

Synchrotron-Refraktion mit *in-situ* Zugbelastung zur Charakterisierung der Schadensentwicklung in Metall-Matrix- Kompositen

René LAQUAI¹, Bernd R. MÜLLER¹, Jens NELLESEN², Manfred P. HENTSCHEL¹,
Andreas KUPSCH¹, Wolfgang TILLMANN³

¹ Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), Berlin

² RIF e.V., Dortmund

³ Lehrstuhl für Werkstofftechnologie, Fakultät Maschinenbau, Technische Universität
Dortmund, Dortmund

Kontakt E-Mail: rene.laquai@bam.de

Kurzfassung. Die Synchrotron-Refraktions-Topographie basiert auf der Brechung von Röntgenstrahlung an den Grenzflächen zwischen Materialien mit unterschiedlichem Brechungsindex. Refraktionseffekte verändern die Ausbreitungsrichtung der Röntgenstrahlung, welche mit Hilfe der Methode des Analyser-Based Imaging analysiert wird. Dabei wird ein Silizium-Einkristall im Strahlengang zwischen Probe und Detektor platziert. Dieser Analysator-Kristall filtert, innerhalb seiner Streuebene, die Röntgenstrahlung gemäß ihrer Ausbreitungsrichtung. Durch das Rastern verschiedener Winkelpositionen des Analysator-Kristalls erhält man das Winkelspektrum der von der Probe gebrochenen Strahlung. Aus dieser Rocking Curve lässt sich die spezifische innere Oberfläche der Probe bestimmen. Diese Information wird über einen 2D-Detektor mit einer nominellen Pixelgröße von 3,6 µm gewonnen. Die Installation einer Zugprüfmaschine ermöglicht es die Proben in verschiedenen Lastzuständen *in-situ* zu untersuchen. Damit ist es möglich die spezifische innere Oberfläche in Abhängigkeit der Last darzustellen und so Schädigungsmechanismen abzuleiten. Der Vorteil bei der Ausnutzung des Refraktionseffekts gegenüber der einfachen Durchstrahlung ist die höhere Sensitivität gegenüber Defekten mit geringem Volumen aber großer Oberfläche. Somit werden auch Mikrorisse und, speziell bei Kompositen, die Enthaftung zwischen Matrix und Verstärkung (Partikel, Fasern) erfasst. In dieser Studie wurden Metall-Matrix-Komposite bestehend aus einer Aluminium-Matrix verstärkt mit Aluminiumoxid-Partikeln untersucht. Hierzu wurden knochenförmige Zugproben präpariert, deren Messlänge einen rechteckigen Querschnitt von 1,7 mm × 1,3 mm aufwies. Die Proben wurden einem Zugversuch unterzogen, welcher in Intervallen unterbrochen wurde. Bei jeder Unterbrechung wurde unter quasi-statischer Last die Rocking Curve gemessen und ein Radiogramm der spezifischen inneren Oberflächen berechnet. Dabei konnte ab dem Erreichen einer Last von ca. 600 N ein Anstieg der spezifischen inneren Oberfläche beobachtet werden. Demgegenüber zeigen die zum Vergleich durchgeführten Durchstrahlungsaufnahmen keinerlei Defekte. Daher belegt diese Untersuchung das Potential der Refraktion-Topographie zur frühzeitigen Erkennung von Schädigungen mit hoher Empfindlichkeit.

1 Einführung

Bei Metall-Matrix-Kompositen (MMCs) handelt es sich um eine wichtige Gruppe von Hochleistungswerkstoffen, die gezielt eingestellte thermo-mechanische, physikalische und chemische Eigenschaften aufweisen. Die in dieser Studie untersuchten MMCs auf Basis von Aluminium-Legierungen zeichnen sich durch eine geringe Dichte kombiniert mit hoher Festigkeit und Steifigkeit aus, was sie zu wertvollen Konstruktionswerkstoffen, z.B., für die Automobil- oder Luftfahrtindustrie macht. Die besonderen Eigenschaften ermöglichen die Gewichtsreduktion von Komponenten und somit die Reduktion des Schadstoffausstoßes.

In MMCs wird die Metallmatrix üblicherweise mit keramischen Fasern oder Partikeln verstärkt. Die Einbettung spröder Partikel in die duktile Matrix führt zu schlechten Bruchereigenschaften, wodurch der industrielle Einsatz dieser Materialien begrenzt wird [1]. Das Verhalten von MMCs unter mechanischer Belastung wurde bereits in der Vergangenheit untersucht. Für den Fall der Verstärkung mit Partikeln konnten im Wesentlichen drei Schädigungsmechanismen unterschieden werden [2, 3]: (i) duktiler Bruch der Matrix, (ii) Enthftung von Matrix und Partikeln und (iii) Bruch der Partikel. In der duktilen Matrix geht der Rissbildung die Dehnungsllokalisierung und in der Folge die Entstehung von Poren voraus. Während der mechanischen Belastung findet in der Regel das Wachstum von Mikrorissen statt, die sich letztendlich zu langen Rissen verbinden und so zum Versagen führen.

Um die Verformungen und Schädigungen auf einer (Sub-)Mikrometerskala abzubilden stehen verschiedene zerstörende und zerstörungsfreie Methoden zur Verfügung. Optische und Elektronen-Mikroskopie ermöglichen eine zwei-dimensionale (2D) Analyse der Mikrostruktur mit sehr hoher Auflösung. In Kombination mit Serienschnitttechnik kann das Gefüge zudem drei-dimensional abgebildet werden. Allerdings sind diese Methoden aufgrund der Probenpräparation sehr aufwändig und zeitintensiv. Zudem handelt es sich um ein zerstörendes Verfahren, das nur die Abbildung eines Zustands erlaubt.

Röntgenbildgebende Verfahren ermöglichen die Untersuchung des Probenvolumens sowohl integral (2D) als auch lokal (3D) auf schnellerem und einfacherem Wege. Konventionelle röntgenbildgebende Verfahren beruhen auf der unterschiedlich starken Schwächung der Strahlung in verschiedenen Material ausgedrückt durch den linearen Schwächungskoeffizienten μ_l . Liegen die Schwächungskoeffizienten der Komponenten eines MMCs nahe beieinander, äußert sich dies in einem schlechten Kontrast, sodass eine Unterscheidung nicht oder nur sehr schlecht und ungenau möglich ist. Für den untersuchten Verbundwerkstoff Al / Al₂O₃ ist genau dies der Fall. Bei der gewählten Photonenenergie von $E = 22$ keV betragen die Schwächungskoeffizienten $\mu_l(\text{Al}) \approx 0,647$ /mm und $\mu_l(\text{Al}_2\text{O}_3) \approx 0,613$ /mm [4], was einem Unterschied von ca. 5 % entspricht.

Die Ausnutzung von Refraktionseffekten ermöglicht es, den Kontrast zwischen den einzelnen Phasen zu verbessern. Diese Brechungseffekte treten auf, wenn die Röntgenstrahlung (innere) Grenzflächen passiert. Um diese Refraktionseffekte zur Bildgebung zu nutzen wurden in der Vergangenheit mehrere Methoden entwickelt [5]. Eine dieser so genannten Phasen-Kontrast Methoden ist das *Analyser-Based Imaging* (ABI), auch bekannt als *Diffraction Enhanced Imaging* (DEI) [6], welches bei der Synchrotron-Refraktions-(SR)-Topographie angewandt wird. Hierbei wird mit Hilfe eines Analysator-Kristalls die Ausbreitungsrichtung der Röntgenstrahlung selektiert. Aus den gewonnenen Bilddaten wird dann der Refraktionswert berechnet, welcher als Maß für die Grenzflächendichte innerhalb des untersuchten Volumens dient.

Neben dem verbesserten Kontrast zwischen Phasen mit ähnlicher Schwächung weist die SR-Topographie, im Vergleich zur konventionellen Radiographie, auch eine höhere Sensitivität gegenüber Defekten mit geringem Volumen auf, da der entscheidende kontrastgebende Effekt nur an der Oberfläche stattfindet. Somit ist es möglich Defekte zu detektieren

die kleiner sind als die Ortsauflösung des bildgebenden Systems, allerdings ohne deren Geometrie bildlich auflösen zu können.

In dieser Studie wurde die laterale Verteilung der inneren Oberflächendichte unter dem Einfluss von Zugbelastung in einem Al / Al₂O₃ MMC untersucht. Dabei erfolgte die Bilderfassung für die SR-Topogramme *in-situ*, d.h. während der Belastung. Diese Vorgehensweise ermöglicht zum einen die direkte Beobachtung der Schadensentwicklung im Material und zum anderen eine verbesserte Detektion von Defekten, da z.B. Risse, die sich bei einer Entlastung schließen würden, durch die angelegte Last offen gehalten werden

2 Material und Methode

2.1 Material und Probengeometrie

Bei dem untersuchten Material handelte es sich um ein Metall-Matrix Komposit bestehend aus einer Matrix der Aluminiumlegierung Al6061 verstärkt mit 10 vol. % keramischer Al₂O₃ Partikel. Die Größe der Aluminiumoxidpartikel liegt zwischen 2 µm und 40 µm, die chemische Zusammensetzung der Matrix ist in Tabelle 1 zusammengestellt. Die Herstellung erfolgte nach dem schmelzmetallurgischen Verfahren im Leichtmetallkompetenzzentrum Ranshofen, Österreich, mit anschließender Extrusion.

Tabelle 1 Chemische Zusammensetzung der Matrixlegierung Al6061

Element	Cr	Cu	Fe	Mg	Mn	Si	Ti	Zn	Al
Gew. %	0,04-0,35	0,15-0,4	0,7	0,8-1,2	0,15	0,4-0,8	0,15	0,25	Bal.

Um die Festigkeit und Härte des MMCs zu verbessern wurde das Material einer T6-Wärmebehandlung unterzogen, die aus den folgenden Schritten besteht:

1. Lösungsglühen bei $T = 530$ °C, 30 min
2. Abschrecken in Wasser bis auf Umgebungstemperatur
3. Ausscheidungsglühen bei $T = 160$ °C, 24 h

Im letzten Schritt bildet sich eine große Anzahl von feinen Mg₂Si Ausscheidungen in der Matrix.

Für die Zugversuche wurden kleine knochenförmige Proben mittels schädigungsarmem Funkenerodieren gefertigt. Der Querschnitt des Messbereichs betrug etwa 1,7 mm × 1,3 mm mit einer Messlänge von ca. 1,5 mm. Im oberen und unteren Bereich wurden die Proben eingekerbt um formschlüssig in die Probenaufnahmen der Zugprüfmaschine eingespannt werden zu können.

2.2 Synchrotron-Refraktions Topographie

Die Synchrotron-Refraktions-(SR)-Topografie ist ein röntgenbildgebendes Verfahren, bei dem die Brechung von Röntgenstrahlung an inneren Grenzflächen des untersuchten Materials als kontrastgebender Effekt ausgenutzt wird [7]. Trifft ein Röntgenstrahl auf die Grenzfläche zwischen zwei Medien unterschiedlichen Brechungsindex n , so verändert sich seine Ausbreitungsrichtung gemäß des Snellius'schen Brechungsgesetzes. Durch diese Veränderung der Ausbreitungsrichtung verbreitert sich das Winkelspektrum des Röntgenstrahls. Die Breite oder FWHM des Winkelspektrums kann somit als Maß für die Grenzflächendichte in dem untersuchten Material verstanden werden.

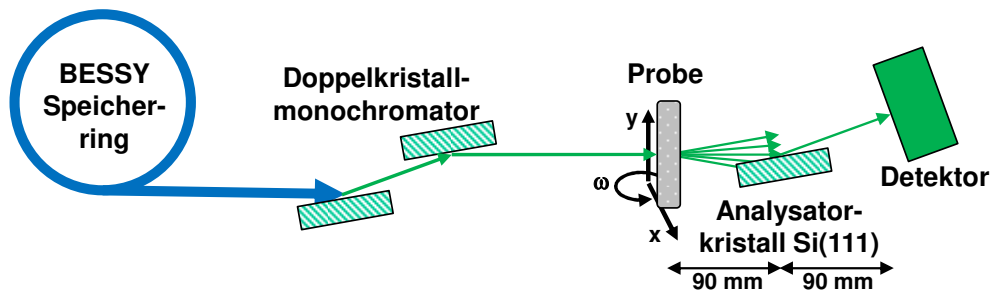


Abbildung 1 Schematische Darstellung des Messaufbaus für SR Topographie

Um das Winkelspektrum des Röntgenstrahls zwei-dimensional aufgelöst zu bestimmen, wird die Methode des *Analyzer-Based Imaging* angewandt. Dabei wird die Probe mit einem parallelen, monochromatischen Röntgenstrahl durchstrahlt und der transmittierte Strahl von einem Analysatorkristall gemäß des Bragg'schen Beugungsgesetzes in die Detektoreinheit reflektiert. Der Analysatorkristall wirkt dabei als winkelabhängiger Filter für die Röntgenstrahlung und reflektiert nur Röntgenstrahlung mit einer bestimmten Ausbreitungsrichtung. Abbildung 1 zeigt eine schematische Zeichnung des Messaufbaus.

Durch das Scannen verschiedener Winkelpositionen des Analysatorkristalls wird die so genannte *Rocking Curve* aufgenommen, welche das Winkelspektrum des Röntgenstrahls repräsentiert. Diese Filterung ist richtungsabhängig, da der Analysatorkristall die verschiedenen Ausbreitungsrichtungen der Röntgenstrahlung nur innerhalb seiner Streuebene diskriminiert.

Basierend auf der Methode der Röntgen-Refraktions-Topographie [8, 9] wird aus der *Rocking Curve* der Probe, sowie der des freien Strahls, der Refraktionswert berechnet. Dazu werden mit Hilfe eines Peakfits für jedes Detektorpixel (x', y') die Amplitude A und das Integral I beider *Rocking Curves* bestimmt. Der Refraktionswert C_m berechnet sich dann nach der Formel

$$C_m(x', y') = \frac{1}{d} \left(1 - \frac{A(x', y') \cdot I_0(x', y')}{A_0(x', y') \cdot I(x', y')} \right),$$

wobei d die Durchstrahlungslänge der Probe ist und der Index 0 den Wert des freien Strahls bezeichnet. Dieser Refraktionswert C_m steht in direktem Verhältnis zur spezifischen inneren Oberfläche der Probe. Um eine von der Durchstrahlungslänge d unabhängige Größe zu erhalten, wird der Quotient $C_m \cdot d / \mu_l \cdot d = C_m / \mu_l$ gebildet. μ_l ist eine Materialkonstante und bleibt während des Experiments unverändert, sodass C_m / μ_l ein direktes Maß für die spezifische innere Oberfläche ist. Da eine Kalibrierung der Messung ohne Referenzprobe mit bekannter spezifischer Oberfläche nicht möglich ist, wird in der Regel die relative Änderung von C_m / μ_l bezogen auf einen Anfangszustand der Probe analysiert.

2.3 Messdetails

Die *in-situ*-Untersuchungen wurden am Refraktions-Topographie-Messplatz der BAMline [10] am Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB) durchgeführt. Strahlenquelle ist ein 7 T Wellenlängenschieber, dessen emittierte polychromatische Röntgenstrahlung mittels eines Si(111)-Doppelkristallmonochromators (DCM) monochromatisiert ($\Delta E/E \approx 10^{-3}$) wurde. Für die Experimente betrug die gewählte Photonenergie $E = 22$ keV, sodass die Transmission der Proben bei ca. 32 % lag. Als Analysatorkristall wurde ebenfalls ein Si(111)-Kristall verwendet und die Detektoreinheit zur Bildaufnahme bestand aus einem CdWO₄ Szintillator, einem Makroskop und einer 2048 × 2048 Pixel CCD Kamera. Die resultierende nominelle Pixelgröße betrug 3,6 µm.

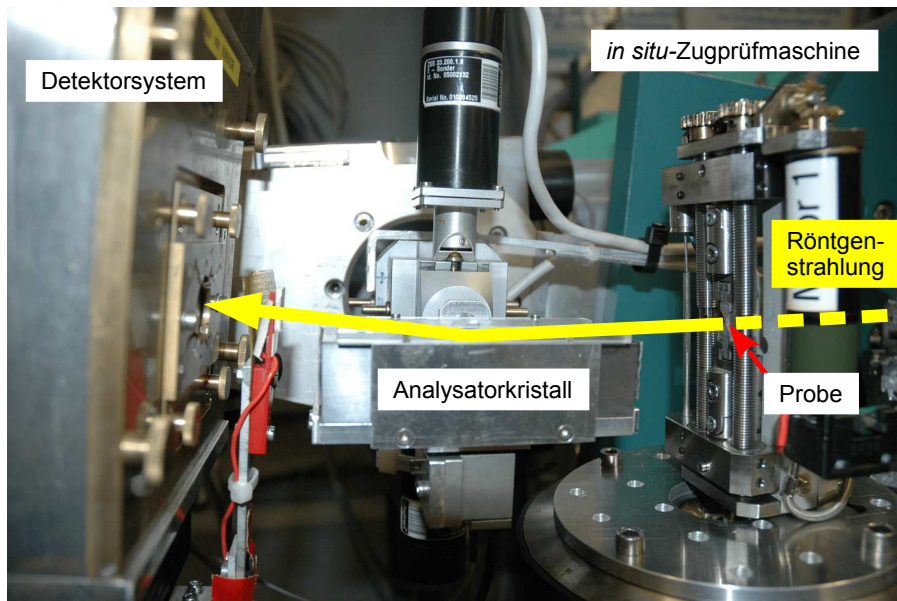


Abbildung 2 Refraktionsmessplatz der BAMline mit eingebauter *in-situ* Zugprüfmaschine und schematisch dargestelltem Strahlengang

Die Zugprüfmaschine wurde ursprünglich für *in-situ*-Zugversuche in Rasterelektronenmikroskopen konstruiert. Für den Einbau in den Refraktions-Messplatz der BAMline wurde diese modifiziert, sodass der Röntgenstrahl durch ein kreisförmiges Fenster in der Rückplatte hindurchtreten kann und die Zugprobe im Messbereich durchdringt. Des Weiteren wurde eine Halterung konstruiert um die Zugprüfmaschine auf dem Drehtisch des SR-Topographie Messplatzes zu fixieren. Ein Foto des Refraktions-Topographiemessplatzes an der BAMline mit eingebauter *in-situ*-Zugprüfmaschine ist in Abbildung 2 dargestellt.

Die *in-situ*-Zugversuche wurden dehnungskontrolliert durchgeführt und bei jeder Laststufe für die Dauer der Bilderfassung unterbrochen. Während dieser Zeit wurde die Dehnung der Probe konstant gehalten, wodurch es stets zu einem Abfall der Zugkraft aufgrund des Nachgebens der Probe kam. Die Zugversuche wurden des Weiteren bei einer Last von $650 \text{ N} < F < 780 \text{ N}$ abgebrochen, um ein Brechen der Probe zu vermeiden und so nachfolgende Untersuchungen, z.B. mit hochauflösender CT, zu ermöglichen. Zur Bestimmung des Refraktionswerts wurde bei jeder Laststufe eine *Rocking Curve* aus 41 Belichtungen aufgenommen. Zwischen den Belichtungen wurde der Analysator um ein Inkrement von $\Delta = 0,0002^\circ$ rotiert, sodass ein Bereich von $\pm 0,004^\circ$ um den Braggwinkel θ_B gescannt wurde.

3 Ergebnisse und Diskussion

In Abbildung 3 a) – c) sind die Refraktions-Topogramme (C_m / μ_l) jeweils den zugehörigen Radiographien ($\mu_l \cdot d$, Abbildung 3 d) – f)) exemplarisch für drei Laststufen – 20 N, 600 N und 675 N – gegenübergestellt. Im Anfangszustand (20 N) sind im Refraktions-Topogramm bereits lokal erhöhte Werte erkennbar. Diese sind zum einen eine Folge der zweiphasigen Struktur des Al/Al₂O₃-MMCs, hervorgerufen durch die Grenzflächen zwischen Al-Matrix und Al₂O₃-Verstärkung. Zum anderen existieren anfängliche Fehlstellen (Risse, Poren, Partikel / Matrix Enthftung), die ebenfalls ein Refraktionssignal erzeugen.

Unter einer Last von $F = 600 \text{ N}$ ist keine Veränderung von C_m / μ_l festzustellen, d.h. bis zu dieser Laststufe ist noch keine Schädigung im Material vorhanden. Erst bei der letzten Laststufe ist ein Anstieg von C_m / μ_l lokalisiert im Messbereich der Probe zu erkennen. Der Verlauf des Mittelwerts von C_m / μ_l im Messbereich als Funktion der aufgebrachten Last ist in Abbildung 4 dargestellt. Es zeigt sich, dass bis zu einer Last von $F = 620 \text{ N}$ der mittlere Refraktionswert im Vergleich zum Anfangszustand unverändert bleibt. Zwischen den letzten

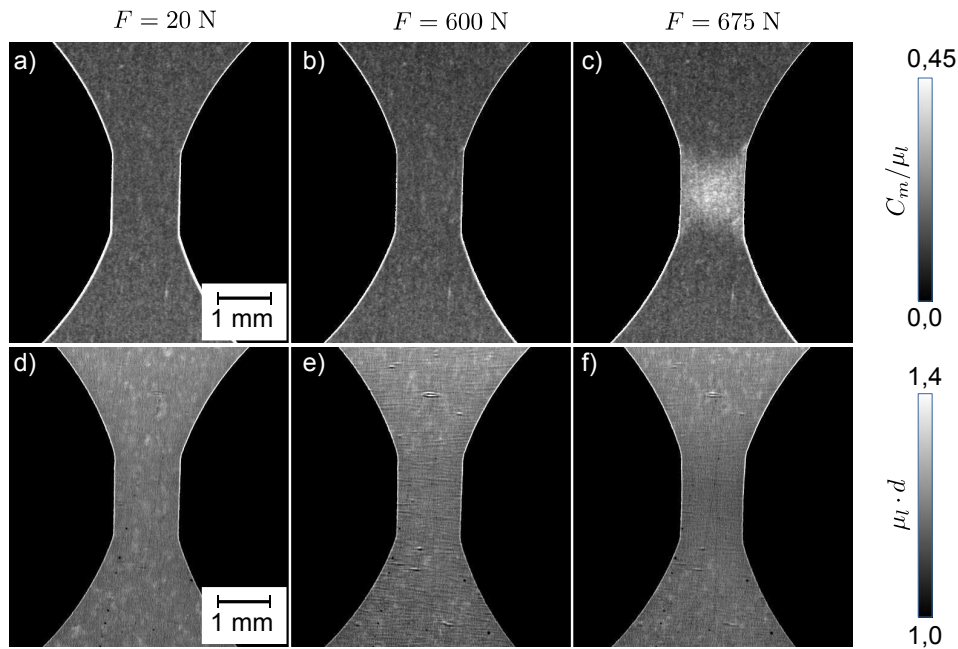


Abbildung 3 Gegenüberstellung der Refraktions Topogramme (oben) und der zugehörigen konventionellen Radiographien (unten) für den Anfangszustand bei 20 N, den Endzustand bei 675 N sowie eine Zwischenstufe bei 600 N

beiden Laststufen von $F = 620 \text{ N}$ und $F = 675 \text{ N}$ kommt es zu einem sprunghaften Anstieg des Refraktionswerts auf das Doppelte des Anfangszustands.

Die Radiographien in Abbildung 3 d) – f) weisen im Gegenzug keine Hinweise auf eine Schädigung des Materials auf. Die erkennbaren horizontalen Streifen in Abbildung 3 e) und f) sind Artefakte des Monochromators, die nicht vollständig korrigiert werden konnten. In Abbildung 3 f) ist außerdem ein leichter Abfall des Mittelwerts von $\mu_l \cdot d$ im Messbereich von $\mu_l \cdot d = 1,17$ auf $\mu_l \cdot d = 1,15$ zu erkennen. Die Größe ist allerdings von der Dicke der Probe abhängig, sodass diese Veränderung wahrscheinlich auf die Querkontraktion bei der Verformung zurückzuführen ist.

Die Schädigung in Abbildung 3 c) ist erkennbar nicht in Rissen lokalisiert, sondern diffus über den gesamten Messbereich verteilt. Außerdem bleibt die im Anfangszustand vorhandene innere Struktur weitgehend erhalten und die Erhöhung des Refraktionswerts ist besonders stark an Stellen, die bereits zuvor erhöhte Werte zeigten. Bei diesen Stellen handelt es sich mit großer Wahrscheinlichkeit um Al_2O_3 -Partikel. Daraus lässt sich schließen, dass die Schädigung hauptsächlich im Bereich dieser Al_2O_3 -Partikel stattfindet und somit der be-

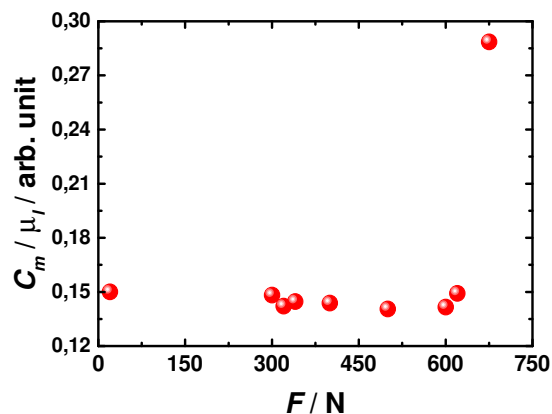


Abbildung 4 Mittelwert des Refraktionswert C_m/μ_l im Messbereich der Probe als Funktion der angelegten Zugkraft F

vorzuzugte Schädigungsmechanismus das Brechen der Verstärkungspartikel und/oder die Enthaftung von Matrix und Partikel ist. In nachfolgenden Untersuchungen mittels hochauflösender CT und Synchrotron-Refraktions-CT konnte diese Einschätzung bestätigt werden.

4 Zusammenfassung

Die SR-Topographie mit *in-situ*-Zugbelastung wurde erfolgreich angewandt um die durch mechanische Last hervorgerufene Schadensentwicklung in einem Al / Al₂O₃-MMC zu untersuchen. Aufgrund der hohen Sensitivität der SR-Topographie bezüglich der Grenzflächen im Material eignet sich diese Methode besonders zur Detektion von Defekten, wie Mikrorissen und -poren, sowie Partikel/Matrix-Enthftung, die kleiner sind als die Ortsauflösung des bildgebenden Systems. Somit war es möglich eine Beschädigung des Materials früher zu erkennen als in einer vergleichbaren herkömmlichen Radiographie und die Entwicklung der Schadensverteilung lateral aufgelöst zu beobachten. Dies ermöglicht zum einen die Lokalisierung der Riss- bzw. Porenentstehung und zu anderen die Auswahl geeigneter Belastungsstufen und Probenausschnitte für weitergehende Untersuchungen. Somit ist die *in-situ*-SR-Topographie komplementär zu anderen Verfahren mit höherer Ortsauflösung.

Referenzen

- [1] J. Y. Buffière, H. Proudhon, E. Ferrie, W. Ludwig, E. Maire, and P. Cloetens, "Three dimensional imaging of damage in structural materials using high resolution micro-tomography," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 238, no. 1–4, pp. 75-82, 8// 2005.
- [2] T. W. Clyne and P. J. Withers, *An Introduction to Metal Matrix Composites* (Cambridge Solid State Science Series). Cambridge: Cambridge University Press, 1993.
- [3] E. Soppa, G. Fischer, Seidenfuß, M., R. Lammert, G. Wackenhut, and H. Diem, "Deformation and damage in Al based composites. FE simulations and experiments," in *Aluminium Alloys, Their Physical and Mechanical Properties*, vol. 2, J. Hirsch, B. Skrotzki, and G. Gottstein, Eds.: Wiley-VCH, 2008, pp. 1225-1231.
- [4] B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, "X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E = 50-30,000 eV, Z = 1-92," *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, vol. 54, no. 2, pp. 181-342, 1993.
- [5] V. V. Lider and M. V. Kovalchuk, "X-ray phase-contrast methods," (in English), *Crystallography Reports*, Review vol. 58, no. 6, pp. 769-787, Nov 2013.
- [6] D. Chapman *et al.*, "Diffraction enhanced x-ray imaging," (in English), *Physics in Medicine and Biology*, Article vol. 42, no. 11, pp. 2015-2025, Nov 1997.
- [7] B. R. Müller and M. P. Hentschel, "Synchrotron radiation refraction topography for characterization of lightweight materials," *X-Ray Spectrometry*, vol. 33, no. 6, pp. 402-406, 2004.
- [8] M. Hentschel, D. Ekenhorst, K.-W. Harbich, A. Lange, and J. Schors, "New X-Ray Refractography for Nondestructive Evaluation of Advanced Materials," in *Nondestructive Characterization of Materials VIII*, R. Green, Jr., Ed.: Springer US, 1998, pp. 409-416.
- [9] F. E. Fensch-Kleemann, B. R. Müller, K.-W. Harbich, and M. P. Hentschel, "Gefügeanalyse keramischer Werkstoffe mittels Röntgen-Refraktion," in *Technische Keramische Werkstoffe*; Fachverlag Deutscher Wirtschaftsdienst GmbH & Co. KG: Prof. Dr. Jochen Kriegesmann; Deutsche Keramische Gesellschaft, 2002.
- [10] A. Rack *et al.*, "High resolution synchrotron-based radiography and tomography using hard X-rays at the BAMline (BESSY II)," (in english), *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A*, Journal vol. 586, no. 2, pp. 327-344, 2008.