

# Üçlü Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Dörtlü Al-Cu-Mg-Si Alaşım Sistemlerinin Viskozite Değerleri

Hüseyin ARSLAN<sup>1\*</sup><sup>1</sup>Kahramanmaraş Sütçüimam Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, 46100, Onikişubat / Kahramanmaraş, Türkiye\*Sorumlu yazar e-mail: arslan@ksu.edu.tr ORCID ID: <http://orcid.org/0000-0003-1509-7725>

Geliş Tarihi: 03.11.2022

Kabul Tarihi: 21.08.2023

## Öz

### Anahtar kelimeler

Viskozite; Geometrik modeller; Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si üçlü alaşımları; Al-Cu-Mg-Si dörtlü alaşımları.

Bu çalışmada, üçlü Au-Ag-Cu sıvı alaşım sisteminin, Al-Cu-Si sıvı alaşım sisteminin ve dörtlü Al-Cu-Mg-Si sıvı alaşım sisteminin viskoziteleri altının, alüminyumun ve bakırın bir fonksiyonu olarak Au-Ag-Cu ( $x_{Ag} / x_{Cu}=0.543$ ) 1373 K de,  $Al_x(Cu_{50-Si_{50}})(1-x)$ ,  $Cu_x(Al_{50-Si_{50}})(1-x)$  1375 K de ve Al-Cu<sub>7.6</sub>-Mg<sub>1.99</sub>-Si<sub>34.76</sub> 1500 K de farklı geometrik modeller kullanılarak hesaplanmıştır. Tüm sonuçlar, özellikle de Muggianu modeli ile hesaplanan sonuçlar, deneysel sonuçlarla iyi bir uyum göstermiştir.  $x_{Si} = x_{Cu}$ ,  $x_{Mg} / x_{Cu} = r$  ve  $r = 0.1, 0.5, 1$  oranlarda Al-Cu-Mg-Si alaşımlarının viskozitelerinin alüminyumun bir fonksiyonu olarak büyük bileşimsel bağımlılık gösterdiği ve Al kompozisyonunun (0.4-0.8) arasındaki değerlerine eşlik eden viskozite değerlerinin max. ve min. (1.4-0.3) mPas olduğu görüldü.

## Viscosity Values of Ternary Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si and Quaternary Al-Cu-Mg-Si Alloy Systems

### Abstract

### Keywords

Viscosity; Geometric models; Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ternary alloys; Al-Cu-Mg-Si quaternary alloys.

In this study, the viscosities of the ternary Au-Ag-Cu and Al-Cu-Si liquid alloy systems, and of the quaternary Al-Cu-Mg-Si liquid alloy system were determined as functions of gold, aluminium and copper. Using different geometric models, the first alloy system Au-Ag-Cu ( $x_{Ag} / x_{Cu}=0.543$ ) was calculated at 1373 K, the second alloy systems  $Al_x(Cu_{50-Si_{50}})(1-x)$ ,  $Cu_x(Al_{50-Si_{50}})(1-x)$  at 1375 K, the third alloy system Al-Cu<sub>7.6</sub>-Mg<sub>1.99</sub>-Si<sub>34.76</sub> at 1500 K. All results, especially those calculated with the Muggianu model, accorded with the experimental results. It was observed that Al-Cu-Mg-Si alloys showed great compositional dependence as a function of aluminium in  $x_{Si} = x_{Cu}$ ,  $x_{Mg} / x_{Cu} = r$  and  $r = 0.1, 0.5, 1$  ratios. The viscosity values accompanying the aluminium composition values between 0.4 and 0.8 were found to be ranging between a maximum of 1.4 mPas and a minimum of 0.3 mPas.

© Afyon Kocatepe Üniversitesi

### 1. Giriş

Viskozite, malzeme fiziğinde ve sıvı metallerde akışa sıvı direnci veren, sıvı metallere ve alaşımlar gibi farklı malzemelerin önemli bir iç özelliğidir. Sıvı metalik malzemelerin ve sıvı alaşımların farklı viskoziteleri vardır. Saf metallere ve alaşımların viskozitesi hakkında birtakım deneyler yapıldığı bilinmekle birlikte, viskozite ile ilgili çok sayıda verinin günümüz malzeme bilimi dünyasının ihtiyaçlarına cevap veremeyeceği doğrudur. Al-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si alaşımları gibi bazı alaşımlar, hafif oldukları için akışkanlığa ve dökülebilirliğe sahip olurlar

(Kobateke ve ark. 2014, Schick ve ark. 2012). Viskozitenin sıvının sıcaklığına ve bileşimine göre değiştiği açıktır. Son zamanlarda, Al-Cu-Si sıvı viskoziteleri bir oscillating cup viscometer kullanılarak ölçüldü (Adachi ve ark. 2008, Brillo ve ark. 2008, Schmitz ve ark. 2012, Kehr ve ark. 2008). Elektromanyetik yükselme ve oscillating cup viscometer gibi deneysel teknikler kullanılması viskozitenin % 20 lik yaklaşıklıkla belirlenmesine olanak sağlar (Rhim ve ark. 1999). Söz konusu ölçülen viskozitelerin değerleri Kaptay'ın 2003 yılında yayınlanan teorik araştırmasında tartışılan

termodinamik modeller (Kaptay 2003) ile karşılaştırıldı.

İkili alaşımların sadece termodinamik parametreleri kullanılarak, bazı işletmeler, zamandan ve maliyetten tasarruf etmek için üçlü veya çok bileşenli sıvı sistemlerin viskozitelerini tahmin etmek amacıyla hesaplamalar yapmışlardır ve bu konuda aşağıdaki iki çalışma referans olarak verilebilir (Kaptay 2003, Zhang ve ark. 2015).

İkili, üçlü ve çok bileşenli alaşım sistemlerinin öncelikle Gibbs enerjilerini ve alaşımların entalpilerini hesaplamak için birçok araştırmacı tarafından, Chou'nun genel çözüm modeli (GSM), Muggianu modeli, Kohler modeli, Hillert modeli ve Toop modeli gibi geometrik modeller kullanılır. Bu modellerin bazıları simetrik ve bazıları da asimetric özellik gösterdiğinden, kullanımlarında dikkatli olmak gerekmektedir. Üçlü sistemlerin simetrisini asimetricten ayırmak için bir termodinamik kriter aşağıdaki gibi açıkça önerilebilir. Üç alt ikili sistemin aşırı termodinamik özellikleri birbirine benziyorsa, üçlü sistem simetrik. Aksi takdirde, A-B ve A-C ikili sistemlerinin ideal çözümden sapmaları benzer, ancak B-C ikili sisteminden belirgin bir şekilde farklıysa, A-B-C tersiyer sistemi asimetric bir sistemdir. Asimetric sistemde, termodinamik benzerliğe sahip iki alt ikili sistemde ortak bileşen A termodinamik asimetric bileşen olarak seçilmelidir. Bu nedenle, hesaplamalara benzerlik katsayıları içeren GSM bu sorundan kurtulur. GSM simetri ve asimetric özelliklerinden kaynaklanan hataları bertaraf etmiştir. Bu modelle Gibbs enerjilerinin ve alaşımların entalpilerinin hesaplanmasında yapılan araştırmalarla oldukça sık karşılaşıldı (Klančnik ve Medved 2011, Milcheva ve ark. 2011, Katayama ve ark. 2008, Knott ve ark. 2008, Arslan ve ark. 2015, Dogan ve Arslan 2015, Arslan 2015, Arslan ve Dogan 2015, Arslan ve ark. 2013, Arslan 2014, Chou 1995, Chou 1997, Zhong ve ark. 2003, Zivkovic 2001, Zhang 2010).

Son zamanlarda, GSM'nin sadece ikili alaşımlarının termodinamik özelliklerinden başlayarak, viskozite sapması, hacim, entalpi, yüzey gerilimi ve üçlü alaşımların enerjisi gibi, bu özelliklerin değerlerini içeren deneysel verilerin eksik olduğu, GSM'nin yukarıda belirtilen aşırı termodinamik özellikler yerine kullanılan viskozite sapması hesaplamada

oldukça başarılı olduğu görülmektedir. Çünkü üç bileşenli alaşımların viskozitesi hakkında literatürde oldukça az miktarda rapor ve veriye rastlanmıştır. Bu nedenle, bu çalışmanın amaçlarından birinin de literatürdeki bu boşluğu doldurmak olduğuna inanıyoruz.

Birçok bilimsel çalışmada başarı ile üçlü alaşımın termodinamik özelliklerini hesaplamak için kullanılan GSM'nin çok bileşenli alaşımlara da uygulanması dikkat çekicidir. Malzemenin viskozitesi atomlar arasında meydana gelen etkileşimlerden kaynaklandığı için, GSM ile çok bileşenli alaşımların viskozitesinin hesaplanmasının, hesaplamalara benzerlik katsayıları da dahil edilmesi nedeniyle bilimsel olarak daha doğru olacağı düşünülmektedir. Geometrik modeller kullanılarak yapılan ekstrapolasyon, çok bileşenli alaşımların sadece ikili alaşımlar, aşırı viskozite, hacim, entalpi modelinin termodinamik özelliklerinden başlamaktadır. Ekstrapolasyon işlemi, çok bileşenli alaşım sistemlerinde ikili ve/veya üçlü etkileşimler arasında gerçekleştirilir. Üç bileşenden büyük çok bileşenli alaşım sistemlerindeki işlem, bu üçlü alaşım sistemindekiyle aynıdır. Bu nedenle, bileşen sayısındaki artışın ikili veya üçlü etkileşim parametrelerini etkilemediği iyi bilinmektedir. Bu çalışmada, bu parametreler (Zhang ve ark. 2015) ekstrapolasyon verilerinden alınmış ve alaşımların viskozite değerleri hesaplanarak, modellerin sonuçları söz konusu diğer modellerinkilerle karşılaştırılmıştır. Bu nedenle, üçlü Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si sıvı dördü alaşımlarının viskoziteleri altının bir fonksiyonu olarak hesaplanmıştır.  $Au-Ag-Cu$  ( $x_{Ag}/x_{Cu}=0.543$ ),  $Al_x(Cu_{50-Si_{50}})(1-x)$ ,  $Cu_x(Al_{50-Si_{50}})(1-x)$  ( $1-x$ ),  $Al-Cu_{7.6-Mg_{1.99-Si_{34.76}}$  GSM, Muggianu, Kohler, Toop ve Hillert geometrik modelleri kullanılarak alüminyum ve bakır kompozisyonlarının bir fonksiyonu olarak hesaplanmıştır. Buna ek olarak, sadece Muggianu modeli kullanılarak, Al-Cu-Mg-Si sıvı ticari alaşımlarının viskoziteleri  $x_{Si}/x_{Cu}=1$ ,  $x_{Mg}/x_{Cu} = r = 0.5, 1$  ve  $2$  bölümleri için alüminyum bileşimlerinin bir fonksiyonu olarak hesaplanmıştır.

## 2. Teorik Modellerin Temelleri

Viskozite denklemlerinin ve çok bileşenli alaşım

sistemleri ile ilgili geometrik modellerin kısa özeti aşağıdaki gibi verilmiştir.

Tahminleri gerçekleştirmek için yüksek sıcaklıkta bir sıvı metalin viskozitesi,  $\eta$  olarak belirtilen viskozite, genellikle saf sıvıyı tutan viskozitenin sıcaklığa bağımlılığı ile sonuçlanan bir Arrhenius yasasını izler,

$$h = \eta_0 \exp (E_A / RT) \quad (1)$$

burada,  $\eta_0'$  in çok yüksek sıcaklıkta bir ön-üstel viskozite olduğunu gösterir.  $E_A$ , viskoz akışkanlığın aktivasyon enerjisidir.  $R$ , evrensel gaz sabiti ve  $T$  sıcaklıktır. Arrhenius'tan farklı bileşime sahip alaşımlar için, viskozite şu referanslardan elde edilebilir (Kaptay 2010, Moelwyn-Hughes 1961).

Bir ikili sistemin viskozitesini ifade eden Calphad tipi bir denklem

$$\eta^E = \eta - (X_1 \eta_1 + X_2 \eta_2) \quad (2)$$

burada,  $\eta$  karışımın mutlak viskozitesi ve karışımdaki saf bileşenlerin mutlak viskozitesidir. İkिलilerin fazlalık veya sapma özellikleri  $\eta^E$  olarak belirtilir.

Burada,  $\eta^E$  ikili sistemin konsantrasyonu ve sıvı fazın termodinamik özelliği ile ilgilidir. İkili sistemin deneysel ve ideal karışımının viskozitesi arasındaki fark olarak tanımlanan viskozite sapması Redlich-Kister polinomu ile ifade edilebilir (Muggianu ve ark. 1975). Bu denklem, ikili alaşım sistemlerinin izotermal viskozitelerini temsil etmek, yani eğri uydurmak için yararlı bir polinom kullanılabilir ve şu şekilde tanımlanır:

$$\eta_{ij}^E = X_i X_j \sum_{k=0}^n A_{ij}^k (X_i - X_j)^k \quad (3)$$

Burada alt ikili  $A_{ij}^k$  ij sistemi ile ilgili katsayılar ve Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si alaşımları için değerleri Çizelge 1 ve Çizelge 2'de listelenmiştir.

$A_{ij}^k$  ikili sistem Zhang ve ark. 'nın yaptığı altı deneysel veriden değerlendirilmiştir (Zhang ve ark. 2015).

GSM (Chou 1995, Chou ve Wei 1997), aşağıdaki biçimde olduğu gibi, altı sınır sisteminden dörtlü sistemin viskozite tahminine genişletilebilir; burada  $X_i$  üçlü sistemdeki i bileşeninin mol fraksiyonu ve  $X_{i(j)}$  de i-j ikili sistem olmak üzere i bileşeninin mol fraksiyonudur.

**Çizelge 1.** Au-Ag-Cu alaşımlarında 1375 K da ikili sistemlerin viskozitesi için ikili etkileşim katsayıları (Zivkovic ve Kaptay 2003).

Alaşım sistemi	$A_{ij}^0$	$A_{ij}^1$	$A_{ij}^2$
----------------	------------	------------	------------

Au-Ag (mP s)	0.7089	0.2862	-
Au-Cu (mP s)	0.2474	-1.1245	-
Ag-Cu (mP s)	-1.144	0.8146	-

**Çizelge 2.** Al-Cu-Mg-Si alaşımlarında 1500 K (Zhang ve ark. 2015) sıcaklığa kadar olan ikili sistemlerin viskozitesi için ikili etkileşim katsayıları.

Parametreler	Al-Cu	Al-Mg	Al-Si	Cu-Si	Mg-Cu	Mg-Si
$A^0$ (mP s)	4.248	0.898	-0.826	-3.274	-4.593	3.352
$A^1$ (mP s)	-16.750	-0.830	-1.790	4.120	-2.760	4.336
$A^2$ (mP s)	2.866	0.545	0.418	10.078	-2.134	-
$A^3$ (mP s)	9.807	-	-	-6.827	-	-

$$\eta^E = \frac{X_1 X_2}{X_{1(12)} X_{2(12)}} \eta_{12}^E + \frac{X_1 X_3}{X_{1(13)} X_{3(13)}} \eta_{13}^E + \frac{X_1 X_4}{X_{1(14)} X_{4(14)}} \eta_{14}^E + \frac{X_2 X_3}{X_{2(23)} X_{3(23)}} \eta_{23}^E + \frac{X_2 X_4}{X_{2(24)} X_{4(24)}} \eta_{24}^E + \frac{X_3 X_4}{X_{3(34)} X_{4(34)}} \eta_{34}^E \quad (4)$$

$X_{i(j)}$  kompozisyonları aşağıdaki doğrusal ilişkidenden hesaplanabilir:

$$X_{i(j)} = x_i + \sum_{k \neq i, j=1}^m x_k \xi_{i(j)}^k \quad (5)$$

Burada benzerlik katsayısına atıfta bulunmaktadır ve

$$\xi_{i(j)}^k = \frac{\lambda(ij, ik)}{\lambda(ij, ik) + \lambda(ji, jk)} \quad (6)$$

burada  $\eta(ij, ik)$  iki ikilinin viskozite sapması ile ilgili bir fonksiyondur, karelerin sapma toplamı olarak adlandırılır ve k'nın üç sırasına kadar olan değeri aşağıdaki gibi verilmiştir:

$$\lambda(ij, ik) = \int_{X_i=0}^{X_i=1} (\eta_{ij}^E - \eta_{ik}^E)^2 dX_i = \frac{1}{30} (A_{ij}^0 - A_{ik}^0)^2 + \frac{1}{210} (A_{ij}^1 - A_{ik}^1)^2 + \frac{1}{630} (A_{ij}^2 - A_{ik}^2)^2 + \frac{1}{1386} (A_{ij}^3 - A_{ik}^3)^2 \dots (7) + \frac{1}{105} (A_{ij}^0 - A_{ik}^0)(A_{ij}^2 - A_{ik}^2) + \frac{1}{315} (A_{ij}^1 - A_{ik}^1)(A_{ij}^3 - A_{ik}^3)$$

Şu dört geleneksel model iki kategoride sınıflandırılmıştır. Bunlar simetrik modeller olarak bilinen Muggianu (Muggianu ve ark. 1975). Kohler (Kohler 1960) modelleri ve asimetric modeller olarak bilinen Toop (Toop 1965) ve Hillert (Hillert 1980) modelleridir. Bu durumda, sisteme uygun modeller kullanılmalıdır. Eğer sistem simetrikse, simetrik modeller, asimetricse, asimetric modeller kullanılmalıdır. Genellikle zıt bir model kullanıldığında hatalara yol açabilir.

Bu çalışmada, sıvı Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si

alaşım sistemlerinin karıştırılmasının viskozitesini hesaplamak için dört farklı geleneksel ekstrapolasyon modeli kullanılmıştır.

Kohler modeli simetrik bir model olup, dörtlü çözelti için aşırı molar serbest enerji fonksiyonu yerine viskozite sapması aşağıdaki gibidir:

$$\eta^E = (x_1 + x_2)^2 \eta_{12}^E \left( \frac{x_1}{x_1+x_2}; \frac{x_2}{x_1+x_2} \right) + (x_1 + x_3)^2 \eta_{13}^E \left( \frac{x_1}{x_1+x_3}; \frac{x_3}{x_1+x_3} \right) + (x_1 + x_4)^2 \eta_{14}^E \left( \frac{x_1}{x_1+x_4}; \frac{x_4}{x_1+x_4} \right) + (x_2 + x_3)^2 \eta_{23}^E \left( \frac{x_2}{x_2+x_3}; \frac{x_3}{x_2+x_3} \right) + (x_2 + x_4)^2 \eta_{24}^E \left( \frac{x_2}{x_2+x_4}; \frac{x_4}{x_2+x_4} \right) + (x_3 + x_4)^2 \eta_{34}^E \left( \frac{x_3}{x_3+x_4}; \frac{x_4}{x_3+x_4} \right) \quad (8)$$

Muggianu modeli, ağırlıklı olarak üçlü ve yüksek düzen sistemlerinin optimizasyonunda araştırmacılar tarafından kullanılmaktadır ve dörtlü sistemde bir fazın viskozite sapması aşağıdaki ifade ile verilen simetrik bir modeldir:

$$\eta^E = \frac{4 x_1 x_2}{(1+x_1-x_2)(1+x_2-x_1)} \eta_{12}^E \left( \frac{1+x_1-x_2}{2}; \frac{1+x_2-x_1}{2} \right) + \frac{4 x_1 x_3}{(1+x_1-x_3)(1+x_3-x_1)} \eta_{13}^E \left( \frac{1+x_1-x_3}{2}; \frac{1+x_3-x_1}{2} \right) + \frac{4 x_1 x_4}{(1+x_1-x_4)(1+x_4-x_1)} \eta_{14}^E \left( \frac{1+x_1-x_4}{2}; \frac{1+x_4-x_1}{2} \right) + \frac{4 x_2 x_3}{(1+x_2-x_3)(1+x_3-x_2)} \eta_{23}^E \left( \frac{1+x_2-x_3}{2}; \frac{1+x_3-x_2}{2} \right) + \frac{4 x_2 x_4}{(1+x_2-x_4)(1+x_4-x_2)} \eta_{24}^E \left( \frac{1+x_2-x_4}{2}; \frac{1+x_4-x_2}{2} \right) + \frac{4 x_3 x_4}{(1+x_3-x_4)(1+x_4-x_3)} \eta_{34}^E \left( \frac{1+x_3-x_4}{2}; \frac{1+x_4-x_3}{2} \right) \quad (9)$$

Toop modeli, ikililerden birinin diğer iki ikiliden çok farklı davrandığı durumlarda alışılmış olarak kullanılır. Toop ve Hillert ekstrapolasyon yöntemleri, diğer yöntemlerin aksine, simetrik olmayan yöntemlerdir ve ifadeleri sırasıyla aşağıdaki gibi verilmiştir:

**Toop modeli:**

$$\eta^E = (x_2 + x_3)^2 \eta_{23}^E \left( \frac{x_2}{x_2+x_3}; \frac{x_3}{x_2+x_3} \right) + (x_2 + x_4)^2 \eta_{24}^E \left( \frac{x_2}{x_2+x_4}; \frac{x_4}{x_2+x_4} \right) + (x_3 + x_4)^2 \eta_{34}^E \left( \frac{x_3}{x_3+x_4}; \frac{x_4}{x_3+x_4} \right) + \frac{x_2}{(1-x_1)} \eta_{12}^E (x_1; 1-x_1) + \frac{x_3}{(1-x_1)} \eta_{13}^E (x_1; 1-x_1) + \frac{x_4}{(1-x_1)} \eta_{14}^E (x_1; 1-x_1) \quad (10)$$

**Hillert modeli:**

$$\eta^E = \frac{x_2 x_3}{v_{23} v_{32}} \eta_{23}^E (v_{23}; v_{32}) + \frac{x_2 x_4}{v_{24} v_{42}} \eta_{24}^E (v_{24}; v_{42}) + \frac{x_3 x_4}{v_{34} v_{43}} \eta_{34}^E (v_{34}; v_{43}) + \frac{x_2}{(1-x_1)} \eta_{12}^E (x_1; 1-x_1) + \frac{x_3}{(1-x_1)} \eta_{13}^E (x_1; 1-x_1) + \frac{x_4}{(1-x_1)} \eta_{14}^E (x_1; 1-x_1) \quad (11)$$

burada,  $v_{ij} = (1 + x_i - x_j)/2$  ve  $v_{ji} = (1 + x_j - x_i)/2$ .

Geometrik modelleri karşılaştırmak için, her geleneksel model için deneysel sonuçlara karşılık gelen kök ortalama kare sapması aşağıdaki şekilde alınabilir,

$$S = \frac{1}{n} \sqrt{\sum_{i=1}^N (\eta_{hesaplanan,i} - \eta_{deneysel,i})^2} \quad (12)$$

burada,  $\eta_{hesaplanan,i}$  ve  $\eta_{deneysel,i}$  sabit bir kompozisyonda karışımın viskozitelerini temsil eder, i, sırasıyla teorik bir model ve deneysel sonuçlar için. Burada n, bu çalışmada işlem gören alaşımlarla ilgili toplam deney sayısıdır.

Öte yandan, ikili alaşım sistemlerinin viskozitesini tahmin etmek için çok sayıda teorik model vardır. Örneğin, Molwyn-Hughes denklemi (Molwyn-Hughes 1961), Hirai denklemi (Hirai 1993), Kozlov-Romanov-Petrov denklemi (Kozlov ve ark. 1983), Kucharski modeli (Kucharski 1986), Seetharaman-Du Sichen denklemi (Seetharaman ve Du Sichen 1994), ve Kaptay denklemi (Kaptay 2003). Al-Cu sisteminin viskozitelerini tanımlamak için sıvı fazlarda bileşenlerin veya kısa menzilli sıralamanın yerini alan yeni bir denklem Schick ve arkadaşları tarafından önerilmiştir (Schick ve ark. 2012). Bileşenlerin etkileri veya söz konusu kısa menzilli dizilimin etkileri de hesaplamalarda göz ardı edilmiştir (Plevachuk 2008).

### 3. Bulgular

Bu çalışmada mevcut hesaplama sıvı üçlü Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si sıvı dörtlü alaşım sistemleri tasarlamak isteyen araştırmacılar için bir temel teşkil edebilir. Yukarıda bahsedilen sistemlerin karışım viskoziteleri GSM, Kohler, Muggianu, Toop ve Hillert modelleri kullanılarak hesaplanmış ve yukarıda belirtilen alaşımlardan elde edilenlerin deneysel sonuçları ile karşılaştırılmıştır. Ölçümlerdeki güçlükler nedeniyle, dörtten fazla olan çok bileşenli sistemlerin viskozite verileri çok sınırlıyken ikili sistem bilgilerinin elde edilmesi kolaydır. Bu nedenle, ikili sistemlerden bilgi ayıklama anlamlıdır.

Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si alaşımları için ikili etkileşim katsayıları Çizelge 1 ve Çizelge 2'de

verilmiştir. Diğer taraftan, Çizelge 3 ve Çizelge 4'te 1375 K'da 1373 K ve Al-Cu-Si'de bulunan üçlü Au-Ag-Cu ve 1500 K de Al-Cu-Mg-Si alaşımları için bu çalışmada hesaplanan benzerlik katsayıları Çizelge 5'te verilmiştir.

**Çizelge 3.** Bu çalışmada 1373 K sıcaklıklarda üçlü Au-Ag-Cu alaşımı için hesaplanan benzerlik katsayıları.

T(K)	$\xi_{12}$	$\xi_{23}$	$\xi_{32}$
1373	0.12118	0.593198	0.83259

**Çizelge 4.** Bu çalışmada 1375 K sıcaklıklarda Al-Cu-Si alaşımı için hesaplanan benzerlik katsayıları.

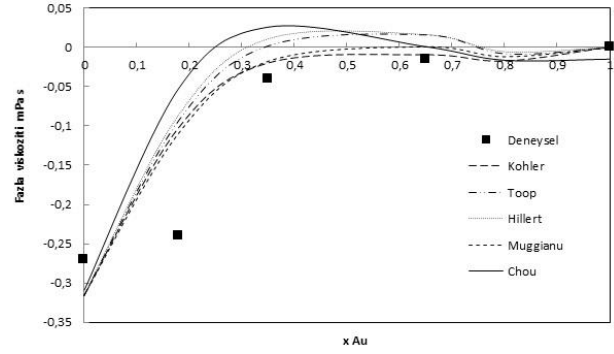
T(K)	$\xi_{12}$	$\xi_{23}$	$\xi_{32}$
1375	0.44098	0.915165	0.105156

$x_{Ag}/x_{Cu}$  molar oranı 0.543'e eşit olan kesitte 1373 K de üçlü Au-Ag-Cu sistemindeki Au içeriğinin viskozitesini hesaplamak için, başlangıç deneysel verileri (Zivkovic ve Manasijevic 2005) referansından alınmıştır.  $\eta^E$  1373 K'daki Au-Ag-Cu üçlü alaşımındaki üç alt ikili sistemdeki viskozite sapmaları bu referansta belirtildiği gibi sadece GSM ile hesaplandı. Denklem (5) teki i, j ve k yerine burada 1, 2 ve 3 sayıları, bu çalışmada kolaylık olsun diye Au, Ag ve Cu içeriklerini belirtmek için kullanılmıştır. X1 (1,2), X1 (1,3) ve X2 (2,3) gibi 3 seçilmiş ikili bileşim mevcuttur. Çizelge 2'deki verilerden Denklem (6) ve (7) ye dayanarak, toplam 6  $\lambda$  ve 3  $\xi$  hesaplanmıştır.  $\xi$  verileri sadece Çizelge 3'te listelenmiştir. Au-Ag, Ag-Cu ve Cu-Au ikili alaşımlarına eşlik eden  $A_{ij}^k$  ikili etkileşim parametreleri, 1373 K da tahmin edilir.

**Çizelge 5.** Al-Cu-Mg-Si alaşımları için 1500 K'e kadar bu çalışmada hesaplanan benzerlik katsayıları.

$\xi_{1(12)}^{(3)}$	$\xi_{1(12)}^{(4)}$	$\xi_{1(13)}^{(2)}$	$\xi_{1(13)}^{(4)}$	$\xi_{1(14)}^{(2)}$	$\xi_{1(14)}^{(3)}$
0.254108	0.44098	0.503955	0.303831	0.894844	0.124235
$\xi_{2(23)}^{(1)}$	$\xi_{2(23)}^{(4)}$	$\xi_{2(24)}^{(1)}$	$\xi_{2(24)}^{(3)}$	$\xi_{3(34)}^{(1)}$	$\xi_{3(34)}^{(2)}$
0.74888	0.155054	0.915165	0.309798	0.249195	0.709804

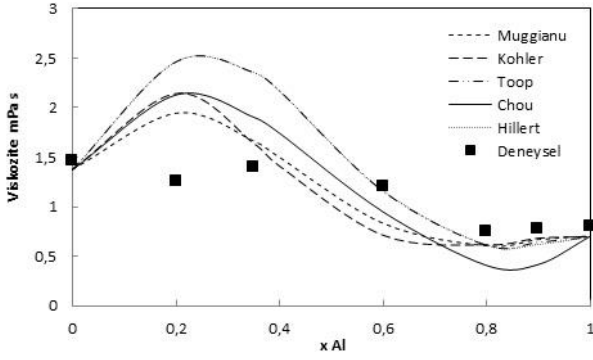
Yukarıda belirtilen  $\lambda$  ve  $\xi$  değerleri, 1373 K sıcaklığa karşılık gelir. Denklem (3) - (7), (8) - (11) kullanılarak, bu üçlü ve dördü sistemler için karışım viskozite sapması hesaplanabilir.  $x_{Ag}/x_{Cu} = 0.543$  bölümünde 1373 K sıcaklıkta Au-Ag-Cu alaşımında viskozite sapması (mPa s) Au bileşimine karşı hesaplanmış ve Şekil 1.de gösterilmiştir.



**Şekil 1.** 1373 K da  $x_{Ag}/x_{Cu} = 0,543$  oranına sahip Au-Ag-Cu alaşımının Au bileşimine karşı viskozite sapması (mPa s).

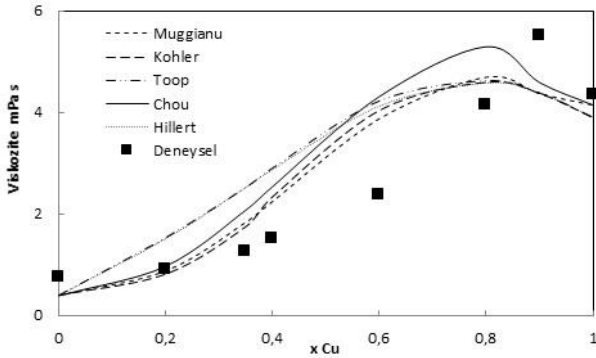
Üçlü alaşımların viskozite sapması şekli yaklaşık olarak düzgün bir paraboldür, böylece eğrinin dalları -0,3 ve 0 ile kesişerek aşağıya doğru yönelir. Ayrıca, 1373 K'daki Au-Ag-Cu üçlü alaşımındaki üç alt ikili sistemden hesaplanan viskoziteler  $\eta^E$  ve saf Au, Ag ve Cu'nun viskoziteleri deneysel verilerle karşılaştırılır (Gebhardt ve Worwag 1952). Viskozite için Muggianu-Redlich-Kister tipi veri tabanının Al-Cu-Si ve Al içeriğinin viskozitesini tahmin etmek için uygun hale geldiği belirtilmektedir (Zhang ve ark. 2015) ki bu veriler şu referanslardan alınmıştır (Kaptay 2005, Hirai 1993, Assael ve ark. 2012). 1, 2 ve 3 sayıları, bu çalışmada kolaylık sağlamak adına Al, Cu ve Si içeriklerini belirtmek için kullanılmıştır. Al-Cu, Al-Si, ve Cu-Si ye eşlik eden ikili etkileşim parametreleri  $A_{ij}^k$  sırasıyla 873 K- 1500 K, 923 K-1173 K ve 1273 K- 1473 K sıcaklık aralıklarında tahmin edilebilir. Yukarıda bahsedilen  $\lambda$  ve  $\xi$  değerleri 1500 K yakınlarında denklem (3) - (7), (8) - (11), kullanılarak bu üçlü ve dördü sistemler için karışımın viskozite sapması bulunabilir.

Al-Cu-Si alaşımında  $x_{Cu}/x_{Si} = 1$  bölümü için 1375 K sıcaklıkta viskozite sapmasına (mPa s) karşı Al bileşimi hesaplanır ve şekil 2. de gösterilir. Al-Cu-Si 1375 K sıcaklıkta viskozite sapması (mPa s) ile Cu bileşimi  $x_{Al}/x_{Si} = 1$  kesit için hesaplanır ve şekil 3. te gösterilir. Yukarıda bahsedilen 1375 K'deki veritabanı kullanılarak, bu çalışmada (Kobatake 2014) Al-Cu-Si alaşımının viskozitesi için öngörülen eğrinin, özellikle Al-zengini bölgede ölçülen değerlerle makul bir uyum içinde olduğu bildirilmiştir.



**Şekil 2.** 1375 K da  $x_{Cu} / x_{Si} = 1$  oranına sahip Al-Cu-Si alaşımının Al bileşimine karşı viskozitenin geometrik model hesaplamaları (mPa s).

Bu çalışmada, üçlü alaşımlar Au-Ag-Cu ve Al-Cu-Si için tüm geometrik modellerden elde edilen viskozite değerlerinin karşılaştırılması da hesaplanmış ve Şekil 1-3.'te verilmiştir. Bahsi geçen modellerden hesaplananlar arasındaki uyumu deneysel sonuçlarla daha açık görebilmek için, her bir geometrik model için deneysel sonuçlara karşılık gelen kök ortalama kare sapmaları hesaplanmış ve Çizelge 6'da verilmiştir. Genel olarak tüm modellerin deneysel sonuçlarla iyi bir uyum içinde olduğu, özellikle de Muggianu modelinin, Au-Ag-Cu, Alx-Cu50-Si50 ve Al50-Cux-Si50 alaşımlarıyla en iyi uyumu gösterdiği açıkça görülmektedir.



**Şekil 3.** 1375 K da  $x_{Al} / x_{Si} = 1$  oranına sahip Al-Cu-Si alaşımının Cu bileşimine karşı viskozitenin geometrik model hesaplamaları (mPa s).

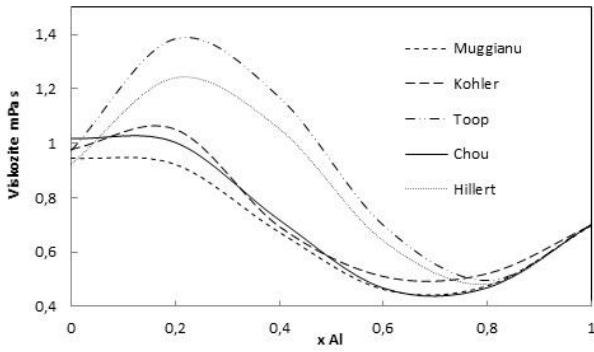
**Çizelge 6.** Seçilen üçlü Au-Ag-Cu, Al50-Cux-Si50 ve Alx-Cu50-Si50 sıvı alaşım sistemleri için her geleneksel modele karşılık gelen kök ortalama kare sapmalarının sonuçları arasında karşılaştırma.

Alaşım sistemi	Kohler	Toop	Hillert	Muggianu	GSM
Au-Ag-Cu	0.02932	0.03265	0.03428	0.02828	0.03386
Al <sub>50</sub> -Cu <sub>x</sub> -Si <sub>50</sub>	0.295716	0.463987	0.369327	0.277851	0.33282
Al <sub>x</sub> -Cu <sub>50</sub> -Si <sub>50</sub>	0.249636	0.355784	0.355972	0.100254	0.290241

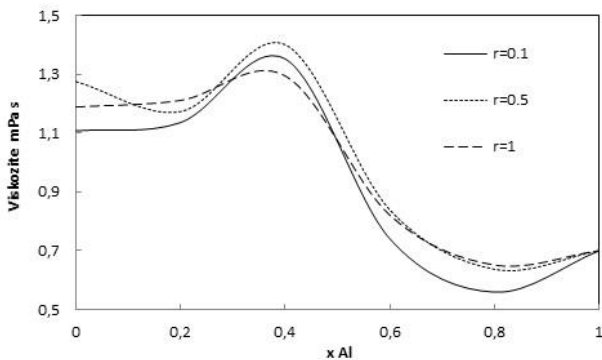
Yukarıda geometrik modeller kullanılarak bahsedilen çizimlere göre, alaşım içindeki Au molar içeriği 0.35'i geçmiyorsa, Au içeriğinin artması viskozite sapmasını pozitif değerlere yükseltir. İçeriği 0,35'in üzerine çıktıktan sonra Au içeriği, üçlü Au-Ag-Cu alaşımının viskozite sapmasını değiştirmez. Genel olarak, Al içeriği 0,2'den 1'e yükselirken Al içeriği Al-Cu-Si alaşımında hesaplanan viskozite Al içeriğinin artmasına yol açarken, Cu içeriği 0'dan 1'e yükselir ve Al-Cu-Si alaşımında hesaplanan viskozite Cu içeriğinin artmasına neden olabilir.

Yukarıda belirtilen tüm modellerin üçlü sistemlere uygulanabilirliği yerine getirildikten sonra, ölçülen ikili viskozite verilerinden (Zhang ve ark. 2015) sıcaklıktan ekstrapolasyon ile belirlenen ikili etkileşim parametrelerini kullanarak  $A_{ij}^k$  Al-Cu-Mg-Si sıvı dördümlü alaşım sistemleri ile ilişkili viskozite değerlerini tartışmak ilginç olacaktır. 1, 2, 3 ve 4 sayıları, bu çalışmada kolaylık için Al, Cu, Mg ve Si içeriğini belirtmek için kullanılmıştır. X1(1,2), X1(1,3), X1(1,4), X2(2,3), X2(2,4), X3(3,4) gibi 6 seçilmiş ikili kompozisyon Denklem (5) ten elde edilir. Çizelge 2'deki verilere göre, toplam 24  $\lambda$  ve 12  $\xi$  Denklem (6) ve (7) den hesaplanmıştır. Veriler yalnızca Çizelge 5'te listelenmiştir. Al-Cu, Al-Si ve Cu-Si ikili alaşımlarına eşlik eden  $A_{ij}^k$  ikili etkileşim parametreleri, sırasıyla 873 K-1500 K, 923 K-1173 K ve 1273 K-1473 K, sıcaklık aralıklarında tahmin edilir. Ayrıca, Mg-Cu ve Mg-Si sistemlerinin 1200 K ve 1400 K'deki ikili viskoziteleri Hirai tarafından tahmin edilmektedir (Hirai 1993). Bu alaşımlarla ilişkili değerlendirilen ikili etkileşim parametreleri Çizelge 2'de listelenmiştir. Denklem (3) - (7), (8) - (11) kullanarak, bu üçlü ve dördümlü sistemler için karışım viskozite sapması bulunabilir. Al-Cu alaşımında viskozite sapması (mPa s) ile Al bileşimi 1500 K'ye kadar olan sıcaklık için, Al-Cu7.6-Mg1.99-Si34.76 hesaplanır. Al-Cu-Mg-Si için alaşımda viskozite (mPa s) ve Al bileşiminin hesaplama sonuçları tüm modeller kullanılarak şekil 4'te verilmiştir. Dördümlü sistem için viskozite hakkında deneysel veri bulunmadığından, bu çalışmada malzeme biliminin incelenmesinde önemli bir katkı olduğuna inanıyoruz. İz elemanın viskozite değerleri Al-Cu-3.01 Si-6.1 Mg-0.3 (wt%) üzerindeki etkisi ihmal edilir, bazı Al-Cu-Mg Si tabanlı ticari alüminyum alaşımlarının hesaplanan viskoziteleri, şekil 4.'te gösterilen tüm modeller ile birlikte alüminyum içeriğinin bir fonksiyonu olarak öngörülmüştür. Al-Cu7.6-Mg1.99-Si34.76 bileşiminin şekilde gösterildiği gibi, Toop ve Hillert gibi bazı asimetrik modeller birbiriyle uyum içinde ve ayrıca Muggianu gibi bazı simetrik modeller de kendi aralarında birbiriyle uyum

içindedirler, ancak GSM bu modellerden bir miktar ayrılmaktadır. Bu çalışmada, Muggianu modelinden hesaplanan 0.75 mPa s'lık ortalama viskozite değerinin 800 ile 1200 K arasındaki ortalama viskozite değerinin 1 mPa s ile aynı olduğu saptandı (Wang ve Overfelt 2002). Öte yandan,  $x_{Si}/x_{Cu}=1$  ve  $x_{Mg}/x_{Cu}=$  için Çizelge 2'de yer alan viskozite veri tabanı kullanılarak  $r=0.1, 0.5$  ve  $1$ 'in viskoziteleri alüminyumun bir fonksiyonu olarak öngörülmüştür. Şekil 5'teki bu alaşımlar, viskozitenin maksimum değerinin (1.4 mPa s) alüminyumun 0.4'ü, viskozitenin minimum değerinin (0.3 mPa s) 0.8 alüminyum olması için büyük bileşimsel bağımlılık göstermektedir. Bu sıvı alaşımlarının viskoziteleri 0.25  $<x_{Al}< 0.5$  arasındaki bileşim aralığında maksimum değere sahiptir. Bu durumda, viskozite önce yavaş artar ve daha sonra Al konsantrasyonunun azalmasıyla güçlü bir şekilde azalır. Yukarıda bahsedilen sıvı alaşımlarının viskoziteleri 0.1  $<x_{Al}< 0.25$  ve 0.7  $<x_{Al}< 1$  bileşim aralıklarında minimumdur. Bu aralıklarda Al bileşiminin her bir değeri için, bu sıvı alaşımların viskoziteleri,  $r$  oranı arttıkça artar.



Şekil 4. Yaklaşık 1500 K da Al-Cu7.6-Mg1.99-Si34.76 alaşımının, Al bileşimine karşı viskozitenin geometrik model hesaplamaları (mPa s).



Şekil 5.  $x_{Cu}=x_{Mg}$ ,  $r=0.1, 0.5$  ve  $1$  için Al-Cu-Mg-Si alaşımının 1500 K sıcaklığa kadar viskozitesinin Muggianu modeli kullanılarak hesaplanan eğrileri.

#### 4. Tartışma ve Sonuç

Bu çalışma, dört model (Toop, Hillert, Muggianu ve Kohler modelleri) ile üçlü ve dördü sistemler için zaten yayınlanmış deneysel veriler ile matematiksel olarak daha karmaşık bir model olan GSM arasında bir karşılaştırma imkânı vermektedir. Bu çalışma, ikiliden yüksek sıralı sistemlere kadar bazı alaşım sistemlerinin viskozitesi gibi termodinamik özelliği tahmin etmek için bir matematik modeli sunmaktadır. Bu çalışma, bu konudaki deneylerin yüksek maliyetini, zaman israfını, deneysel bazı handikapları ideal şartlar, kalibrasyon v.b. önlemek için, termodinamik özellikleri belirlemek ve bu konuda büyük öneme sahip olan viskozitenin hesaplanmasını sağladığından dolayı, bu alanda çalışan bilim adamları ve mühendisler için bilimsel olarak ilginç ve teknolojik açıdan oldukça yararlı olacağını düşünüyoruz. Bu çalışmada elde edilen sonuçlar aşağıdaki gibi verilmiştir:

Tüm geometrik modellerin çerçevesinde, alaşım içindeki Au molar içeriği 0.35'i geçmediği zaman, Au içeriğinin artması viskozite sapmasını pozitif değerlere yükseltir. Au'nun içeriği 0.35'in üzerinde olduğunda, Au içeriği üçlü Au-Ag-Cu alaşımının viskozite sapmasını değiştirmez. Genel olarak, Al içeriği 0.2'den 1'e yükselirken, Al-Cu-Si alaşımındaki hesaplanan viskozite Al içeriğinin artmasına neden olur, Cu içeriği ise 0'dan 1'e yükselir ve Al-Cu-Si alaşımında hesaplanan viskozite Cu içeriğinin artmasına yol açar. Viskozitenin öngörülen değerlerinin karşılıklı iyi bir uyum gösterdiği, özellikle Muggianu modeli için Au-Ag-Cu ve Al-Cu50-Si50 ve Al50-Cu-x-Si50 alaşımları için elde edilen sonuçlarla en iyi uyumu gösterdiği saptandı. Tüm geometrik modeller kullanılarak Au-Ag-Cu, Al-Cu-Si ve Al-Cu-Mg-Si sıvı dördü alaşım sistemleri için hesaplanan viskoziteler farklı kesitler için farklı kompozisyon bağımlılığı göstermektedir.  $x_{Si} = x_{Cu}$ ,  $x_{Mg} / x_{Cu} = r$  ve  $r = 0.1, 0.5, 1$  kesiti için, Al-Cu-Mg-Si alaşımlarının viskozitelerinin, alüminyumun bir fonksiyonu olarak büyük bir bileşimsel bağımlılık gösterdiği ve böylece maksimum viskozite değerinin (1.4 mPa s), 0.4 alüminyum bileşimi değerine sahip olduğu görülmektedir ve minimum viskozite değeri (0.3 mPa s), 0.8 alüminyum bileşimi değerine sahiptir. Al-Cu-Mg-Si sıvı alaşımlarının

viskozitelerinin  $0.1 < x_{Al} < 0.25$  ve  $0.7 < x_{Al} < 1$  bileşim aralıklarında minimum değerlere sahip olduğu hesaplanmıştır. Söz konusu alaşımların viskoziteleri de  $x_{Mg}/x_{Cu}$  oranına bağlı olarak artmıştır ve bu aralıklarda Al bileşiminin her değeri için artmıştır.

## 5. Kaynaklar

- Adachi, M. Schick, M. Brillo, J. Egry, I. Watanabe, M., 2010. Surface tension and density measurement of liquid Si–Cu binary alloys. *Journal of Material Sciences*, **45(8)**, 2002-2008.
- Arslan, H. Dogan, A. Dogan, T., 2013. An analytical approach for thermodynamic properties of the six-component systems Ni–Cr–Co–Al–Mo–Ti and their subsystems. *Physics of Metals and Metallography*, **114(12)**, 1053-1060.
- Arslan, H. Dogan, A. Dogan, T., 2015. Estimation of excess energies and activity coefficients for the pentenary Ni–Cr–Co–Al–Mo system and its subsystems. *Physics of Metals and Metallography*, **116(6)**, 544-551.
- Arslan, H. Dogan, A., 2015. An analytical investigation for thermodynamic properties of the Fe–Cr–Ni–Mg–O system. *Russian Journal of Physical Chemistry A*, **89(2)**, 180-189.
- Arslan, H., 2014. Analytical determination of partial and integral properties of the six components systems Ni–Cr–Co–Al–Mo–Ti and their subsystems. *Physica B*, **438**, 48-52.
- Arslan, H., 2015. Determinations of enthalpy and partial molar enthalpy in the alloys Bi–Cd–Ga–In–Zn, Bi–Cd–Ga–Zn and Au–Cu–Sn. *Materials Chemistry and Physics*, **153**, 384-389.
- Assael, M. J. Armyra, A. I. Brillo, J. Stankus, S. V. Wu, J. Wakeham, W. A., Reference data for the density and viscosity of liquid cadmium, cobalt, gallium, indium, mercury, silicon, thallium, and zinc. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, **41(3)**, 033101-1.
- Brillo, J. Egry, I. Westphal, J., 2008. Density and thermal expansion of liquid binary Al–Ag and Al–Cu alloys. *International Journal of Materials Research*, **99(2)**, 162-167.
- Chou, K. C., 1995. A general solution model for predicting ternary thermodynamic properties. *Calphad*, **19(3)**, 315-325.
- Chou, K. C., Wei, S. K., 1997. A new generation solution model for predicting thermodynamic properties of a multicomponent system from binaries. *Metallurgical and Materials Transactions B*, **28(3)**, 439-445.
- Dogan, A. Arslan, H., 2015. Comparative thermodynamic prediction of integral properties of six component, Quaternary, and Ternary Systems. *Metallurgical and Materials Transactions A*, **46A**, 753-3760.
- Gebhardt, E. Worwag, G., 1952. Die Innere Reibung Flussiger Legierungen Aus Silber-Kupfer-Gold. *Zeitschrift für Metallkunde*, **43(4)**, 106-108.
- Hillert, M., 1980. Empirical methods of predicting and representing thermodynamic properties of ternary solution phases. *Calphad*, **4(1)**, 1-12.
- Hirai, M., 1993. Estimation of viscosities of liquid alloys. *The Iron and Steel Institute of Japan*, **33(2)**, 251-258.
- Kaptay, G., 2005. A unified equation for the viscosity of pure liquid metals. *Zeitschrift für Metallkunde*, **96(1)**, 24-31.
- Kaptay, G., Proceedings of micro CAD 2003, 23. International Conference, Section, Metallurgy, University of Miskolc, Hungary.
- Katayama, I. Živković, D. Novaković, R. Yamashita, H., 2008. Experimental study on gallium activity in the liquid Ga–Bi–Sn alloys using the EMF method with zirconia solid electrolyte. *International Journal of Materials Research*, **99(12)**, 1330-1335.
- Kehr, M. Schick, M. Hoyer, W. Egry, I., 2008. Viscosity of the binary system Al–Ni. *High Temperatures-High Pressures*, **37**, 361-369.
- Klancnik, G. Medved, J., 2011. Thermodynamic investigation of Al–Sb–Zn system. *Materials and Technology*, **45(4)**, 317-323.
- Knott, S. Li, Z. Mikula, A., 2008. Integral enthalpy of mixing of the liquid ternary Au–Cu–Sn system. *Thermochimica Acta*, **470(1-2)**, 12-17.
- Kobatake, H. and Schmitz, J. Brillo, J., 2014. Density and viscosity of ternary Al–Cu–Si liquid alloys. *Journal of*



*Materials Science*, **49(9)**, 3541-3549.

- Kohler, F., 1960. Estimation of the thermodynamic data for a ternary system from the corresponding binary systems. *Monatshefte für Chemie*, **91(4)**, 738-740.
- Kozlov, L. Ya. Romanov, L. M. Petrov, N. N., 1983. Prévission de la viscosité de fondus métalliques à plusieurs composants. *Izvestija vysših učebnyh Zavedenij. Černaja Metallurgija*, **3**, 7-11.
- Kucharski, M., 1986. The viscosity of multicomponent systems. *Zeitschrift für Metallkunde*, **77(6)**, 393- 396.
- Milcheva, N. Romanowska, J. Vassilev, G., 2011. Sn-Ni-Bi liquid phase thermodynamic properties. *Central European Journal of Chemistry*, **9(1)**, 149-156.
- Moelwyn-Hughes, E. A., 1961. The dissolved state. Physical Chemistry, Pergamon Press, Oxford.
- Muggianu, Y. M. Gambino, M. Bross, J. P., 1975. Enthalpies of formation of liquid alloys bismuth-gallium-tin at 723K-choice of an analytical representation of integral and partial thermodynamic functions of mixing for this ternary-system. *Journal de Chimie Physique*, **72**, 83-88.
- Plevachuk, Y. Sklyarchuk, V. Yakymovych, A. Eckert, S. Willers, B. Eigenfeld, K., 2008. Density, viscosity, and electrical conductivity of hypoeutectic Al-Cu liquid alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, **39(12)**, 3040-3045.
- Rhim, W. K. Ohsaka, K. Paradis, P. F. Spjut, R. E., 1999. Noncontact technique for measuring surface tension and viscosity of molten materials using high temperature electrostatic levitation. *Review of Scientific Instruments*, **70(6)**, 2796-2801.
- Schick, M. Brillo, J. Egry, I. Hallstedt, B., 2012. Viscosity of Al-Cu liquid alloys: measurement and thermodynamic description. *Journal of Materials Science*, **47(23)**, 8145-8152.
- Schick, M. Brillo, J. Egry, I. Hallstedt, B., 2012. Viscosity of Al-Cu liquid alloys: measurement and thermodynamic description. *Journal of Materials Science*, **47(23)**, 8145-8152.
- Schmitz, J. Hallstedt, B. Brillo, J. Egry, I. Schick, M., 2012. Density and thermal expansion of liquid Al-Si alloys. *Journal of Materials Science*, **47**, 3706-3712.
- Seetharaman, S. Sichen, D., 1994. Estimation of the viscosities of binary metallic melts using Gibbs energies of mixing. *Metallurgical and Materials Transactions B*, **25(4)**, 589595.
- Toop, G. W., 1965. Predicting ternary activities using binary data. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, **233**, 850-855.
- Wang, D. Overfelt, R. A., 2002. Oscillating cup viscosity measurements of aluminum alloys: A201, A319 and A356. *International Journal of Thermophysics*, **23(4)**, 1063-1067.
- Zhang, F. Du, Y. Liu, S. Jie, W., 2015. Modeling of the viscosity in the Al-Cu-Mg-Si system: Database construction. *Calphad*, **49**, 79-86.
- Zhang, G. H. Wang, L. J. Chou, K. C., 2010. A comparison of different geometrical models in calculating physicochemical properties of quaternary systems. *Calphad*. **34(4)**, 504-509.
- Zhong, X. M. Liu, Y. H. Chou, K. C. Lu, X. G. Zivkovic, D. Zivkovic, Z., 2003. Estimating ternary viscosity using the thermodynamic geometric model. *Journal of Phase Equilibria*, **24(1)**, 7-11.
- Zivkovic, D. Kaptay, G., 35<sup>th</sup> IOC on Mining and Metalurgy, 30 Sept.- 30 Oct. 2003, Hotel Jezero, Bor Lake, Serbia & Montenegro.
- Zivkovic, D. Manasijevic, D., 2005. An optimal method to calculate the viscosity of simple liquid ternary alloys from the measured binary data. *Calphad*, **29(1)**, 312-316.
- Zivkovic, D. Zivkovic, Z. Yonghua, L. Chou, K. C., 2001. Calorimetric Investigations of the System Pb-Bi-Mg-Sb with Oelsen's Method. Part 2. Comparison of experimentally obtained values for lead activity with results of thermodynamic predicting. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, **66(3)**, 785-793.