

# Anwendungen der Röntgenrefraktionstechnik zur zerstörungsfreien Charakterisierung von Keramiken und Verbundwerkstoffen

Bernd R. MÜLLER<sup>1</sup>, Andreas KUPSCH<sup>1</sup>, René LAQUAI<sup>1</sup>, Itziar SERRANO-MUÑOZ<sup>1</sup>, Giovanni BRUNO<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), Berlin

Kontakt E-Mail: andreas.kupsch@bam.de

**Kurzfassung.** Die Brechung von Röntgenstrahlen (Röntgenrefraktion) an Grenzflächen zwischen Materialien unterschiedlicher Dichte ist analog zur Ablenkung von sichtbarem Licht an z.B. Glasoberflächen. Es gibt jedoch zwei wesentliche Unterschiede:

- konvexe Grenzflächen verursachen Divergenz (d.h. der Brechungsindex  $n$  ist kleiner als 1), und
- die Ablenkungswinkel sind sehr klein, und reichen von einigen Bogensekunden bis zu einigen Bogenminuten (d.h.  $n$  ist nahe bei 1);

Wie auch bei sichtbarem Licht ist die Ablenkungsrichtung der Röntgenstrahlen abhängig von der Orientierung der durchstrahlten Grenzfläche. Aufgrund dieser Eigenschaften eignen sich Röntgenrefraktionsmethoden hervorragend für:

- die Erkennung und Quantifizierung von Defekten wie Poren und Mikrorissen und
- die Bewertung von Porosität und Partikeleigenschaften wie Orientierung, Größe und räumliche Verteilung.

Wir zeigen die Anwendung der Röntgenrefraktionsradiographie (2,5D Technik) und der -tomographie (3D Technik) für die Untersuchung verschiedener Probleme bei in der Werkstoffwissenschaft und -technologie:

- Sintern von SiC-Grünkörpern
- Porositätsanalyse in Dieselpartikelfiltersilikaten
- Faser-Matrix-Haftung in Metall- und Polymermatrixverbundwerkstoffen
- Mikrorissbildung in Glaskeramik.

Wir zeigen, dass der Einsatz von Röntgenrefraktionsmethoden quantitative Ergebnisse liefert, die direkt als Parameter in Werkstoffmodellen verwendet werden können.

## Einführung

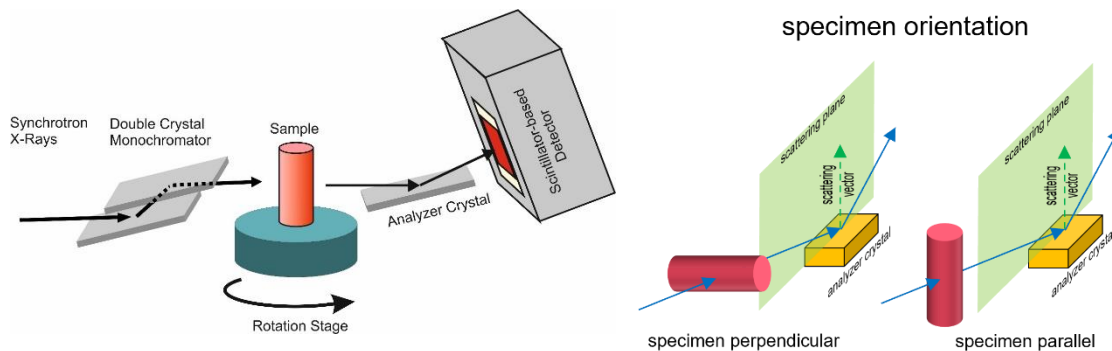
Röntgenrefraktion ist ein hervorragendes Instrument zur Charakterisierung der Mikrostruktur von Materialien. Allerdings gibt es weltweit nur wenige Labore, die diese Technik zur Materialcharakterisierung einsetzen. Daher erläutern wir an dieser Stelle nochmals die grundlegenden Prinzipien sowie die Messtechniken, wobei wir den Fokus auf die Materialcharakterisierung mittels Synchrotronstrahlung an der BAMline legen. Wir zeigen die Anwendung der Röntgenrefraktionsradiographie (2,5D Technik) und der -tomographie (3D Technik) für die Untersuchung verschiedener Probleme in der Werkstoffwissenschaft



und -technologie, wie z.B. Sintern von SiC-Grünkörpern, Porositätsanalyse in Dieselpartikel-filtersilikaten, Faser-Matrix-Haftung in Metall- und Polymermatrixverbundwerkstoffen sowie Mikrorissbildung in Glaskeramik. Wir zeigen, dass der Einsatz von Röntgenrefraktionsmethoden quantitative Ergebnisse liefert, die direkt als Parameter in Werkstoffmodellen verwendet werden können.

## 1. Synchrotron-Refraktions-Radiographie

Die Refraktion von Röntgenstrahlen tritt auf, wenn Röntgenstrahlen mit Grenzflächen zwischen Materialien unterschiedlicher Dichte interagieren. Sie beruht auf dem Snell'schen Gesetz und ist analog zur Refraktion von sichtbarem Licht durch Linsen und Prismen. Der Hauptunterschied zwischen sichtbarem Licht und Röntgenstrahlen besteht darin, dass der Brechungsindex  $n$  von Röntgenstrahlen in Materie etwas kleiner als 1 ist (um etwa  $10^{-5}$  bis  $10^{-7}$ ). Dies führt zu einer Ablenkung der Strahlen mit sehr kleinen Winkeln (von einigen Sekunden bis zu einigen Bogenminuten). Obwohl die Refraktion von Röntgenstrahlen bereits in den 1920er Jahren beobachtet wurde [1], wurde sie erst 1987 für die Materialcharakterisierung und zerstörungsfreie Prüfung eingeführt [2]. Das gemessene Refraktionssignal ist proportional zur internen spezifischen Oberfläche  $\Sigma$  (d. h. Oberfläche pro Volumeneinheit) [2, 3]. Im Allgemeinen führen Grenzflächen, bei denen der Röntgenbrechungsindex  $n$  Unstetigkeiten aufweist, zur Refraktion. Diese Technik eignet sich hervorragend für die Untersuchung von Defekten wie Rissen und Poren, sobald diese eine Größe oder Öffnung von wenigen Röntgenwellenlängen überschreiten. Da die typischen Röntgenwellenlängen etwa 0,1 nm betragen, liegt die kleinste nachweisbare Objektgröße im Nanometerbereich. Dies ist nicht zu verwechseln mit der räumlichen Auflösung oder der Größe der Objekte, die abgebildet werden können. Die räumliche Auflösung wird durch die Pixelgröße des Detektorsystems begrenzt. Mit anderen Worten: Nanometrische Objekte können zwar erkannt, aber nicht unbedingt einzeln abgebildet werden. Es muss auch betont werden, dass es aufgrund des unvermeidlichen Untergrundrauschens unmöglich ist, einen einzelnen Defekt eindeutig zu erkennen. Vielmehr ist eine bestimmte Anzahl von Objekten erforderlich, um ein integriertes Signal zu erhalten, das über dem Untergrundrauschen liegt. Röntgenrefraktion wird primär im Durchstrahlungsmodus dünner Proben (Plättchen) eingesetzt und liefert 2,5D-Informationen über die Mikrostruktur der Probe (die laterale Auflösung entsprechend der Größe der Detektorpixel und der Signalintegration entlang der Probendicke  $t$ ). Das Ergebnis ist die Erkennung und das Mapping einer Population von Defekten und nicht die Abbildung einzelner Defekte.



**Abbildung 1:** Links; Skizze des Versuchsaufbaus der Röntgenrefraktionsstation an der BAMline. Für die Röntgenrefraktionsstomographie kann die Probe rotiert werden genutzt werden. Rechts; Orientierung der Probe in Bezug auf die Streuebene des Analysatorkristalls.

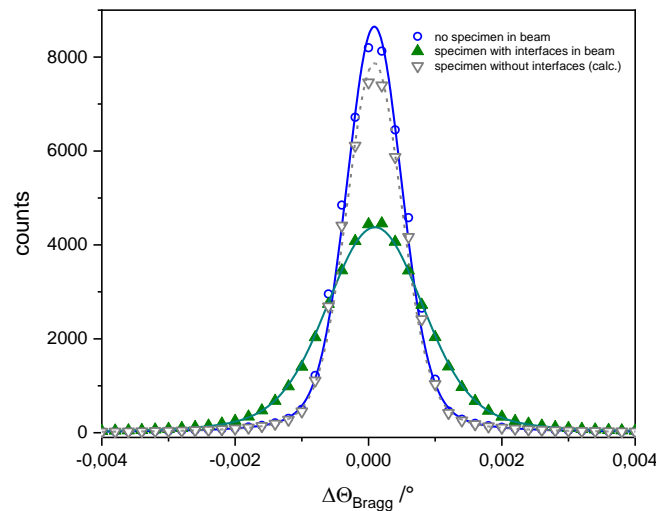
Für die Synchrotron-Röntgenrefraktions-Radiographie (SXRR) wird ein hoch kollimierter und monochromatischer Röntgenstrahl aus dem Doppelkristall-Monochromator (DCM) verwendet, der von Si(111)-Kristallen bereitgestellt wird [4, 5]. Die Strahlenergie wird so angepasst, dass eine Proben­transmission von etwa 10-25 % erreicht wird. Im Gegensatz zu absorptionsbasierten radiographischen Messungen wird ein Si(111)-Analysatorkristall im Strahlengang zwischen der Probe und dem Detektor platziert, wie in Abbildung 1 (links) gezeigt. Der Analysatorkristall reflektiert nur die Strahlen zum Detektor, die unter dem Bragg-Winkel  $Q_{\text{Bragg}}$  (z.B.  $Q_{\text{Bragg}} = 2.2664^\circ$  bei 50 keV) auf ihn treffen. Durch schrittweises Kippen des Analysatorkristalls um den Bragg-Winkel wird die sogenannte Rocking-Kurve aufgenommen (siehe Abbildung 2). An jeder der typischerweise 50 Winkelpositionen des Kristalls wird ein Röntgenbild mit und ohne Probe im Strahl aufgenommen. So erhält man für jedes Pixel des Detektors Rocking-Kurven. Diese Kurven beschreiben die Abhängigkeit der Intensität des reflektierten Strahls in Abhängigkeit von der Abweichung vom Bragg-Winkel,  $\Delta\Theta_{\text{Bragg}} = \Theta - \Theta_{\text{Bragg}}$ . Abbildung 2 zeigt drei Rocking-Kurven: Die Kurve mit den blauen offenen Kreisen zeigt die Messung ohne Probe im Strahl. Das Integral der Kurve entspricht der Intensität und die volle Breite bei halbem Maximum (FWHM) der intrinsischen Divergenz des einfallenden Strahls. Die Kurve mit den grün gefüllten Dreiecken zeigt die Messung mit einer Probe im Strahl, die innere Grenzflächen aufweist. Das Integral dieser Kurve entspricht der transmittierten Intensität, während die FWHM proportional zum Anteil der internen Grenzflächen in der Probe ist. Je mehr interne Grenzflächen die Probe aufweist, desto größer ist die FWHM. Die Kurve mit den grauen offenen Dreiecken stellt die Rocking-Kurve dar, die man messen würde, wenn die Probe keine Grenzflächen hätte. Ihre FWHM wäre identisch mit der der blauen Kurve (es gibt keine inneren Grenzflächen, an denen der Röntgenstrahl abgelenkt wird). Da die Refraktion einer reinen Umverteilung des Strahls entspricht (wobei das Integral unverändert bleibt), bewirkt eine Probe mit internen Grenzflächen eine Verbreiterung der RC auf Kosten der Peak-Höhe, die entsprechend abnimmt. Das Integral wäre identisch mit dem der grünen Kurve (die Absorption einer Probe ist unabhängig vom Vorhandensein von inneren Grenzflächen). Dies bedeutet, dass die Peak-Höhe ein indirektes Maß für die Verbreiterung der Rocking-Kurve aufgrund innerer Oberflächen ist. Mit einer eigens entwickelten, auf Python 3.0 basierenden Software wird die Rocking-Kurve für jedes Detektorpixel gefittet [6]. Aus dem Fit werden die Kurvenparameter  $I_0$  (Kurvenintegral ohne Probe im Strahl),  $I$  (Kurvenintegral mit Probe im Strahl),  $I_{R0}$  (das Kurvenmaximum ohne Probe im Strahl) und  $I_R$  (Kurvenmaximum mit Probe im Strahl) ermittelt und als Grauwert-2D-Bilder gespeichert. Mit Hilfe der Bildanalyse­software Fiji Image J [7] können die lokalen Schwächungseigenschaften  $\mu \cdot t$  und die lokalen Refraktionswerte  $C_m \cdot t$  für jeden Bildpunkt nach Gleichung (1) bzw. (2) ausgewertet werden. Für eine detaillierte Beschreibung der Datenverarbeitung und -auswertung wird der Leser auf [8, 9] verwiesen.

$$\mu \cdot t = -\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (1)$$

$$C_m \cdot t = 1 - \frac{I_R}{I_{R0}} \cdot \frac{I_0}{I} \quad (2)$$

Diese Analyse kann an Proben von makroskopischer Größe (z. B. einige cm) durchgeführt werden, d.h. das Gesichtsfeld der Röntgenrefraktionsverfahren ist viel größer als das der hochauflösenden Röntgen-Computertomographie und der klassischen Mikroskopie. Außerdem sind die Methoden der Röntgenrefraktion aufgrund der Eigenschaft des Analysatorkristalls empfindlich gegenüber der Defektorientierung. Der Analysatorkristall diskriminiert die Röntgenstrahlen nur innerhalb seiner Streuebene (Abbildung 1 rechts). Daher können nur Grenzflächen, deren Oberflächennormale innerhalb der Streuebene (mit einer Toleranz von etwa  $\pm 45^\circ$ ) liegt, erkannt werden. Eine isotrope Inhomogenität, z. B. ein kugelförmiger Hohlraum, würde für jede Ausrichtung der Probe in Bezug auf die Streuebene ein Signal liefern. Im Falle von Rissen oder länglichen Poren wird jedoch nur dann ein Signal detektiert,

wenn die Oberfläche des Risses oder der zylindrischen Pore senkrecht zur Streuebene ausgerichtet ist. Das bedeutet, dass die Intensität der Refraktion von der Ausrichtung der Probe in Bezug auf die Streuebene des Analysatorkristalls abhängt und daher zur Identifizierung der Art des Defekts und seiner Ausrichtung verwendet werden kann. Zum Beispiel wurde der Einfluss des Herstellungsprozesses [10] oder der externen Belastung der Probe [11] untersucht (beide induzieren eine Anisotropie der Defekte). Das Röntgenrefraktionssignal kann quantitativ mit mikrostrukturellen Veränderungen korreliert und mit den Vorhersagen mikromechanischer Modelle gekoppelt werden [3, 12]. Der Einfluss der Probendicke  $t$  wird eliminiert, indem der lokale Refraktionswert  $C_m \cdot t$  durch die lokale Absorptionseigenschaft  $\mu \cdot t$  dividiert wird (siehe Gleichungen 1 und 2). Dies ergibt den relativen spezifischen Refraktionswert  $C_m/\mu$ , der mit der relativen spezifischen (inneren) Oberfläche der Probe korreliert ist. Absolute Werte können bestimmt werden, wenn eine Gerätekalibrierung mit Hilfe einer Kalibrierprobe mit bekannter spezifischer Oberfläche und identischen Absorptionseigenschaften durchgeführt wird. In den meisten Fällen ist dieses zeitaufwändige Kalibrierungsverfahren nicht erforderlich, da die relative Schadensentwicklung eines Materials die interessierende Größe ist.

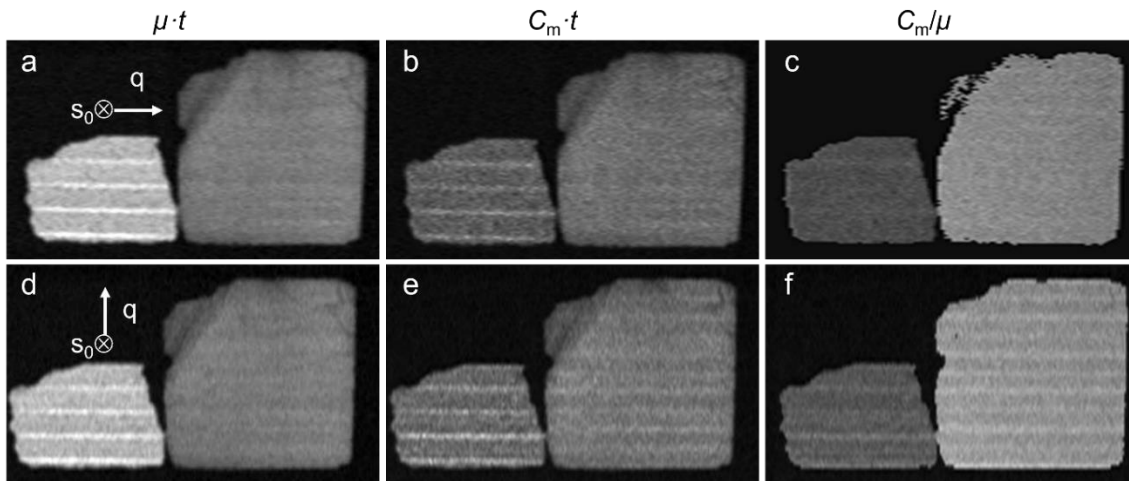


**Abbildung 2:** Gemessene Rocking-Kurve des einfallenden Synchrotron-Röntgenstrahls, d.h. ohne Probe (blaue offene Kreise), nach dem Durchgang durch eine Probe ohne interne Grenzflächen (graue offene Dreiecke) und nach dem Durchgang durch eine Probe mit internen Grenzflächen (grünes gefülltes Dreieck). Zur Aufnahme der Kurven wird der Analysatorkristall schrittweise um die Achse gedreht, die senkrecht zu seiner Streuebene steht (die Streuebene wird von den Vektoren des einfallenden und des austretenden Strahls aufgespannt – siehe Abbildung 1)

### 1.1 Cordierit-Dieselpartikelfilter-Materialien

Poröser synthetischer Cordierit ist ein attraktives keramisches Material, das häufig für Dieselpartikelfilter (DPF) [13] und feuerfeste Materialien verwendet wird [14, 15]. Unter seinen Eigenschaften wird die Anisotropie der thermischen Ausdehnung (siehe z. B. [16]) häufig zur Anpassung der thermischen und mechanischen Eigenschaften genutzt. Neben den Eigenschaften der festen Phase ist eines der wichtigsten Merkmale, die bei der Bewertung der mechanischen oder Filtrationsleistung dieser Materialien zu berücksichtigen sind, die Morphologie und Orientierung des Porenraums (es ist nicht korrekt, bei solchen bikontinuierlichen Materialien von Poren zu sprechen). Die SXRR-Technik eignet sich ideal für diese Art von Untersuchungen [17]. Für diese Anwendung wurden kleine einwandige

Platten (S1 und S2 genannt) aus zwei kommerziellen Cordierit-DPF-Keramikwabenfiltermaterialien verwendet. Abbildung 3 zeigt die Messergebnisse für beide Proben in zwei orthogonalen Orientierungen zur Extrusionsachse. Während die  $\mu \cdot t$ -Werte erwartungsgemäß unabhängig von der Probenorientierung sind (vgl. Abbildung 3 a und d), zeigt die Grenzfläche zwischen den Poren und dem Feststoff eine bevorzugte Orientierung entlang der Extrusionsachse (vgl. Abbildung 3 b und e bzw. c und f). Der Porositätsanteil und die durch Quecksilberporosimetrie ermittelte (fiktive) mittlere Porengröße bestätigen das mit SXRR gefundene Grenzflächendichteverhältnis zwischen den beiden Cordieritproben. Interessanterweise stimmt der mit SXRR ermittelte Porenraumorientierungsfaktor (etwa 1,2 für beide Proben) gut mit den berichteten Werten für die Kristalltextur überein.



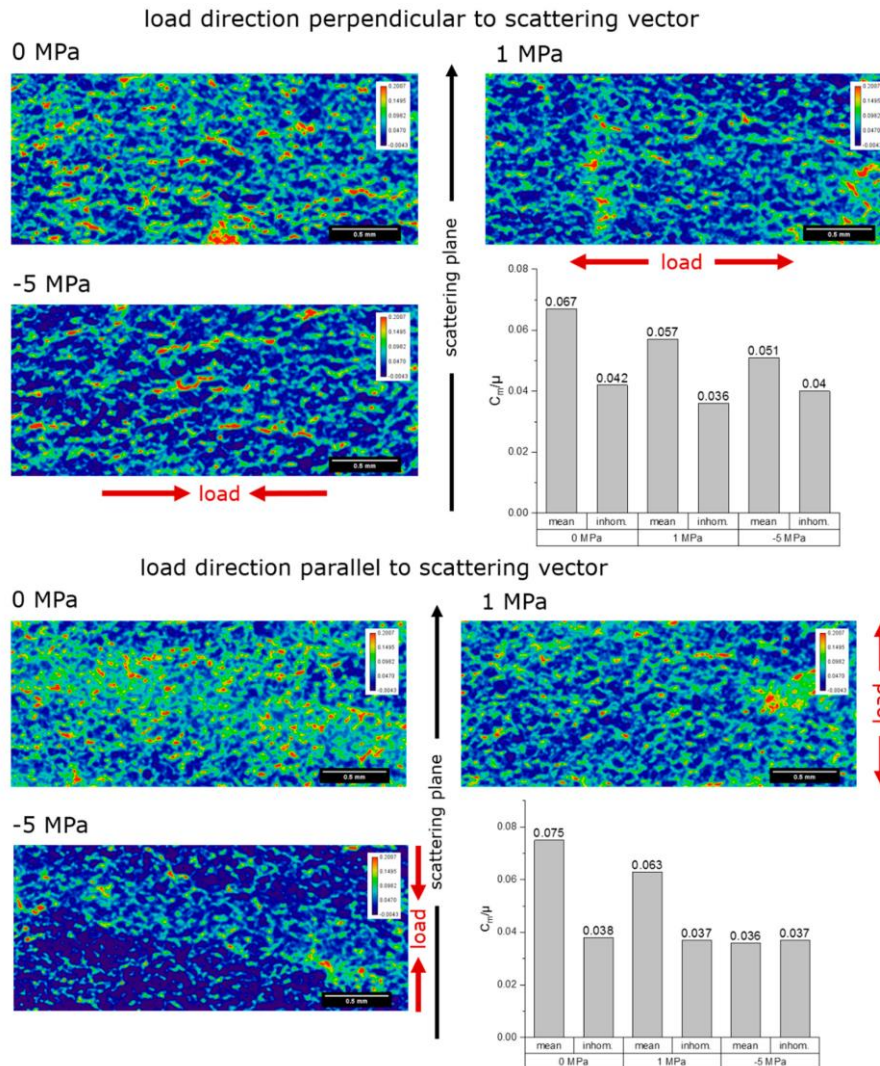
**Abbildung 3:** Zweidimensionales Mapping von einzelnen Wandplatten der Cordieritproben. Große Platte aus Probe S1, kleine Platte aus Probe S2. Die horizontalen Linien zeigen die Extrusionsrichtung an. Obere Reihe: Streuvektor  $q$  (fast) parallel zur Extrusion, untere Reihe: Streuvektor  $q$  senkrecht zur Extrusion. Die Richtung des einfallenden Strahls  $s_0$  ist ebenfalls angegeben. Die Grauwerte entsprechen der absorbierenden Masse (a und d), der volumenbezogenen spezifischen Oberfläche (b und e) und der massebezogenen spezifischen Oberfläche (c und f) [17].

Diese Korrelation wurde auch auf andere poröse Keramiken, wie Aluminiumtitanat und SiC, ausgedehnt [18].

### 1.2 Entwicklung der thermischen Mikrorissbildung in feuerfesten Materialien $ZrO_2$ - $SiO_2$

Gegossene feuerfeste Materialien auf Zirkoniumdioxidbasis werden häufig für Glasöfen verwendet. Da sie sowohl harten chemischen als auch thermomechanischen Bedingungen standhalten müssen, treten in solchen Materialien unter Betriebsbedingungen (manchmal über  $1700^\circ\text{C}$ ) häufig innere Spannungen und Mikrorisse auf. Die Herstellung hochwertiger Gläser, die für neue Anwendungen (z. B. flache LCD- oder PDP-Bildschirme) erforderlich sind, erfordert die Entwicklung neuer, hochzirkonhaltiger schmelzgegossener feuerfester Materialien mit hervorragenden thermomechanischen Eigenschaften. In dieser Fallstudie [19] wurde die Entwicklung der thermischen (CTE) und mechanischen (Elastizitätsmodul) Eigenschaften in Abhängigkeit von der Temperatur und der angewandten Vorspannung in einem schmelzgegossenen feuerfesten  $ZrO_2$ - $SiO_2$ -Verbundwerkstoff untersucht. Mit Hilfe von SXRR (Ermittlung der inneren spezifischen Oberfläche in Materialien) wurde die Entwicklung der Mikrorissbildung als Funktion der thermischen Zyklen (Überschreiten der martensitischen Phasenumwandlung von  $ZrO_2$  bei etwa  $1000^\circ\text{C}$ ) unter extern angelegter Spannung überwacht. Abbildung 4 zeigt den lokalen relativen spezifischen Refraktionswert  $C_m/\mu$  als farbkodierte 2D-Bilder für die Belastungsrichtung, die senkrecht und parallel zur Streuebene des Analysatorkristalls für jede Probe ausgerichtet ist. Die Farbkodierung ist für alle Bilder gleich. Es wurde festgestellt, dass eine externe Druckbelastung während der

thermischen Zyklen zu einer starken Abnahme der inneren Oberfläche pro Volumeneinheit bei Raumtemperatur führt (siehe Abbildung 4 unten links -5 MPa), aber eine Zugbelastung hat eine ähnliche (wenn auch nicht so starke) Wirkung (siehe Abbildung 4 oben rechts 1 MPa). In Übereinstimmung mit der vorhandenen Literatur über  $\beta$ -Eukryptit-Mikrorisskeramik [20] konnten wir diese Phänomene durch die Schließung von Mikrorissen in Belastungsrichtung im Druckfall und durch die Ausbreitung von Mikrorissen (eher als Entstehung von Mikrorissen) unter Zugbedingungen erklären

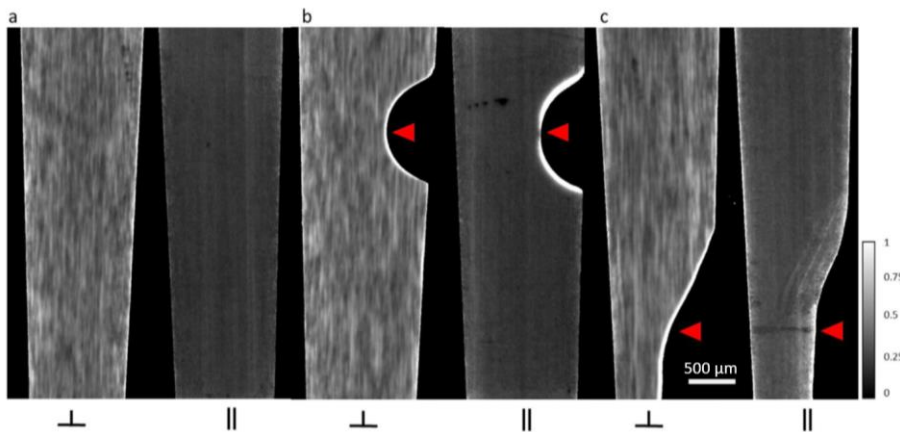


**Abbildung 4:** Visualisierung der lokalen Werte des relativen spezifischen Refraktionswertes  $C_m/\mu$  als farbkodierte 2D-Bilder. Die Belastungsrichtung der Probe verlief senkrecht (oben) bzw. parallel (unten) zur Streuebene des Analysatorkristalls. 0 MPa: unbelasteter Temperaturzyklus, 1 MPa: Zugbelastung, -5 MPa: Druckbelastung. Die Integralwerte der relativen spezifischen Oberfläche für die Proben sind als Balkendiagramme dargestellt. Die kleinen Balken stellen die Inhomogenität der  $C_m/\mu$ -Werte über die gemessene Fläche der Probe dar [19].

### *Beschädigung von Glasfasern in endodontischen Stiften nach dem Beschneiden durch Zahnbohrern*

Dentale Glasfaserstifte sind Verbundwerkstoffe, die aus axial ausgerichteten Glasfasern bestehen, die mit einer Polymermatrix verbunden sind. In der Zahnmedizin werden Glasfaserstifte als flexible und leichte Verstärkung für postendodontische Restaurationen verwendet, wobei sie von der hohen Festigkeit der millimeterlangen Glasfasern mit

Mikrometerdurchmessern profitieren. Zahnstifte werden für die Zahnrestauration nach einer Wurzelkanalbehandlung und einer umfangreichen Zerstörung der Zahnschubstanz (z. B. durch Karies) verwendet. Die Stifte werden in den gereinigten Wurzelkanal eingesetzt und dort verklebt, wo sie zum mechanischen Halt der künstlich wiederhergestellten Zahnkronen beitragen. Glasfaserstifte werden in der Regel in Standardlängen und -stärken in Massenproduktion hergestellt. Um Wurzeln mit biologisch unterschiedlicher Anatomie anzupassen, müssen die Stifte daher beschnitten werden. Die Auswirkungen des Beschneidens von Glasfaserstiften sind nur unzureichend bekannt. Es besteht die Sorge, dass die Integrität von Glasfaserstiften durch das Beschneiden während der Behandlung beeinträchtigt werden könnte. In der hier vorgestellten Studie [21] wurde SXRR eingesetzt, um das Ausmaß der durch das Trimmen verursachten Schäden zuverlässig zu identifizieren und zu charakterisieren.



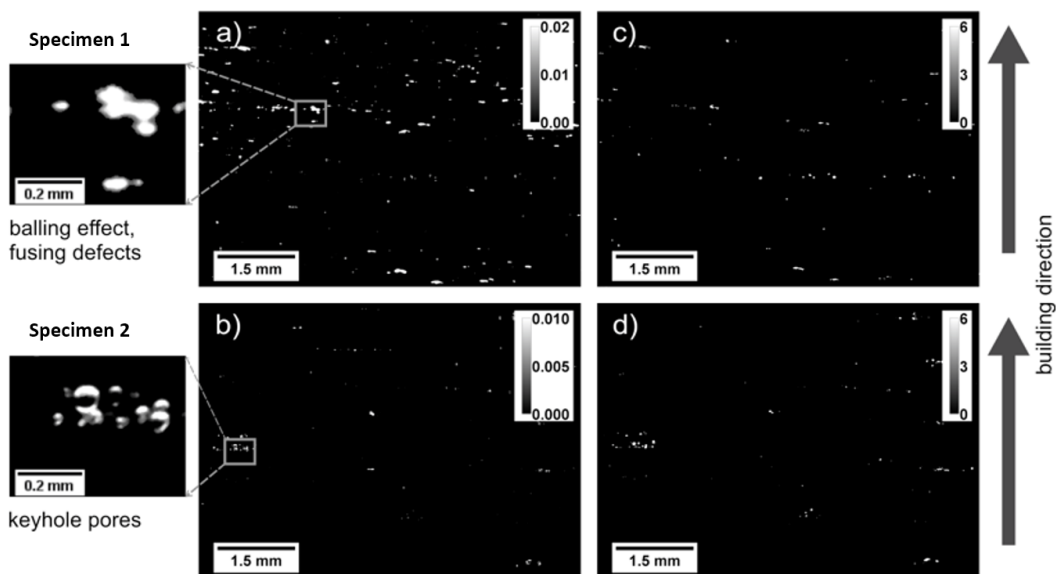
**Abbildung 5:** Graustufenbilder der relativen spezifischen Oberfläche ( $C_m/\mu$ ) aus SXRR-Messungen bei senkrechter ( $\perp$ ) und paralleler ( $\parallel$ ) Ausrichtung der Zahnstifte zur Streuebene des Analysatorkristalls (siehe Abbildung 1). Man beachte den großen Unterschied in den Grauwerten (um einen Faktor von bis zu 4) zwischen den beiden Ausrichtungen der einzelnen Proben. Zwischen den Strukturen, die entlang der Faserachse ausgerichtet sind, findet eine signifikante Streuung statt. Die Kontrollprobe (a) zeigt das typische Erscheinungsbild eines Stiftes im Anlieferungszustand. Die Intensitätsmuster, die den Faserstrukturen des Stiftes entsprechen, erzeugen schwache vertikale Linien, die auf leichte Variationen der Matrixdicke zurückzuführen sind. Die Proben (b) gerillt und (c) abgeschrägt wurden mit einem Hochgeschwindigkeits-Dentalbohrer bearbeitet, wobei Material in den durch rote Pfeile markierten Bereichen entfernt wurde. Ein starkes helles Signal entlang der vom Bohrer betroffenen Oberfläche ist auf eine hohe lokale Konzentration neu gebildeter innerer Oberflächen zurückzuführen (Mikroschäden) [21].

Abbildung 5 zeigt Graustufenbilder der relativen spezifischen Oberflächen ( $C_m/\mu$ ) der Kontrollstifte, der gerillten und der abgeschrägten Stifte. Die Abbildungen zeigen lokale Variationen in den Grenzflächen und heben spezifische Regionen hervor, die Sub- $\mu$ m-Schäden/interne Oberflächen enthalten; solche Schäden hängen von der Orientierung der Probe in Bezug auf die Streuebene des Analysators ab. Das stärkere Signal wird quantitativ in den Graustufenwerten dargestellt, die bei allen 3 Stiften eine deutlich höhere Streuung zeigen, die von den dominierenden Grenzflächen ausgeht, die parallel zu den Glasfasern ausgerichtet sind (Abbildung 5a-c links, d. h. für die senkrechte Ausrichtung). Der Mittelwert der relativen spezifischen Oberfläche in dieser Stiftausrichtung ist  $\sim 4$ -mal höher als der parallel zur Glasfaserausrichtung gemessene Mittelwert (Abbildung 5a-c rechts, Grenzflächen senkrecht zu den Fasern). Mit anderen Worten, es findet eine erhebliche Streuung entlang der Grenzflächen zwischen den verstärkenden Glasfasern und der Matrix statt. Der mittlere  $C_m/\mu$ -Wert der "regulären" Stiftbereiche beträgt etwa 0,38 und schwankt zwischen 0,27 in den dunklen und 0,67 in den helleren Streifen. Dunkle Streifen weisen auf Bereiche mit besserer Faser-Matrix-Bindung hin, helle Bereiche auf lokale Bindungsmängel. Die Tatsache, dass die Stifte in der parallelen Ausrichtung (Abbildung 5 a-c rechts) größtenteils ein sehr niedriges  $C_m/\mu$ -Wert von etwa 0,05 aufweisen, deutet darauf hin, dass fast keine

internen Inhomogenitäten senkrecht zur Hauptfaserachse ausgerichtet sind. Dies bedeutet, dass sowohl die Matrix als auch die Glasfasern durchgängig sind und kaum Poren und Risse aufweisen. Die durch den Bohrer verursachten Schäden sind in beiden Orientierungen der Stifte deutlich sichtbar. Die hellen Halos deuten darauf hin, dass die Beschädigung ein Volumen umfasst, das sich mindestens 50  $\mu\text{m}$  von der Oberfläche entfernt erstrecken, die mit dem Zahnbohrer in Berührung kam. Aufgrund des Ausmaßes der Beschädigung und der möglichen Folgen für die Integrität der Restauration ist es möglicherweise am besten, die Glasfaserstifte nicht zu beschneiden und sie nach den Bedürfnissen des Patienten anzufertigen.

*Unterscheidung von nicht prozessiertem Pulver und leeren Poren in additiv hergestelltem Ti-6Al-4V*

Das additive Fertigungsverfahren L-PBF (Laser Powder Bed Fusion) ist ein leistungsfähiges Werkzeug für die zeit- und ressourceneffiziente Herstellung endkonturnaher und leichter Bauteile. Es erfordert keine Formen oder teilespezifischen Werkzeuge und ermöglicht die Herstellung sehr komplexer und kundenspezifischer Teile direkt aus computergestützten Designmodellen (CAD). Insbesondere die Legierung Ti-6Al-4V (Ti64) wird hauptsächlich in der Luft- und Raumfahrtindustrie verwendet und ist im medizinischen Bereich sehr verbreitet. Die schnelle Erstarrung während des L-PBF-Verfahrens und nicht optimale Prozessparameter können jedoch zu Instabilitäten während des Prozesses führen. Solche Instabilitäten führen zur Bildung innerer Defekte in den Teilen: Binde- oder Schmelzfehler, Balling, Schlüsselochdefekte und sogar Rissbildung durch thermische Eigenspannung.



**Abbildung 6:** (links) 2D-Verteilung der spezifischen Oberfläche in  $\text{mm}^{-1}$  von Probe 1 (a) und Probe 2 (b) aus SXRR; (rechts) 2D-Verteilung der Porosität in % von Probe 1 (c) und Probe 2 (d) aus konventioneller Radiographie [22]

In der hier berichteten Studie [22] wurden erstmals Röntgenrefraktionstechniken zur Identifizierung von Hohlraumbildung in L-PBF Ti-6Al-4V-Bauteilen eingesetzt. Die Topologie und der Volumenanteil der Poren wurden in Proben gemessen, die mit unterschiedlicher Laserenergiedichte hergestellt wurden. Tatsächlich treten verschiedene Arten von Defekten auf, wenn die Laserenergiedichte unter oder über der optimalen Laserenergiedichte liegt; ungeschmolzene Pulverpartikel, Balling-Effekt und Schmelzdefekte treten auf, wenn die Laserenergiedichte zu niedrig ist, leere Schlüsselochporen, wenn die Laserenergiedichte zu



hoch ist. Da es mit Hilfe der Röntgenrefraktion möglich ist, kleine Inhomogenitäten (Hohlräume oder Risse) zu erkennen, deren Größe unterhalb der räumlichen Auflösung der Lichtmikroskopie und der Röntgen-Computertomographie liegt, haben wir diese Fähigkeiten zur Lösung dieses schwierigen Problems demonstriert. Abbildung 6 zeigt die 2D-Verteilungen der spezifischen Oberfläche und der lokalen Porosität, integriert über die Dicke der Probe (beachte die unterschiedliche Grauskala jeder Unterabbildung). Die beiden Hauptausagen sind:

- SXRR erkennt bei beiden Proben mehr Defekte als die Röntgentransmissionsradiographie (Probe 1: Laserenergiedichte ist unterhalb, Probe 2: Laserenergiedichte ist oberhalb der optimalen Werte). In beiden Proben sind die Defekte senkrecht zur Baurichtung (vertikale Richtung in Abbildung 6) ausgerichtet und befinden sich zwischen aufeinanderfolgenden Schichten. Bei Probe 1 wurden 247 Defekte mittels SXRR und 85 mittels Transmissionsradiographie gefunden; bei Probe 2 wurden 119 Defekte mittels SXRR und 96 mittels Transmissionsradiographie gefunden, wobei die räumliche Auflösung sowohl bei der Transmissionsradiographie als auch bei SXRR identisch war. Daraus lässt sich schließen, dass die durch SXRR zusätzlich entdeckten Defekte kleiner sind als die tatsächliche räumliche Auflösung.
- Auf den SXRR-Bildern lassen sich eindeutig zwei Arten von Defekten erkennen. Die eine Art ist in dem vergrößerten Ausschnitt von Abbildung 6a für Probe 1 zu sehen. Das charakteristische Merkmal dieser Defekte ist eine hohe spezifische Oberfläche, die über das gesamte Volumen des Defekts verteilt ist. Dies deutet auf eine innere Struktur oder komplexe Form hin, mit Unterdefekten in einem Maßstab unterhalb der Pixelauflösung der Kamera. Der andere Typ ist in dem vergrößerten Ausschnitt von Abbildung 6b für Probe 2 zu sehen: Im Bild sind halbmondförmige Strukturen zu sehen. Diese Halbmonde sind die durch die Refraktion verstärkten Ränder von (eher kreisförmigen) Hohlräumen und entsprechen daher leeren Poren (d. h. ohne innere Struktur). Es ist zu beachten, dass aufgrund der Sensitivität der SXRR-Messung gegenüber der Grenzflächenorientierung nur die oberen und unteren Kanten der Poren verstärkt werden.

Daraus lässt sich schließen, dass eine zu niedrige Laserenergiedichte dazu führt, dass ungeschmolzenes Pulver in den Diskontinuitäten zurückgehalten wird, während eine zu hohe Laserenergiedichte Gasblasen hervorruft.

### **Computertomographie mit Synchrotron-Röntgenrefraktion**

SXRR kann zu einer 3D-Untersuchung erweitert werden, indem die Probe schrittweise um  $360^\circ$  gedreht wird, Refraktions-Röntgenbilder aufgenommen werden und ein 3D-Volumen mit Hilfe herkömmlicher Algorithmen rekonstruiert wird (z.B. [23]). Dies wird als Synchrotron-Röntgen-Refraktions-Computertomographie (SXRCT) bezeichnet. Während SXCT die 3D-Darstellung der Dichteverteilung im Inneren von Proben ermöglicht, erlaubt SXRCT die 3D-Darstellung der spezifischen inneren Oberflächen. Die folgenden Beispiele zeigen, wie SXRCT Schäden in Materialien quantifizieren kann und dabei Ergebnisse liefert, die die von SXCT gut ergänzen. Im Gegensatz zur herkömmlichen SXCT wird bei der SXRCT wie bei der SXRR ein Analysatorkristall zwischen Probe und Detektor eingesetzt. Aus praktischen Gründen (z.B. aus Zeitgründen) ist es jedoch nicht möglich, eine vollständige Rocking-Kurve (etwa 50 Aufnahmen) für jeden Projektionswinkel (ca. 1500 Winkelpositionen) eines tomographischen Scans zu erfassen. Daher wird der Analysatorkristall für die SXRCT-Messung auf das Maximum seiner Rocking-Kurve eingestellt (z.B.  $3,779^\circ$  bei 30 keV). Bei dieser Einstellung werden alle Röntgenstrahlen, die durch Refraktionsereignisse in der Probe abgelenkt werden, vom Analysatorkristall zurückgewiesen, was zu einer zusätzlichen Abschwächung der Röntgenstrahlen in den Projektionen führt,

zusätzlich zu der Abschwächung, die durch den linearen Schwächungskoeffizienten  $\mu$  beschrieben wird. Dieser Effekt wird durch Addition des Refraktionswertes  $C_m$  zum Exponenten des Lambert-Beer'schen Abschwächungsgesetzes beschrieben. Die im Maximum der Rocking-Kurve gemessene Röntgenintensität  $I_R$  wird daher durch die folgende Gleichung beschrieben, wobei  $I_{R0}$  die Röntgenintensität am Maximum der Rocking-Kurve ohne Probe und  $t$  die Dicke der Probe ist.

$$I_R = I_{R0} \cdot e^{-(\mu+C_m) \cdot t} \quad (3)$$

Zur Bestimmung des Refraktionswertes  $C_m$  wird eine absorptionsbasierte Synchrotron-Röntgen-Computertomografie (SXCT) durchgeführt (d.h. ohne den Analysatorkristall). Die Projektionen eines solchen Scans ergeben die gesamte transmittierte Röntgenintensität  $I_{trans}$ , die durch den linearen Schwächungskoeffizienten  $\mu$  und die einfallende Strahlintensität  $I_{trans,0}$  bestimmt wird.

$$I_{trans} = I_{trans,0} \cdot e^{-\mu t} \quad (4)$$

Mit Hilfe der Reihenentwicklung des Logarithmus lässt sich der Wert der Refraktion  $C_m$  wie folgt ausdrücken

$$C_m = \frac{1}{t} \cdot \left( 1 - \frac{I_R \cdot I_{trans,0}}{I_{R,0} \cdot I_{trans}} \right) \quad (5)$$

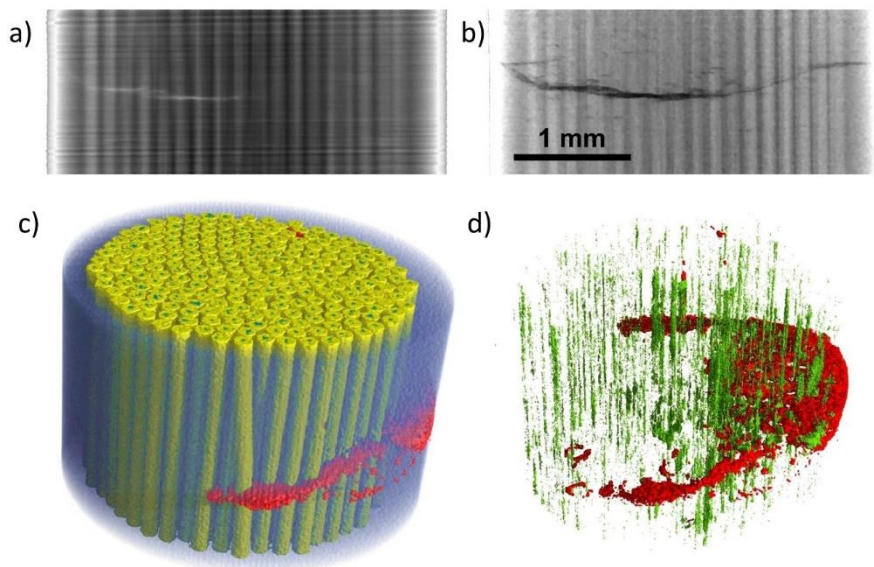
Um die 3D-Verteilung des Refraktionswertes  $C_m$  zu rekonstruieren, werden Projektionen benötigt, die die Größe  $C_m \cdot t$  darstellen. Zu diesem Zweck werden die beiden CT-Scans - mit und ohne Analysatorkristall - zueinander registriert und dann entsprechend zusammen verarbeitet. Weitere Informationen zur Bildgebungstechnik finden sich in [8, 11, 22]. Im Folgenden berichten wir über zwei herausragende Anwendungen von SXRCT. Tatsächlich ist die Erkennbarkeit von Defekten bei SXCT auf die räumliche Auflösung beschränkt: Das kleinste erkennbare Objekt entspricht dem kleinsten Objekt, das abgebildet werden kann. Bei der SXRCT ist dies nicht der Fall, da die Erkennbarkeit durch das Phänomen der Refraktion verbessert wird.

### *Darstellung von Schäden in einem Metall-Matrix-Verbundwerkstoff nach Ermüdung (Low Cycle Fatigue)*

Faserverbundwerkstoffe schließen die Lücke zwischen den Anforderungen an geringes Gewicht und hohe Festigkeit von Werkstoffen. In den obigen Abschnitten wurde gezeigt, dass SXRR sich hervorragend zur Charakterisierung von Defekten aller Art in solchen Materialien eignet. Bei herkömmlichen glas- oder kohlenstoffverstärkten Kunststoffen ist der Faserdurchmesser (typischerweise 5 – 10  $\mu\text{m}$ ) jedoch zu klein, um die Fasern einzeln abzubilden. In dieser Studie untersuchten wir einen Metall-Matrix-Verbundwerkstoff (MMC), der größere Fasern enthält [4]. Wir verwendeten eine zylindrisch geformte (3,5 mm Durchmesser) Titan-Matrix-Verbundwerkstoff-Probe nach Ermüdung (Low Cycle Fatigue - LCF), die von MTU Aero Engines, Deutschland, zur Verfügung gestellt wurde. Bei den verstärkenden Endlosfasern handelte es sich um SCS6 von Textron mit einem Durchmesser von 140  $\mu\text{m}$  (33  $\mu\text{m}$  Kohlenstofffaserkern, umhüllt von SiC). Die Verbundwerkstoffproben wurden dann durch heißisostatisches Pressen (HIP) hergestellt. Statische und zyklische Kräfte wurden parallel zu den Fasern aufgebracht, um verschiedene mechanische Parameter zu erhalten. Nach den Tests wurden die Proben mit metallografischen Methoden untersucht und die Bruchflächen analysiert.

In einem konventionellen (d.h. auf Absorption basierenden) Röntgenbild (Abbildung 7a) ist der Haupt-Ermüdungsriss kaum zu erkennen und erscheint hell (aufgrund der geringeren Absorption). Er scheint sich nur über die linke Seite der Probe zu erstrecken. Auf dem entsprechenden SXRR-Bild (Abbildung 7b) ist der Riss stark kontrastiert und erscheint schwarz (aufgrund fehlender, gebrochener Strahlanteile). Er erstreckt sich über den gesamten

Probendurchmesser und weist Seitenverzweigungen auf. Um die Defekte in der MMC-Probe vollständig zu erkennen, wurden SXRCT-Messungen in zwei Probenausrichtungen durchgeführt. Abbildung 7c zeigt eine 3D-Rekonstruktion der Refraktionstomographie der LCF-Verbundprobe, die mit der Probenachse innerhalb der Streuebene aufgenommen wurde. Wie bei den Transmissions-CT-Messungen (hier nicht gezeigt) enthält die Visualisierung alle Informationen über die Faserverteilung und -orientierung in der Ti-Matrix. Der durch Ermüdung verursachte Makroriss ist deutlich sichtbar (rote Farbe). Durch die Aufnahme von Refraktionsprojektionen bei waagrecht montierter Probe sind wir empfindlich für axiale Defekte und können die Faserenthaftung separat extrahieren (in Abbildung 7d grün dargestellt). Abgelöste Fasern erzeugen ein höheres Refraktionssignal, da die Anzahl der Grenzflächen erhöht ist (Matrix/Luft und Luft/Faser anstelle von Matrix/Faser). Beide Schadensflächen sind in Abbildung 7d zusammen dargestellt. Die Ermüdungsrisse der Ti-Matrix sind senkrecht zur Lasttrichtung ausgerichtet und befinden sich in der Ti-Matrix. Die Faserenthaftung ist parallel zur Belastungsrichtung ausgerichtet. Es wird davon ausgegangen, dass die beiden unterschiedlichen Arten von Fehlern selektiv die Empfindlichkeit des Materials gegenüber verschiedenen Belastungsarten erklären.

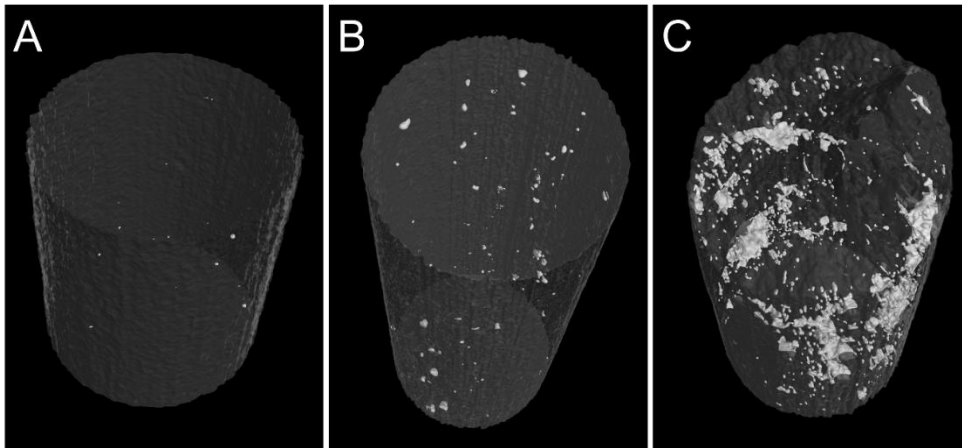


**Abbildung 7:** Röntgenkontrast zwischen konventioneller Absorption (a) und SXRR (b). Man beachte die Ausdehnung des horizontalen Ermüdungsrisses. 3D-SXRCT-Rekonstruktion der MMC-Probe nach der LCF-Schädigung, (c) Blick durch die halbtransparente Ti-Matrix (blau) auf massive SiC-Fasern (gelb) und Ermüdungsrisse in der Matrix (rot) und (d) die extrahierten Schadensflächen verschiedener Typen, Ermüdungsrisse (rot) und Faserablösungen (grün). Beachte, dass die verschiedenen Schädigungstypen aus zwei SXRCT-Messungen in unterschiedlichen Probenausrichtungen gewonnen wurden [4]

### *Visualisierung wasserstoffgetriebener Rissbildung in Duplex-Edelstahl*

Die Anforderungen an Stähle, insbesondere im Bereich der aggressiven Umgebungen, sind in den letzten Jahrzehnten stetig gestiegen. Sowohl wirtschaftliche als auch konstruktive Aspekte führen zu immer höheren Anforderungen an die Beständigkeit gegenüber korrosiven Medien und die Festigkeit der Werkstoffe. Trotz der hervorragenden mechanischen und korrosiven Eigenschaften sind in vielen Industriezweigen Schadensfälle aufgetreten, die auf die negativen Auswirkungen von Wasserstoff zurückzuführen sind. Diese treten meist in Form einer Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften durch Wasserstoffversprödung (hydrogen embrittlement - HE) auf. Darüber hinaus können diese Schäden bei einer

bestimmten kritischen Kombination von Mikrostruktur, Dehnung und Wasserstoffkonzentration zu wasserstoffgetriebener Rissbildung (hydrogen-assisted cracking - HAC) führen.



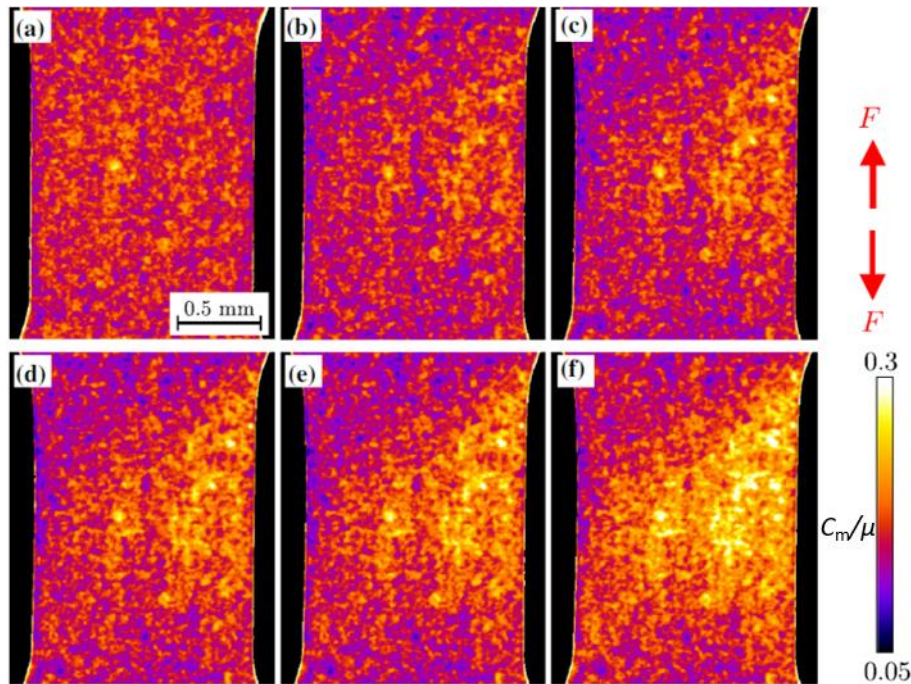
**Abbildung 8:** 3D-Darstellung von Rissen in den Proben A (ungeladen), B (74 ppm H geladen und plastisch verformt) und C (74 ppm H geladen und vollständig gebrochen), ermittelt aus dem rekonstruierten Volumen der Refraktionswerte  $C_m$ [24].

In [24] haben wir eine quantitative Charakterisierung der durch HAC verursachten Schäden in einem 2101 mageren nichtrostenden Duplex-Stahl (DSS) gezeigt. Die Erkennung einzelner Risse ist nach wie vor eine große Herausforderung, da sie hochauflösende (bildgebende) Methoden erfordert (die Korngröße der Phasen in DSS liegt in der Größenordnung von  $10\ \mu\text{m}$ ); gleichzeitig erfordert eine solide statistische Analyse eine große Anzahl von Defekten, die erkannt (und schließlich abgebildet) werden müssen. Dies erfordert daher ein großes Gesichtsfeld (FoV). 3D-Tomografierekonstruktionen wurden verwendet, um die Größe und Lage der Risse in wasserstoffgeladenen Zugproben zu bestimmen, die verschiedenen Belastungsstufen (plastisch verformt und vollständig gebrochen) ausgesetzt waren. Abbildung 8 zeigt die Rekonstruktion der SXRCT-Datensätze von drei Proben (unbelastet, ungeladen (A), H<sub>2</sub>-beladen und plastisch verformt (B), H<sub>2</sub>-beladen und gebrochen (C)) und die Segmentierung der darin enthaltenen Defekte. Es zeigt sich, dass Risse vorwiegend an den Außenkanten aller Proben auftreten und dass sowohl die Anzahl als auch die Größe dieser Risse mit zunehmender mechanischer Belastung (Proben C gegenüber B) und zunehmendem Wasserstoffgehalt (Proben B und C gegenüber A) zunehmen. Der Vergleich zwischen den Proben zeigt, dass die Risse an der Außenfläche der Probe mit zunehmender Belastung wachsen, während die Defekte, die sich näher am Zentrum befinden, von der Zunahme der Belastung weitgehend unberührt bleiben. In den mit SXRCT rekonstruierten Volumina wurden 159 Defekte für Probe B und 602 für Probe C gefunden, während nur 74 bzw. 373 Defekte in den mit SXCT rekonstruierten Volumina gefunden wurden. Tatsächlich ist die Erkennbarkeit von Defekten mit SXCT auf die räumliche Auflösung beschränkt. Dies ist bei der SXRCT nicht der Fall, bei der die Nachweisbarkeit durch das Phänomen der Refraktion verbessert wird. In dieser Fallstudie konnten aufgrund des besseren Kontrasts der SXRCT-Bilder im Vergleich zu den SXCT-Bildern auch mehr einzelne Defekte abgebildet werden (bei gleicher räumlicher Auflösung). Daraus lässt sich schließen, dass der Aufladungsprozess bereits Schäden hervorruft, die jedoch in der Nähe der Oberfläche verbleiben, während starke plastische Verformungen eine Rissausbreitung (in das Innere der Probe) bewirken.

## In-situ- und Operando-Experimente

### Schadensentwicklung in einem Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MMC unter uniaxialer Spannung

Aufgrund ihrer geringen Dichte, hohen Festigkeit und hohen Steifigkeit sind auf Aluminiumlegierungen basierende MMCs wertvolle Strukturwerkstoffe, zum Beispiel für Anwendungen in der Automobil- und Luftfahrtindustrie. Diese Verbundwerkstoffe weisen in der Regel schlechte Brucheigenschaften auf, was ihre industrielle Nutzung einschränkt. Daher wurde den durch mechanische Belastung hervorgerufenen Schädigungsmechanismen in MMCs viel Aufmerksamkeit gewidmet. Bei partikelverstärkten MMCs werden diese Mechanismen im Allgemeinen in drei Klassen unterteilt: (1) duktiles Versagen der Matrix, (2) Dekohäsion zwischen Matrix und Partikeln und (3) Rissbildung durch Partikel. In der Studie, über die wir hier berichten [8], wurde SXRR zum ersten Mal erfolgreich eingesetzt, um die mechanisch induzierte (externe Zugspannung) Schadensentwicklung in einer Al6061-Matrixlegierung zu verfolgen, die mit 10% keramischen Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Partikeln verstärkt wurde. Dieser Ansatz ermöglichte es, nanometrische Informationen über die Porenbildung und die Schadensentwicklung auf der Makroskala in situ während der quasistatischen Belastung zu sammeln.



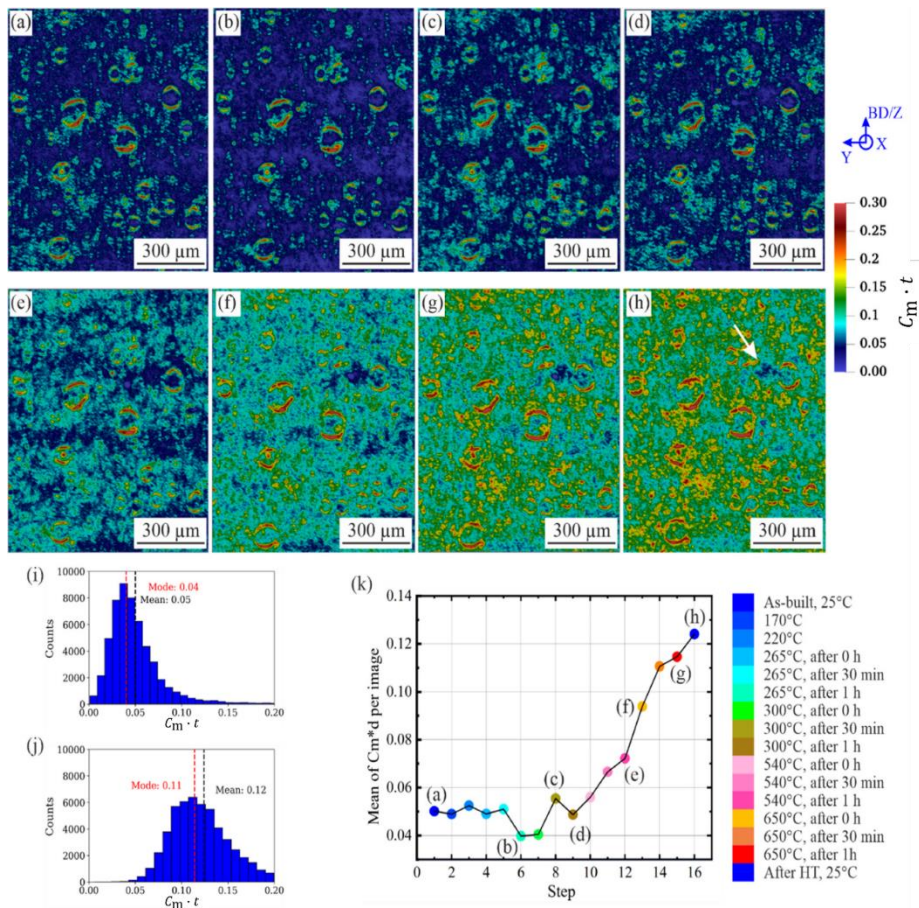
**Abbildung 9:** Farbgekodierte Verteilung der relativen spezifischen Oberfläche  $C_m/\mu$ , die aus SXRR für angewandte Spannungen  $\sigma$  von (a) 11MPa, (b) 294MPa, (c) 319MPa, (d) 323MPa, (e) 328MPa und (f) 331MPa erhalten wurde. Hohe Werte der spezifischen Oberfläche deuten auf ein hohes Maß an Schädigung hin [8]

Abbildung 9 zeigt die Entwicklung der relativen spezifischen Oberfläche  $C_m/\mu$  (Schädigung) während eines Zugversuchs am Beispiel von sechs Belastungszuständen  $\sigma$  (siehe Bildunterschrift). Im Anfangszustand (a) wird die erhöhte  $C_m/\mu$  durch die Grenzflächen zwischen der Al-Matrix und den Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Teilchen sowie an der Oberfläche der anfänglichen Imperfektionen (Risse, Poren und abgelöste Teilchen) verursacht. Beim ersten Spannungsniveau nimmt die relative spezifische Oberfläche auf der linken Seite der Probe ab und beginnt auf der rechten Seite zuzunehmen, was auf ein überlagertes Biegemoment während des Zugversuchs zurückzuführen ist, das dazu führte, dass die linke Seite der Probe unter Druck stand. Daher schlossen sich die anfänglichen Risse und Hohlräume tendenziell und die spezifische Oberfläche wurde verringert. Mit dem Fortschreiten des Zugversuchs

nahm  $C_m/\mu$  aufgrund der Bildung und des Wachstums von Defekten zu. In der konventionellen absorptionsbasierten Bildgebung war bis zur letzten Belastungsstufe kein Hinweis auf eine Schädigung der Probe erkennbar (dies ist in Abbildung 8 in [8] dargestellt). Dies dokumentiert die überlegene Defektsensitivität von SXRR im Vergleich zur absorptionsbasierten Radiographie und belegt, dass die mit SXRR beobachteten Defekte kleiner sind als die tatsächliche räumliche Auflösung. In Abbildung 9 ist ersichtlich, dass schwere Schäden auftreten, wenn sich die Probe dem Bruch nähert; der Bereich, in dem der Bruch auftreten würde, wird durch den Anstieg des SXRR-Signals deutlich angezeigt. Daher kann SXRR erfolgreich zur Vorhersage des Ortes des katastrophalen Versagens in solchen Verbundwerkstoffen eingesetzt werden.

### Mikrostruktur und Porositätsentwicklung in Abhängigkeit der Temperatur

Als Weiterentwicklung der Methode wurde kürzlich die SXRR mit einer In-situ-Wärmebehandlung kombiniert, um die Entwicklung der Mikrostruktur und der Porosität in Abhängigkeit von der Temperatur in einer durch Laser-Pulverbettsschmelzen (LPBF) hergestellten AlSi10Mg-Legierung zu verfolgen, von der bekannt ist, dass sich das anfängliche eutektische Si-Netzwerk mit steigender Temperatur auflöst und in größere Partikel sphärodisiert [25]. Eine solche Legierung ist auch anfällig für thermisch induzierte Porosität (TIP).



**Abbildung 10:** Farbgekodierte  $C_m \cdot t$ -Refraktionsbilder, aufgenommen bei (a) Raumtemperatur (25 °C), (b) 265 °C nach 1 h, (c) 300 °C nach 30 min, (d) 300 °C nach 1 h, (e) 540 °C nach 1 h, (f) 650 °C nach 0 h, (g) 650 °C nach 1 h und (h) Raumtemperatur nach der Wärmebehandlung. Histogramme der  $C_m \cdot t$ -Werte des bei (i) Schritt 1 und (j) Schritt 16 aufgenommenen Bildes. (k) Aufzeichnung des Mittelwerts von  $C_m \cdot t$  pro Bild gegen die Temperaturstufen [25].

Mit Hilfe der SXRR konnten die Veränderungen der Si-Phasen-Morphologie beim Erhitzen (derzeit nur mit Hilfe der Rasterelektronenmikroskopie möglich) und das Wachstum von Poren (normalerweise mit Hilfe der Röntgen-Computertomographie untersucht, aber auf viel kleineren Gesichtsfeldern) beobachtet werden. Die Ergebnisse zeigen das große Potenzial der In-situ-SXRR als Werkzeug, um eingehende Kenntnisse über die Anfälligkeit eines beliebigen Materials für thermisch induzierte Schäden und/oder die Entwicklung der Mikrostruktur über statistisch relevante Volumina zu gewinnen.

Abbildung 10 zeigt die Entwicklung des  $C_m \cdot t$  Wertes als Funktion der Temperatur. Die Porosität besteht hauptsächlich aus großen kugelförmigen Poren, die sichelförmige Merkmale ergeben, für die die  $C_m \cdot t$  Werte von etwa 0,08 bis 0,28 in den Anfangsbedingungen (Abbildung 10a) und von 0,17 bis 0,3 im letzten Temperaturschritt (Abbildung 10h) variieren. Der Anstieg der  $C_m \cdot t$  Werte des Hintergrunds (d.h. von 0,05 auf 0,15) ist auf die Zunahme kleinerer Gasporen (sowohl durch Porenwachstum als auch durch Porenbildung) zurückzuführen. Beachte auch, dass der Anstieg von  $C_m \cdot t$  während des gesamten Wärmebehandlungszyklus räumlich heterogen ist (Abbildung 10a-h), und die Endphase zeigt, dass einige Regionen während des gesamten Wärmebehandlungszyklus bei den ursprünglichen  $C_m \cdot t$  Werten von 0,04-0,05 verbleiben (ein Beispiel ist mit einem weißen Pfeil in Abbildung 10h gekennzeichnet).

### *Zusammenfassung und Ausblick*

Die Bildgebung an der BAMline läuft seit ihrer Inbetriebnahme sehr erfolgreich und bedient eine Nutzergemeinschaft aus den unterschiedlichsten Forschungsbereichen. Dies wird durch zahlreiche Publikationen belegt. Insbesondere die refraktionsverstärkte Bildgebung für Submikrometer-Merkmale erweitert das Spektrum der Abbildungsmöglichkeiten.

In den letzten zwei Jahren wurde die BAMline sowohl hardware- als auch softwareseitig stark aufgerüstet. Die wichtigsten Verbesserungen betreffen den Photonenfluss dank eines verbesserten Doppel-Multilayer-Monochromators sowie die Fähigkeit, Tomographien dank eines verbesserten Detektorsystems viel schneller aufzunehmen [26]. Dank der höheren Zeitauflösung verschieben sich die möglichen Anwendungen immer mehr in Richtung operando und in-situ Studien. So können z.B. mehr Zug- oder Druckzustände, mehr Temperaturstufen gescannt oder die tatsächliche Dynamik beim schnellen Laden von Batterien visualisiert werden. Dies setzt die Entwicklung entsprechender Techniken und Probenumgebungen voraus, die für die Röntgenbildgebung optimiert sind.

### *Danksagung*

Die Autoren danken Wolf Görner, dem Initiator und der treibenden Kraft hinter der Realisierung der BAMline, sowie Ralf Britzke, Michael Sintschuk und Thomas Wolk für ihre Unterstützung und dem Helmholtz-Zentrum Berlin für die Bereitstellung von Strahlzeit.

### **Referenzen**

- [1] A. Larsson, M. Siegbahn, I. Waller, Der experimentelle Nachweis der Brechung von Röntgenstrahlen, *Naturwissenschaften* 12(52) (1924) 1212 - 1213.
- [2] M.P. Hentschel, R. Hosemann, A. Lange, B. Uther, R. Bruckner, Röntgenkleinwinkelbrechung an Metalldrähten, Glasfäden und hartelastischen Polypropylen, *Acta Crystallographica Section A* 43 (1987) 506-513.
- [3] A. Kupsch, B.R. Müller, A. Lange, G. Bruno, Microstructure characterisation of ceramics via 2D and 3D X-ray refraction techniques, *Journal of the European Ceramic Society* 37(5) (2017) 1879-1889.

- [4] B.R. Müller, A. Lange, M. Harwardt, M.P. Hentschel, Synchrotron-Based Micro-CT and Refraction-Enhanced Micro-CT for Non-Destructive Materials Characterisation, *Advanced Engineering Materials* 11(6) (2009) 435-440.
- [5] W. Görner, M.P. Hentschel, B.R. Müller, H. Riesemeier, M. Krumrey, G. Ulm, W. Diete, U. Klein, R. Frahm, BAMline: the first hard X-ray beamline at BESSY II, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip.* 467 (2001) 703-706.
- [6] D. Mani, A. Kupsch, B.R. Müller, G. Bruno, Diffraction Enhanced Imaging analysis with PseudoVoigt1 fit function, submitted to *Journal of Imaging* (2022).
- [7] C.A. Schneider, W.S. Rasband, K.W. Eliceiri, NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis, *Nature Methods* 9 (2012) 671.
- [8] J. Nellesen, R. Laquai, B.R. Müller, A. Kupsch, M.P. Hentschel, N.B. Anar, E. Soppa, W. Tillmann, G. Bruno, In situ analysis of damage evolution in an Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> MMC under tensile load by synchrotron X-ray refraction imaging, *Journal of Materials Science* 53(8) (2018) 6021-2461.
- [9] S. Cabeza, B.R. Müller, R. Pereyra, R. Fernandez, G. Gonzalez-Doncel, G. Bruno, Evidence of damage evolution during creep of Al-Mg alloy using synchrotron X-ray refraction, *Journal of Applied Crystallography* 51 (2018) 420-427.
- [10] R. Laquai, B. Müller, G. Kasperovich, G. Requena, J. Haubrich, G. Bruno, Classification of Defect Types in SLM Ti-6Al-V4 by X-ray Refraction Topography, *Materials Performance and Characterization* 9(1) (2020) 82-93.
- [11] S. Cabeza, B.R. Müller, R. Pereyra, R. Fernandez, G. Gonzalez-Doncel, G. Bruno, Evidence of damage evolution during creep of Al-Mg alloy using synchrotron X-ray refraction, *Journal of Applied Crystallography* 51(2) (2018) 420-427.
- [12] R.C. Cooper, G. Bruno, M.R. Wheeler, A. Pandey, T.R. Watkins, A. Shyam, Effect of microcracking on the uniaxial tensile response of  $\beta$ -eucryptite ceramics: Experiments and constitutive model, *Acta Materialia* 135 (2017) 361-371.
- [13] G.A.P.P. Merkel, NY, US), Tao, Tinghong (Big Flats, NY, US), Cordierite filters with reduced pressure drop, MERKEL GREGORY A., TAO TINGHONG, United States, 2004.
- [14] M.J. Readey, L.D. Rontanini, Cordierite material useful in a heat source retainer and process for making the same, USA, 1990.
- [15] N. Saito, S.Y. Nishimura, M. Kawano, S.I. Araki, S. Sukenaga, K. Nakashima, T. Yasukouchi, Fabrication of nitrogen-containing cordierite ceramics, *Journal of the American Ceramic Society* 93(8) (2010) 2257-2263.
- [16] G. Bruno, A.M. Efremov, B. Clausen, A.M. Balagurov, V.N. Simkin, B.R. Wheaton, J.E. Webb, D.W. Brown, On the stress-free lattice expansion of porous cordierite, *Acta Materialia* 58(6) (2010) 1994-2003.
- [17] A. Kupsch, A. Lange, M.P. Hentschel, Y. Onel, T. Wolk, A. Staude, K. Ehrig, B.R. Müller, G. Bruno, Evaluating porosity in cordierite diesel particulate filter materials, part 1 X-ray refraction, *Journal of ceramic science and technology* 4(4) (2013) 169-176.
- [18] C. Chen, B.R. Müller, O.I. Lebedev, F. Giovannelli, G. Bruno, F. Delorme, Effects of impurities on the stability of the low thermal conductivity in Fe<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub> ceramics, *Materials Characterization* 149 (2019) 111-117.
- [19] R. Laquai, F. Gouraud, B.R. Müller, M. Huger, T. Chotard, G. Antou, G. Bruno, Evolution of Thermal Microcracking in Refractory ZrO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> after Application of External Loads at High Temperatures, *Materials* 12(7) (2019) 1017.
- [20] B.R. Müller, R.C. Cooper, A. Lange, A. Kupsch, M. Wheeler, M.P. Hentschel, A. Staude, A. Pandey, A. Shyam, G. Bruno, Stress-induced microcrack density evolution in  $\beta$ -eucryptite ceramics: Experimental observations and possible route to strain hardening, *Acta Materialia* 144(Supplement C) (2018) 627-641.
- [21] A.P. Soares, D. Baum, B. Hesse, A. Kupsch, B.R. Müller, P. Zaslansky, Scattering and phase-contrast X-ray methods reveal damage to glass fibers in endodontic posts following dental bur trimming, *Dent Mater* 37(2) (2021) 201-211.
- [22] R. Laquai, B.R. Müller, G. Kasperovich, J. Haubrich, G. Requena, G. Bruno, X-ray refraction distinguishes unprocessed powder from empty pores in selective laser melting Ti-6Al-4V, *Materials Research Letters* 6(2) (2018) 130-135.
- [23] L.A. Feldkamp, L.C. Davis, J.W. Kress, PRACTICAL CONE-BEAM ALGORITHM, *J. Opt. Soc. Am. A-Opt. Image Sci. Vis.* 1(6) (1984) 612-619.
- [24] R. Laquai, T. Schaupp, A. Griesche, B.R. Müller, A. Kupsch, A. Hannemann, T. Kannengiesser, G. Bruno, Quantitative analysis of hydrogen-assisted microcracking in duplex stainless steel through X-ray refraction 3D imaging, *Advanced Engineering Materials* n/a(n/a) (2022).
- [25] I. Serrano-Munoz, I. Roveda, A. Kupsch, B.R. Müller, G. Bruno, Synchrotron X-ray refraction detects microstructure and porosity evolution during in-situ heat treatments, *Materials Science and Engineering: A* (2022) 142732.
- [26] H. Markötter, M. Sintschuk, R. Britzke, S. Dayani, G. Bruno, Upgraded imaging capabilities at the BAMline (BESSY II), *Journal of Synchrotron Radiation* (2022).



