

geboren am 12. Mai 1962
von Staffelbach AG

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. H.R. Ott	Referent
Prof. Dr. H.-U. Nissen	Korreferent
Dr. P. Stadelmann	Korreferent

1992

Zusammenfassung

Diese Arbeit ist eine kristallographische Beschreibung der Struktur von Quasikristallen mittels hochauflösender Elektronenmikroskopie (HRTEM), mit dem Ziel mit Hilfe neuer Daten zu entscheiden, welche der drei Klassen von Quasikristall-Modellen zutreffend ist: perfekt quasiperiodische Penrose tilings, random tilings oder polyedrische Gläser.

Die verschiedenen, facettierten Wuchsmorphologien von ikosaedrischen und dekagonalen Quasikristallen werden beschrieben und mit theoretischen Vorhersagen verglichen. Dabei zeigt sich, dass die klassischen Regeln von Bravais, Friedel, Donnay und Harker erfolgreich die Gleichgewichtsform auch der Quasikristalle vorhersagen.

Kontrastberechnungen für dodekagonale Cr-Ni Quasikristalle zeigen, dass die übliche Interpretation von hochauflösenden Aufnahmen (für den Scherzer-Defokus) ebenfalls für zweidimensionale Quasikristallstrukturen gültig ist. Die Struktur der dodekagonalen Quasikristalle wird am besten durch ein dodekagonales random tiling Modell beschrieben, welches infolge der grossen Konfigurations-Entropie gegenüber nanokristallinen Zwillingsstrukturen energetisch günstiger ist.

Feinbereichsbeugungs-Aufnahmen von getemperten ikosaedrischen Al-Mn-Pd Quasikristallen zeigen perfekt ikosaedrische Symmetrie. Grosse Ein-Quasikristalleinheiten wurden mit der "electron channelling" Technik charakterisiert. Diese Ein-Quasikristalle haben eine ausgeprägte Spaltbarkeit senkrecht zu den drei ikosaedrischen Hauptrichtungen. Gekrümmte Oberflächen von gespaltenen Ein-Quasikristallen sind mikroskopisch durch (eben begrenzte) Stufen gebildet.

Die Bildung des stabilen dekagonalen Al-Mn-Pd Quasikristalls ist kinetisch unterdrückt; daher erfordert es besonders kleine Kühlraten um Ein-Quasikristalle zu erhalten. Die Struktur des neu entdeckten dekagonalen Al-Mn-Pd Quasikristalls zeigt grosse Ähnlichkeit zu dekagonalem Al-Mn, aber die dekagonale Ordnung ist in der stabilen Al-Mn-Pd Phase besser ausgebildet. Die dekagonalen Quasikristalle sind parallel zu der 10-zähligen Achse streng periodisch geordnet. Die Bedeutung dieses Resultats wird

ausführlich diskutiert, und ein random tiling Modell des Wachstums wird beschrieben, welches die beobachtete dekadonale Ordnungsstruktur gut beschreibt.

Die Struktur des stabilen Al-Cu-Li Quasikristalls wird mit Serien von Feinbereichsbeugungs- sowie HRTEM-Aufnahmen und Bildsimulationen in Ebenen senkrecht zu den drei Hauptrichtungen genau untersucht. Die Struktur dieser Phase ist offensichtlich komplex und stark von einer strukturellen Modulation senkrecht zu den fünfzähligen Symmetrieachsen beeinflusst.

Summary

This study presents a crystallographic characterization of the structure of quasicrystals by high-resolution transmission electron microscopy (HRTEM). It provides data which allow to differentiate between the three main classes of quasicrystal models: perfect quasiperiodic structures (Penrose tiling models), random tilings and polyhedral glasses.

The faceted morphology of icosahedral quasicrystals in the systems Al-Mn, Al-Cu-Li, Al-Cu-(Fe,Ru) and Al-Mn-Pd as well as of decagonal Al-Mn and Al-Mn-Pd quasicrystals is presented. It is found that the classical laws developed by Bravais, Friedel, Donnay and Harker for crystals, can be used to successfully predict the equilibrium shape of quasicrystals.

The image simulations presented for dodecagonal Cr-Ni quasicrystals indicate that the usual interpretation of HRTEM images taken near Scherzer defocus can also be applied to 2-dimensional quasicrystals. Dodecagonal quasicrystals have nonperiodic dodecagonal translational order which is best described by random tiling models. The important role of the entropy term in stabilizing these structures is stressed.

Selected area electron diffraction (SAD) patterns of annealed icosahedral Al-Mn-Pd quasicrystals indicate perfect icosahedral symmetry. Large icosahedral single-quasicrystal units have been characterized by electron channelling patterns. Crystal-like planar cleavage normal to 5-, 3- and 2-fold axes has been observed, and curved surfaces of crushed single-quasicrystals are found to be microscopically rough, i.e. they are composed of steps.

The investigation shows that the formation of the stable decagonal Al-Mn-Pd quasicrystal is kinetically inhibited, and therefore very low cooling rates are required to obtain single-quasicrystal units. Comparison with the structure of decagonal Al-Mn shows close similarities; however the stable Al-Mn-Pd phase has a much larger correlation length of the decagonal translational order. Decagonal quasicrystals are strictly periodic along the 10-fold axis. The implications of this result are discussed, and a growth random tiling model is proposed allowing an interpretation of the observed quasilattice structure.

The structure of stable Al-Cu-Li quasicrystals is carefully characterized by series of SAD patterns, HRTEM images and contrast simulations in planes normal to the three main directions. The results suggest that Al-Cu-Li quasicrystals have a complex structure which is characterized by a structural modulation observed to occur normal to the 5-fold axes.