

1 Einleitung

Der Massentransport in Schmelzen und deren Verhalten während der Erstarrungsphase sind von wesentlicher Bedeutung für die Eigenschaften daraus hergestellter Werkstoffe. Zur Beschreibung dieses Massentransports müssen entsprechende Diffusionskoeffizienten bestimmt werden. Diffusionsmessungen sind darüber hinaus in Halbleiterschmelzen zur Optimierung der Kristallzüchtungsparameter notwendig, da diese Züchtung oft aus flüssigen Schmelzlösungen erfolgt und der Transport an der Wachstumsfront des Kristalls entscheidend von der Diffusion bestimmt wird. Die Modellierung der Vorgänge, die beim Kristallwachstum auftreten, wird zur Optimierung dieses Prozesses eingesetzt und erfordert eine möglichst genaue Kenntnis der thermophysikalischen Daten der Schmelzen, vor allem des Diffusionskoeffizienten.

Die Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Temperatur ist darüber hinaus ein wichtiger Baustein zum genaueren Verständnis der atomaren Struktur metallischer Schmelzen und der darin ablaufenden Transportvorgänge. Bisher konnte z.B. kein Modell zu Diffusionsprozessen in solchen Schmelzen eindeutig bestätigt werden, weil zu wenige Diffusionskoeffizienten in hinreichender Genauigkeit vorliegen.

Die Diffusionskoeffizienten sind für viele Systeme nicht bekannt oder die in der Literatur angegebenen Werte sind mit erheblichen Streuungen von bis zu einer Größenordnung und mehr behaftet. In zahlreichen Arbeiten wurde gezeigt, dass das Auftreten von Konvektion der Grund für diese Schwankungen des Diffusionskoeffizienten ist. Der konvektive Massentransport addiert sich zum reinen diffusiven mit der Konsequenz, dass der gemessene Diffusionskoeffizient nicht mehr ausschließlich den rein diffusiven Transport beschreibt.

Ein Verfahren zur Messung von Diffusionskoeffizienten, das eine ganze Reihe von Nachteilen anderer Methoden vermeidet, ist die Scherzellenmethode. Bei dieser Messtechnik werden zwei dünne, lange, parallel zur Gravitationsrichtung orientierte Kapillarabschnitte mit Materialien unterschiedlicher chemischer Zusammensetzungen befüllt. Erst nach Erreichen der über der Schmelztemperatur liegenden Versuchstemperatur wird dieses sogenannte „Diffusionspaar“ durch ein Verscheren der Flüssigkeitssäulen in Kontakt gebracht. Selbst diese optimierte Methode hat sich allerdings als nicht ganz frei von störenden Konvektionseinflüssen erwiesen. In zahlreichen Arbeiten wurde der Einfluss folgender Vorgänge auf den gemessenen Diffusionskoeffizienten im Detail untersucht [1-4]:

- Scherbewegungen, die Wirbel erzeugen und dadurch zu einer lokalen Vermischung der Komponenten führen.

- Temperaturgradienten, die Dichteunterschiede und damit konvektive Strömungen im Schwerfeld hervorrufen können.
- Instabile Schichtung der Materialien, bei der sich die Komponente mit der geringeren Dichte unterhalb der dichteren befindet.

Dabei hat sich herausgestellt, dass die genannten Effekte zum Teil durch eine geschickte Versuchsanordnung und Auswertung eliminiert werden können, bzw. keinen merklichen Einfluss auf die gemessenen Diffusionskoeffizienten hatten. Müller [4] hat gezeigt, dass ein anderer Effekt die beobachteten Streuungen erklären könnte. Besteht innerhalb der Scherzelle kein Kontakt zwischen Schmelze und Kapillarwand, entsteht eine sogenannte freie Oberfläche. Liegt entlang einer solchen freien Oberfläche ein Konzentrationsunterschied in der Schmelze vor, kann sich dadurch ein Oberflächenspannungsgradient ausbilden. Dadurch entsteht im Bereich der freien Oberfläche eine Konvektionsrolle, so lange der antreibende Gradient existiert. Dies wird als solutale Marangonikonvektion bezeichnet. Leider fehlen in der Literatur in der Regel ausreichende Daten über die Abhängigkeit der Oberflächenspannung von der Konzentration, weshalb der Einfluss der solutalen Marangonikonvektion bisher nicht verlässlich abgeschätzt werden konnte. Da die Marangonikonvektion gravitationsunabhängig ist, liefern auch Messungen unter Schwerelosigkeit keine verlässlichen Diffusionskoeffizienten, falls dieser Effekt entscheidend zum Massentransport beiträgt.

Ziel der Arbeit war daher eine systematische Untersuchung des Einflusses der solutalen Marangonikonvektion auf die mit Hilfe der Scherzellenmethode gemessenen Diffusionskoeffizienten. Hierzu wurden die Materialsysteme Sn-Bi, Pb-Ag und Sn-In gewählt und folgende Schwerpunkte gesetzt:

- Messungen der Oberflächenspannung in Abhängigkeit der Zusammensetzung, um die Stärke der solutalen Marangonikonvektion abschätzen zu können.
- Diffusionsmessungen mit unterschiedlichen freien Oberflächen zur Untersuchung des konvektiven Einflusses der Marangonikonvektion.
- Diffusionsmessungen unter Schwerelosigkeit, um die Wirkung von Auftriebseffekten auszuschließen.

2 Messung von Diffusionskoeffizienten: Einfluss der Konvektion

Betrachtet man ein System aus beweglichen Teilchen unterschiedlicher Sorten, so ist in erster Näherung der Gleichgewichtszustand derjenige maximaler Entropie, d. h. der Zustand, in dem die Teilchen gleichverteilt sind. Sind die Teilchen einer Sorte ungleich verteilt, so entsteht ein irreversibler Massentransport, der letztlich zu einer kompletten Durchmischung führt. Erfolgt dieser durch die zufällige Bewegung der Teilchen infolge ihrer Wärmebewegung (Brown'sche Bewegung), so nennt man ihn Diffusion.

Prinzipiell lassen sich für Flüssigkeiten zwei Arten von Diffusion unterscheiden. Befindet sich ein System durch die Zusammensetzung aus Teilchensorten mit unterschiedlichem chemischem Potential nicht im chemischen Gleichgewicht, so ist die Voraussetzung für das Auftreten der ersten Art von Diffusion, der chemischen Diffusion erfüllt. Man spricht von Selbstdiffusion, wenn der Diffusionsvorgang innerhalb eines chemisch homogenen Mediums stattfindet. In diesem Fall wird die Bewegung verschiedener Isotope verfolgt. Bei der Interdiffusion wird die Bewegung einer Teilchensorte in einem Medium aus einer anderen Teilchensorte betrachtet. Findet der Materialtransport durch ein von außen angelegtes elektrisches Feld statt, so spricht man von Elektrotransport, im Falle eines Temperaturgradienten von Thermotransport (zum Teil auch Elektrodifffusion bzw. Thermodiffusion genannt). Zur Beschreibung dieser Massentransportprozesse werden die entsprechenden Diffusionskoeffizienten und Transportparameter verwendet. Da im Rahmen der vorliegenden Arbeit ausschließlich Interdiffusionsexperimente durchgeführt wurden, ist im folgenden unter Diffusionskoeffizient immer der diesen Prozess beschreibende Parameter zu verstehen.

Im Lauf der Jahre wurden verschiedene Methoden eingesetzt, um den Diffusionskoeffizienten in Metall- und Halbleiterschmelzen zu bestimmen [3, 5, 6]. Die Schwierigkeit besteht darin, die Diffusion experimentell von der Konvektion zu trennen, da in Flüssigkeiten sehr oft Konvektionsströmungen zum Massentransport beitragen. Die reine Diffusion wird somit durch das Auftreten von Konvektion gestört. Gerade bei Metall- und Halbleiterschmelzen sind Volumenänderungen und Segregationseffekte (beim Erstarren) wichtige Quellen von Konvektionsströmungen. Durch eine Optimierung des Messverfahrens und die Wahl geeigneter Versuchsbedingungen können solche Effekte jedoch ggf. minimiert bzw. in der Auswertung korrigiert werden.

2.1 Methoden zur Messung der Diffusionskoeffizienten in Schmelzen

In den letzten Jahrzehnten wurden vor allem folgende Methoden zur Messung des Diffusionskoeffizienten in Metall- und Halbleiterschmelzen verwendet:

1. Kapillar-Reservoir-Verfahren
2. Langkapillar-Verfahren
3. Scherzellenmethode

Der Diffusionsvorgang findet bei allen diesen Methoden in dünnen, langen Kapillaren statt. Durch das daraus resultierende hohe Verhältnis von Länge zu Radius werden radiale Transportvorgänge in Form von Strömungsrollen zum Teil unterdrückt. Zusätzlich wird so die Eindimensionalität des Diffusionsvorgangs gewährleistet, wodurch sich zur Beschreibung ein einfaches theoretisches Modell verwenden lässt. In den Kapillaren werden grundsätzlich zwei Materialien unterschiedlicher, aber in sich homogener Zusammensetzungen in Kontakt gebracht. Die anfängliche Konzentrationsverteilung entlang der Kapillarenachse wird als Ausgangskonzentrationsstufe bezeichnet und stellt die Anfangsbedingung des Experimentes dar. Nach einer bestimmten Zeit wird die Änderung der ursprünglichen Konzentrationsverteilung aufgrund der Diffusion analysiert und daraus ein Diffusionskoeffizient ermittelt. Abbildung 2.1 zeigt schematisch die Realisierung der oben genannten Methoden.

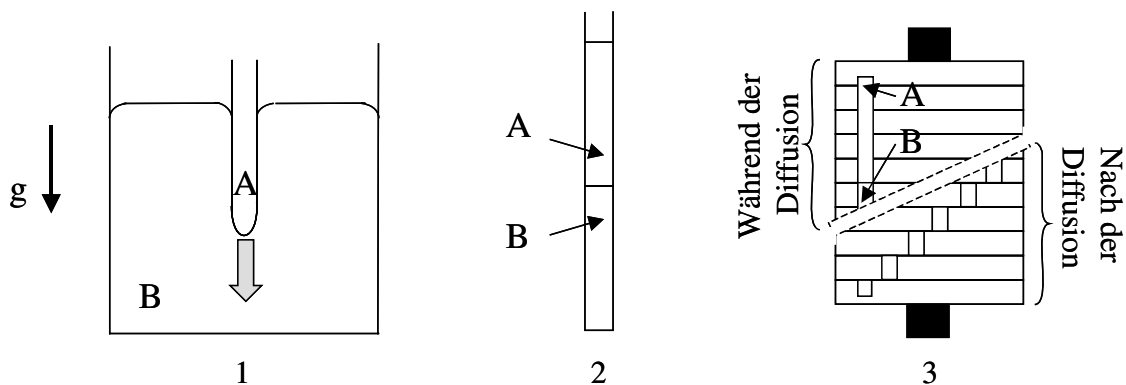


Abbildung 2.1: Übersicht über die am häufigsten verwendeten Messmethoden zur Bestimmung des Diffusionskoeffizienten in Schmelzen (1: Kapillar-Reservoir, 2: Langkapillar und 3: Scherzelle). A und B bezeichnen die zwei Materialien unterschiedlicher Zusammensetzungen, die am Anfang eines Diffusionsexperiments in Kontakt gebracht werden. Der graue Pfeil zeigt die Bewegungsrichtung der Kapillare am Anfang eines Diffusionsexperiments durchgeführt mit dem Kapillar-Reservoir-Verfahren.

2.1.1 Kapillar-Reservoir-Verfahren

Im Kapillar-Reservoir-Verfahren wird eine halbgeschlossene Kapillare mit Material A im flüssigen Zustand in ein flüssiges Bad des Materials B eingebracht. Aufgrund der geringen Wärmekapazität der Kapillare erreicht diese praktisch sofort die Temperatur des Bades. Aus dem gleichen Grund kann am Ende der Diffusionszeit durch die Ent-

nahme und das Abschrecken der Kapillare die Abkühlphase kurz gehalten werden. Vorteilhaft hierbei ist, dass durch die schnelle Aufheiz- und Abkühlzeit Diffusionsprozesse bei undefinierter Kapillartemperatur minimiert werden. Trotzdem lassen sich Volumenänderungen und Segregationseffekte beim Abkühlen nicht ganz ausschließen. Solche Effekte verursachen Veränderungen des Konzentrationsprofils innerhalb der Kapillare. Werden diese nicht berücksichtigt, so kann das zur Ermittlung eines erhöhten Diffusionskoeffizienten führen.

Um die Aufstauung von Material am offenen Kapillarenden zu verhindern, muss das ausströmende Material durch Konvektion im Reservoir abtransportiert werden. Da im Allgemeinen nicht bekannt ist, in welcher Form sich die Konvektionsströmung am Kapillarenden ausbildet und in die Kapillare eindringt, ist die Grenze zwischen Kapillare und Bad nicht definiert und dadurch in der Auswertung schwer zu berücksichtigen. Die Genauigkeit der gemessenen Diffusionskoeffizienten ist beim Kapillar-Reservoir-Verfahren auch im besten Fall nicht besser als 10%.

2.1.2 Langkapillar-Verfahren

Das Langkapillar-Verfahren bietet eine gegenüber dem Kapillar-Reservoir-Verfahren verbesserte Messanordnung. Zwei Halbproben werden im festen Zustand in einer geschlossenen Kapillare in Kontakt gebracht, um das Problem des offenen Endes auszuschließen. In diesem Fall ist die Aufheizzeit länger als bei der Kapillar-Reservoir-Verfahren, bei der durch den direkten Kontakt zwischen Badschmelze und Kapillare die Aufheizung entfällt. Dies führt dazu, dass in der Langkapillaranordnung größere Temperaturgradienten entstehen können, die Dichtegradienten hervorrufen. Im Schwerfeld kann dadurch ein zusätzlicher Massentransport auftreten. Volumenänderungen, verursacht durch die thermische Ausdehnung beim Aufheizen und der Volumensprung beim Schmelzen, können in der Anfangsphase der Diffusion, wenn das Konzentrationsprofil noch steil ist, ebenfalls zu Störungen führen. Nach dem Verlauf des Experiments wird die Konzentrationsverteilung entlang der Kapillare in der Regel nach der Abkühlung gemessen. Deshalb ist die Konzentrationsverteilung wegen der Ausdehnung zu korrigieren. Obwohl die Abkühlphase durch Abschrecken sehr kurz gehalten werden kann, können Segregationseffekte beim Erstarren zu zusätzlichem Massentransport führen. Die Messgenauigkeit beim Langkapillar-Verfahren ist um einige Prozent besser als im Fall des Kapillar-Reservoir-Verfahrens.

2.1.3 Scherzellenmethode

Die Scherzellenmethode hat sich als am besten geeignet zur Messung des Diffusionskoeffizienten in Metall- und Halbleiterschmelzen erwiesen, weil Konvektionsvorgänge aufgrund von Volumenänderungen oder Segregation beim Erstarren ausgeschlossen werden können. Somit entfallen die bei den anderen beiden Messmethoden notwendigen Korrekturen für die Aufheiz- und Abkühlphase. Die Scherzelle besteht zum Beispiel aus planparallelen Graphitscheiben, die auf einem Zentrierstab gestapelt werden

und gegeneinander drehbar sind (Bild 3 in Abbildung 2.1). Eine durchgehende Bohrung in dem Scheibenpaket bildet die Diffusionskapillare. Die Kapillare wird mit zwei Materialien unterschiedlicher Zusammensetzungen befüllt. Am Anfang des Experimentes besteht kein Kontakt zwischen den beiden Materialien, da ein Teil der Graphitscheiben gegenüber den restlichen versetzt ist. Erst wenn die erwünschte Diffusionstemperatur erreicht ist, wird der Kontakt zwischen den zwei Materialien, dem so genannten „Diffusionspaar“, durch eine Drehung eines Teils des Scheibenpakets hergestellt. Nach Ablauf der Diffusionszeit erlaubt ein Verscheren der Graphitscheiben gegeneinander die Unterteilung der Schmelze in der Kapillare in einzelne Segmente, sodass das Konzentrationsprofil bereits im flüssigen Zustand „eingefroren“ und der Diffusionsvorgang beendet wird. Anfangs- und Endzeitpunkt des Experiments lassen sich also relativ präzise bestimmen, wodurch die Diffusionsdauer festgelegt werden kann. Die Übergänge fest-flüssig vor dem Diffusionsvorgang und flüssig-fest nach dem Diffusionsvorgang finden außerhalb der Diffusionszeit statt. Volumenänderungen und Segregationseffekte beim Erstarren sind auf einzelne Kapillarsegmente begrenzt und verfälschen das Konzentrationsprofil nicht, da jedes Kapillarsegment im Anschluss an das Experiment integral analysiert wird (siehe Abschnitt 3.2.3). Das Experiment liefert also ein räumlich aufgelöstes Konzentrationsprofil entlang der Kapillare. Allerdings ist auch die Scherzellenmethode nicht ganz frei von Störungen. Scherwirbel in der Schmelze, hervorgerufen durch das Verscheren der Scheiben gegeneinander, lassen sich nicht völlig ausschließen. Es ist jedoch möglich, diesen Störeinfluss durch eine entsprechende Auswertung zu korrigieren (siehe Abschnitt 3.2.5). Die mit der Scherzellenmethode erreichbare Messgenauigkeit ist stark von der Genauigkeit der verwendeten chemischen Analyse zur Ermittlung des Konzentrationsprofils abhängig und liegt in der Regel unter 5%.

Mittels der Scherzellenmethode ist es also möglich, die Diffusionsdauer genau zu bestimmen und Volumenänderungen sowie Segregationseffekte beim Erstarren zu vermeiden. Für Messungen in Metall- und Halbleiterschmelzen sind diese Punkte von großer Bedeutung.

Der folgende Abschnitt gibt einen kurzen Überblick über den Stand des Wissens im Bereich konvektiver Einflüsse, die bei einem Diffusionsexperiment auftreten können. Das Hauptaugenmerk liegt auf den für die Scherzellenmethode wichtigsten Störungen.

2.2 Stand der Forschung

Sind die Voraussetzungen für Konvektion erfüllt, so wird der diffusive Massentransport von einem konvektiven überlagert. Dies führt dazu, dass ein gegenüber dem Fall reiner Diffusion ein erhöhter, „effektiver“ Diffusionskoeffizient gemessen wird. Ab einer gewissen Stärke der Konvektion treten neben der Erhöhung des Diffusionskoeffizienten zusätzlich Abweichungen des gemessenen Konzentrationsprofils von der erwarteten Form auf, im Folgenden als „gestörte“ Konzentrationsprofile bezeichnet. Deswegen ist es wichtig, die Fehlerquellen für die im vorherigen Abschnitt beschriebenen Mess-

methoden genauer zu untersuchen und quantitative Abschätzungen über deren Einfluss auf den gemessenen Diffusionskoeffizienten zu ermitteln.

Die von verschiedenen Gruppen unter Laborbedingungen gemessenen Diffusionskoeffizienten sind zum Teil mit erheblichen Streuungen behaftet. Dies wird in der Literatur fast ausschließlich auf das Auftreten von durch Auftrieb verursachte Konvektion (Auftriebskonvektion) zurückgeführt. Deshalb wurde lange Zeit angenommen, dass Messungen unter Schwerelosigkeit den „wahren“, durch reine Diffusion verursachten Diffusionskoeffizienten liefern. Allerdings wurden auch unter Schwerelosigkeit gestörte Konzentrationsprofile gemessen [7]. In manchen Fällen wurden sogar gegenüber dem auf der Erde gemessenen Wert erhöhte Diffusionskoeffizienten beobachtet [8]. Das heißt, dass die Auftriebskonvektion alleine die Streuung der Messergebnisse nicht erklären kann.

In den folgenden Abschnitten werden die verschiedenen Mechanismen erläutert, welche die beobachtete Streuung der Diffusionskoeffizienten verursachen könnten. Die vorliegende Arbeit zeigt, dass die solutale Marangonikonvektion die beste Erklärung hierfür liefert. Um zu diesem Ergebnis zu gelangen, wurden auf der Erde zahlreiche Untersuchungen durchgeführt. Dabei wurden verschiedene Störeinflüsse gezielt erzeugt, um ihren Einfluss auf den Diffusionskoeffizienten zu erfassen. Der Nachteil gegenüber Experimenten unter Schwerelosigkeit ist, dass die Auftriebskonvektion als Störquelle vorhanden ist und durch entsprechende Versuchsbedingungen minimiert werden muss. Die Alternative, die Störeinflüsse nur mittels Weltraumexperimenten zu untersuchen, um die Auftriebskonvektion auszuschließen, wäre technisch und zeitlich zu aufwendig und die Wiederholungsmöglichkeiten wären sehr eingeschränkt gewesen.

2.2.1 Scherzellenspezifische Konvektionsarten

Durch die Verscherung der beiden Graphitscheibenpakete gegeneinander am Anfang des Diffusionsversuchs gleitet die Schmelze am Ende des einen Kapillarabschnitts über eine feste Graphitoberfläche, bis der Kontakt zwischen dem Diffusionspaar hergestellt ist. Bei diesem „Anfangstransport“ entstehen so genannte Scherwirbel, was einen zusätzlichen Massentransport zur Diffusion bewirkt. Untersuchungen anhand von numerischen Simulationen und Experimenten mit gefärbtem Wasser in einer Modellscherzelle aus Plexiglas haben gezeigt, dass die beim Anfangstransport entstehende Konvektionsrolle (auch Scherwirbel genannt) auf die Breite der Kapillare begrenzt ist und schnell gedämpft wird [3, 9, 10]. Zweidimensionale Berechnungen hatten als Ergebnis, dass die Strömungsgeschwindigkeit innerhalb von drei Sekunden um drei Größenordnungen abnimmt. In drei Dimensionen läuft dieser Prozess sogar noch rascher ab [11].

Führt man Scherzellenexperimente mit zunehmenden Diffusionszeiten durch, so lässt sich zum Beispiel aus der Abhängigkeit des Diffusionskoeffizienten von der Diffusionszeit eine Korrektur für den störenden Beitrag des Anfangstransportes ermitteln [12]. Systematische Untersuchungen an mehreren Materialsystemen haben gezeigt, dass die bei Diffusionsmessungen beobachteten Streuungen selbst unter Berücksichtigung dieser

Korrektur ihre Hauptursache nicht in der Scherbewegung am Anfang des Diffusionsversuches haben [13, 14]. Die Gruppe von Froberg an der TU Berlin hat entsprechende Untersuchungen für die in der vorliegenden Arbeit verwendete Scherzelle durchgeführt und daraus eine Korrekturformel für den Diffusionskoeffizienten ermittelt (siehe Abschnitt 3.2.5).

Ein analoger Effekt findet auch am Ende des Diffusionsversuches statt. Hierdurch erfolgt auch eine Durchmischung der Schmelze innerhalb jedes Kapillarsegments. Da die Ermittlung der Konzentrationsverteilung entlang der Scherzellenachse ohnehin durch die integrale Vermessung der einzelnen Kapillarsegmente durchgeführt wird, ist dieser zusätzliche Massentransport von geringer Bedeutung für den Versuchsablauf. Froberg et al. [15] haben den Einfluss dieser Vermischung innerhalb einer Scheibe berechnet. Die Änderung des Diffusionskoeffizienten aufgrund dieses Effekts hängt ausschließlich von der Höhe des Kapillarsegmentes ab, beträgt in der Regel unter 1% und wurde bei der Auswertung aller gemessenen Konzentrationsprofile in dieser Arbeit berücksichtigt.

2.2.2 Auftriebskonvektion

Die durch Auftrieb verursachte Konvektion wird in der Literatur als Hauptursache der beobachteten Streuung der gemessenen Diffusionskoeffizienten betrachtet [16]. Befindet sich im Schwerfeld eine Flüssigkeit mit höherer Dichte über einer mit geringerer Dichte, so entsteht eine Konvektionsrolle zwischen den beiden Flüssigkeitsteilen. Die dichtere Komponente bewegt sich in Richtung der Erdanziehungskraft, die andere Komponente in die entgegengesetzte Richtung. Die einzige Möglichkeit, diese so genannte Auftriebskonvektion auszuschließen ist es, Experimente unter Schwerelosigkeit durchzuführen. Da entsprechende Weltraumexperimente sehr aufwändig sind, wurde versucht, diese Störung unter Laborbedingungen so weit wie möglich zu verstehen und zu minimieren. Es hat sich gezeigt, dass die Kapillare unter Laborbedingungen parallel zur Gravitation gerichtet sein sollte. Darüber hinaus muss darauf geachtet werden, dass sich die dichtere Komponente unten befindet, eine Anordnung, die als stabile Schichtung bezeichnet wird.

Allerdings ist die stabile Schichtung alleine nicht ausreichend zur Vermeidung der Auftriebskonvektion. Da die Dichte einer Schmelze im Allgemeinen temperaturabhängig ist, können ungünstig orientierte Temperaturgradienten ebenfalls zu Auftriebskonvektion führen. Die Konsequenz ist, dass die Versuchsbedingungen möglichst isotherm sein sollten. Da dies experimentell über einen Bereich von etwa 20 cm bei den üblichen Versuchstemperaturen zwischen 300 und 1500°C schwer zu realisieren ist, haben verschiedene Gruppen versucht, einen definierten aufwärts gerichteten axialen Temperaturgradienten entlang der Kapillare einzustellen, um die Wirkung der stabilen Schichtung zu verstärken. Müller hat die Temperaturverteilung innerhalb einer Scherzelle im Bereich der Kapillaren ausführlich untersucht [14]. Das Ergebnis der Untersuchungen ist, dass ein axialer Temperaturgradient häufig von einem radialen Temperaturgradienten begleitet wird. Diese radialen Temperaturinhomogenitäten können Dichtegradienten hervorru-

fen und trotz stabiler Schichtung zu Auftriebskonvektion führen. In der genannten Arbeit wie auch in [17] wurde gezeigt, dass ein definierter axialer Temperaturgradient eher zu zusätzlichen Störungen führt, als die Wirkung der stabilen Schichtung zu unterstützen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde folglich auf möglichst isotherme Versuchsbedingungen geachtet.

Neben der Frage, wie sich die Auftriebskonvektion experimentell vermeiden lässt, ist es wichtig zu wissen, inwieweit dieser Effekt die Streuung der gemessenen Diffusionskoeffizienten erklären kann. Garandet et al. haben hierzu den Einfluss eines radialen Temperaturgradienten auf eine Diffusionsmessung theoretisch abgeschätzt [2]. Sie haben gezeigt, dass der Diffusionskoeffizient von der zweiten Potenz des Temperaturgradienten und gleichzeitig von der sechsten Potenz der Kapillardurchmesser abhängt. Dieser theoretische Zusammenhang wurde von mehreren Literaturquellen bestätigt [11, 18, 19].

Experimentelle Untersuchungen hierzu wurden von Müller durchgeführt [14]. Dabei wurde darauf geachtet, dass für die verwendeten Materialsysteme Diffusionskoeffizienten aus Weltraumversuchen vorlagen, d.h. aus Messungen, bei denen jegliche Art von Auftriebskonvektion ausgeschlossen war. Die vorhergesagte starke Abhängigkeit vom Durchmesser der Kapillare konnte nicht bestätigt werden. Im System Sn-In (15 at% In in Sn gegen 25 at% In in Sn, bei 400°C) hätte die maximale gemessene Erhöhung der Diffusionskoeffizienten gegenüber den Weltraumwerten einen radialen Temperaturgradienten von 9 K/cm erfordert. Das bedeutet, dass eine Temperaturdifferenz von 20 K zwischen Scherzellenrand und Zentrierstab hätte vorliegen müssen, was völlig unrealistisch für den verwendeten Aufbau gewesen wäre.

Offensichtlich konnte der theoretisch erwartete Zusammenhang zwischen der Erhöhung des Diffusionskoeffizienten und einem radialen Temperaturgradienten also experimentell nicht bestätigt werden. Es ist deshalb notwendig, Experimente durchzuführen, bei denen die Auftriebskonvektion von vornherein ausgeschlossen ist, um den Effekt von eventuell anwesenden radialen Temperaturgradienten abschätzen zu können. Hierzu eignen sich ausschließlich Experimente im Weltraum, d.h. unter Schwerelosigkeit.

2.2.3 Weltraumexperimente und Konvektion durch „g-jitter“

Obwohl im Weltraum die im vorherigen Abschnitt beschriebene Auftriebskonvektion ausgeschlossen ist, haben während unterschiedlichen Missionen durchgeführte Interdiffusionsexperimente an zahlreichen Materialsystemen, wie in der Einleitung zu Abschnitt 2.2 erläutert, zum Teil schwer interpretierbare Ergebnisse geliefert.

Auf der einen Seite stehen Messungen im System Sn-In, die von Kraatz et al. bei Temperaturen zwischen 230 und 800°C während der D1-Mission mit dem Langkapillar-Verfahren durchgeführt wurden. Die bei diesen Versuchen erhaltenen Konzentrationsprofile zeigten keinerlei Hinweise auf konvektiven Massentransport. Klare Ergebnisse lieferten auch die Selbstdiffusionsmessungen in Sn von Froberg durchgeführt während der gleichen Mission [20].