

Metal Structures

in
4D

RISØ

3D Røntgen Mikroskopet

S. Schmidt, H.F. Poulsen, D. Juul Jensen

Grundforskningscenter: Metalstrukturer i Fire Dimensioner

Afdelingen for Materialeforskning

Forskningscenter Risø

Abstract

The 3D X-Ray Diffraction (3DXRD) microscope developed at Risø and implemented at the European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) in Grenoble opens up the possibility of non-destructive local studies in the bulk of materials. The microscope provides a complete description of position, volume, strain and crystallographic orientation of individual grains. The microscope takes data fast enough to resolve small changes in structures during processing. A description of the microscope will be given along with examples from data analysis.

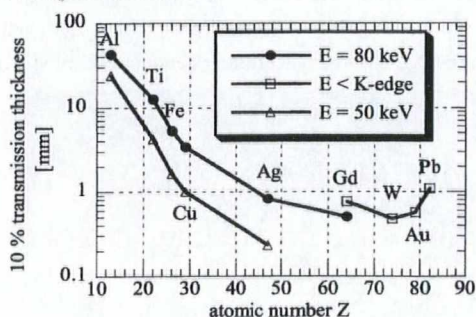
Med 3D røntgen (3DXRD) mikroskopet ved European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) i Grenoble er det muligt ikke destruktivt at måle den lokale struktur i det indre af materialer. Mikroskopet, som er udviklet på Risø, kan give en komplet karakterisering af position, volumen, tøjning samt krystallografisk orientering af de individuelle korn. Dette kan gøres tilstrækkelig hurtigt til at strukturændringer kan følges under processering. Denne artikel giver en beskrivelse af mikroskopet samt eksempler fra dataanalysen.

1. Motivation

Metaller har været studeret og anvendt i mere end 3000 år. Alligevel er der stadig mange ubesvarede spørgsmål knyttet til forståelsen af de mekanismer, som dominerer i det indre af metaller. Disse mekanismer bestemmer strukturudviklingen i mikrometer-længdeskalaen. På denne længdeskala har hidtidige studier været begrænset ved, at de traditionelle måleteknikker – såsom elektron mikroskopi – kun har været anvendelige til overflademålinger. Ved at skære prøver op og måle på de indre overflader, har det alligevel været muligt at få indsigt i de indre strukturer. Eksempelvis har rekrySTALLISATION, dvs. studiet af dannelse og vækst af nye korn¹, som typisk sker under varmebehandling af deformerede metaller, succesfuldt benyttet denne metode. Metoden er imidlertid begrænset ved, at det ikke er muligt at følge væksten af det enkelte korn under processen. I stedet benyttes et sæt af prøver, som varmebehandles i forskellige tidsrum. Derved opnås til hvert tidspunkt kornenes middelstørrelse, hvorved *middelvæksten* kan måles (D. Juul Jensen 1997).

Generelt må det antages, at der er stor forskel på de mekanismer, som dominerer på overfladen og i det indre af materialer. Eksempelvis er der ingen normalspændinger på overfladen af et materiale. På basis af overflademålinger alene er det derfor ikke muligt at følge deformationen af de enkelte korn, som opstår under et deformationsforløb af hele prøven. Også for kornvækst er overfladebetingelserne forskellige. En teknik, som kan foretage ikke-destruktive krystallografiske målinger i det indre af et materiale, vil derfor kunne bane vejen for studier af de enkelte korn under varmebehandling eller deformation af prøven, og dermed give indsigt i de grundlæggende mekanismer.

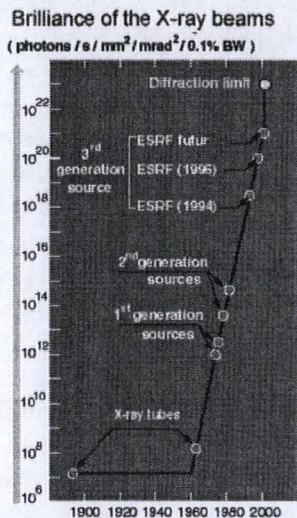
En sådan teknik er netop blevet etableret.



Figur 1: Røntgenstrålings gennemtrængningsevne.

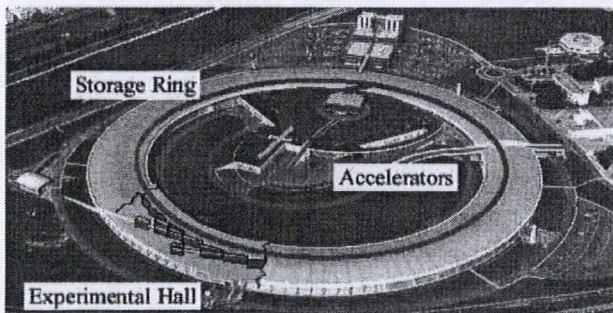
¹ Et korn er et område i metallet, hvor metallets atomer sidder i formation givet ved et krystalgitter. Retningen af dette krystalgitter kaldes kornets krystallografiske orientering.

Teknikken, som bygger på klassisk Bragg diffraktion, gør brug af en stråle af partikler som har: 1) god gennemtrængningsevne i de fleste materialer, og 2) høj intensitet,



Figur 2: Udviklingen i brilliansen af røntgenstrålingskilder. (Fra ESRFs Hjemmeside)

så små strukturelementer kan ses. Hvor neutronstråling opfylder det første kriterium, er intensiteten på de eksisterende kilder imidlertid så lav, at kun strukturer af størrelsesorden millimeter kan registreres. Derimod egner hård røntgenstråling, dvs. fotoner med høj energi, sig langt bedre til formålet. Dette er illustreret i Figur 1 og 2. Figur 1 angiver gennemtrængningsevnen for røntgenstråling i forskellige grundstoffer ved forskellige energier. Disse værdier er sammenlignelige med neutroners gennemtrængningsevne. Figur 2



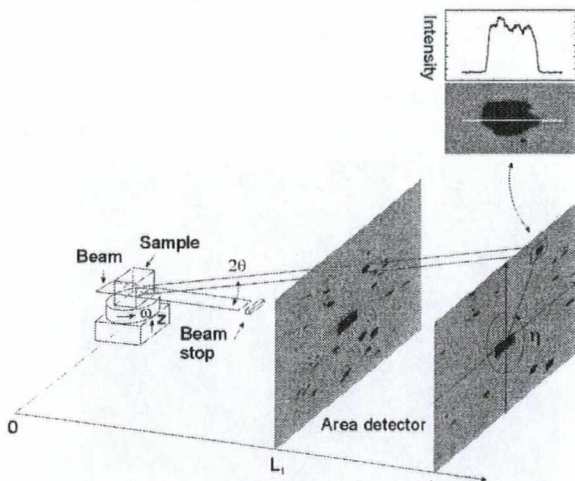
Figur 3: European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) i Grenoble. (Fra ESRFs hjemmeside)

viser udviklingen af brilliancen, et mål for intensiteten, ved hårde røntgenkilder. European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) i Grenoble, se Figur 3, er en såkaldt 3. generations synkrotronkilde, der leverer intensitet nok til formålet.

Ved ESRF skabes den hårde røntgenstråling ved, at elektroner slynges rundt i en cirkulær bane med en hastighed, som ligger tæt på lysets hastighed. Omkredsen af ringen er ca. en kilometer. Der er i alt 32 udtag af synkrotronstråling til eksperimenter langs ringen.

2. Instrumentet

Tre Dimensional Røntgen Diffraction (3DXRD) mikroskopi (Poulsen *et al.* 1997) er betegnelsen for en ny teknik til hurtig og ikke-destruktiv karakterisering af den lokale struktur i det indre af materialer. Afhængig af formålet kan mikroskopet anvendes til enten at karakterisere strukturer af et enkeltkorn, eller gennemsnittet over et delvolumen af prøven med et antal korn. Princippet for undersøgelser af et enkelt korn er angivet i figur 4.



Figur 4: Princippet i 3DXRD mikroskopet

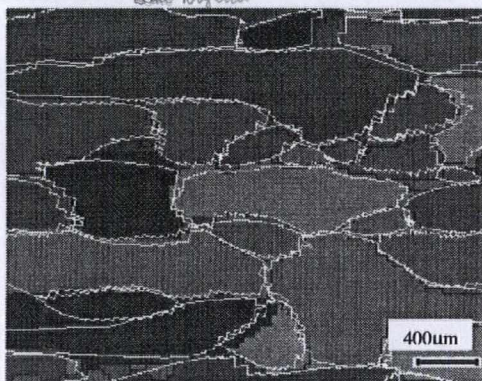
Den indkomne stråling, som går fra venstre mod højre i billedet, er her fokuseret i en linie. Den trænger igennem hele prøven og afdækker derved et lag. For de korn, hvor Bragg kriteriet er opfyldt, spredes stråler på en måde som afspejler kornenes form i dette lag. En projektion af kornenes tværsnit kan derfor måles ved at indsætte en 2D detektor et stykke efter prøven. Ved yderligere at måle disse tværsnit i forskellige afstande af prøven, kan

kornets position i det afdækkede lag bestemmes vha. lineær interpolation. Denne metode går under navnet *Tracking* (Poulsen et al. 2001, Lauridsen *et al.* 2001).

Generelt er det kun en lille del af kornene som opfylder Bragg kriteriet for en given position af prøven i forhold til den indkomne stråling. For at sikre, at alle korn bringes til at sprede (Bragg diffraktion), roteres prøven omkring sin egen akse i små step. Spores alle tværsnit tilbage til prøvelaget vha. Tracking princippet, fremkommer et komplet kort over kornenes udstrækning (H.F. Poulsen et al. 2001). Figur 5 viser et eksempel på dette.

Under rotationen af prøven opfylder det enkelte korn Bragg kriteriet flere gange. Ved at sammensætte disse reflekser kan kornets krystallografiske orientering beregnes. Ved yderligere at kombinere sæt af rekonstruerede lag, kan et komplet 3D kort over prøvens kornsammensætning frembringes. Heraf navnet på mikroskopet.

Som nævnt tidligere anvender mikroskopet hård røntgenstråling (med energi på 50 –100 keV), som kan gennemtrænge prøver med tykkelse på op til flere centimeter. Synkrotronstråling ved disse energier har yderligere den egenskab, at fotonerne ikke spreder i luft, hvorved en besværlig forsøgsopstilling i vakuum undgås. Synkrotronstrålingen, som leveres af ESRF-ringen, er såkaldt hvid stråling. Dette betyder, at fotonerne har en bred energifordeling. Ved at indsætte en siliciumenkrystal afbøjes de fotoner, der har den ønskede

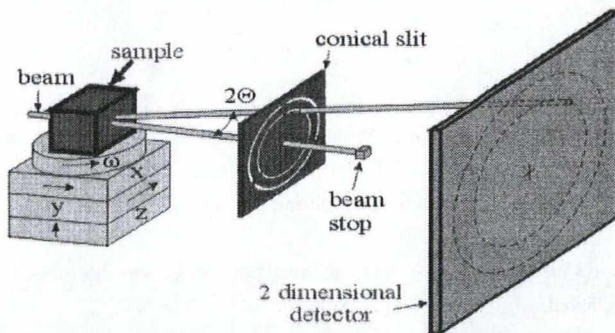


Figur 5: Et kort over kornene i en overflade (H.F. Poulsen et al. 2001). De hvide linier er 3DXRD resultatet. De underliggende farver stammer fra elektron mikroskopi (Electron Back Scattering Pattern). Skalaen er 400 mikrometer.

Energi. Herved opnås monokromatisk stråling. Siliciumkrystallen fokuserer ligeledes strålingen vertikalt, hvorved intensiteten øges. Dette betyder, at stråling på 1-200 mikrometer (vertikalt) x 1000 mikrometer (horisontalt) kan frembringes. Instrumentet har desuden et

slitsystem, som kan skære halerne af den indkomne stråling eller direkte formindske tværsnittet. Dette giver naturligvis en reduktion i intensitet. Ønskes en yderligere forøgelse af intensiteten samt afgrænsning af tværsnittet, kan strålingen også fokuseres horisontalt. Dertil benyttes et multilag. Benyttes fokusering i begge retninger, kan en smal stråling med et tværsnit på 1×5 mikrometer² opnås. Valget af strålingens udformning afhænger selvsagt af eksperimentets art. Hvor en bred flad stråling er velegnet til kortlægning af korn, jvf. Figur 5, er en smal stråling optimal ved studiet af f.eks. korndeformation.

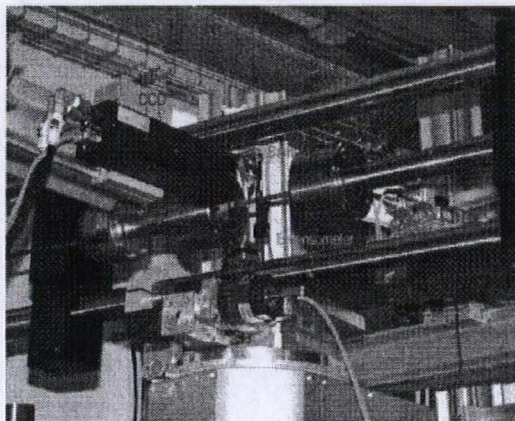
Ved deformation af prøven bliver Bragg reflekserne udbredt over et (langt) større område på detektoren med den konsekvens, at reflekserne begynder at overlappe. Identifikation og rekonstruktion bliver derfor svær. For at studere det enkelte korns egenskaber afgrænses strålingens tværsnit til det mindst mulige. Sporets vej gennem prøven rammer dog typisk stadig mange underkorn/korn.



Figur 6: Den koniske slit, som anvendes til afgrænsning af måleområdet i prøven langs strålingens retning.

Ved yderligere at indsætte en konisk slit (S.F. Nielsen et al. 2000), se Figur 6, udvælges et lille afsnit langs sporet, dvs. et lille volumen med få korn eller underkorn.

Til deformation af prøver anvendes en 25 kN trækmaskine, som monteres direkte på rundbordet i mikroskopet, se Figur 7. Derved kan hele trækmaskinen samt prøve roteres i forhold til den indkomne stråling. Samme princip er gældende for ovne, som bl.a. anvendes til rekrySTALLISATIONSforsøg. Det er ligeledes muligt at placere en kryostat på mikroskopet, hvorved prøven kan afkøles til en temperatur på nogle få Kelvin.



Figur 7: Trækmaskinen, som anvendes til deformation af prøver.

Efter rundbordet og evt. en konisk slit sidder detektoren, se Figur 4 og 6. Valg af detektortype afhænger ligeledes af forsøgets art. Til kortlægning af korn ønskes en høj pixelopløsning, typisk 5 mikrometer. Til deformationsforsøg vælges derimod en mere røntgenfølsom detektor, som har en lavere pixelopløsning, typisk 125 mikrometer.

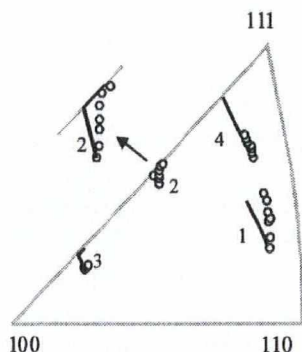
De bevægelige dele i mikroskopet er styret af mikrostep motorer, som har præcision på en mikrometers nøjagtighed.

3. Dataanalyse

Et detektorbillede fylder et par Mb. Under et helt forsøg, som typisk varer 1-5 dage, lagres 10-100 Gb data. Det stiller store krav til dataanalysen. Målet er at lave dataanalyse online, dvs. mens data tages. For visse typer eksperimenter er dette allerede muligt, eksempelvis ved deformationsforsøg.

4. Nogle eksempler

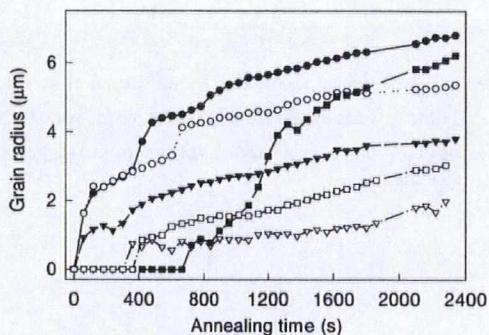
Der er mange anvendelsesmuligheder af mikroskopet, hvoraf tre vil blive givet i det følgende. I de to første eksempler studeres dynamikken af de enkelte kom, som ligger i det indre af metallet, under et procesforløb. I det tredje vises hvordan mikroskopet kan anvendes til kortlægning af residual spændinger i 3D.



Figur 8: Dynamikken af 4 korn i det indre af en aluminiumsprøve, som undergår deformation fra 0 til 11% (L. Margulies et al. 2001)

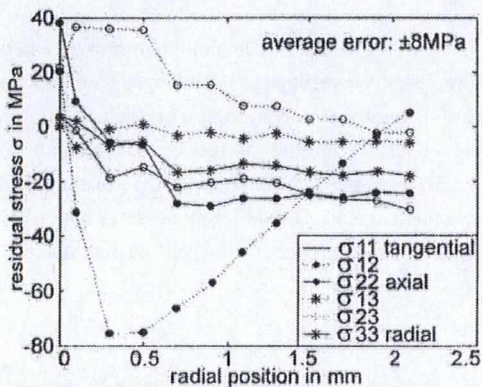
I Figur 8 viser de åbne cirkler forløbet af 4 korn i en aluminiumsprøve, som bliver forlænget med op til 11% af den oprindelige prøvelængde. Til forsøget blev trækmaskinen og den konisk slit anvendt. Et punkt i den polfiguren svarer til en krystallografisk orientering. Heraf ses det, at kornene *roterer* under forlængelse af prøven. De optrukne linier viser det forventede forløb ifølge en klassisk teoretisk beskrivelse af deformation (Taylor 1938). Den manglende overensstemmelse mellem teori og data viser, at der er brug for nye modeller til beskrivelse af de mekanismer, som dominerer på kornniveau ved deformation.

I Figur 9 (Lauridsen *et al.* 2000) vises væksten af 6 korn under rekrySTALLISATION af en deformeret aluminiumsprøve, som under forsøget er opvarmet til 270 °C. Radius af kornene er vist som funktion af tiden. Dette viser, at hvert korn vokser med sin egen kinetik og ikke med konstant vækst. Dette er endnu ikke inkluderet i nogen rekrySTALLISATION modeller.



Figur 9: Vækstforløb af 6 korn i Aluminium (Lauridsen *et al.* 2000).

Det sidste eksempel relaterer til kortlægning af residual spændinger i et $AlMg_3$ emne, med form som en cylinder. Alle 6 komposanter af spændingstensoren blev målt som funktion af radius under et torsionsforsøg. Resultatet for et udvalgt deformationstrin er vist i Figur 10. I dette tilfælde er der for hvert punkt midlet over tusindvis af korn, så resultatet er direkte sammenligneligt med kontinuumsmodeller, såsom Finite-Element beregninger. Den rumlige opløsning er 200 mikrometer.



Figur 10: Spændingskomposanter som funktion af radius i en cylinderformet prøve (Martins *et al.* 2000).

5. Afrunding

3DXRD mikroskopet er en af hjørnestenene i det nye grundforskningscenter: Metalstrukturer i fire dimensioner, [som er finansieret af Danmarks Grundforskningsfond.] Mikroskopets anvendelsesmuligheder er mangfoldige og stadig voksende.

Mikroskopet er allerede etableret som en anerkendt teknik. Hvert år søger ca. 20 internationale grupper om tid på mikroskopet. Ønskes tid på mikroskopet, kan en ansøgning indsendes til ESRF. For mere information, se ESRFs hjemmeside, www.esrf.fr eller Synkrotrongruppens hjemmeside, www.risoe.dk/afm/synch.

Referencer

Juul Jensen, D. (1997), Risø-R-978 (EN).

Lauridsen, E.M., Juul Jensen, D., Poulsen, H.F. & Lienert U. (2000). *Scripta Mater.* **43**, 561-566.

Lauridsen, E.M., Schmidt, S., Suter, R.M. & Poulsen, H.F. (2001). *J. Appl. Cryst.* **34**, 6, 744-750.

Lienert, U., Poulsen, H.F. & Kvik, Å. (1999). *Proceedings of the 40th Conference of AIAA on Structures, Structural Dynamics and Materials*, St. Louis (USA), 2067-2075.

Margulies, L., Winther, G. & Poulsen, H.F. (2001). *Science*. **291**, 2392-2394.

R. V. Martins *et al.* Proc of ICRS-6 Oxford (UK) July 2000, 90-97

Nielsen, S.F., Wolf, A., Poulsen, H.F., Ohler, M., Lienert, U. & Owen, R.A. (2000). *J. Synchrotron Rad.* **7**, 103-109.

Poulsen, H.F., Nielsen, S.F., Lauridsen, E.M., Schmidt, S., Suter, R.M., Lienert, U., Margulies, L., Lorentzen, T., & Juul Jensen, D. (2001). *J. Appl. Cryst.* **34**, 6, 751-756.

Poulsen, H.F., Garbe, S., Lorentzen, T., Juul Jensen, D., Poulsen, F.W., Andersen, N.H., Frello, T., Feidenhans'l, R. & Graafsma H. (1997). *J. Synchrotron Rad.* **4**, 147-154.

Taylor, G.I. (1938) *J.Inst Met.* **62**, 307