

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

März 1969

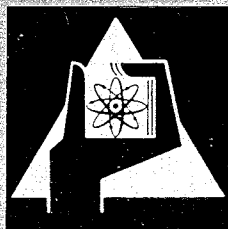
KFK 845

Institut für Material- und Festkörperforschung

Bildanalyse mit dem Quantimet

zusammengestellt von

G. Ondracek



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

April 1969

KFK 845

Institut für Material- und Festkörperforschung

Bildanalyse mit dem Quantimet

zusammengestellt von

Gerhard Ondracek

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis

1. Einführung
2. G.Durcansky, W.Schmatz: "Verwendung des Quantimeters zur automatischen Auszählung von Neutronenspuren auf Fotoplatten"
3. E.Grethen, L.Philippe: "Zur Bestimmung der Gehalte an nichtmetallischen Einschlüssen in Massenstählen mit dem Quantimet"
4. K.Hinrichsen: "Anwendung des Quantimeters zur Auswertung von Autoradiogrammen"
5. A.Jesse: "Zur quantitativen Schliffpräparation und quantitativen Gefügeanalyse von Cermets"
6. A.Jesse, G.Ondracek: "Stereometrische Gefügeanalyse mit Universal-Mikroskop und Quantimet"
7. M.Mertz: "Anpassung von Mikroskopen unterschiedlicher Bauart an das Quantimet"
8. D.Schreiber, H.Ziehm: "Vergleich der Aussagen der Diergartenrichtreihe für Automatenstähle mit den Ergebnissen des QTM und Gegenüberstellung von Schliffauswertungen nach beiden Verfahren"

Einführung

Das Quantimet ist ein Gerät, mit dessen Hilfe gesuchte Merkmale in Bildern quantitativ nach Fläche, Grösse oder Anzahl erfasst werden können. Denkt man an ein Beispiel aus der Kerntechnik, so können diese "Merkmale" etwa Poren in bestrahlten und nichtbestrahlten Werkstoffen oder "Hot-spots" in Form von Spaltstoffagglomeraten in Dispersionsbrennstoffen sein. Da Bilder in der verschiedensten Weise gewonnen werden können und in den unterschiedlichsten Forschungsgebieten verwendet werden, gibt es prinzipiell viele Einsatzmöglichkeiten für das Quantimet. Über Erfahrungen auf verschiedenen Gebieten mit diesem Gerät wurde daher 1968 auf dem Quantimetkolloquium in Frankfurt, der Sitzung des Wissenschaftlichen Ausschusses der Deutschen Keramischen Gesellschaft in Würzburg und der Metallographietagung der Deutschen Gesellschaft für Metallkunde in Giessen vorgetragen. Aus den Titeln der in diesem Bericht zusammengefassten Vorträge ergibt sich bereits die Vielfalt der Verwendungsmöglichkeiten: Neutronenspuren auf Fotoplatten (Beitrag 2) sind ebenso Untersuchungsobjekt wie Autoradiogramme (Beitrag 4) oder Schliffbilder von Metallen (Beitrag 3, 8) und keramischen Werkstoffen (Beitrag 5, 6). Natürlich sind daher die Bildaufnahmeeinheiten am Gerät verschieden. So kann es sich beispielsweise um ein Epidiaskop oder ein Mikroskop handeln, welches das Bild an den Monitor vermittelt. Über den grundsätzlichen Aufbau und die Funktion des Gerätes wird im ersten Teil des Beitrages 6 berichtet. Und in eben diesem konstruktiven Aufbau liegt auch eine erste Schwäche der Originalausführung des Quantimets: Epidiaskop und Mikroskop sind nicht durch eine entsprechende Schaltung getrennt einsetzbar, sondern müssen manuell ausgewechselt werden. Diese für hochqualifizierte optische Geräte recht strapaziöse Prozedur hat zu erfolgreichen Versuchen geführt, andere Anordnungen zu finden. Sie sind beispielsweise in den Beiträgen 6 und 7 beschrieben. Aber auch andere Schwierig-

keiten sollen nicht verschwiegen werden: So müsste beispielsweise die so wichtige gleichmässige Ausleuchtung des Meßbereichs verbessert werden können und die Intervallbreite beim Zählen der Merkmale ist nicht befriedigend. Freilich entbinden solche Feststellungen nicht von der für jedes Problem erneut notwendigen Überlegung, ob das Versuchsziel nicht bereits ausserhalb der Leistungsgrenze des Gerätes liegt. Sie ist vor allen Dingen gegeben durch die Forderung eines genügenden Kontrastes zwischen dem zu messenden Merkmal und seiner Umgebung. Hier ist es weit weniger das Quantimet als vielmehr die Probenpräparation, die die Messgenauigkeit beeinträchtigen.

So soll dieser zusammenfassende Bericht einmal dem Konstrukteur und Hersteller zeigen, wo der Messende Mängel feststellt. Er soll zum anderen dem Quantimetbenutzer und demjenigen, der ^{noch} es/nicht besitzt, die vielen genutzten -und noch ungenutzten- Möglichkeiten angeben, bei denen dieses hochwertige Gerät erfolgreich eingesetzt werden kann. Die mitgeteilten Messergebnisse ermöglichen es dem Leser selbst, zu erkennen, dass das Quantimet seinen festen Platz unter den automatischen Geräten zur Bildanalyse gefunden hat.

Gerhard Ondracek

Verwendung des Quantimeters zur automatischen Auszählung
von Neutronenspuren auf Fotoplatten ⁺)

von
G. Durcansky und W. Schmatz

Institut für Festkörper- und Neutronenphysik
Kernforschungsanlage Jülich

Zusammenfassung

Durch Neutronen induzierte Lichtblitze werden Schwärzungseffekte auf Fotoplatten erzeugt. Diese Platten können im Quantimeter ausgewertet werden. Auf diese Weise werden Neutronenspuren quantitativ und vollautomatisch erfasst.

Messvorgang und Auswertung

Unter den vielfachen Möglichkeiten für die Anwendung des Quantimeters soll im folgenden diejenige zur automatischen Auswertung von anisotropen Kleinwinkelstreueffekten langsamer Neutronen auf Fotoplatten beschrieben werden.

Nach ERNST [1] kann man bereits einzelne Neutronen nachweisen, wenn man in einem lichtdichten Gehäuse eine Fotoplatte fest auf einen durchsichtigen Beutel anpresst, die mit einem Pulvergemisch aus Li^6F und $\text{ZnS}(\text{Ag})$ gefüllt ist. Die eintretenden Neutronen fliegen durch die Fotoplatte auf den Beutel und werden vom Li^6 eingefangen. Dabei werden α - und t -Teilchen frei, die im $\text{ZnS}(\text{Ag})$ Lichtblitze erzeugen, die auf der Fotoplatte als kleine Schwärzungsscheibchen (0,05..0,2 mm \varnothing) sichtbar werden. Derart mit Neutronen belichtete Fotoplatten werden mit Hilfe des Quantimeters vollautomatisch quantitativ ausgewertet.

Im Quantimeter wird das 1:1 Objektiv verwendet und jeweils ein Bildausschnitt von ca. 1 mm² mit Durchlicht abgetastet. Es wird das normale Zählverfahren verwendet, bei dem am Ausgang des Quantimeters für jedes diskriminierte Schwärzungsscheibchen ein Impuls

⁺) Vorgetragen im Quantimeter-Kolloquium in Frankfurt (Main)
(8. - 10.5.1968).

erscheint [2]. Diese Impulse werden in einem Zähler über mehrere Bilddurchläufe aufaddiert und der Zählerinhalt wird auf einen Lochstreifen ausgedruckt. Ist der Zählvorgang beendet, so wird die Fotoplatte mit Hilfe eines Kreuztisches und eines Schrittmotors zum nächsten Bildausschnitt verschoben. Der ganze Vorgang wiederholt sich, bis die gesamte Fotoplatte mäanderförmig abgetastet ist. Für eine 9x12 cm grosse Fotoplatte beträgt die Zählzeit etwa 2 1/2 Std. Die Information auf dem Lochstreifen wird in einer Rechenanlage ausgewertet.

Die Abb.2 gibt die gezählte Punktzahl als Funktion der Schwelleneinstellung für Fotoplatten verschiedener Punktdichte wieder (Nachweiswahrscheinlichkeit ca. 30% für 8 Å-Neutronen, ca. 3% für 1 Å-Neutronen). Die Schwelle lässt sich nicht beliebig niedrig einstellen, da dabei der Untergrundschleier mitgezählt wird. Für eine Einstellung von 480 liegt der Untergrund bei ca. 0,05 Pkt/mm². Da diese Technik bei etwa 1..20 Pkt/mm² verwendet wird, ist ein gutes Effekt-zu-Untergrund-Verhältnis gegeben.

Das Quantimet arbeitet nach einer Einlaufzeit von ca. 2 Std. in einem klimatisierten Raum ($\pm 1,5^{\circ}\text{C}$) mit einer Genauigkeit von 0,3%, wenn man das Gerät stets auf demselben Bildausschnitt belässt. Misst man die Punktzahl desselben Ausschnittes nur während eines Bilddurchlaufs, so kann die Zahl etwas schwanken, wenn die Helligkeit einiger Punkte gerade die diskriminierende Helligkeitsgrenze erreicht. Dann werden die Punkte einmal gezählt und einmal nicht, je nachdem wie sich das Rauschen des Vidicons der Information überlagert. Bei einer Punktdichte von 10 Pkt/mm² beträgt diese Abweichung im Mittel $\pm 0,3\%$ bei 100 Bilddurchläufen, $\pm 0,4\%$ bei 40 und $\pm 0,8\%$ bei 10 Bilddurchläufen. Schwierigkeiten bereitet beim Quantimet die Auswertung grösserer Bildausschnitte als 1 mm².

Das liegt an einer für denselben Punkt sich örtlich ändernden Diskriminatorschwelle. Dies hat zwei Gründe: eine nicht

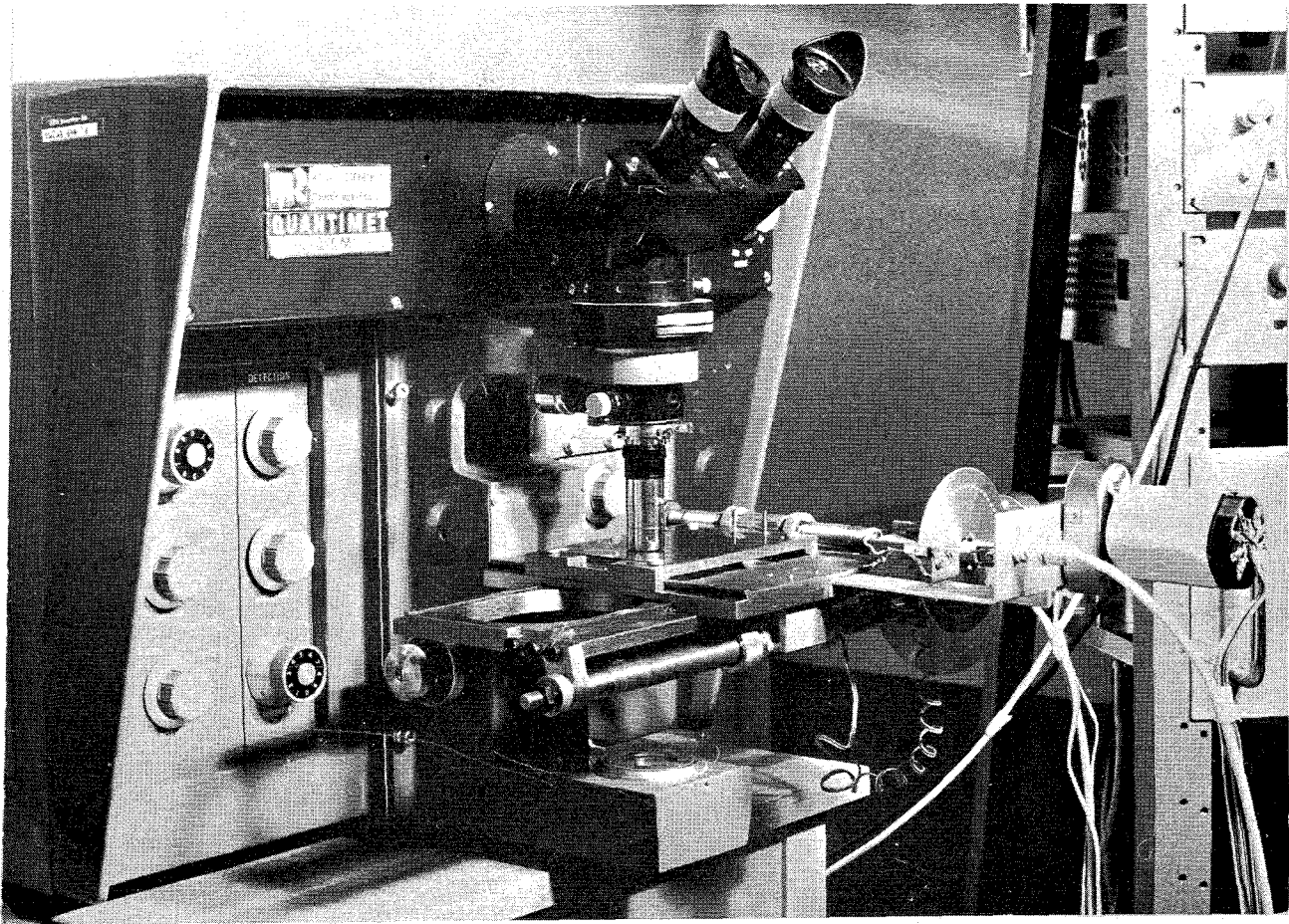


Abb.1: Quantimet mit Kreuztisch

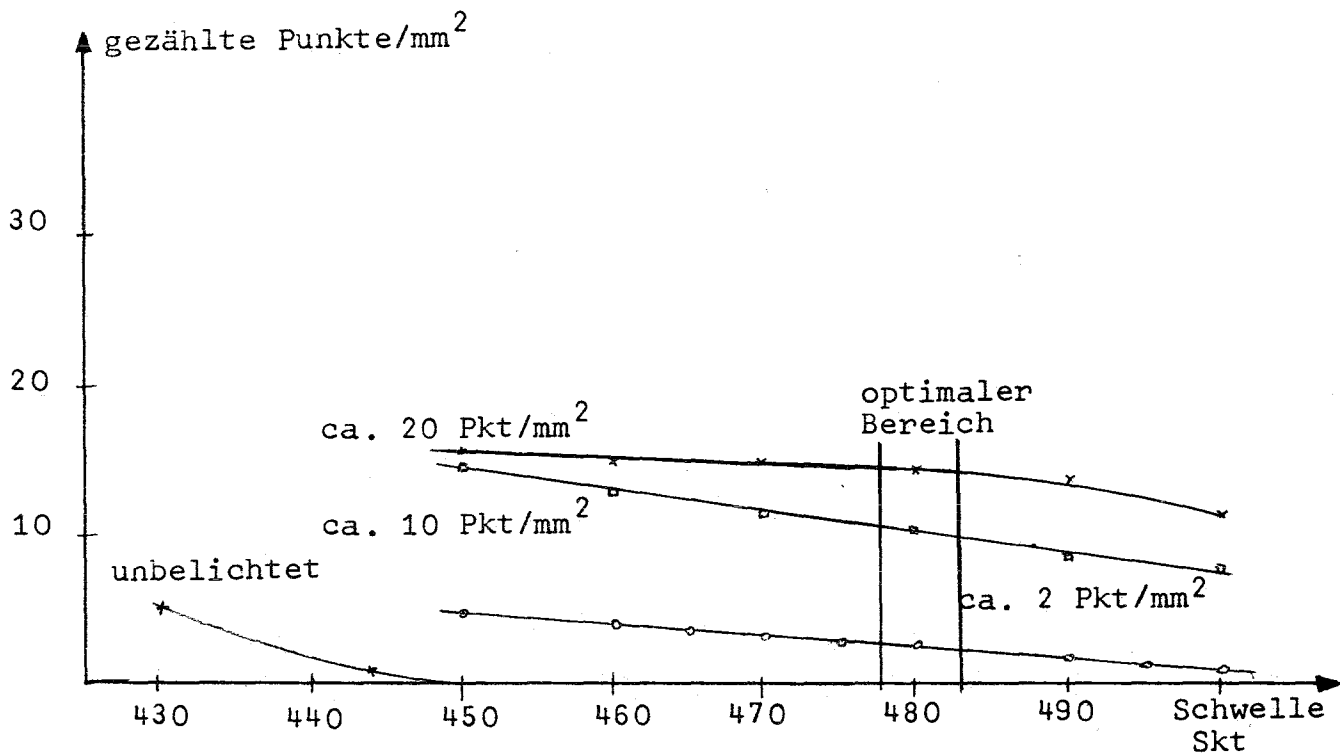


Abb.2: Testauswertung von Kodak O-O- Fotoplaten

genügend homogene Ausleuchtung des Bildausschnitts und eine nicht ausreichend homogene Empfindlichkeit des Vidicons. Der letzte Nachteil lässt sich z.T. beheben durch Aussuchen des Vidikons. An der Verbesserung der Ausleuchtung wird noch gearbeitet.

Literaturangaben:

- [1] Ernst,
Nukleonik H.1. S.29, 1967

- [2] Fischer, Cole
The Microscope, Vol. 16, Second quater,
S.81, 1968

Zur Bestimmung der Gehalte an nichtmetallischen Einschlüssen in Massenstählen mit dem Quantimet ⁺)

E. Grethen und L. Philippe

Centre National de Recherches Metallurgiques

Lüttich / Belgien

Zusammenfassung

Es wird über QTM-Messungen an Massenstählen berichtet, in denen nichtmetallische Einschlüsse zu erfassen waren. Die Fehler durch Quantimeteinstellungen werden ebenso diskutiert, wie die Probenpräparation. Schließlich werden die QTM-Ergebnisse mit denjenigen aus anderen Meßverfahren und theoretischen Abschätzungen verglichen, wo diese möglich waren.

1. Einleitung

Bei der Prüfung der Massenstähle auf ihren Gehalt an nichtmetallischen Einschlüssen begegnet man hauptsächlich folgenden vier Einschlusstypen:

- Mangansulfid
- Eisen- Mangan- Oxid
- Mangansilikate- und Aluminiumsilikate
- Tonerde und tonerdereiche Einschlüsse.

Wir haben bei unseren Untersuchungen diese Einschlusstypen in zwei Gruppen zusammengefasst, nämlich Sulfide und Oxide.

2. Schliffprobenvorbereitung

Nach mechanischem Naßschliff und Diamantpolitur ($0,25 \mu$) wurden die Proben, je nach Art der Messungen, einer Ätzbehandlung unterworfen:

Beim Bestimmen des Gesamteinschlussgehaltes, d.h. des prozentualen Flächenanteils (Oxide + Sulfide) bestand die Hauptschwierigkeit in einer mangelhaften Detektion der Sulfidein-

⁺) Vorgetragen im Quantimetkolloquium in Frankfurt (Main)
(8. - 10.5.1968)

schlüsse, und zwar besonders bei sehr feinen Sulfiden. Von Vorteil erwies sich hierbei eine Chromsäureätzung, welche eine Schwärzung der Sulfide und damit im Detektorkreis ein besseres Aufsuchen bewirkt. Abbildung 1 zeigt den Einfluss der Ätzdauer auf das Messergebnis. Aufgrund der Kurve legten wir uns auf eine Ätzdauer von 4 bis 5 Minuten fest.

Die Abbildung 2 zeigt den Flächenanteil an Sulfiden, welcher theoretisch dem analytisch bestimmten Schwefelgehalt entspricht. Die nach dem Ätzen ermittelten Sulfidflächenprozent stimmen besser mit der theoretischen Beziehung überein, als die vor dem Ätzen gemessenen.

Um die Flächenprozent für die Oxideinschlüsse getrennt zu erhalten, benützen wir entweder Whiteley's Silbernitratlösung (J.I.S.I., December 1948, S.365/67) oder die weniger bekannte Ätzung nach E.Béraha (J.I.S.I., August 1964, S.696/98) (s. Abb. 3); deren Wirkungsweise besteht im Niederschlag eines Schwermetall-sulfidfilmes, und zwar bevorzugt auf den Sulfideinschlüssen, wobei diese weisser gemacht werden und nach einer gut geführten Reaktion in einer etwas gedunkelten Matrix verschwinden oder sogar heller als diese erscheinen.

Der Sulfidgehalt ergibt sich aus der Differenz Gesamtflächenanteil - Oxidflächenanteil. Es wäre jedoch interessant über eine Ätzung zur Direktbestimmung der Sulfide zu verfügen, welche unter Benutzung der "weissen Polaritätseinstellung" erfolgen könnte.

Zusätzlich zur Chromsäureätzung benützen wir eine Schwefelsäureätzung, wenn es gilt, die Verteilung der Einschlusslängen zu bestimmen. Wir erhielten auf diese Weise eine Vergrößerung der Einschlussdicke und regelmässig definierte Umrisse, ohne dabei einen wesentlichen Einfluss auf die Länge auszuüben. Ein solches Vorgehen ist unbedingt notwendig bei feinen, langgestreckten Einschlüssen, da sonst eine mangelhafte QTM-Detektion zu falschen Ergebnissen führt.

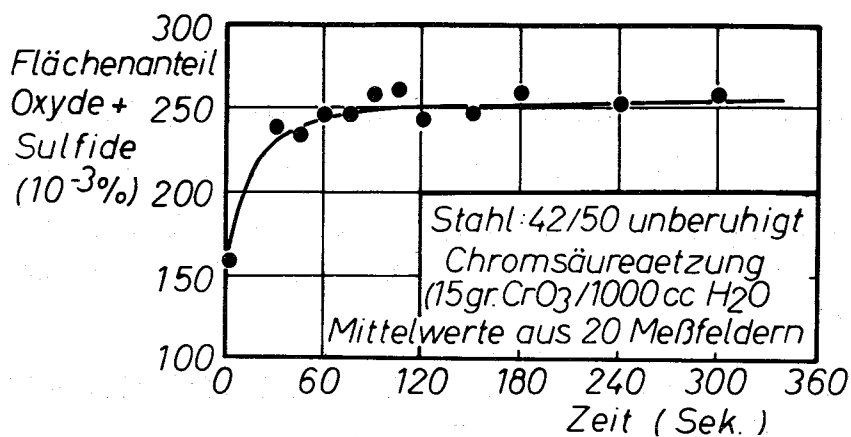


Abb.1: Einfluß der Ätzdauer auf das Ergebnis einer Flächenmessung

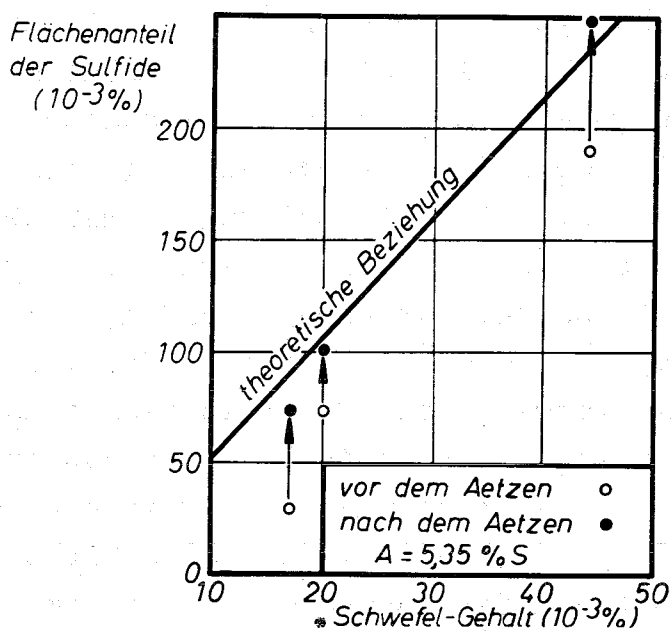


Abb.2: Einfluß einer Chromsäureätzung auf die Messung der Menge an Sulfideinschlüssen

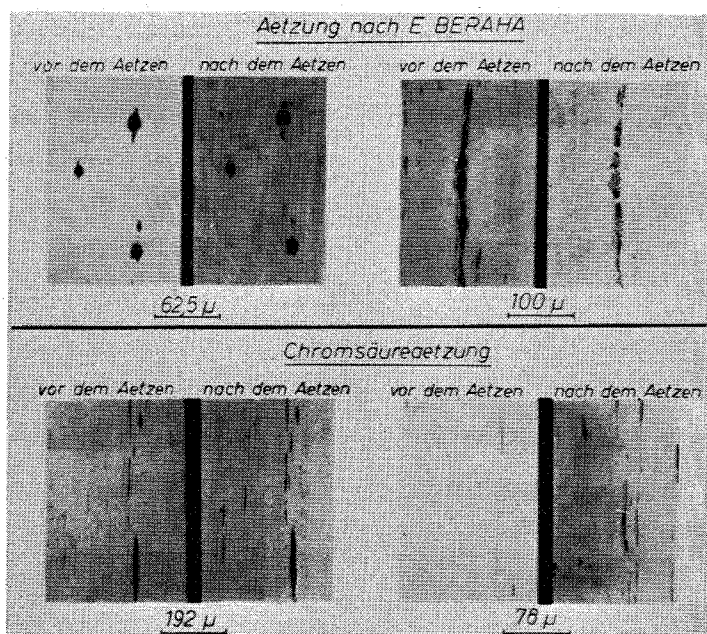


Abb.3: Einfluß einer Ätzung nach E.Beraha sowie einer Chromsäure-Ätzung auf Sulfideinschlüsse

3. Arbeitsweise mit einem handbedienten Quantimet

- Hervorzuheben wäre hier das recht komplizierte Ausrichten der Beleuchtungseinrichtung und des Mikroskopes, welche wir jedoch nur zweimal innerhalb des vergangenen Jahres vornehmen mussten.
- Die Kontrolle der Null- und 100%-Stellung am Galvanometer wird alle 4 Stunden einmal ausgeführt.
- Die Einstellungen des Elektronenstrahls (camera beam) bedingen mehrere Korrekturen im Verlauf eines Arbeitstages. Da diese Einstellungen einen Einfluss auf die Bildschirmvergrößerung ausüben, bot sich hiermit eine Möglichkeit an, ihre Reproduzierbarkeit abzuschätzen: ein gegebener Abstand in einer mikrometrischen Skala wurde auf dem Bildschirm nach einer als korrekt beurteilten Einstellung 10 mal abgelesen. Dieser Einstelltest mit nachfolgender Abstandmessung wurde fünfmal wiederholt. Da sowohl der Parallaxenfehler als auch die Einstellungen das Messergebnis beeinflussten, wurde eine Streuungszerlegung vorgenommen. Es ergab sich eine durch die Einstellungen bedingte Standardabweichung von etwa 1,7% der mittleren Bildschirmvergrößerung (626 x im vorliegenden Fall). Wir schlussfolgerten daraus, dass eine korrekte Einstellung der Intensität und der Fokussierung des Kameraelektronenstrahles möglich ist und dass ihr Einfluss auf die Bildschirmvergrößerung praktisch vernachlässigt werden kann.
- Die Einstellung der Kontrastschwelle (threshold) ist bei weitem die grösste Quelle von Ungenauigkeiten; deshalb haben wir uns bemüht, im Rahmen der Einschlussbestimmung, nicht nur, wie oben beschrieben, die Probenvorbereitung, sondern auch die Schwelleneinstellung zu standardisieren.

Die Abbildung 4 zeigt die am Galvanometer abgelesenen Messwerte (Flächenprozent) bei aufeinanderfolgenden Schwelleneinstellungen: man sieht, dass beim Hochdrehen des Kontrastwellenpotentiometers der Messwert kontinuierlich ansteigt, die Kurve also nicht wie vielleicht erwartet in der Umgebung der korrekten Einstellung abflacht. Deshalb de-

finierten wir für die Flächen- und Projektionsmessung diejenige Stellung als korrekt, in der die metallische Matrix eben noch nicht detektiert wird; wir operierten dementsprechend durch sukzessive Approximation am Bildschirm, die beiden Monitoreinstellungen "meter" und "super-imposed" benutzend. Die so durch subjektive Beurteilung erhaltene Kontrastschwelle ist gut reproduzierbar; sie hängt ausserdem sehr eng mit der an der photosensiblen Schicht der Kamera liegenden Spannung (camera sensitivity) zusammen (s. Abb. 5). Die genaue Kenntnis dieser Abhängigkeit ist von grossem praktischen Wert, da die Kameraempfindlichkeit auch bei automatischer Kontrolle zeitlichen Schwankungen unterlegen ist. Aus der Darstellung im Lichtbild geht hervor, dass sowohl die Auflösung als auch die Probenvorbereitung als Parameter in die lineare Beziehung zwischen korrekter Kontrastschwelle und Kameraempfindlichkeit eingehen.

Bei der Bestimmung der Anzahl von Einschlüssen liegen die Verhältnisse etwas günstiger; die Abbildung 6 zeigt die Abhängigkeit der gemessenen Anzahl von der Kontrastsweleneinstellung. In der Umgebung der korrekten Einstellung erscheint eine Stufe, welche bei Einstellung auf minimale Auflösung besonders gut ausgeprägt ist. Leider tritt diese Stufe jedoch viel weniger ausgeprägt oder gar nicht in Erscheinung bei Einschlüssen mit relativ hohem Reflexionsvermögen, welche beim Ätzen nicht angegriffen werden, wie das bei Tonerde etwa der Fall ist.

Ausserdem konnten wir eine Stufenabschwächung ganz allgemein bei grösserer Einschlussanzahl (> 50) beobachten.

Um jetzt den Einfluss des Zusammenspiels der operativen Einstellungen des Quantimeters auf das Ergebnis einer Flächen- und Projektionsmessung zu bestimmen, machten wir folgenden Versuch:

Die Flächenprozentage und die Projektion der Einschlüsse wurden in zwei verschiedenen Messfeldern jeweils $10\times$ bestimmt, wobei nach jeder Ablesung folgende Einstellungen neu geregelt wurden:

Gemessener
Flächenanteil
($10^{-3}\%$)

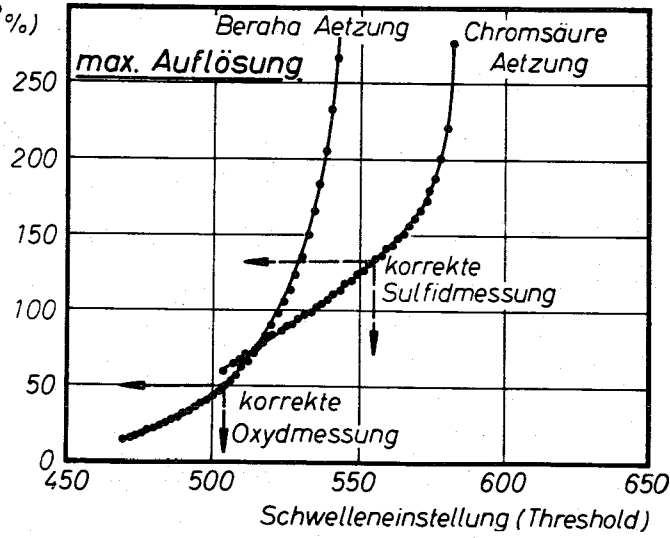


Abb.4: Abhängigkeit des Flächenprozent-Meßwertes von der Schwelleneinstellung bei Gehalten $< 1\%$

Kamera-Empfindlichkeit (sensitivity)

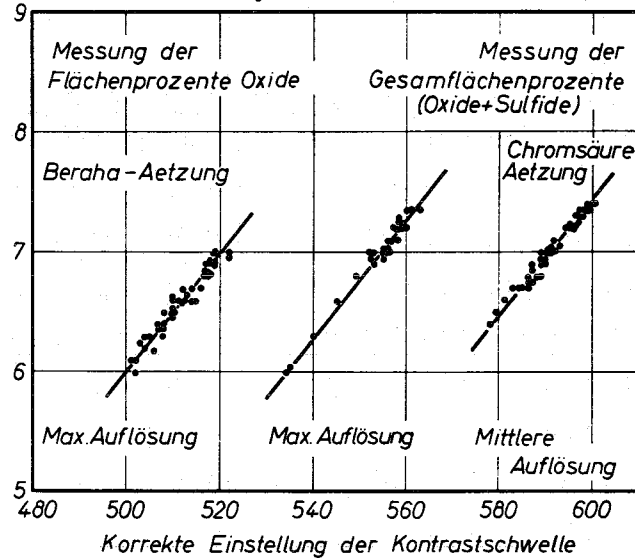


Abb.5: Einfluß der Kameraempfindlichkeit auf die Kontrastschwelle für korrekte Einschlußflächenmessung

gemessene
Zahl NY
der
Einschlüsse

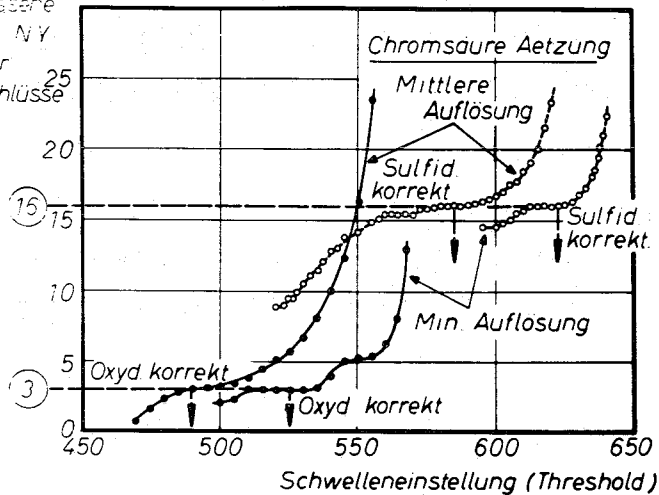


Abb.6: Abhängigkeit des Zählergebnisses von der Schwelleneinstellung

- Objektivbrennpunkt
- Intensität und Brennpunkt des Kameraelektronenstrahls
- Kontrastschwelle.

Bei der im Versuch vorliegenden Messfeldgrösse von 300 x 200 mm² auf dem Bildschirm bei 630-facher Vergrößerung, ergab sich die in der Abbildung 7 gezeigte Reproduzierbarkeit. Der relative Fehler lag also je nach Messung und Einschlussgehalt zwischen 1 und 4%.

4. Gültigkeit der Ergebnisse

Durch Einhalten der oben beschriebenen Arbeitsweise konnten wir im Rahmen der Einschlussbestimmung von Massstähen Messergebnisse bekommen, deren Gültigkeit aus dem Vergleich mit dem Gesamtsauerstoff- und Schwefelgehalt hervorgeht.

Die Abbildung 8 zeigt die Ableitung des Zusammenhangs zwischen den Einschlussflächenanteilen in den Stahlproben und deren Sauerstoff- und Schwefelgehalt:

$$\begin{aligned} [\text{Prozentualer Einschlussflächenanteil } A] &= k. \\ [\text{Sauerstoff- bzw. Schwefelgehalt (\% X)}] & \end{aligned}$$

Die Berechnung des Koeffizienten k erfolgte aufgrund von Literaturangaben über Zusammensetzung und Dichte der verschiedenen Einschlusstypen.

Die Abbildung 9 zeigt sehr gute Übereinstimmungen zwischen den theoretisch errechneten und den mittels QTM-Analyse gefundenen Flächenanteilen. Es handelt sich bei den untersuchten Schliffen um Standardproben für die Sauerstoffbestimmung, welche nur FeO-Einschlüsse enthielten.

Die Abbildung 10 zeigt die Ergebnisse bei der Untersuchung von 24 Längsschnitten aus der Speckschicht unruhigter weicher Thomasstahlknüppel. Die Einschlüsse bestanden aus Sulfiden, Oxisulfiden, Fe-Mn-Oxiden sowie einigen Silikaten. Die Schwefelbestimmung sowie die aktivierungsanalytische Sauerstoffbestimmung erfolgten auf Proben aus denselben Knüppelstücken.

Messung	Mittelwert m	Standard- Abweichung σ	relativer Fehler $\sigma/m \cdot 100$ (%)
Flächenanteil ($10^{-3}\%$) Meßfeld 1	341	12,86	3,77
Projektion PY ($10^{-3}h$) Meßfeld 1	543	22,5	4,15
Flächenanteil ($10^{-3}\%$) Meßfeld 2	1521	21,3	1,42
Projektion PY ($10^{-3}h$) Meßfeld 2	1227	11,1	0,91

Abb.7: Reproduzierbarkeit der Meßergebnisse
(Chromsäureätzung, 630-fache Bildschirm-
verg.)

Unter Anwendung des Prinzips von DELESSE: $P = A \cdot d_E / d_{Matr}$	Einschlußart	Zusammen- setzung	Dichte (g/cm ³)	k
P = Gewichtsanteil des Einschlusses A = Flächenprozent	Wüstit	FeO	5,75	5,86
d_E = Dichte des Einschlusses (g/cm ³) d_{Matr} = Dichte der Matrix = 7,85 (g/cm ³)	Fe - Mn - Mischoxid	73-79% MnO 27-21% FeO	~5,36	~6,50
	Mn-Silikat	Schwankt mit % Si	~4,04	~7,82
	Tonerde	Al ₂ O ₃	3,96	4,2
Gewichtsanteil des an den Einschluß gebundenen Sauerstoffs oder Schwefels:	Sulfide	82-98% MnS 18-2% FeS	3,99	5,35
$\% X = P \cdot m_X / M_E = A \cdot d_E / d_{Matr} \cdot m_X / M_E \rightarrow A = k \cdot \% X$ $\% X$ = Sauerstoff- oder Schwefelgehalt der Matrix in Gewichtsprozent m_X = Sauerstoff- oder Schwefelmenge in einem Mol Einschluß (g) M = Molmasse des Einschlusses (g)				

Abb.8: Theoretischer Zusammenhang zwischen
Flächenprozenten und O₂- bzw. S-Gehalt

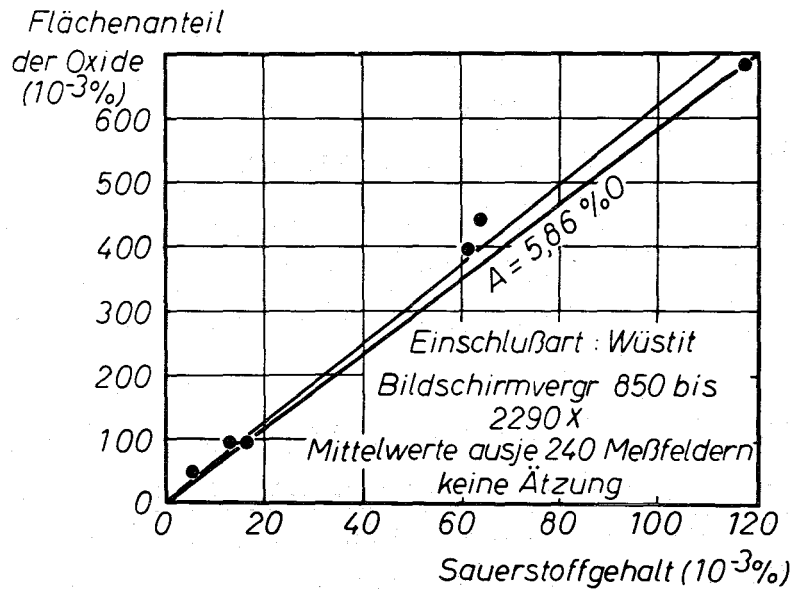


Abb.9: Zusammenhang zwischen analytisch bestimmtem Sauerstoff und dem mittels QTM-Analyse bestimmten Gehalt an Oxideinschlüssen

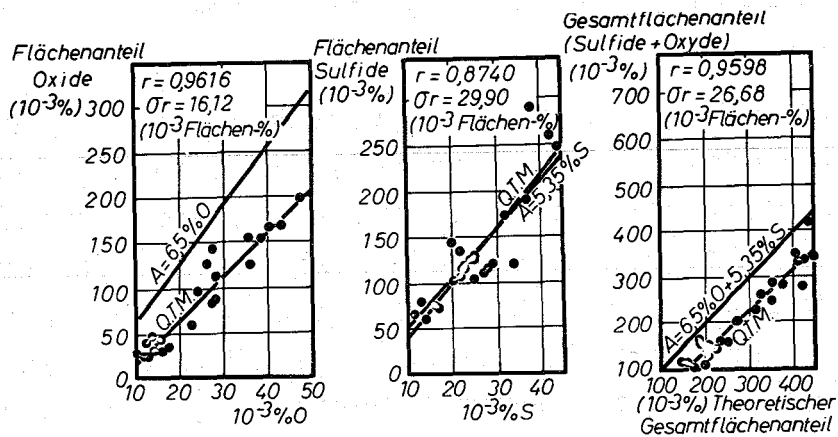


Abb.10: Zusammenhang zwischen den Einschlußflächenanteilen und den O_2 - und S-Gehalten

Für die Oxide besteht zwischen der theoretischen und der Regressionsgeraden ein systematischer Abstand, welcher durch drei Faktoren bedingt sein kann:

- ungenauer k- Wert
- ungenügende Auflösung kleiner Oxide ($< 1 \mu$)
- ungenügende Detektion der Oxide.

Für die Sulfide ist die Übereinstimmung bemerkenswert, trotz der etwas grösseren verbleibenden Streuung (σr) von $29,99 \cdot 10^{-3}$ Flächenprozent der QTM-Beobachtungswerte um die Regressionswerte.

Eine weitere Prüfung für die Gültigkeit der QTM-Analyse ergab sich aus dem Vergleich mit einer bei uns vorher gebräuchlichen Messmethode, welche darin bestand, die in Querschliffen gefundenen Einschlüsse ihrer Natur und ihrem Durchmesser nach auszuzählen und die dazugehörigen berechneten Kreisflächen zu addieren. Diese Prüfung wurde an 24 Querschliffproben vorgenommen, welche aus denselben Knüppeln wie die oben erwähnten Längsschliffe stammten.

Die nächste Abb. 11 zeigt, dass die QTM-Oxidwerte im Mittel etwa $13 \cdot 10^{-3}$ Flächenprocente niedriger liegen als die der Vergleichsmethode, bei der Sulfidbestimmung dagegen wesentlich höher.

Vergleicht man nun die beiden Verfahren im Diagramm Flächenprocente - Chemische Analyse (Abb. 12), so ist der QTM-Analyse eindeutig der Vorzug zu geben: höherer Korrelationskoeffizient (r) und niedrigere verbleibende Streuung (σr) für die Oxide und den Gesamtflächenanteil. Die etwas ungünstigere Korrelation für die Sulfide kommt wahrscheinlich daher, dass bei der absoluten Messmethode eine direkte Sulfidbestimmung vorlag, bei der QTM-Analyse der Sulfidgehalt sich jedoch erst durch die Differenz (Gesamtanteil - Oxide) ergibt.

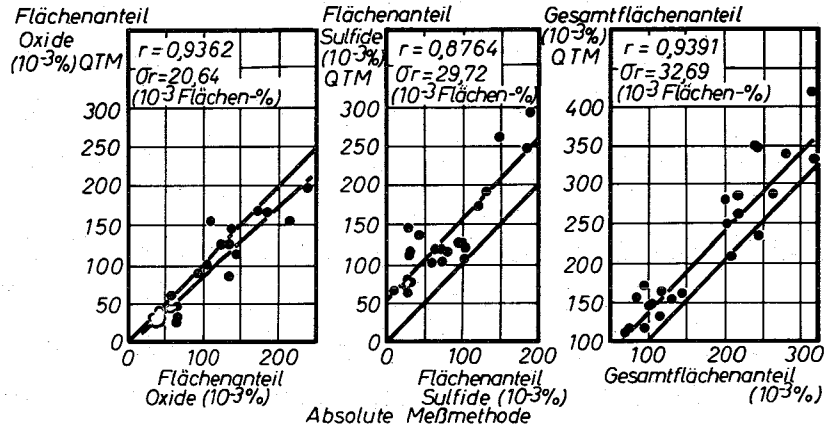


Abb. 11: Vergleich der QTM-Analyse mit einer absoluten Meßmethode

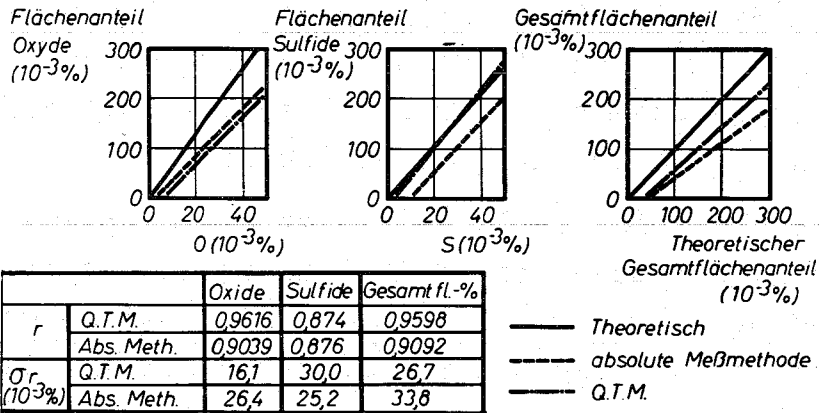


Abb.12: Gegenüberstellung von QTM-Analyse, absoluter Meßmethode und theor. Beziehung im Diagramm Flächenanteil-Gewichtsprozent

5. Schlussfolgerungen

Aufgrund der guten Korrelation zwischen der Flächenanalyse und den Sauerstoff- und Schwefelgehalten, sind wir zur Überzeugung gekommen, dass eine QTM-Flächenanalyse nur in Spezialuntersuchungen der chemischen Analyse gegenüber ein Vorteil ist, so z.B. bei Lokaluntersuchungen oder etwa bei den Untersuchungen der Evolution des Sauerstoffs von der Blockhaut bis zur Blockmitte hin.

In ihre Bedeutung für das Werkstoffverhalten sind Einschlussgrösse - und Anzahl ohne Zweifel die wichtigsten Kriterien; Kenngrössen, wie Volumenanteil, Einschlussform - und Art treten etwas zurück. In der Möglichkeit zur Bestimmung der Grössenverteilung offenbart sich nun hier die Stärke des Quantimet.

In diesem Sinne möchten wir Ihnen abschliessend zwei Beispiele von Grössenverteilungen $P = P(d)$ und $N = N(l)$ zeigen. P ist die Projektion jener Einschlüsse oder Einschlusssteile, welche dicker sind als ein vorgegebenes Mass. N ist die Zahl der Einschlüsse welche länger sind als ein vorgegebenes Mass.

Die Wahl zwischen den beiden Kriterien Dicke und Länge orientiert sich am Verwendungszweck des zu untersuchenden Materials.

Im ersten Beispiel (Abb. 13) handelt es sich um zwei verschiedene Mengen aus Drahtlängsschliffen, welche beide fast denselben mittleren Gesamtflächenanteil zeigten, in der Dickenverteilung jedoch sehr unterschiedlich waren.

Das zweite Beispiel (Abb. 14) zeigt die mittlere Längenverteilung der Einschlüsse von je 10 Bandeisenlängsproben aus dem Blockrand und aus der Blockmitte. Die Beziehungen $\lg P = P(lgd)$ und $\lg N = N(lgl)$ sind annähernd linear. Die Lage und die Neigung der Ausgleichsgeraden gibt Auskunft über die Häufigkeit der zu erwartenden, jedoch nicht gemessenen Einschlussgrössen.

Wir glauben, dass eine in diese Richtung zielende Quantimet-Anwendung zur Bestimmung der Einschlusskenngrössen sehr wertvolle Informationen liefern kann.

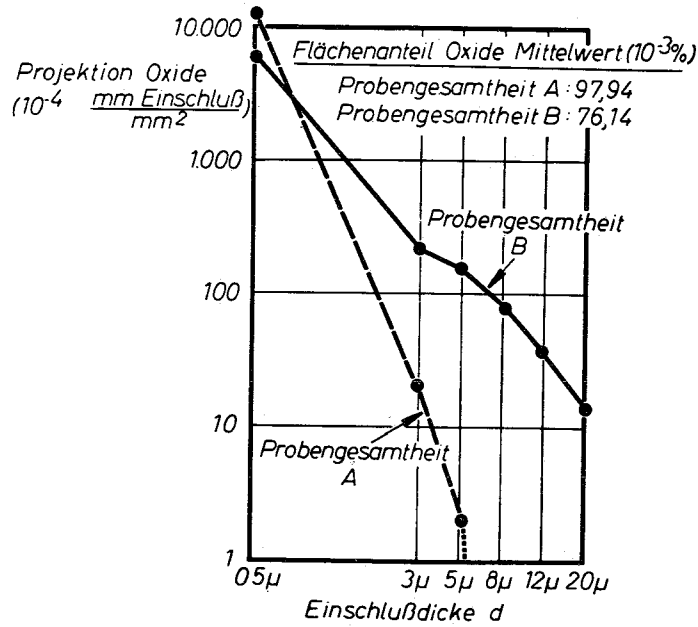


Abb.13: Einschußdickenverteilung in Drahtlängsschliffen

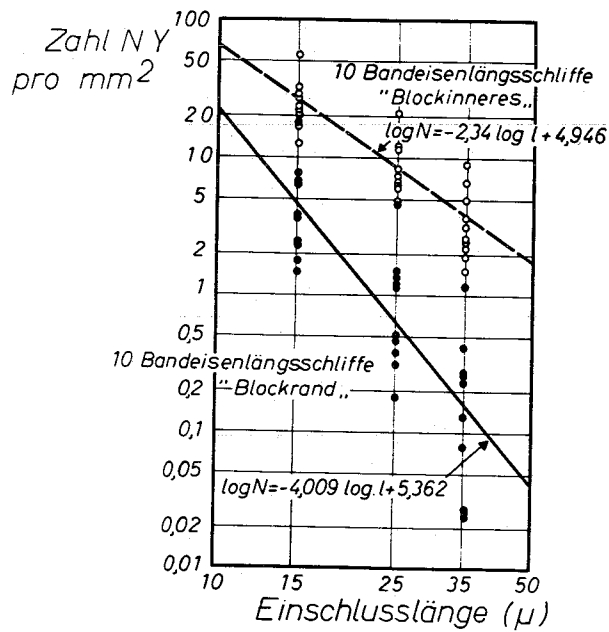


Abb.14: Verteilung der Einschußlängen in Bandeisenlängsschliffen

Anwendung des Quantimeters zur Auswertung
von Autoradiogrammen +)

von
K. Hinrichsen
Anatomisches Institut der Universität Tübingen

Zusammenfassung

Eine quantitative Auswertung von Autoradiogrammen erfordert die objektbezogene Zählung von Silberkörnchen in der Fotoemulsion. Die Anwendung der Zählfunktion eines quantitativen Fernsehmikroskopes (QTM, Metals Research, Cambridge) ist möglich bis zu Silberkorndichten von $35/10 \mu\text{m}^2$. Es werden die apparativen und präparativen Schwierigkeiten aufgezeigt, die einer systematischen Anwendung des Gerätes noch im Wege stehen. Die Meßfunktion des Gerätes ermöglicht unter bestimmten präparativen Bedingungen eine Erfassung von Flächenanteilen verschiedener Objektstrukturen als Voraussetzung der Ermittlung von Silberkorndichten.

Einleitung

Zum Nachweis kleinster radioaktiver Substanzmengen in Geweben bedient sich der Histologe der Autoradiographie eine Fotoemulsion wird in möglichst nahen Kontakt zum histologischen Schnitt gebracht. Nach Einwirkung der Strahlung über verschieden lange Zeit (Stunden bis Wochen) wird die Emulsion fotografisch entwickelt. Die dadurch erzeugten Silberkornhaufen ("Schwärzungen") liegen über den isotophaltigen Strukturen, sie projizieren sich bei mikroskopischer Betrachtung durch die Fotoschicht auf den darunter liegenden, durch Färbung sichtbar gemachten Gewebsschnitt (Abb.1). Im Durchlicht erscheinen die Silberkörnchen schwarz, bei

+) Vorgetragen im Quantimet-Kolloquium Frankfurt (Main)
(8. - 10.5.1968)

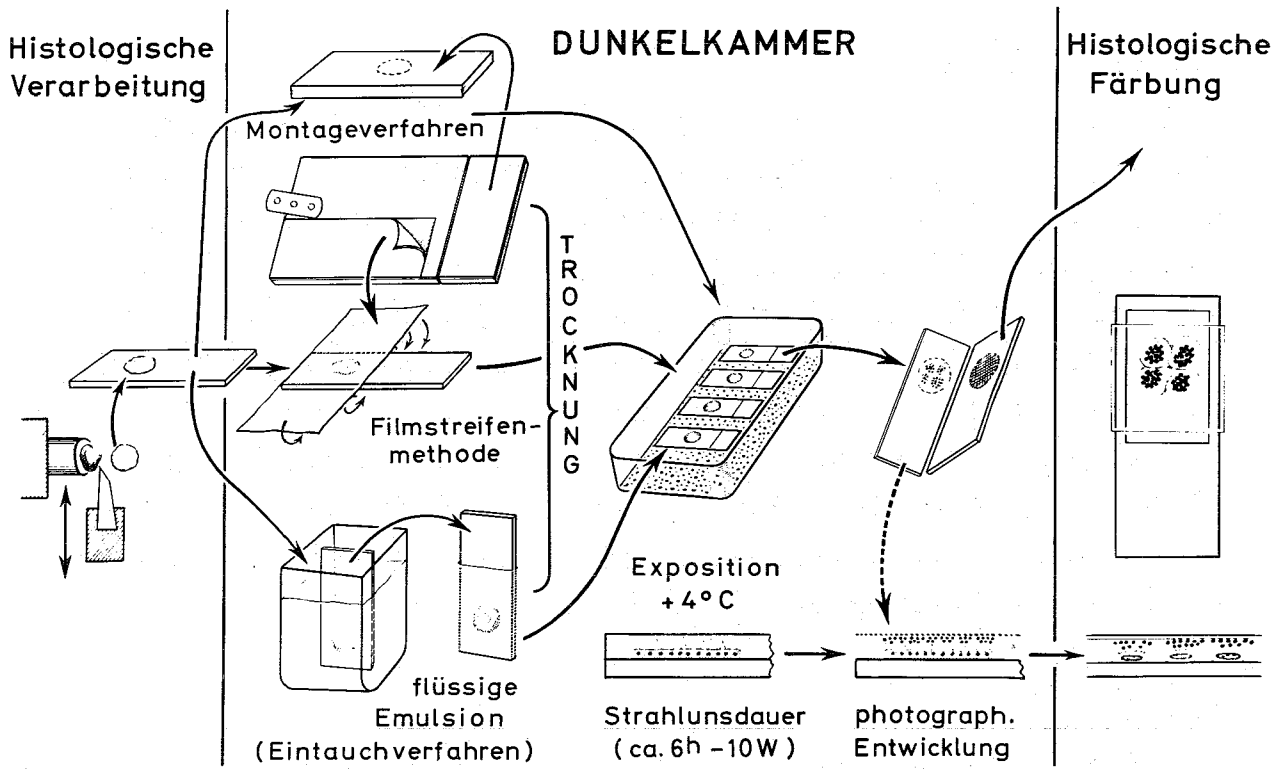


Abb.1: Schematische Darstellung der verschiedenen autoradiographischen Methoden

Auflicht hell. Es besteht Proportionalität zwischen der Anzahl an radioaktiven Zerfällen und der Zahl der Silberkörnchen. Die "Schwärzung" der Fotoemulsion ist - standardisierte Bedingungen vorausgesetzt - ein Mass für die im Schnitt enthaltene Radioaktivität.

Neben der Zahl der Silberkörnchen in den Silberkornhaufen interessiert ihre Verteilung in Bezug auf den Gewebsschnitt, d.h. auf Volumina des Gewebes, vereinfacht auf Flächen über bestimmten Gewebskomponenten. Als Beispiel diene der Zellkern und der Einbau radiomarkierter Vorläufersubstanzen in die DNS. Zur Kennzeichnung des Isotopeneinbaues ist die Silberkornzahl pro Kern sowie das Verhältnis von Kernen ohne zu solchen mit Isotopenaufnahme, d.h. der Markierungsindex zu ermitteln.

Bisher gibt es drei Wege zur quantitativen Erfassung von Radioisotopen in Geweben:

1. Messung der Radioaktivität in einem bestimmten Gewebsvolumen nach Desintegration des Gewebes. Eine genauere Lokalisation ist hierbei nicht möglich.
2. Subjektive Auszählung der Zellen und Silberkörnchen mit Errechnung von Markierungsindex und -grad. Bei Silberkornzahlen bis zu 70 und mehr pro Zelle ein zeitraubendes Verfahren.
3. Fotometrie des durch die Silberkörper bei Auflichtbeleuchtung reflektierten Lichtes. Diese Technik ist für Zellausstriche mit einzeln liegenden Zellen recht gut ausgebaut. Ein direkter Bezug zur Zellfläche ist nicht gegeben (DÖRMER et al. 1966, DÖRMER 1967).

Bei dieser Sachlage stellten wir uns die Frage, ob die Zähl- und Messfunktionen des QTM sich für die Ermittlung von Silberkornzahlen pro Fläche einsetzen lassen.

Charakterisierung der Messobjekte und der optischen Bedingungen:

Zellgrößen: 6 - 20 μm \emptyset

Schnittdicken: 4 - 8 μm

Emulsionsdicke: \sim 5 μm

Silberkorngösse: 0,2 - 1,0 μm \emptyset

Silberkorndichte: 1 - 100/10 μm^2

Minimale Partikelgrösse für das QTM
(Schirmbild): 1 mm \emptyset

Erforderliche Gesamtvergrößerung daher: 6.000 x

Erforderliche Objektivvergrößerung: 100 x

Daraus resultierender Schärfentiefenbereich: 0,6 μm

Objektbeleuchtung: Durchlicht: Niedervoltlampe 30 W

Auflicht: Xenonlampe 250 W

Silberkornzählung

1. Gleichmässige Verteilung

In der Fotoemulsion eines Autoradiogrammes werden durch physikalische Einwirkungen (Höhenstrahlung, mechanische Irritation der Emulsion, Trocknung und Erstarrung der Emulsion nach dem Auftragen) Silberkeime erzeugt, die als sogenannter "background" auch ausserhalb des Schnittbereiches zu geringfügigen Schwärzungen führen. Bei quantitativer Auswertung muss die auf background beruhende Silberkorndichte bestimmt und in Abzug gebracht werden. Die Messung erfolgt im Leerfeld jenseits der Schnittländer. Nach Eichung eines Messfeldes am QTM (Einspiegelung eines Mikrometers nach MERTZ) kann die Silberkornzahl pro Messfeld direkt abgelesen werden. Die Zählung kann im Durchlicht (Abb.2) oder Auflicht (Abb.3) erfolgen. Unsere Versuchswerte lagen zwischen 0,07 und 0,3 Silberkörnern/10 μm^2 Objektfläche.

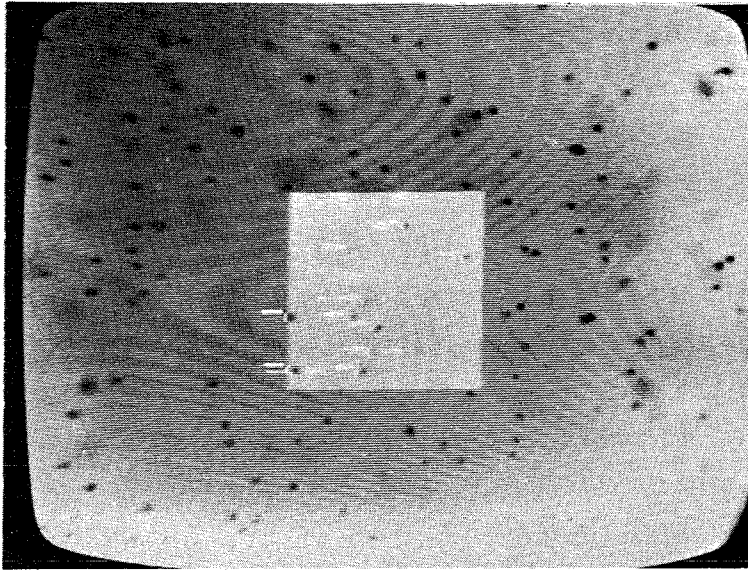


Abb.2: Zählung von Silberkörnern des sog. Background in einer Präparatleerstelle im Durchlicht

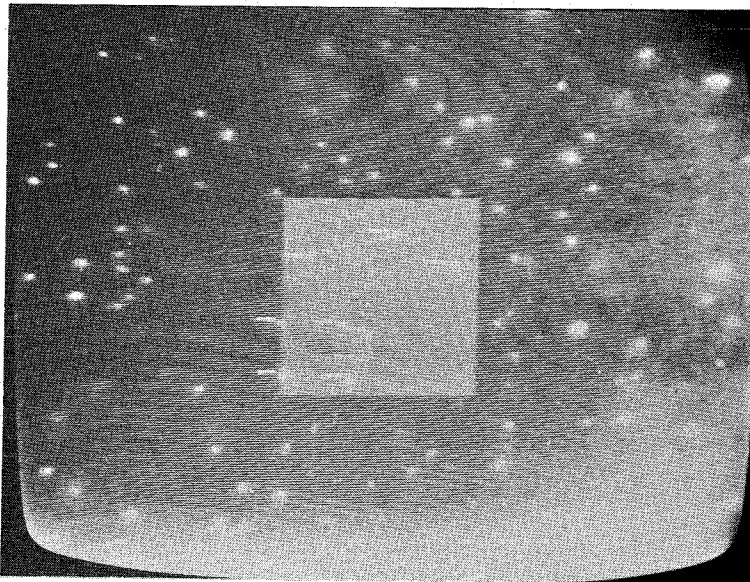


Abb.3: Zählung wie in Abb.2 bei Auflicht

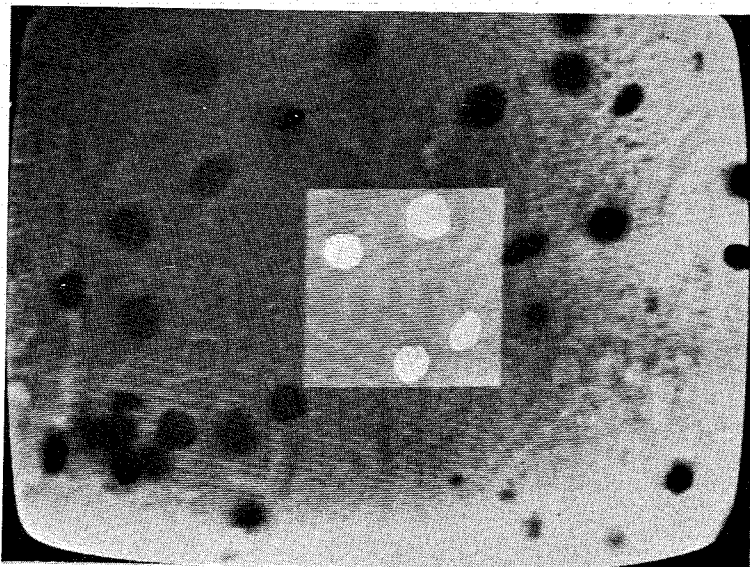


Abb.4: Flächenmessung homogen fixierter Leberzellkerne

2. Silberkornhaufen

Bei ungleichmässiger Verteilung der Silberkörner stellen sich zwei Probleme. Grössere Häufung führt in Abhängigkeit von der Emulsionsdicke zur Verteilung von Silberkörnern in verschiedenen Schichtbereichen der Emulsion. Die zur QTM-gerechten Darstellung erforderliche Objektivvergrösserung engt den Schärfentiefebereich auf ca. $0,6 \mu\text{m}$ ein. Ausserhalb der Schärfentiefe gelegene Körnchen werden unscharf, d.h. mit geringerem Kontrast dargestellt. Unterschreitet der Kontrast den eingestellten Schwellenwert, können diese Körnchen vom Untergrund nicht getrennt werden. Die unscharf abgebildeten Körnchen können mit ihren Zerstreuungskreisen verschmelzen und nicht einzeln aufgelöst werden. Zur Prüfung dieses Phänomens wäre es wünschenswert, wenn das QTM den Abruf einer einzelnen Zeile (z.B. zur oszillographischen Darstellung) erlauben würde.

Die erhöhte Dichte der Silberkörner in der Fläche führt zur Berührung, ggf. zur Verschmelzung zweier oder mehrerer Körner. Theoretisch lässt sich das Auflösungsvermögen des QTM bei den gegebenen optischen Bedingungen errechnen. Auf dem Monitorbild entsprechen $100 \text{ mm} = 99$ Fernsehzeilen. Diese decken bei dem benutzten optischen System eine Objektlänge von $16,67 \mu\text{m}$. Die Breite einer Fernsehzeile im Objekt beträgt $1/99$ von $16,67 \mu\text{m} = 0,168 \mu\text{m}$. Diesen Minimalabstand müssen zwei getrennt zu registrierende Körnchen haben. Bei gleichmässig dichter Verteilung und hexagonaler Anordnung lässt sich ein Auflösungsvermögen für Silberkörnchen mit $0,5 \mu\text{m} \varnothing$ theoretisch auf $35 \text{ Körnchen}/10 \mu\text{m}^2$ Objektfläche errechnen. Bei der einleitend erwähnten Fotometrie konnte, bei empirisch ermittelter Korrektur der Nichtlinearität, die Erfassung bis zu $70 \text{ Körnchen}/10 \mu\text{m}^2$ Objektfläche gesteigert werden (DÖRMER 1967). Visuell hält TAYLER (1956) $20 \text{ Körnchen}/10 \mu\text{m}^2$ für zählbar.

Die Silberkörner haben unterschiedliche Grösse. Diese engt die Möglichkeit ein, durch Anwendung der als "acceptance angle" bezeichneten Verzögerung eine weitere Trennung sich berührender Körnchen zu erzielen. Kleinste Silberkörnchen würden so unterdrückt.

Der Zählfehler durch Berührung, Überlagerung oder Verschmelzung wird mit steigender Silberkorndichte grösser werden. Von der präparativen Seite her kann durch kurze Entwicklungszeit und niedrige Entwicklertemperatur ein möglichst feinkörniges Schwärzungsmuster erzielt werden. Darüber hinaus zwingen zu hohe Silberkornzahlen zur Kürzung der Expositionszeit.

Die durch die Tiefenschärfe bedingten Schwierigkeiten werden durch die -prinzipiell erwünschte- enge Anlagerung der Emulsion an den Schnitt verstärkt. Der Schnitt liegt nicht als ebenes Scheibchen, sondern als Plateau mit Niveaudifferenzen vor. In Abhängigkeit von den Objektstrukturen (z.B. Zellkerne, Interstitium) bestehen Höhen-, möglicherweise auch lokale Dickenunterschiede in der Emulsion, die zu weiterer Abweichung vom optischen Schärfentiefebereich führen. Es ist noch nicht zu übersehen, ob die Auflicht-Fotometrieerfahrung über das relativ geringe Ausmass eines Fokussierungsfehlers (DÖRMER et al. 1966) auch für die Zählung am QTM gilt. Versuche mit planen (kunststoffeingebetteten) Semidünnschnitten laufen.

Objektstrukturen

Eine Ausmessung der jeweils als Bezugssystem interessierenden Objektstrukturen (z.B. Zellkerne) wäre ein erheblicher Vorteil der QTM-Anwendung gegenüber der Fotometrie. Es gelingt aber nur in Ausnahmefällen, biologische Strukturen so zur Darstellung zu bringen, dass sie einen homogenen Grauwert für die Fernsehkamera haben. Werden Zellkerne homogen fixiert (Abb.4), ist die Bezugsfläche für eine Bestimmung von Silberkornzahl pro Kernfläche leicht zu ermit-

teln. Ohne den Kunstgriff der homogenen Fixierung (der nur in schmalen Gewebsezonen gleiches Ergebnis liefert) bereitet das Chromatinmuster der Zellkerne messtechnische Schwierigkeiten. Die chromatinfreien Kernbereiche liegen im Grauwert zu wenig deutlich oberhalb der Graukontraste von extranucleären Objektstrukturen. Es wird dann nicht der Flächenanteil des Zellkernes, sondern der des Chromatins oberhalb eines wählbaren Absorptionsgrenzwertes erfasst (Abb.5). Im Modellversuch (Abb.6) lässt sich zeigen, dass die "Leerstellen" im Kern mittels des "acceptance angles" überbrückt werden können. Mit einer solchen Einstellung wäre auch eine Zählung der Zellkerne möglich, die für die Bestimmung des Markierungsindex erforderlich ist. Voraussetzung ist aber, dass der Abstand einzelner Kerne voneinander grösser ist, als die grösste Meßstrecke über einer "Leerstelle" (Abb.7, s.a. FISHER und COLE 1968).

Schlussfolgerungen

Die gestellte Aufgabe, mit Hilfe des QTM die Werte für eine Bestimmung des Markierungsindex und der Silberkorndichte rasch zu ermitteln, ist noch nicht gelöst. Zu den Schwierigkeiten, die aus den Eigenschaften des QTM und den Charakteristika der Messobjekte resultieren, kommen noch solche, die sich aus der Konstruktion hochauflösender Auflichtmikroskope für ihre vorzugsweise Verwendung in der Metallmikroskopie ergeben. So sind die meisten der in Betracht kommenden Objektive nicht mit Deckglas verwendbar. Es zeigt sich am Beispiel der Background-Zählung, dass prinzipiell die Zählung von Silberkörnern in Fotoemulsionen möglich ist. Zunächst ist von der präparativen Seite her eine bessere Anpassung des Messobjektes an die Gegebenheiten des QTM anzustreben. Die Aufgabe liegt im Grenzbereich der Leistungsfähigkeit des Systems.

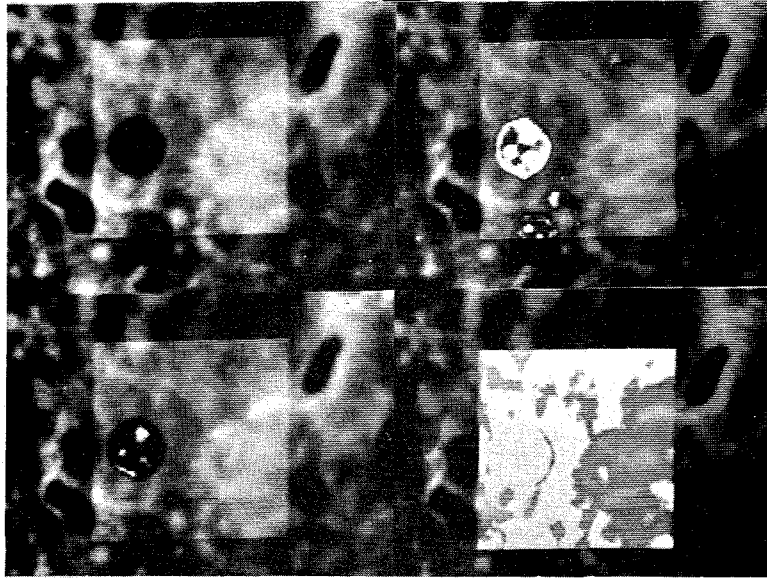


Abb.5: Darstellung der unterschiedlichen Graustufen eines histologischen Präparates im Durchlicht

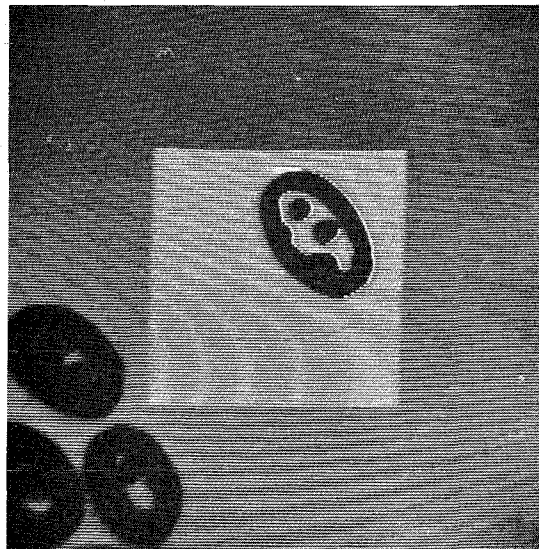


Abb.6: Modellversuch mit der eingespiegelten Schema-
zeichnung eines Zellkernes. Die Leerstellen
können so weit unterdrückt werden, dass der
ganze Kern als 1 gezählt wird.

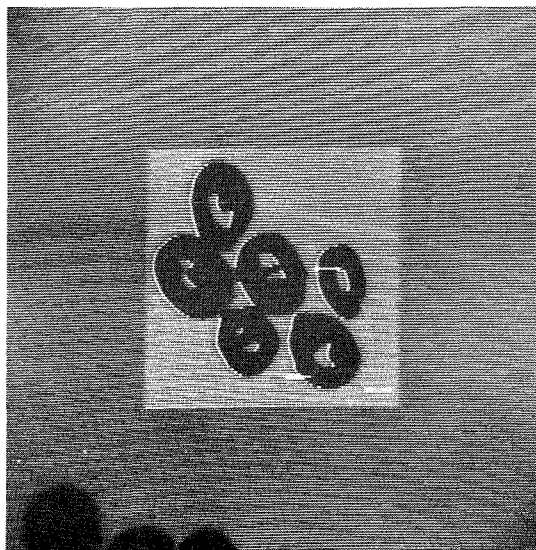


Abb.7: Modellversuch wie in Abb.6 mit dicht liegenden
"Zellkernen". Fehlzählung (Anzeige "3" statt "6")
bei Abstand kleiner als max. Leerstrecke in einem Kern

Literatur

DÖRMER, P.: Auflichtfotometrische Untersuchungen zur Grösse der Koinzidenz in der Autoradiografie mit Tritium. Histochemie 8, 1 - 8 (1967)

DÖRMER, P., W. BRINKMANN, A. STIEBER und W. STICH: Automatische Silberkornzählung in der Einzelzell-Autoradiografie. Klin. Wschr. 44, 477 - 482 (1966)

MERTZ, M.: Anpassung von Mikroskopen unterschiedlicher Bauart an das QTM. Ein Beitrag zur quantitativen Fernsehmikroskopie. QTM-Symposium Frankfurt (Main) 1967

TAYLOR, J.H.: Autoradiography at the cellular level. In: Oster and Pollister, Physical techniques in biological research, vol. III, p. 545, New York: Academic Press 1965.

FISHER, C. and M. COLE: The Metals Research Image Analysing Computer. The Mikroskop 16, 81 - 94 (1968).

Zur quantitativen Schliﬀpräparation und quantita-
tiven Gefügeanalyse von Cermets ⁺

Andreas Jesse

Institut für Material- und Festkörperforschung,
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Anhand von Quantimet-Messungen werden Beispiele zur quantitativen Schliﬀpräparation sowie zur quantitativen materialmässigen Gefügeanalyse und zur stereometrischen Analyse diskutiert: Einfluss von Polierbedingungen auf die Schliﬀgüte eines UO_2 -Mo-Cermets; Konzentrationsprofil von Ausscheidungen in einer UN-V10Ti-Verträglichkeitsprobe; Konzentrationsverteilung von Urandioxid in UO_2 -Cu-Cermets.

Die hier behandelten Verbundstoffe mit keramischer und metallischer Phase werden **C e r m e t s** genannt. Als keramische Phase werden dabei allgemein Verbindungen aus Metall und Nichtmetall bezeichnet. Dementsprechend lautet eine treffendere Definition [27]:

Cermets sind Verbundstoffe, bei denen (mindestens) eine Phase vorwiegend **l o k a l i s i e r t e** Gitterbindung (d.h.hetero- oder homöopolar) und (mindestens) eine Phase vorwiegend **n i c h t - l o k a - l i s i e r t e** Gitterbindung (metallisch) aufweist.

Aufgrund der stark verschiedenen Bindungsverhältnisse liegen (stark) verschiedene Eigenschaften der Komponenten vor. Dies kann u.U. die Schliﬀpräparation erheblich erschweren, z.B. das Schleifen und Polieren wegen der unterschiedlichen Verschleissfestigkeiten oder das Ätzen wegen der unterschiedlichen chemischen Eigenschaften.

⁺) vorgetragen auf der Sitzung des Wissenschaftlichen Ausschusses der Deutschen Keramischen Gesellschaft am 30.10.1968 in Würzburg ("Gefügeanalyse keramischer Werkstoffe")

Anhand des Cermet-Schliffes oder -Schliffbildes sollen qualitative und quantitative Aussagen über den Gefügebau gemacht werden, und zwar über den materialbedingten Aufbau (Zustandsdiagramm, Wechselwirkungen an den Phasengrenzen) und über den stereometrischen Aufbau (gegenseitige Lage der Phasen im Raum, Verteilung).

Die optimale Schliffpräparation bildet die Basis für eine möglichst exakte Gefügeanalyse. Es ist daher wichtig, die Schliffpräparation besser zu beherrschen, was durch systematische und quantitative Untersuchungen der Präparationsvorgänge gelingt.

Bei den hier behandelten Analysen wurden Flächenanalysen mit dem Quantimet durchgeführt.

Zweck der unter "Gefügebau" geschilderten Beispiele ist, Aussagen über die Eigenschaften von Verbundkörpern mit spaltbarem Material (Kernbrennstoffe) zu erhalten, so etwa die Verträglichkeit mit einem bestimmten Hüllmaterial oder die Gleichmässigkeit der Verteilung des dispergierten Materials.

1. Schliffpräparation

Die Anfertigung und Auswertung eines Cermetschliffes erfolgt im wesentlichen wie bei Metallschliffen:

Probennahme, Einfassen, Kennzeichnen,
Schleifen, Polieren, Reinigen [28]; anschliessend qualitative und quantitative Gefügeanalyse [6, 30].

Um die Gefügeanalyse durchführen zu können, müssen die Bestandteile "sichtbar" gemacht werden. Im Prinzip können für Cermets die folgenden Ätzverfahren für Metalle [3, 23] übernommen werden:

Korngrenzenätzung, Kornflächenätzung
Ätzen durch Anlauffarben, Ätzen von Kristallfiguren, elektrolytisches Ätzen, Wischätzen, Heissätzen, Tiefenätzen, Mehrfachätzung, Schraffurätzung, Reliefpolieren, Mikrohärtung, radioaktive Indi-

katoren, Auto- und Mikroradiografie.

Beispiele zu einigen dieser Methoden im Falle von Keramiken und Cermets sind angegeben für UO_2 -Mo, Ba_2CaWO_6 -W, UN, UO_2 -Nb, ThO_2 -W, Al_2O_3 [21], UO_2 -Al, ZrO_2 -V/Ni-Legierung, UO_2 -Cu, ZrO_2 -Stahl, UO_2 -Stahl [22], UO_2 , $\text{UO}_2 \cdot \text{CeO}_2$ [12], Pu-Oxide [31a]; Keramiken und einige nicht-oxidische Cermets [29], Al_2O_3 -Stahl [10], ZrO_2 -Mo [13], beschichtete UC_2 -Partikel [5, 7]. Auch gibt es mehrere Arbeiten über spezielle Präparationsverfahren: Reliefpolieren von Al_2O_3 -Keramik [1], Hervorheben feiner Poren in Keramik [34], Präparation einphasiger, polykristalliner Materialien [11], Ionenätzen von hochschmelzenden Materialien und Cermets [4], Heissätzen von Korngrenzen in Al_2O_3 [2], Polieren poröser Materialien [18], Einbetten spröder Materialien [9].

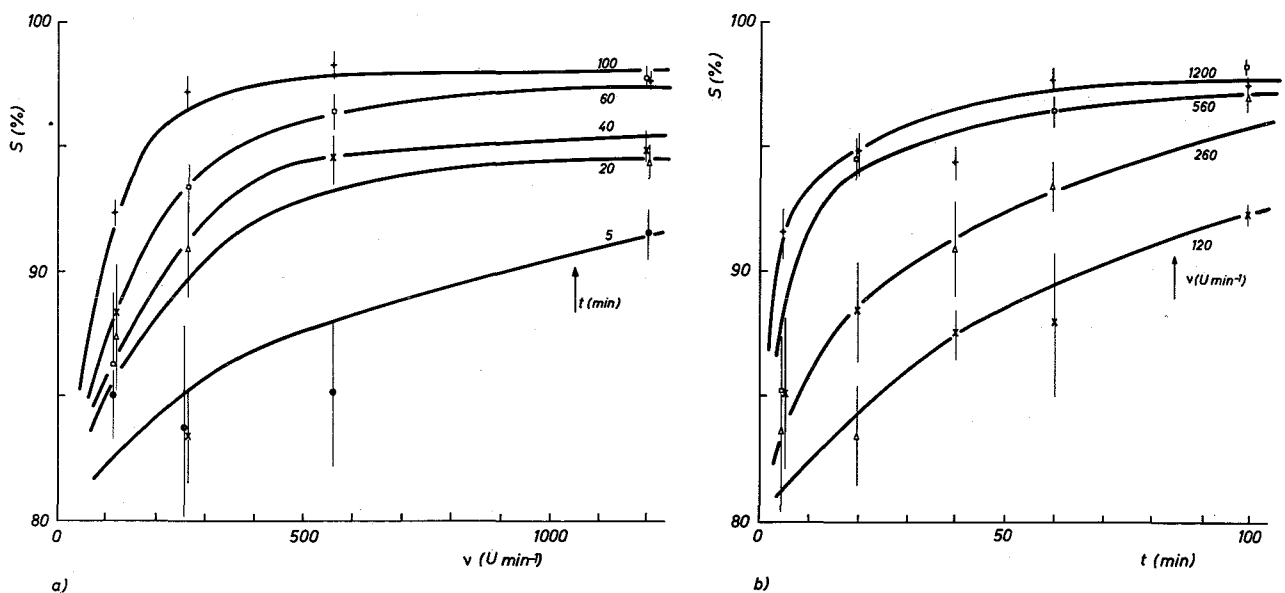
Zur besseren Sichtbarmachung des Cermetgefüges können natürlich auch noch besondere mikroskopische Techniken hinzugezogen werden, z.B. polarisiertes Licht, Dunkelfeldbeleuchtung. Mittels Interferenzen können gute Kontrastierungen erreicht werden [20]. Durch obige Aufzählungen und in den zitierten Arbeiten kommt zum Ausdruck, dass es zur Schliffherstellung, seien es Metalle, Legierungen, Keramiken oder Cermets, zahlreiche Präparationsmethoden gibt. Was jedoch vielfach fehlt, ist das Verständnis, warum sich eine bestimmte Methode für ein bestimmtes Material eignet, und zwar nicht nur in qualitativer, sondern auch in quantitativer Hinsicht.

Die Vorstufe bei der Schliffpräparation bilden das Schleifen und Polieren. Quantitative Untersuchungen hierzu sind bereits für Metalle und Halogenverbindungen durchgeführt worden [19, 31]. Im folgenden wird am Beispiel eines Cermets behandelt, welchen quantitativen Einfluss einige Polierbedingungen auf die Schliffgüte haben. Als Mass für die Schliffgüte wird die Beziehung

Schliffgüte = 1 - Flächenanteil an Kratzern u. Ausbrüchen zugrunde gelegt. Gemessen wurde dieser Flächenanteil mit dem Quantimet. Messtechnisch war hierbei das ^{untersuchte} UO_2 -Mo-Cermet

sehr günstig: die Kratzer und Ausbrüche (dunkle Stellen) hoben sich gut ab von der UO_2 -Matrix (grauer Teil) und dem eingelagerten Molybdän (helle Stellen) (s. Abb. 5a in [22]). Bei diesen Untersuchungen wurden Präparationsparameter, wie Probenbelastung beim Polieren, Poliertuch und Poliermittel konstant gehalten; variiert wurden die Polierfrequenz und die Polierdauer. Das Ergebnis ist in Abb. 1 zu sehen: Mit wachsender Polierfrequenz (a) bzw. Polierdauer (b) steigt die Schliffgüte (stark) an und strebt dem Wert 1 asymptotisch zu. Der jeweilige Parameter, nämlich Polierdauer bei a) bzw. Polierfrequenz bei b), erhöht mit wachsenden Werten den Absolutwert der Schliffgüte [14]. Für die Abhängigkeit der Schliffgüte von der Gesamtzahl der Umdrehungen beim Polieren (Produkt aus Polierfrequenz und Polierdauer) zeigt einen Wendepunkt (c): hohe Werte erhöhen die Schliffgüte kaum mehr, während für geringe Werte die Schliffgüte asymptotisch dem Ausgangswert (geschliffener Zustand) zustrebt [15, 22].

Die Schliffgüte kann als grobes Mass für die Beschaffenheit der Oberfläche genommen werden, was bei der quantitativen Erfassung von Ätzzvorgängen oder dem Benetzungsverhalten oder der Mikrohärtigkeit von Bedeutung ist.



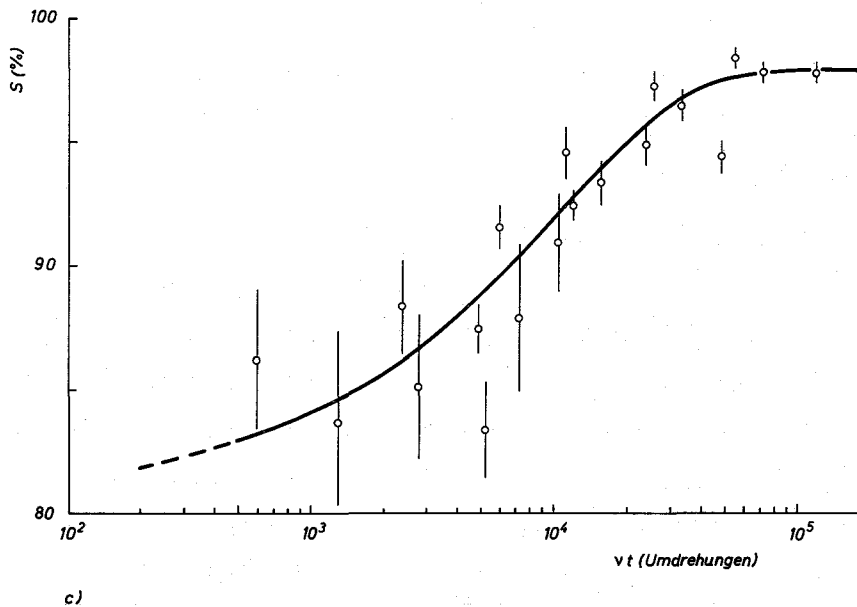


Abb. 1: Schliffgüte S von UO_2 -Mo-Cermets als Funktion von

- a) Polierfrequenz (Parameter: t)
- b) Polierdauer t (Parameter: ν)
- c) Gesamtzahl der Umdrehungen νt

Die Abhängigkeit der Schliffgüte von der (mittleren) Mikrohärtigkeit bei konstanten Polierbedingungen ist für Metalle, Keramiken und Cermets bereits behandelt worden [22].

Poliervorgänge lassen sich neben der Erfassung der Schliffgüte auch noch durch andere Größen (quantitativ) untersuchen, etwa durch Ausmessen der Verformungstiefe nach dem Polieren oder des Temperaturprofils in der Probe beim Schleifen und Polieren [23].

2. Gefügebau

Bei mehrphasigen Stoffen ist die Unterteilung der Gefügeanalyse zweckmässig, und zwar in den materialbedingten Aufbau und in den stereometrischen Aufbau [22].

2.1 Materialbedingter Aufbau

Hierbei wird nach den Wechselwirkungen an den Phasengrenzen gefragt, also nach Löslichkeiten, Reaktionen und Bindungsverhältnissen.

Die Bindungsverhältnisse lassen sich durch Benetzungsversuche [33] ermitteln. Über Löslichkeiten gibt das Zustandsdiagramm des betreffenden Cermets Auskunft. Beispiele solcher Zustandsdiagramme sind in [24] angegeben. Untersuchungen, ob bei einer Keramik-Metall-Kombination Reaktionen existieren oder nicht, sind ein wichtiges Unterscheidungsmerkmal bei der Einteilung in instabile bzw. stabile Cermets. Beispiele hierzu bilden das U_3O_8 -Al- bzw. das UO_2 -Cu-Cermet [24 - 27].

Wie Verträglichkeitsuntersuchungen [8] gezeigt haben, ist die UN-V10Ti-Kombination instabil: Nach längerem Glühen (144 h, 1300°C) diffundiert Stickstoff vom UN-Kern in die V10Ti-Umhüllung und führt dort zu TiN-Ausscheidungen. Das Ausmessen des Konzentrationsprofils dieser Ausscheidungen mit dem Quantimet ergab folgenden Verlauf (Abb.2): An die Grenzfläche zwischen Keramik und Metall schliesst eine Zone (etwa $50\ \mu\text{m}$ breit) an, die keine sichtbaren Ausscheidungen enthält; anschliessend liegen etwa 1.2 Flächen-% TiN in der Hülle vor, während zum Rand hin die Konzentration auf etwa 0.1% abnimmt. Auch hier waren die Quantimet-Messungen trotz des kleinsten Messbereiches (Konzentration

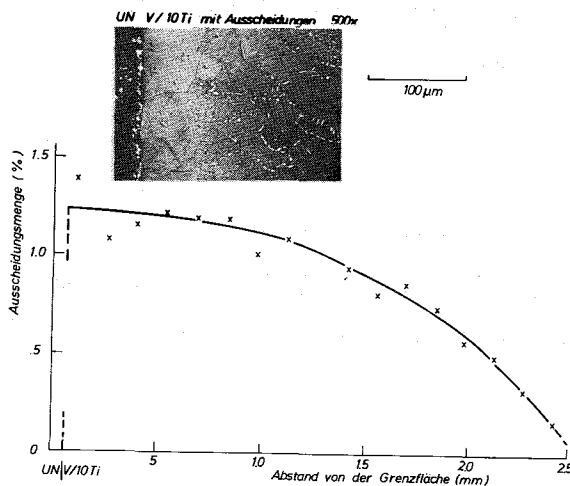


Abb.2: Konzentrationsprofil von Ausscheidungen in der Hülle einer Verträglichkeitsprobe

< 1.2%) mit guter Genauigkeit durchführbar, da sich die Ausscheidungen deutlich vom Untergrund abhoben.

Durch weitere quantitative Untersuchungen, nämlich der Veränderung des Konzentrationsprofils mit der Glüh-temperatur und Glühdauer, sind Voraussagen möglich, unter welchen Bedingungen die sichere Ausnutzung eines solchen Brennelementes gewährleistet ist. Obige Quantimet-Messungen können natürlich zusätzlich durch andere Untersuchungsmethoden ergänzt werden, etwa durch quantitative Mikrosondenanalyse oder durch Ausmessen von Härtegradienten in der Hülle [17].

2.2 Stereometrischer Aufbau

Bei Mischkörpern muss neben der Angabe, aus welchen Komponenten sie bestehen, noch spezifiziert werden, wie gross die Konzentration ist und welche gegenseitige Lage die einzelnen Komponenten haben. Die Konzentrationsverhältnisse können einfach vorgegeben werden (z.B. durch Einwiegen) oder nachträglich durch chemische oder quantitative metallografische Methoden bestimmt werden. Schwieriger dagegen ist die Ermittlung des stereometrischen Aufbaus.

Im folgenden wird ein Beispiel zur stereometrischen Analyse von UO_2 -Cu-Einlagerungscermets beschrieben. Abb. 3 zeigt Schliffbilder solcher Cermets mit verschiedenen grossen Kupferanteilen. Mit dem Quantimet wurde je-

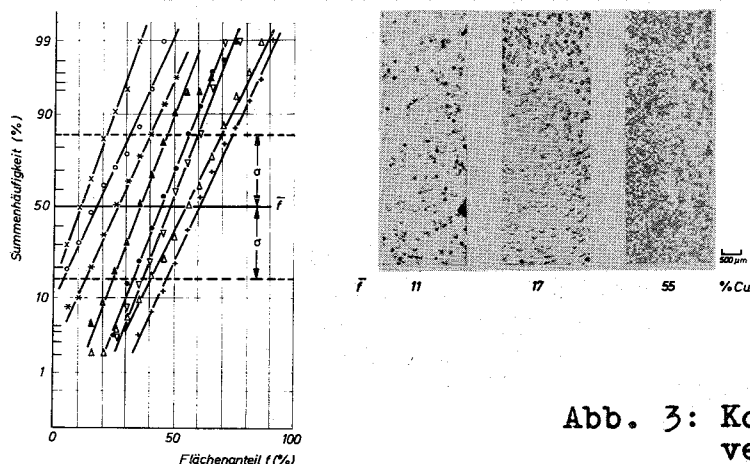


Abb. 3: Konzentrationsverteilung von Cu-Partikeln in UO_2 -Cu-Cermets

weils an 100 verschiedenen Stellen (erfasste Fläche: $400 \times 280 \mu\text{m}^2$) die Flächenkonzentration an Kupfer gemessen. Die Darstellung im Summenhäufigkeitspapier ergibt Geraden für die einzelnen Proben, d.h. die sphärischen Cu-Partikel sind "normal" verteilt. Die Steilheit der Geraden wird durch die Standardabweichung σ (Konzentrationswert beim Summenhäufigkeitswert von 84 bzw. 16%) und dem Mittelwert \bar{f} (Konzentrationswert bei 50% Wahrscheinlichkeit) charakterisiert. Die Geraden verlaufen umso steiler, je gleichmässiger die Konzentrationsverteilung ist. Als Mass für diese Gleichmässigkeit kann der Verteilungsgrad wie in [16] verwendet werden.

Derartige quantitative Erfassung der Verteilung ist von Bedeutung, wo Konzentrations-Ungleichmässigkeiten einen (starken) Einfluss auf die Eigenschaften von Verbundkörpern haben; so können Agglomerationen von spröden Partikeln zu einer erhöhten Bruchwahrscheinlichkeit oder bei agglomerierten spaltbaren Teilchen zu erhöhten lokalen Temperaturen führen.

Schlussbemerkungen

Anhand von Quantimet-Messungen an Verbundkörpern wurden Beispiele zur quantitativen Ermittlung des materialbedingten und des stereometrischen Aufbaus diskutiert. Voraussetzung für solche quantitativen Analysen sind durchweg "gute" Schliffe bzw. Schliffbilder. Um dabei den evtl. starken Einfluss der Präparationsbedingungen zu kennen oder möglichst auszuschalten, ist eine quantitative Schliffpräparation erforderlich.

Herrn Dr.O.Götzmann wird gedankt für die Überlassung von Verträglichkeitsproben, Herrn A.Hünlich für Anfertigung von kontrastreichen Schliffen und Schliffbildern zu den Untersuchungen bez. Abb.2.

Literatur

- [1] P. Angelides, J. Am. Ceram. Soc. 44, 145 (1961): Relief Polishing of High-Alumina Ceramics for Metallographic Study
- [2] E.K. Beauchamp, J. Am. Ceram. Soc. 43, 552 (1960): "Flash Etching" of Al_2O_3 Grain Boundaries
- [3] M. Beckert und H. Klemm, Handbuch der Metallographischen Ätzverfahren (Deutscher Verlag f. Grundstoffindustrie, Leipzig 1962)
- [4] T.K. Bierlein, W. Newkirk and B. Mastel, J. Am. Ceram. Soc. 41, 196-200 (1958): Etching of Refractories and Cermets by Ion Bombardement
- [5] G. Börner, T. Görgenyi, H. Huschka und F. Schinzer, Prakt. Metallogr. 2, 171-6 (1965): Metallographische Präparation von Kernbrennstoff-Partikeln (1. Fortsetzung)
- [6] H. Freund (Hrsg.), Handbuch der Mikroskopie in der Technik (Umschau-Verlag, Frankfurt 1965; 1968; 1969) IV/3: Mikroskopie in der Sintertechnik, insbesondere der keramischen und pulvermetallurgischen Produkte; III/1: Die metallographische Proben-Präparation für die mikroskopische Untersuchung; III/2: Qualitative und quantitative mikroskopische Untersuchungsverfahren in der Metallkunde
- [7] T. Görgenyi, G. Huck, H. Huschka und F. Schinzer, Prakt. Metallogr. 1, 24-8 (1964): Metallographische Präparation von Kernbrennstoff-Partikeln
- [8] O. Götzmann und F. Thümmel, Vortrag auf dem 6. Plansee-Seminar (Reutte, 24.-28.6.1968): Wechselwirkungen von möglichen Hüllwerkstoffen des Schnellen Brütters mit UN und UO_2
- [9] R.J. Gray, ORNL-TM-1733 (Nov. 1967): Present Status of Metallography
- [10] C. Hausser und G. Ondracek, Prakt. Metallogr. 3, 112-5 (1966): Metallographische Untersuchungen an Metall-Keramik-Schichten
- [11] M.C. Houle and R.E. Coble, Am. Ceram. Soc. Bull. 41, 378-81, (1962): Ceramographic Techniques, I. Single Phase Polycrystalline, Hard Materials
- [12] A. Hünlich, Prakt. Metallogr. 4, 113-20 (1967): Methoden zur Schliffherstellung von UO_2 und $UO_2 \cdot CeO_2$
- [13] A. Ihrenberger und F. Benesovsky, Prakt. Metallogr. 4, 489-91 (1967): Zur Metallographie von Oxid-Metall-Werkstoffen

- [14] A.Jesse, Vortrag auf dem Kurs "Metallographische Untersuchungsmethoden III" (Esslingen, 7.-9.11. 1967): Quantimet-Messungen an Cermetproben
- [15] A.Jesse and G.Ondracek, *Microscope* 16, 115-21 (1968): Application of Quantitative Area Analysis to Composite Materials
- [16] A.Jesse und G.Ondracek, ZEISS-Informationen (1969): Quantitative metallografische Untersuchungen mit Universal-Mikroskop und Quantimet
- [17] A.Jesse, G.Schindler und R.Spencer, Untersuchungen mit dem ZEISS-Mikrohärteprüfer MHP (unveröffentlichtes Manuskript, Juni 1968)
- [18] A.G.King and K.Fuchs, *J.Am.Ceram.Soc.* 50, 328-9 (1967): Polishing Porous Materials
- [19] V.D.Kuznecov, Einfluss der Oberflächenenergie auf das Verhalten fester Körper (Akademie-Verlag, Berlin 1961)
- [20] H.Neupert, ZEISS-Informationen 65, 96-7 (1967): Interferenz-Kontrast-Einrichtung nach Nomarski
- [21] G.Ondracek, *Prakt.Metallogr.* 1, 113-7; 154-9 (1964): Anwendung metallographischer Methoden auf Keramiken, Cermets und Sintermetalle. I.Allgemeine Einführung; II.Arbeitsvorgänge
- [22] G.Ondracek, B.Leder und C.Politis, *Prakt.Metallogr.* 5, 71-84 (1968): Quantitative Schliffpräparation bei Metall-Keramik-Kombinationen
- [23] G.Ondracek und U.Ludwig, *Prakt.Metallogr.* 7, 369-75 (1968): Veränderungen im Oberflächenbereich metallographisch präparierter Proben. I.Abtragung von Oberflächenbestandteilen beim Schleifen und Polieren
- [24] G.Ondracek und B.Kanellakopulos, *J.Nucl.Mater.* 29, 169-77 (1969): Untersuchungen im System Urandioxid-Kupfer
- [25] G.Ondracek und E.Patrassi, *Ber.Deut.Keram.Ges.* 45(12) (1968): Die instabile Cermetkombination Triuranoktaoxid-Aluminium, II.Reaktionsverhalten
- [26] G.Ondracek und B.Schulz, *Ber.Deut.Keram.Ges.* 45, 509-13 (1968): Die instabile Cermetkombination Triuranoktaoxid-Aluminium, I.Technologie von U_3O_8 -Al-Cermets
- [27] G.Ondracek und F.Thümmeler, Vortrag auf dem 2.Europ. Symp. Pulvermetallurgie (Stuttgart, 8.-10.5.1968): Untersuchungen an stabilen und instabilen Dispersionen aus Uranverbindungen und Metallen
- [28] G.Petzow und E.Exner, in: Handbuch der Mikroskopie in der Technik III/1, 37-186 (1968): Die Herstellung von Metallschliffen für mikroskopische Untersuchungen

- [29] C.Politis und S.Ohtani, *Prakt.Metallogr.* 4, 401-16 (1967): Möglichkeit zur chemischen Ätzung von keramischen Stoffen
- [30] W.Rostocker and J.R. Dvorak, *Interpretation of Metallographic Structures* (Academic Press, New York 1965)
- [31] L.E.Samuels, *Metallographic Polishing by Mechanical Methods* (Pitman and Sons, Melbourne-London 1967)
- [31a] C.Sari, E.Bazior, K.Pithan and V.Tebaldi, *Prakt. Metallogr.* 11, 628-36 (1968): Ceramography of Plutonium Oxides
- [32] H.Schumann, *Metallographie* (Deutscher Verlag f. Grundstoffindustrie, Leipzig 1960), S.24-35
- [33] L.Žagar und W.Bernhardt, *Forschungsber. Landes Nordrhein-Westfalen Nr.1733* (1966): Beitrag zur Frage der Bindefähigkeit verschiedener Metalle mit Nichtmetallen als Grundbedingung bei der Herstellung von Cermets
- [34] T.Zisner and H.Tagai, *Am.Ceram.Soc.Bull.* 46, 828 (1967): Optical Accentuation of Fine Pores in Ceramic Bodies

Stereometrische Gefügeanalyse mit Universal-Mikroskop und Quantimet*

von A. Jesse und G. Ondracek

Institut für Material-
und Festkörperforschung,
Kernforschungszentrum Karlsruhe

Zusammenfassung

Basierend auf quantitativen Messungen am Gefüge von Cermets wird deren geometrischer Aufbau eingehend erörtert. Zunächst wird die Meßmethode sowie das verwendete Meßgerät, ein Elektronenrechner zur Bildanalyse (Quantimet) der Firma Metals Research, gekoppelt mit dem Zeiss-Universal-Mikroskop, besprochen. Anhand der stereometrischen Analyse von Cermetgefügen wird dann die Wirkungsweise des Gerätes näher betrachtet. Es werden jene Faktoren ermittelt, die den geometrischen Aufbau von Cermetgefügen bestimmen: So der Bereich und die Lage des Matrixwechsels, durch den die Bereiche der Einlagerungs- und der Durchdringungsstruktur bestimmt werden; weiter die Partikelgröße und die Partikelgestalt der dispergierten Phase, letztere beschrieben durch Formfaktor und mittlere Krümmung der Partikeloberfläche. Orientierungen im Gefüge können durch den Texturfaktor der dispergierten Phase erfaßt werden. Schließlich wird über den Variationskoeffizienten aus der Statistik ein Kriterium zur Beschreibung der Verteilung der eingelagerten Partikel in einer Matrix abgeleitet. Die Brauchbarkeit des so definierten Verteilungsgrades wird durch Grenzfallbetrachtungen und Messungen geprüft.

1. Einleitung

Die quantitative Untersuchung von Schliffen oder Schlibfbildern kristalliner Gefüge geht davon aus, daß die Volumenkonzentration einer Phase ihren Flächenanteilen exakt entspricht. Diese Tatsache ist mehrfach abgeleitet worden [1-5]. Zur Messung kann man die Punkt-, Linear- oder Flächenanalyse benutzen. Während die Punktanalyse beispielsweise mit einem Zeiss-Integrationsokular nur zur Ermittlung von Volumenanteilen eingesetzt werden kann [6, 7], sind mit Linear- und Flächenanalyse weitere Gefügekennelemente erfaßbar. In der vorliegenden Arbeit sollen diejenigen erörtert werden, die bei der Untersuchung des geometrischen Aufbaus von Verbundwerkstoffen aus Metall und Keramik (Cermets) von Interesse sind.

* teilweise vorgetragen auf der Metallographie-Tagung der Deutschen Gesellschaft für Metallkunde in Gießen vom 9. - 11. 10. 1968.

An Kennwerten, wie

Mengenanteil der Komponente i ,
Teilchenzahl der Komponente i ,
mittlerer Teilchendurchmesser,
mittlerer Teilchenumfang,
Formfaktor,
Krümmung der Teilchenoberfläche und
mittlerer bzw. spezifischer Teilchenoberfläche

ist in einer sehr ausführlichen Arbeit nachgewiesen worden, daß kein grundsätzlicher Unterschied in der Meßgenauigkeit zwischen Linear- und Flächenanalyse besteht [8]. Diese Aussage gilt selbst dann, wenn für die Flächenanalyse nur ein Vergleichsverfahren, wie dasjenige mit dem Teilchengrößenanalysator TGZ von Zeiss, eingesetzt wird. Die Wahl der Methode ist daher nach spezifischen Bedingungen der Aufgabenstellung und den gegebenen Möglichkeiten zu treffen.

Vollautomatische Geräte, wie der Phasenintegrator zur Elektronenstrahlmikrosonde [9] oder der Elektronenrechner zur Bildanalyse (Quantimet) bedürfen zwar einer geübten Bedienung, arbeiten aber sehr schnell. Über das Quantimet in Verbindung mit dem Zeiss-Universal-Mikroskop, seinen Aufbau und seinen Einsatz zur stereometrischen Analyse von Cermets, soll nachfolgend berichtet werden.

2. Aufbau des Quantimets

Die Gesamtansicht der Apparatur und ihr Blockdiagramm sind in den Bildern 1 und 2 gezeigt. Der Meßvorgang gliedert sich in drei Schritte:

Herstellung eines Bildes,
Aufsuchen von Merkmalen,
Auswertung.

Herstellung eines Bildes: Das zu untersuchende Werkstoffgefüge kann entweder von der Schliffprobe selbst über das Mikroskop oder von einer Fotografie der Schlifffläche über das Epidiaskop an eine (Fernseh-) Kamera weitergegeben werden (Bild 2). Die Ausgangssignale der Kamera werden gleichzeitig auf den Fernsehschirm (Monitor) und in den Detektor geleitet.

Aufsuchen von Merkmalen: Die auf dem Fernsehschirm sichtbaren Merkmale können je nach Helligkeit, Größe oder Verteilung



Bild 1: Gesamtansicht des Quantimet mit Zeiss-Mikroskop

durch den Diskriminator hervorgehoben oder unterdrückt werden. Im Prinzip werden hierbei die zeilenweise abgetasteten Signale selektiert. Gemessen werden kann die Fläche einer bestimmten Phase, die Anzahl ihrer Teilchen und ihre lineare Ausdehnung (Projektion) in bestimmten Richtungen. Die

richtige Erfassung der gewünschten Merkmale kann durch Markierungen auf dem Fernsehschirm kontrolliert werden. Darüber hinaus sind durch ein Potentiometer bestimmte Merkmalswerte unterdrückbar, wodurch eine Verteilungskurve aufgenommen werden kann.

Auswertung: Beim zeilenweisen Abtasten wird die Intensität (als Funktion des Ortes) in einen Strom (als Funktion der Zeit) umgewandelt. Die zeitliche Veränderung dieses Stroms hat einen Spannungspuls zur Folge, der nach Zahl und Größe weiterverarbeitet wird. Entsprechend gelangen die durch den Diskriminator „eingestellten“ Signale in den Elektronenrechner, wo sie über den untersuchten Bildausschnitt summiert werden und dann als prozentualer Wert auf dem Anzeigergerät erscheinen.

Ausgehend von allgemeinen Betrachtungen über die automatische Zählung, Größen- und Mengenmessung mikroskopischer Teilchen [25] und ihrer Anwendung in der quantitativen Metallografie [17, 23, 37, 38] gelangt man in der Literatur zu einer größeren Zahl von Veröffentlichungen, die das Quantimet beschrieben [11 – 16, 18, 24, 26, 30]. So wird beispielsweise ausführlich über den Zusammenhang zwischen der Zahl der Messungen, der Vergrößerung und der erreichbaren Genauigkeit bei Flächenmessung berichtet. Die Ergebnisse aus anderen Meßverfahren (z. B. Planimetrie) werden mit denjenigen des Quantimet verglichen [71]. Seine allgemeine Anwendung in der Metallografie [17, 23, 26, 33] sowie spezielle Gefügemessungen über Sulfidausscheidungen Karbid- und Borverteilungen im Stahl [19 – 22, 28, 31 – 34, 36] und anderen Werkstoffen [29] beziehen sich auf die Lichtmikroskopie. Das Quantimet wurde aber auch bereits mit dem Elektronenmikroskop kombiniert [35]. Eine indirekte Auswertung elektronenmikroskopischer Aufnahmen ist ohnehin über das Epi-diaskop möglich.

Die Kombination des Quantimet mit dem Zeiss-Universal-Mikroskop ermöglicht nun die Ausnutzung aller mikroskopischen Einstellungen für die quantitative Gefügeanalyse. Gemessen wurde mit Epiplan-Objektiven und Optovar (1,25). In einigen Fällen wurde neben der Hellfeld- auch die Dunkel-feldbeleuchtung angewendet. Mitunter läßt sich leichte Unschärfe, polarisiertes Licht oder Interferenz-Einrichtung vorteilhaft zur Kontraststeigerung und damit zur besseren Messung einsetzen.

3. Messungen an Cermetproben

Wie bereits eingangs erwähnt, soll mit den folgenden Messungen der geometrische Aufbau von Cermets charakterisiert werden. Er

ist vom Materialtyp unabhängig und gilt für stabile und instabile Cermetkombinationen gleichermaßen [5, 39]. Mit welchen Kriterien diese Charakterisierung des geometrischen Aufbaus durchgeführt wird und wie diese durch stereometrische Gefügeanalyse mit dem Quantimet gemessen werden können, soll nun besprochen werden.

In Bild 3 ist die Konzentrationsfunktion der Dichte von UO_2 -Cu-Sinterlingen wiedergegeben. Sie wurde durch Messung der Porosität in mehreren Schliffebenen mit dem Quantimet ermittelt [29]. Mittelwert $\bar{\varrho}$ und Streuung $\Delta \bar{\varrho}$ ergeben sich aus folgenden (Quantimet-) Parametern:

$$\bar{\varrho} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n A \quad (1)$$

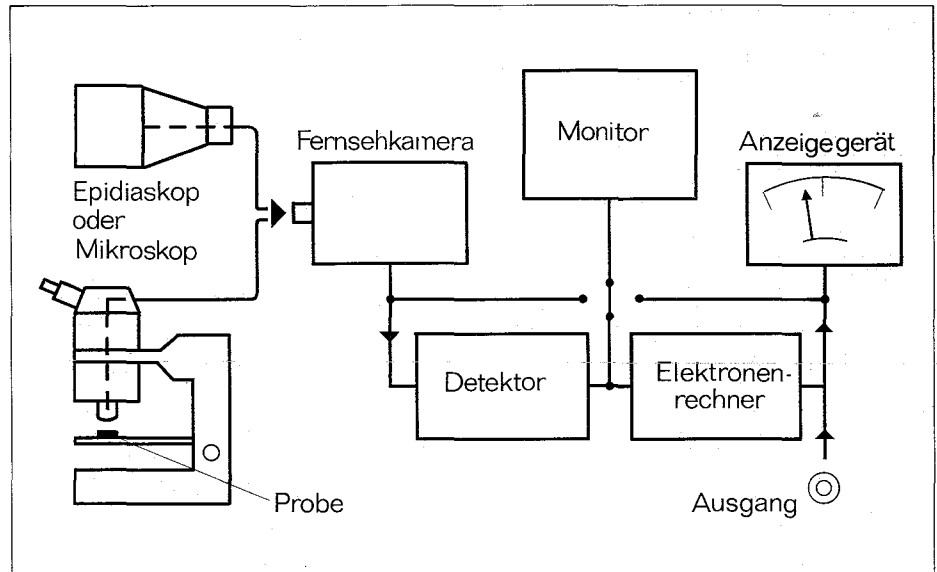
$$\Delta \bar{\varrho} = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (A - \bar{\varrho})^2} \quad (2)$$

(n = Anzahl der Messungen; A = Flächenanteil der Poren pro Messung).

Man erkennt, daß die Kurve in einem bestimmten Konzentrationsintervall ihre Steigung ändert. Dieser unregelmäßige Verlauf zeigt ein erstes Charakteristikum des geometrischen Aufbaus von Cermets an, den „Matrixwechsel“. Geht man von einer Pulvermischung zweier Cermetphasen aus, deren eine in geringer Menge vorliegt, so bildet die andere Phase eine „Matrix“, d. h. sie umschließt die Teilchen der erstgenannten Phase als Kontinuum. Man sagt auch, die eine Phase sei in der anderen dispergiert und nennt sie „Dispergent“ im Gegensatz zur Matrix.

Im Bereich des Matrixwechsels durchdringen sich die Phasen gegenseitig. Sie bilden beide ein Kontinuum. Man spricht daher auch von „Durchdringungsstruktur“ gegenüber der „Einlagerungsstruktur“, die dann vorliegt, wenn durch eine Matrix die Teilchen der zweiten Phase voneinander isoliert sind. Sind die eingelagerten Partikel klein und relativ gleichmäßig verteilt, so wird insbesondere bei Spaltstoffcermets der Ausdruck „Dispersion“ verwendet.

Betrachtet man nun wieder die Konzentrationsfunktion der Dichte, so erkennt man, daß es immer zwei Bereiche geben muß: einen mit Einlagerungs- und einen anderen mit Durchdringungsstruktur. Bei welchen



2

3

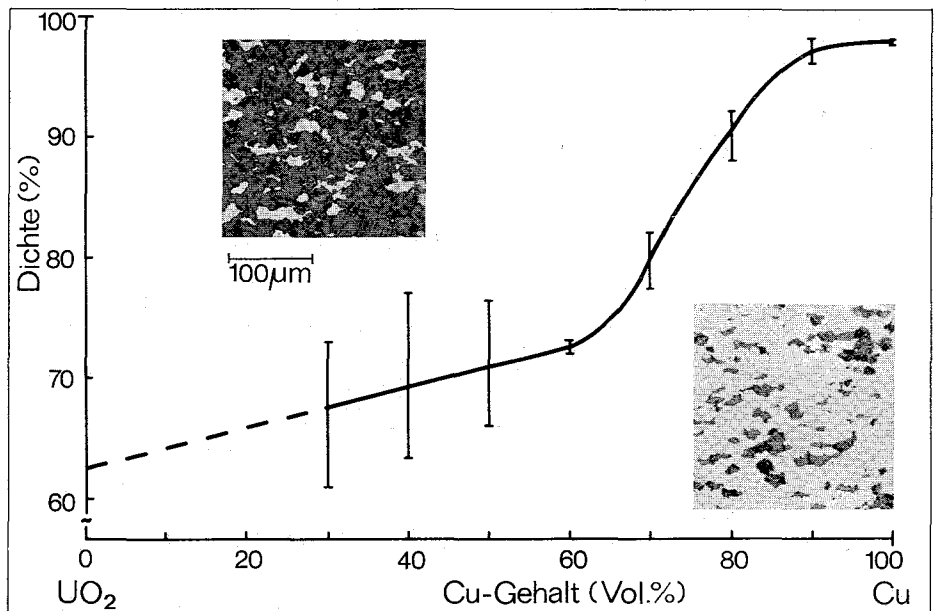


Bild 2: Blockdiagramm des Quantimet (nach Prospekt der Fa. Schaefer)

Bild 3: Konzentrationsfunktion der Sinterlingsdichte von UO_2 -Cu-Cermets (Gefügebilder vor und nach dem Matrixwechsel)

Konzentrationen der Übergang zwischen beiden erfolgt, hängt von der „Partikelgröße“ und der „Partikelgestalt“ der Ausgangspulver ab. Approximiert man sphärische Gestalt und gibt die Partikelgröße durch ihren Halbmesser r an, so ist mit Quantimetparametern [8, 41]

$$r = \frac{3}{2} I_D = \frac{A \cdot L}{P \cdot M \cdot V} \quad (3)$$

(Bezeichnungen siehe Formel 6)

In faserverstärkten Cermets oder solchen, in denen ein poröses Skelett der einen Phase mit der Schmelze einer anderen getränkt wurde, kann sich die Durchdringungsstruktur

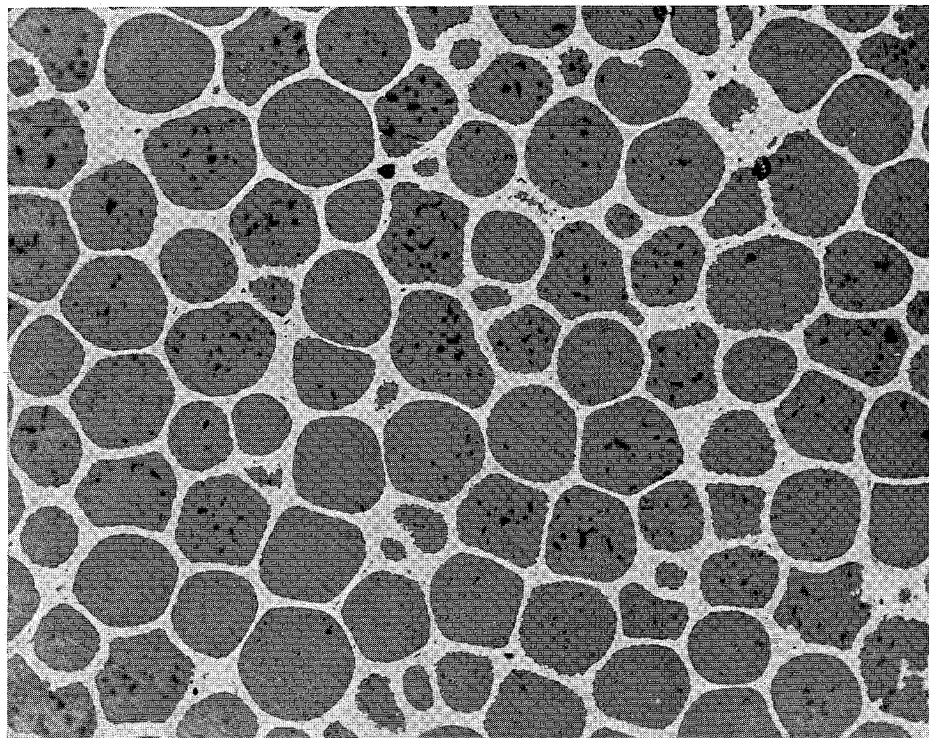
Bild 4: UO₂-Mo-Cermets mit
a) idealisiertem Gefüge (28 Vol.-% Mo) und
b) nicht-idealisiertem Gefüge (20 Vol.-% Mo)

über den größten Teil des Konzentrationsbereiches erstrecken. Nur die Grenzkonzentrationen liegen dann außerhalb des Bereiches des Matrixwechsels. Ist dagegen der Bereich des Matrixwechsels schmal, so läßt sich unter bestimmten Bedingungen voraussetzen, bei welcher Volumenkonzentration er auftritt. Geht man etwa von sphärischen Pulvern aus, so findet bei dichtester Packung der Matrixwechsel bei 74 Vol.-% [42] statt, sofern die Partikel der einen Phase viel feiner sind ($R/r < 0,1533$ [40]) oder bestimmte Plätze einnehmen ($R/r < 0,225$ für Tetraederlücken, $R/r < 0,414$ für Oktaederlücken [70]). Eine theoretische Behandlung der Packungsgeometrie sphärischer Teilchen in regelmäßiger Anordnung ergab für bestimmte Radienverhältnisse besonders hohe Raumerfüllungen (87% für $R/r = 0,1782$; 88,6% für $R/r = 0,1716$) [45, 46]. Für die statistische Packung verschieden großer Kugeln wurde vorausgesagt, daß Lösungen existieren [47]. Die Dichte als Funktion der verschiedenen Kugelradien R_i

$$\rho = f(R_1, R_2, \dots, R_i) \quad (4)$$

besitzt demnach reelle Extremwerte, über die jedoch bisher nur mit stark einschränkenden Voraussetzungen konkrete Aussagen gemacht werden konnten [8, 47]. – Im Realfall nehmen die sphärischen Partikel meist keine dichteste Packung ein. Ihre Anordnung weist außerdem Fehler auf (Brückenbildung) und die Raumerfüllung ist entsprechend niedriger ($\approx 60\%$ TD) [8, 43, 44]. In kompakten Cermets weichen die Verhältnisse von solchen theoretischen Betrachtungen außerdem dadurch ab, daß mindestens die metallische Phase plastisch verformt werden kann und sphärische Partikel nur selten vorliegen. Man kann jedoch, etwa durch Verdichten bedampfter Kugeln [48], die Lage des Matrixwechsels im Konzentrationsbereich stark beeinflussen. Bild 4 zeigt ein „idealisiertes Gefüge“ von isostatisch verdichteten molybdänbeschichteten UO₂-Partikeln. Der aus

Quantimetmessungen ($A = 0,72$, $\frac{L}{M} = 5,0$ cm, $P = 5,6$, $V = 100$) über Formel (3) errechnete Radius der UO₂-Partikel ist $r = 48,2 \mu\text{m}$. In der Pulvercharakteristik für die UO₂-Teilchen war der Radius mit anderen Methoden vor der Verdichtung zu $r = 52,5 \mu\text{m}$ ermittelt worden.



4 a

200 μm

4 b

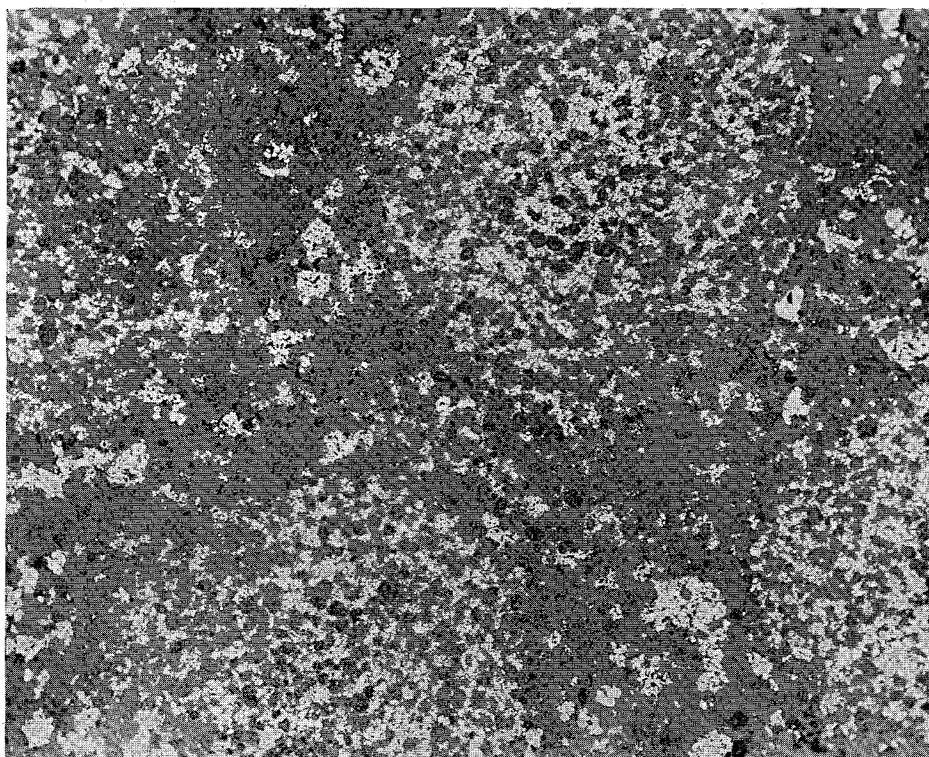
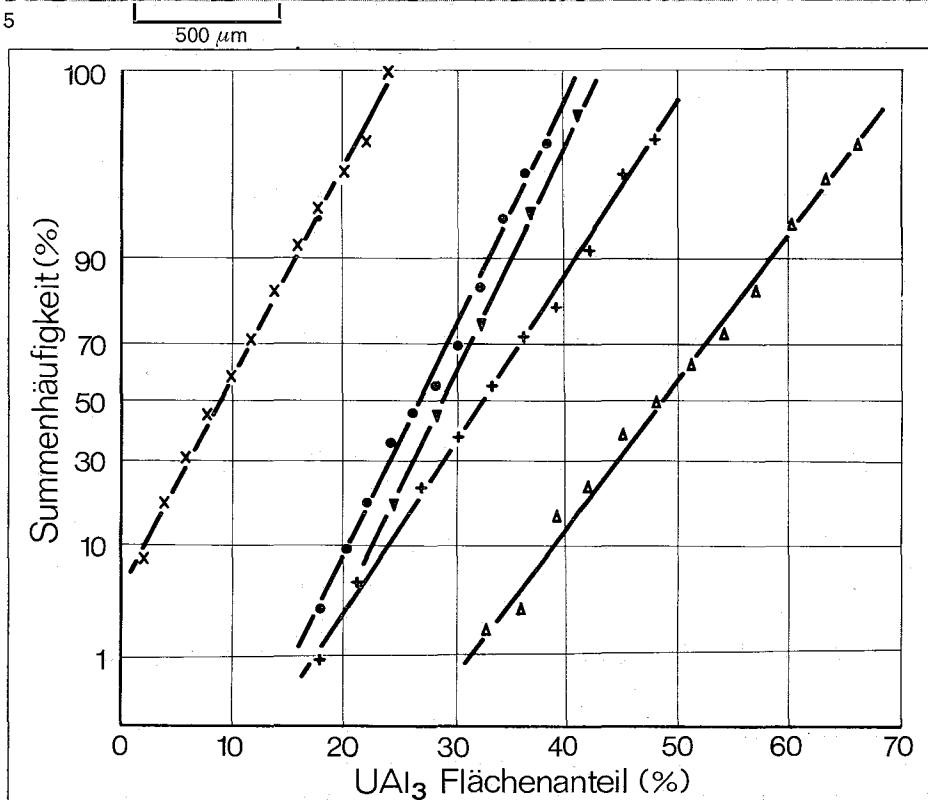
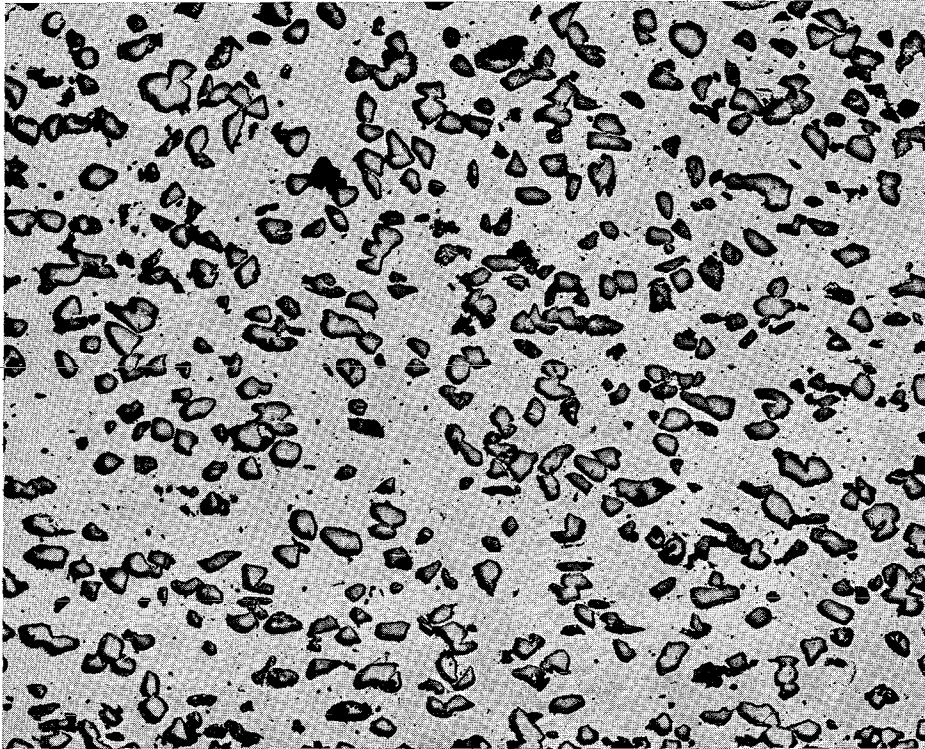


Bild 5: Konzentrationsmessungen an UAl_3 -Al-Gefügen als Verteilungsfunktion (26 Vol.-% UAl_3)



Um die wirkliche Gestalt der dispergierten Teilchen zu erfassen, mißt man stereometrisch den „Formfaktor“. Er gibt bei statistischer Lage der dispergierten Partikel die mittlere Abweichung der Partikelgestalt von der Kugelgeometrie an. Führen Messungen über alle Partikel im Meßbereich in verschiedenen Achsenrichtungen zu unterschiedlichen Werten, so sind die Teilchenlagen orientiert. Der Quotient aus den Formfaktoren in zwei verschiedenen Hauptachsenrichtungen ist dann ein Maß für die Textur in einem Werkstoff („Texturfaktor“). Es gilt

$$Y_t = \frac{\bar{Y}_D(x)}{\bar{Y}_D(y)} \quad (5)$$

(Bezeichnungen siehe bei Formel 6). Mit Quantimetparametern leitet sich der mittlere Formfaktor eines Dispergententeilchens folgendermaßen ab: [8, 49]

$$\bar{Y}_D = \frac{\bar{U}_D}{\sqrt{\pi \bar{F}_D}} = \frac{N_1}{2} \sqrt{\frac{a}{N_D \cdot \sum_0^K l_D}}$$

Dabei ist $l_D = \frac{N_D \cdot \bar{F}_D}{a \cdot N_1}$,

$$N_D \cdot \bar{F}_D = \frac{A \cdot H \cdot L}{M^2 V^2},$$

$$a \cdot N_1 = P \cdot \frac{H}{M \cdot V},$$

also $l_D = \frac{A \cdot L}{P M V}$.

Mit $N_1 = \frac{H \cdot P}{M V \cdot a}$

und $\sum_0^K l_D = N_1 \cdot l_D = \frac{A \cdot L \cdot H}{a \cdot M^2 \cdot V^2}$

folgt $\bar{Y}_D = \frac{P}{2} \sqrt{\frac{H \cdot \pi}{N_D \cdot A \cdot L}} \quad (6)$

- (Y_t) = Texturfaktor
- $Y_D(x, y)$ = mittlerer Formfaktor der dispergierten Teilchen in x- bzw. y-Richtung
- \bar{U}_D = mittlerer Umfang eines dispergierten Teilchens
- \bar{F}_D = mittlere Fläche eines dispergierten Teilchens
- N_1 = Gesamtzahl der bestimmten Sehnenabschnitte in allen dispergierten Teilchen
- a = Abstand zwischen zwei Sehnen = Rasterabstand auf dem Monitor

N_D	= Zahl der dispergierten Teilchen im Meßbereich
l_D	= mittlere Sehnenlänge
A	= gemessener Flächenanteil der dispergierten Phase im Bildausschnitt $L \cdot H$ auf dem Monitor
H	= Höhe des Meßbereichs auf dem Monitor
L	= Breite des Meßbereichs auf dem Monitor
P	= Projektion auf die Höhe des Meßbereichs auf dem Monitor in Einheiten der Meßbereichshöhe
M	= Bildschirmvergrößerung
V	= Vergrößerung durch Mikroskop oder Fotografie).

Für das in Bild 4 a gezeigte UO_2 -Mo-Gefüge ergab die stereometrische Messung mit dem Quantimet einen mittleren Formfaktor von $\bar{Y}_D(x) = 1,10$ für die Ausgangslage und $\bar{Y}_D(y) = 1,15$ für die durch 90° -Drehung des Bildes erhaltene Lage ($A = 0,72$, $\frac{H}{M} = 4,8$ cm, $\frac{L}{M} = 5,0$ cm, $N_D = 26$, $P = 5,6$ bzw. $5,7$). Eine Textur liegt im Rahmen der Meßgenauigkeit demnach nicht vor.

Der bereits erwähnte mittlere Umfang und die mittlere Fläche eines dispergierten Teilchens ergeben sich mit Quantimetparametern zu

$$\bar{U}_D = \frac{\pi \cdot a \cdot N_D}{N_D} = \frac{\pi \cdot P \cdot H}{N_D \cdot M \cdot V} \quad (7)$$

$$\bar{F}_D = \frac{a \cdot N_D \cdot l_D}{N_D} = \frac{A \cdot H \cdot L}{N_D \cdot M^2 \cdot V^2} \quad (8)$$

(Bezeichnung siehe bei Formel 6.) Die entsprechenden Meßwerte für das idealisierte UO_2 -Mo-Gefüge sind

$$\bar{F}_D = 0,0066 \text{ mm}^2 \text{ und } \bar{U}_D = 0,31 \text{ mm.}$$

Zur weiteren Charakterisierung der Partikelgestalt läßt sich außerdem (analog der mathematisch definierten Krümmung) die „mittlere Krümmung“ der Teilchenoberfläche K aus Meßdaten der stereometrischen Analyse gewinnen [8, 50]:

$$\bar{K} = \frac{\pi \cdot N_D}{2a N_D} = \frac{\pi}{2} \frac{M \cdot V \cdot N_D}{H \cdot P} \quad (9)$$

(Bezeichnung wie Formel 6.)

Der Wert für die mittlere Krümmung der Oberfläche der UO_2 -Teilchen in Bild 4 a ergibt sich aus Quantimetmessungen zu $\bar{K} = 15,2 \cdot \text{mm}^{-1}$.

Ein anderer wichtiger Parameter des geometrischen Aufbaus von Cermets ist der Abstand der dispergierten Teilchen voneinander. Aufschluß darüber soll das Kriterium „Verteilungsgrad“ V_g geben. In der beschreibenden Statistik benutzt man den Variabilitäts- oder Variationskoeffizienten zur Beurteilung der Homogenität eines Kollektivs von Beobachtungen in bezug auf das untersuchte Merkmal [52]. Er ist definiert als Quotient aus der mittleren Streuung f der Einzelmessung und dem arithmetischen Mittel des Kollektivs. Übernimmt man diesen Quotienten zur Beschreibung des Verteilungsgrades und soll ideale Verteilung bei einhundert Prozent vorliegen, so gilt die Gleichung:

$$V_g = \left(1 - \frac{f}{x_s}\right) \quad (10)$$

$$\text{mit } f = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_1^N (x_i - x_s)^2}$$

(N = Gesamtzahl der Messungen (Umfang des Kollektivs))

$x_i = c_D/c_M$ = Konzentrationsverhältnisse der dispergierten Phase D und der Matrixphase M nach einer Einzelmessung

\bar{x} = Mittelwert aus allen Einzelmessungen,

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_1^N x_i$$

\bar{x}_s = Nominalwert des Konzentrationsverhältnisses der Phasen D und M , z. B. eingewogene Mengen).

Dem so definierten Verteilungsgrad liegt die Streuung von Konzentrationswerten um einen („theoretischen“) Nominalwert zugrunde. Der experimentelle Mittelwert muß sich mit steigender Zahl von Messungen dem Nominalwert asymptotisch nähern:

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \bar{x} = \bar{x}_s \quad (11)$$

Messungen an UAl_3 -Al-Verbundstoffen verschiedener Konzentrationen ergaben, daß die dispergierten Teilchen einer Normalverteilung gehorchen. Trägt man die gemessenen Flächenanteile in ein Diagramm mit Gauß'scher Ordinate ein (Bild 5), so ergeben sich Geraden. Der Verteilungsgrad ist dann um so besser, je steiler diese Geraden verlaufen. In der Glockenkurve zeigt sich dies durch Abnahme der Häufigkeit des Mit-

telwerts bei gleichzeitiger Verbreiterung der Glocke.

Die Konzentration wurde deshalb als „Merkmal“ gewählt, weil das zunächst näherliegende Meßkriterium, der Abstand zwischen den Teilchen, schwer bestimmbar ist. Würde man etwa den Abstand zwischen den Mittelpunkten nächst benachbarter Teilchen bestimmen, so müßte man bei unregelmäßiger Teilchengestalt erst diese Mittelpunkte festlegen. Eine Forderung, die nicht immer und nur mit großem Zeitaufwand erfüllbar wäre.

Für spezielle Fälle sind solche Abstände allerdings rechnerisch und meßtechnisch aus stereoanalytischen Daten bestimmbar [8, 41, 55 - 58], z. B. für Scheiben, Stäbchen [41], Ellipsoide [53, 54] und Kugeln. Allerdings ist sogar bei Kugelgeometrie des dispergierten Teilchens die mathematische Erfassung schwierig, und zwar insofern, als die Größenverteilung der Kugeldurchmesser aus Schnittkreisdurchmessern im Gefüge ermittelt werden muß [8, 59 - 69].

Bei der Festlegung des Verteilungsgrades ist der Fall nicht ausgeschlossen worden, daß mehrere Teilchen agglomerieren. Im Extremfall der Agglomeration (Segregation) wären aber die Cermetphasen entmischt. Für die Konzentrationsverhältnisse weist dieser Fall zwei Grenzwerte auf:

$$\bar{x}_i = \frac{c_D}{c_M} \left. \begin{array}{l} \right\} = 0 \text{ für } c_D = 0 \text{ und } c_M = 1 \\ \right\} = \infty \text{ für } c_D = 1 \text{ und } c_M = 0; \end{array}$$

mit ihnen ist

$$f \geq x_s \text{ und } V_g \leq 0\%,$$

(Bezeichnungen siehe bei Formel 10), d. h. je größer der „Agglomerationsgrad“, desto schlechter ist die Verteilung.

Es ist versucht worden, aus stereometrischen Gefügemessungen den Agglomerationsgrad als „Kontaktanteil“ [8, 51], „Skelettbildungsgrad“ [7] oder „Nahkontinuität“ [7, 55 - 57] quantitativ zu erfassen. Dazu benötigt man die Kenntnis der spezifischen Phasengrenzfläche O_P [8, 51]:

$$O_P = 4/l_D = 4 \cdot \frac{P \cdot M \cdot V}{A \cdot L} \quad (12)$$

(Bezeichnung siehe Formel 6 und Formel 10.) Im Falle des UO_2 -Mo-Gefüges in Bild 4 ergibt sich die spezifische Phasengrenzfläche zu $O_P = 62,3 \text{ mm}^{-1}$. Eine Bestimmung des Agglomerationsgrades über die ange-

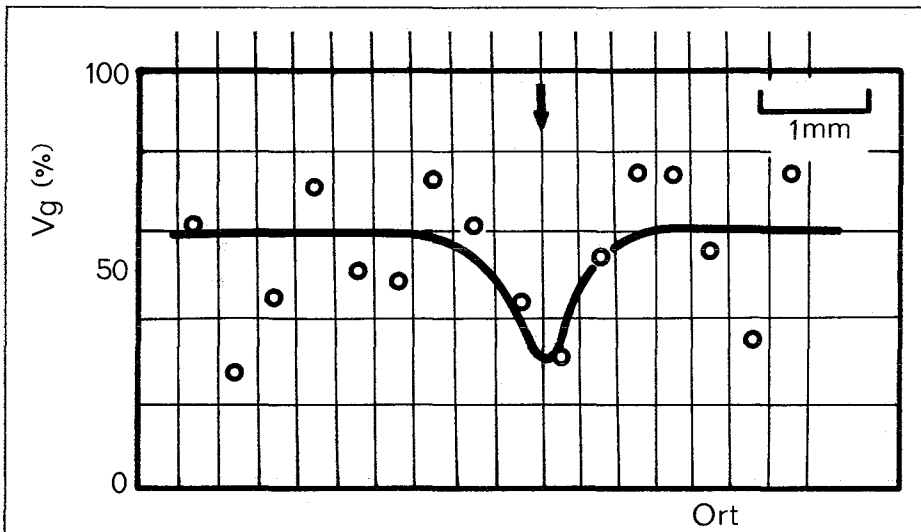
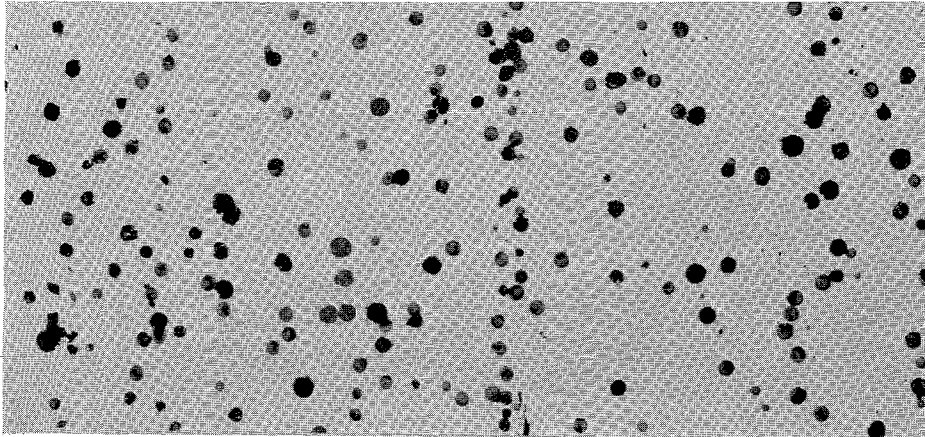


Bild 6: Verteilungsgrade V_g über den Querschnitt einer UO_2 -Cu-Probe (Mittelung über je 5 Meßfelder der Größe $300 \times 500 \mu m^2$)

6

fürten Begriffe scheidet jedoch meist daran, daß einerseits die Phasengrenzfläche nur im Festkörper bestimmbar ist, andererseits aber an eben diesem kompakten Körper die Partikelgrenzen zwischen Teilchen der gleichen Phase nicht mehr von den Korngrenzen unterschieden werden können.

Einen anderen Grenzfall stellt die „ideale“ Anordnung dar, d. h. eine Anordnung, in der die dispergierten Partikel gemäß einem – oder einer Kombination mehrerer – Kristallgitter in der Matrix angeordnet sind. In einem solchen Fall gibt es immer mehrere diskrete Abstände. Denkt man sich beispielsweise die eingelagerten Partikel so

angeordnet, daß sie die Ecken eines Würfels besetzen, so gibt es drei Abstände: Kante, Flächendiagonale, Raumdiagonale. Im kubisch-raumzentrierten Fall sind es ebenfalls drei, im kubisch-flächenzentrierten vier Abstände. Gibt man die möglichen Abstände als Vielfaches des kleinsten Abstandes an, so ergibt sich für die kubisch primitive Anordnung das Verhältnis $1 : 1,41 : 1,73$, für die kubisch-raumzentrierte Anordnung das Verhältnis $1 : 1,15 : 1,63$ und für die kubisch-flächenzentrierte Anordnung das Verhältnis $1 : 1,41 : 1,73 : 2,45$. Auch die Häufigkeit läßt sich angeben, mit der solche Abstände auftreten. Für dichteste Raumerfüllung mit sphä-

rischen Dispergententeilchen würden sich die Partikel sogar berühren. Dennoch läge keine Agglomeration, sondern vielmehr ideale Verteilung vor. Das Konzentrationsverhältnis für diesen Fall wäre immer $x_i = C_D / C_M = x_S$ ($f = 0, V = 100\%$). Auch dieser Grenzfall wird demnach durch die Gleichung (10) für den Verteilungsgrad befriedigt. Idealisierte Gefüge sollten diesem Grenzfall zustreben. Für das in Bild 4 a gezeigte UO_2 -Mo-Cermet wurde ein Verteilungsgrad von $V_g = 91\%$ erhalten, während für das nichtidealisierte UO_2 -Mo-Gefüge (Bild 4 b) der Verteilungsgrad $V_g = 36\%$ ermittelt wurde.

Zur experimentellen Ermittlung des Konzentrationsverhältnisses x_i sei noch folgendes bemerkt: Das „Meßkollektiv“, d. h. die Gesamtheit des zu prüfenden Cermetgefüges, sollte in möglichst viele Glieder für Einzelmessungen zerlegt werden, um den wahrscheinlichsten Fehler zu erhalten. Andererseits ist die Größe des Meßbereichs für eine Einzelmessung nach unten begrenzt:

$$F_{\min} = \frac{F_{D\max}}{C_D} \quad (13)$$

($F_{D\max}$ = Fläche eines größten, vorhandenen Dispergententeilchens; F_{\min} = minimaler Meßbereich; C_D = Konzentration der dispergierten Phase).

Die minimalen Meßbereiche enthalten bei idealer Verteilung stets die Nominalkonzentration, und zwar selbst dann, wenn die dispergierte Phase im Meßbereich nur als ein einziges Teilchen maximaler Größe vorliegt.

Der Verteilungsgrad wird alle Eigenschaften mehr oder weniger stark beeinflussen. Er ist besonders wichtig in Spaltstoffcermeten. Schlechter Verteilungsgrad kann dort zu Spaltstoffkonzentrationen führen, die unter Reaktorbedingungen Stellen unerwünscht hoher Temperaturen bilden (sogenannte hot spots). An solchen Stellen werden z. B. die Korrosionsbedingungen oder Festigkeitsdaten von den zulässigen Werten abweichen und damit die Betriebssicherheit des Reaktors in Frage stellen. Messungen von Verteilungsgraden im Gefüge einer UO_2 -Cu-Probe sind in Bild 6 wiedergegeben. In der Anhäufungszone ist der Verteilungsgrad nur etwa halb so groß wie in dem restlichen Gebiet.

Mit dem Verteilungsgrad ist die Reihe der Faktoren abgeschlossen, durch die der geometrische Aufbau von Cermets beschrieben werden kann. Es sind dies demnach

- a) die Bereiche der Einlagerungs- und Durchdringungsstruktur und
- b) der Bereich und die Lage des Matrixwechsels;
- c) die Partikelgröße der dispergierten Phase sowie
- d) die Partikelgestalt, d. h. Formfaktor und mittlere Krümmung;
- e) die Orientierung der dispergierten Partikel, d. h. ihr Texturfaktor sowie
- f) die spezifische Phasengrenzfläche;
- g) der Verteilungsgrad einschl. des Agglomerationsgrades.

Alle Faktoren konnten aus mikroskopischen Gefügebildern mit Zeiss-Mikroskop und Quantimet ermittelt werden. Sie sind in sich konsistent im Rahmen der Meßgenauigkeit, die beispielsweise durch Abschneiden von Schnittkreisen im vermessenen Bildausschnitt oder Überstrahlungen beim Selektieren herabgesetzt werden kann.

4. Literaturverzeichnis

- [1] *Delesse, M.*: Annales des Mines **13**, S. 379, 1848
- [2] *Rosiwal, A.*: Bull. Geol. Soc. Amer. **14**, S. 466, 1903
- [3] *Chayes, F.*: Petrographic Modal Analysis, John Wiley and Sons. Inc. N. Y., 1956
- [4] *Hennig, A.*: Zeiss-Werkzeitschrift **30**, S. 78, 1958
- [5] *Ondracek, G., Leder, B., Politis, C.*: Prakt. Metallographie, 5. Jg., H. 2., S. 74, 1968
- [6] *Neuer, H.*: Zeiss-Informationen, 14. Jg., H 60, 1966
- [7] *Exner, H. E., Petzow, G.*: BMWF-FBK **67-92**, 1967
- [8] *Mühlhaus, L., Kießkalt, S.*: Forschungsbericht des Landes Nordrhein-Westfalen Nr. 1762, 1966
- [9] *Dörfler, G., Plöckinger, E.*: Archiv f. d. Eisenhüttenwesen **36**, S. 649, 1965
- [10] *N. N.*: Zeiss-Informationen **53**, S. 104, 1964
- [11] *N. N.*: Metallurgia **68**, S. 295, 1964
- [12] *N. N.*: Metal Ind. **103**, S. 715, 1963
- [13] *N. N.*: New Scientist **20**, S. 208, 1963
- [14] *Schuck, J.*: Research/Development **17**, (4), S. 28, 1966
- [15] *Cole, M.*: The Microscope and Crystal Front **15**, (4), S. 148, 1966
- [16] *Fisher, C.*: Particle Size Conf., Paper **9**, 1966 (Soc. Anal. Chem.)
- [17] *Gray, R.*: ORNL-TM-1733, S. 68, 1967
- [18] *N. N.*: Automation May 1967
- [19] *Radtko, D., Schreiber, D.*: Stahl und Eisen **86**, S. 89, 1966
- [20] *Rose, A., Mathesius, H. R., Hougardy, H. P.*: Arch. Eisenhüttenwesen **38**, (6), S. 460, 1967
- [21] *Roberts, G. A.*: Trans. Met. Soc. AIME **236**, S. 950, 1966
- [22] *Hofer, F.*: Radex Rundschau, H. **3/4**, 1967
- [23] *Dudek, A. B.*: Radex Rundschau H. **3/4**, 1967
- [24] *Martensson, H.*: Fagersta Former Nr. 4, 1965
- [25] *Nassenstein, H.*: Chem. Ing. Technik, 26. Jg., Nr. 12, S. 661, 1954
- [26] *Fisher, C., Cole, M.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 81, 1968
- [27] *Fisher, C., Nazareth, L. J.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 95, 1968
- [28] *Loveridge, B. A., McJumes, C. A. J.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 105, 1968
- [29] *Jesse, A., Ondracek, G.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 115, 1968
- [30] *Smith, M. J.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 123, 1968
- [31] *Lindon, P. H.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 137, 1968
- [32] *Roche, R.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 151, 1968
- [33] *Allmand, T. R.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 163, 1968
- [34] *Hofer, F.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 171, 1968
- [35] *Strang, A.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 181, 1968
- [36] *Blank, S. R.*: The Microscope, Vol. **16**, S. 189, 1968
- [37] *DeHoff, R. T., Rhines, F. N.*: McGraw Hill, N. Y., 1965
- [38] *Brandon, D. G.*: Butterworth London, S. 252, 1966
- [39] *Ondracek, G., Patrassi, E.*: Ber. DKG H. **12**, S. 617, 1968
- [40] *Gebhardt, E., Ondracek*: J. Nucl. Mat. **13**, Nr. 2, S. 210, 1964
- [41] *Fullmann, R. L.*: Transactions AIME, J. of Metals **5**, (3), S. 447, 1953
- [42] *Lietzmann, W.*: Verlag Vandenhoeck und Ruprecht, Göttingen, 1949
- [43] *Macrae, J. C., Gray, W. A.*: Brit. J. Appl. Physics **12**, S. 164, 1961
- [44] *Scott, G. O.*: Nature **188**, 4754, S. 908, 1960
- [45] *Horsfield, H. T.*: Soc. Chem. Ind. **53**, (4), Transactions S. 107, 1934
- [46] *Hudson, D. R.*: J. Appl. Physics **20**, (2), S. 154, 1949
- [47] *Wise, M. E.*: Philips Res. Rep. **7**, (5), S. 321, 1952
- [48] *Bumm, H., Thümmler, F., Weimar, P.*: II. Europäisches Symposium über Pulvermetallurgie, Bd. I., Bericht Nr. 4.12, 1968
- [49] *Heywood, H.*: Proc. Inst. Mech. Engrs. **125**, (12), S. 383, 1933
- [50] *Dietze, H. D.*: Techn. Mitt. Krupp **17**, (3), S. 103, 1959
- [51] *Smith, C. S., Guttman, L.*: Transactions AIME, J. of Metals **5**, (1), S. 81, 1953
- [52] *Schröder, K., Reissig, G., Reissig, R.*: Mathematik für die Praxis. Bd. III., Verlag Hari Deutsch Frankfurt/M. und Zürich, S. 31, 1964
- [53] *Wicksell, S. D.*: Biometrika **17**, S. 84, 1925
- [54] *Wicksell, S. D.*: Biometrika **18**, S. 151, 1926
- [55] *Gurland, J.*: Transact. of the Metallurgical Soc. of AIME **212**, (8), S. 452, 1958
- [56] *Gurland, J.*: in Pulvermetallurgie in der Atomkern-technik, 4. Planseeseminar, S. 507, 1962
- [57] *Gurland, J.*: Transact. of the Metallurgical Soc. of AIME **236**, S. 642, 1966
- [58] *Forscher, F.*: J. Franklin Inst. **259**, S. 107, 1955
- [59] *Scheil, E.*: Z. anorg. und allg. Chemie **201**, S. 259, 1931
- [60] *Scheil, E.*: Z. Metallkunde **27**, (9), S. 199, 1935
- [61] *Kendall, M. G., Stuart, A.*: Distribution Theory, 2. Auflage, Verlag Griffin London, 1963
- [62] *Lenz, F.*: Optik **11**, S. 524, 1954
- [63] *Dietze, H. D.*: Techn. Mitt. Krupp **13**, S. 51, 1955
- [64] *Gurland, J., Bardzil, P.*: Trans. Met. Soc. AIME **203**, S. 311, 1955
- [65] *Hyam, E. D., Nutting, J.*: J. Iron Steels Inst. **184**, S. 148, 1956
- [66] *Bockstiegel, G.*: Z. Metallkunde **57**, S. 647, 1966
- [67] *Exner, H. E.*: Z. Metallkunde **57**, S. 755, 1966
- [68] *Exner, H. E.*: Prakt. Metallographie **3**, S. 334, 1966
- [69] *Exner, H. E.*: Metall **21**, S. 431, 1967
- [70] *Manegold, E., Hofmann, R., Solf, K.*: Kolloid-Z. **56**, (2), S. 142, 1931; [71] *Roche, R.*, Metaux Corrosion Industrie, Nr. 510, 511, 512, Febr. - April, 1968

Anpassung von Mikroskopen unterschiedlicherBauart an das Quantimet

Ein Beitrag zur quantitativen Fernsehmikroskopie ⁺)

Manfred Mertz

Anatomisches Institut der Universität Tübingen

Zusammenfassung

Es wird über die technische Anpassung zweier Mikroskope der Firmen LEITZ und ZEISS an das QTM berichtet. Der prinzipielle Vorteil einer dabei durchgeführten Trennung von bildaufnehmendem und bildauswertendem Teil im Falle einer Verwendung des QTM für Forschungszwecke wird an Hand von Beispielen dargestellt. Er ist in der Möglichkeit zu sehen, das Mikroskop leicht mit einer für die jeweilige individuelle Fragestellung nötigen Zusatzeinrichtung auszurüsten. So können z.B. besondere Beleuchtungssysteme, Mikrophotographie oder Mikrophotometrie ohne zusätzliche Schwierigkeiten angewendet werden.

In einem zweiten Teil wird auf die Möglichkeiten hingewiesen, die durch Anbau einer Zeicheneinspiegelung erschlossen werden können. Solche sind: die Messung kontrastarmer biologischer Strukturen über den Weg einer Zwischenzeichnung, die Auswertung von EM-Bildern, die direkte Messung der Schirmgröße des Monitors, die variable objektorientierte Mikrometereinspiegelung in Hell- und Dunkelfeld sowie die Prüfung und Eichung von QTM-Funktionen, dargestellt am Beispiel der "Minimum-Chord".

Einleitung

Häufig wird die Frage aufgeworfen, von welcher Qualität ein Mikroskop sein müsse, das im Zusammenhang mit dem QTM Verwendung finden soll. Die optischen Eigenschaften des serienmässigen Typs erfüllen die Ansprüche nicht aller derer, die

⁺) Teilweise vorgetragen auf dem Quantimet-Kolloquium in Frankfurt (Main) (8. - 10.5.1968)

gewohnt sind, mikroskopisch zu arbeiten. Man hat offenbar den finanziellen Aufwand auf der optischen Seite verhältnismässig niedrig gehalten, weil die Vidikonröhre der Fernsehkamera in ihrem Auflösungsvermögen deutlich unter dem liegt, was mit mikroskopischer Optik erreichbar ist. Dieses Argument ist sicher für einen grossen Teil der möglichen QTM-Anwendungen nicht von der Hand zu weisen. Es gibt aber besonders im biologischen Bereich oft Objekte, die sich nur in dünnen histologischen Schnitten untersuchen lassen. Solche Präparate haben meistens einen etwa im Vergleich zu Metallproben ausserordentlich geringen Bildkontrast. Zufriedenstellende Bilder lassen sich dann nur mit sehr hochwertigen Objektiven bei exakter optischer Justierung erreichen, wobei das KÖHLERSche Beleuchtungsprinzip als Grundbedingung eingehalten werden muss. Oft ist es auch nötig, eine Spezialbeleuchtung anzuwenden, wie z.B. für grosse Leuchtdichte eine Xenon- oder Quecksilberdampflampe, für Licht definierter Wellenlänge einen Monochromator usw. Auch kann gefordert sein, dass es ohne Umbau des Gerätes möglich ist, Mikrophotographien herzustellen, um eine sonst nicht wieder auffindbare Präparatstelle in einem "Photoprotokoll" festzuhalten. Schliesslich ist es denkbar, dass Vergleichsmessungen an derselben Präparatstelle mit einer anderen Apparatur vorgenommen werden sollen, z.B. mit einem Photometer. Alle diese Überlegungen führen dazu, dass es für Forschungszwecke sinnvoll sein muss, Mikroskop und QTM, also bildaufnehmenden und bildauswertenden Teil, räumlich voneinander zu trennen. Das Mikroskop lässt sich dann leicht allen individuellen Fragestellungen anpassen.

Ausbau der Kamera

Dabei taucht zunächst die Frage auf, ob die Fernsehkamera aus dem QTM herausgenommen werden darf. Die dafür nötige Verlängerung der Zuleitungen macht eine Änderung der elektronischen Eichung erforderlich.¹⁾

1) Durch das Entgegenkommen der Fa. Metals Research Ltd., Cambridge, wurde unser QTM gleich mit ausgebaute Kamera an 2 m langen Kabeln geliefert.

Im QTM ist die Kamera horizontal gelagert. Es ist sicher zweckmässig, diese Ausrichtung auch bei einer freien Montage beizubehalten, da sich dann weniger leicht Staubteilchen von innen her auf der lichtempfindlichen Schicht ablagern können als bei vertikaler Anordnung. Ebenso ist dafür zu sorgen, dass sich auch aussen kein Staub auf die Röhre setzen kann; er würde mitabgebildet und damit auch mitgemessen werden.

Anpassung der Mikroskope

Unsere Versuche zur Anpassung grosser Forschungsmikroskope an das QTM haben wir mit dem "Ortholux" der Firma LEITZ und dem "Standard-Universal-Mikroskop" der Firma ZEISS vorgenommen.¹⁾ Mit beiden sind wir zu guten Ergebnissen gekommen.

1. "Ortholux"

Die Abb.1 zeigt das "Ortholux" in Verbindung mit dem QTM. Das Mikroskop steht auf einer schweren Stativplatte. Die Säulen des Statives tragen eine Schienenkonstruktion, an der ein Kameraträger angeklemt ist; auf diesem ruht die Fernsehkamera. Das mikroskopische Bild wird nun durch ein Projektiv über ein Umlenkprisma auf die Frontfläche des Vidikon geworfen. Es kann ohne Veränderung der Schärfeneinstellung im Binokulartubus und auf dem Monitor betrachtet werden.

Bei diesem einfachen und statisch sehr günstigen Aufbau werden nur serienmässige Bauteile verwendet, und zwar in derselben Form, wie sonst bei der zu Kurszwecken gebräuchlichen Fernsehmikroskopie-Einrichtung. Alle üblichen Variationen mikroskopischer Ausrüstung lassen sich durchführen. Im abgebildeten Beispiel ist an das Stativ eine Xenonlampe angebaut. Das mit ihr hervorgerufene Auflichtbild lässt sich wahlweise allein oder zusammen mit dem normalen Durchlichtbild beobachten. Auch die Mikrophotographie ist prinzipiell

1) Die Mikroskope wurden uns freundlicherweise von den beiden Firmen zu diesem Zweck leihweise zur Verfügung gestellt.

möglich, jedoch sind dazu einige Konstruktionsänderungen nötig; sie werden zur Zeit noch erprobt.

Über Zeicheneinspiegelung siehe unten.

2. "Standard-Universal-Mikroskop"

Die Anpassung des "Standard-Universal-Mikroskops" der Firma ZEISS bereitete zunächst etwas grössere Schwierigkeiten, da hier bei der serienmässigen Fernseheinrichtung kein besonderes Stativ verwendet, sondern die Kamera einfach senkrecht auf das Mikroskop aufgesetzt wird. Das QTM-Vidikon sollte aber besser nicht gestürzt werden. Deshalb haben wir die Kamera an einem Tragarmstativ waagrecht aufgehängt und das Bild über zwei Prismen auf die Bildröhre geworfen (s. Abb. 2). Das kameranahe Prisma ist fest in seinem Gehäuse montiert, das kameraferne drehbar gelagert, so dass das Bild anstatt auf die Aufnahmeröhre zu einer aufsetzbaren Kleinbildkamera geworfen werden kann. Im übrigen sind natürlich auch an diesem Mikroskop alle gebräuchlichen Spezialeinrichtungen zu adaptieren. In unserem Beispiel ist für die Durchlichtbeleuchtung eine Niedervoltlampe, für die Auflichtbeleuchtung eine Quecksilberdampf-Höchst-Drucklampe (OSRAM HBO 200 W) eingebaut. Beide sind auch kombiniert miteinander zu verwenden, wie es einige unserer Fragestellungen erfordern.

Zeicheneinspiegelung

Auch mit sehr hochgezüchteten mikroskopischen Optiken lassen sich nicht alle Messprobleme lösen. In den biologischen Präparaten treffen wir häufig auf Strukturen, die sich in ihrer Lichtabsorption kaum voneinander unterscheiden. Oft ist es auch durch Anfärbung nicht möglich, die Kontrastunterschiede so zu verstärken, dass sie für das QTM wahrnehmbar werden. Ausserdem haben diese Objekte meist keinen in sich gleichmässigen Grauwert, z.T. ist dieser sogar niedriger, als der von Partikeln in der Umgebung. Dann sind z.B. Zellkerne, die wir auf Grund des Formerkennungsvermögens einwandfrei sehen und beurteilen können, durch den elektronischen Detektor nicht zu erkennen, weil sie sich im Grau-

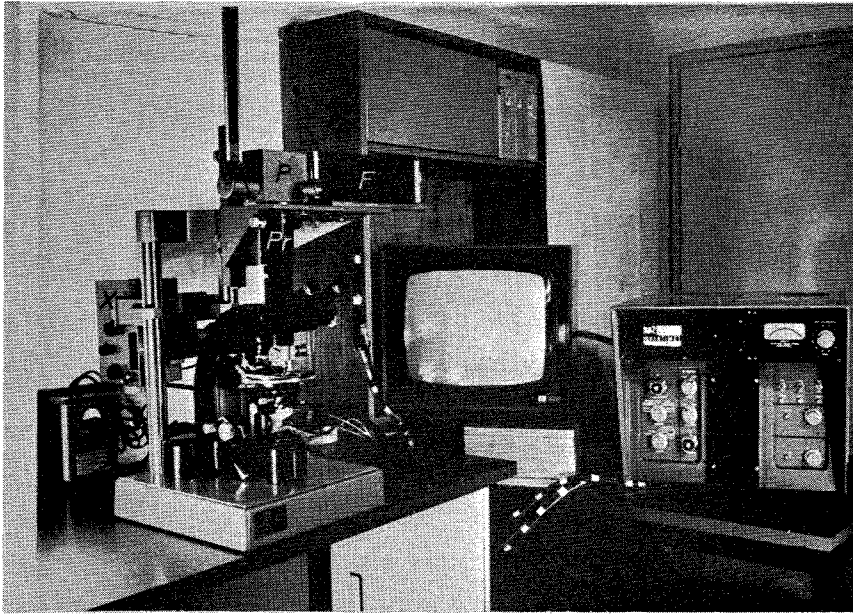


Abb.1: Anpassung des Forschungsmikroskopes "Ortholux" (Leitz) an das QTM. Das mikroskopische Bild wird über ein Projektiv (Pr) und ein Umlenkprisma (P) auf die Vidikonröhre der Fernsehkamera (F) geworfen. X = Lampengehäuse der Xenonlampe

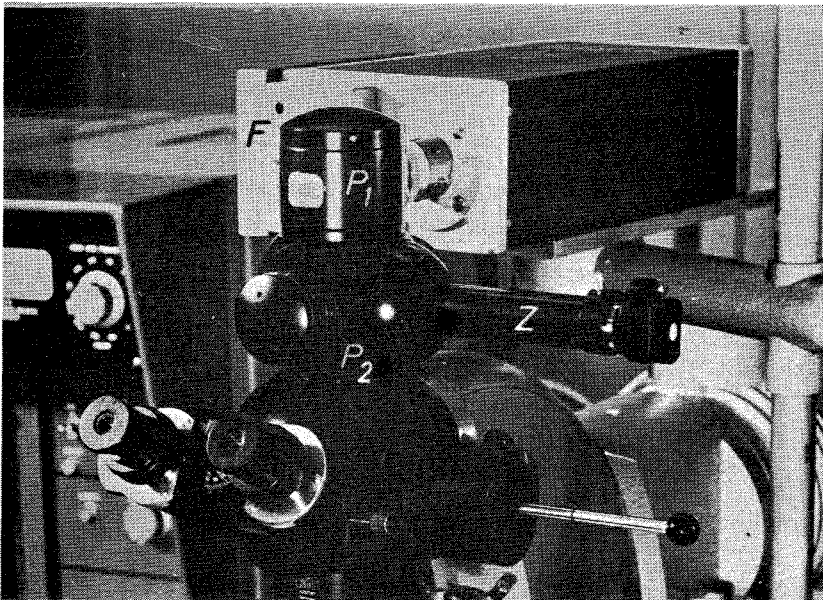


Abb.2: Adaption der Fernsehkamera an das "Standard-Universal-Mikroskop" (Zeiss). Das mikroskopische Bild wird über das Prisma P_1 auf die Vidikonröhre geworfen. In den Strahlengang ist ein Würfel mit einem zweiten, drehbaren Prisma eingeschaltet ("Photowechsler", P_2), durch das über eine Zeicheneinrichtung (Z)² das Bild einer Zeichenfläche eingespiegelt werden kann. Eine dritte Stellung erlaubt die Umlenkung des Bildes auf eine anzusetzende Kleinbildkamera

wert nicht genügend vom Untergrund abheben (s. Abb. zum Vortrag von Prof. Hinrichsen). Hier bietet sich für die Lösung mancher Fragestellungen der Umweg über die Zeichnung an. Dazu wird mit einem Strahlenteilersystem über ein Prisma eine Zeichenfläche so in das Mikroskop eingespiegelt, dass sie gleichzeitig mit dem mikroskopischen Substrat scharf abgebildet und binokular betrachtet werden kann. Ebenso werden beide Bilder gleichzeitig auf die Frontfläche der Fernsehkamera geworfen (s. Abb. 2). Zeichnet man die zu untersuchenden Gewebsteile nun aus dem Präparat heraus, so kann man diese Zeichnungen sofort ohne irgendwelche Umbauten mit dem QTM auswerten.

Dies sei an einem Beispiel kurz demonstriert. Heinzel und Scharmann (1967) errechnen die Grundhäutchen-Oberfläche des Gefässknäuels im Nierenkörperchen (eine für die Filtrationsleistung der Niere wichtige Grösse) durch die Schnittpunkte der aus einzelnen Serienschnitten herausgezeichneten Membranteile mit einem darübergerlegten Linienraster (s. Abb. 3). Dieses Vorgehen entspricht der Auswertung mit der "projection"-Messung des QTM. Es ist aber am Präparat selbst nicht durchführbar, weil sich ausser der Membran noch andere Strukturen mit dem Markierungsstoff darstellen. Bei der vorgeschlagenen Herauszeichnung und sofort anschliessenden QTM-Auswertung fällt diese Schwierigkeit fort (s. Abb. 4). Die durch solches Zeichnen entstehende Fehlergrösse ist ja seit langem bekannt und wird bei derartigen Untersuchungen in Kauf genommen (s. Romeis 1948). Die Einspiegelung einer Zeichenfläche ist sowohl beim "Standard-Universal-Mikroskop" (ZEISS) als auch beim "Ortholux" (LEITZ) mit serienmässigen Bauteilen durchführbar, sie bringt keine Nachteile für die übrigen Mikroskopfunktionen.

Weitere Anwendungsmöglichkeiten sind:

1. als Epi-diaskop

Die Zeicheneinrichtung kann die Aufgabe eines Epi-diaskops übernehmen und damit die Auswertung elektronenmikroskopischer Bilder ermöglichen. Zwar ist das QTM neuerdings auch direkt

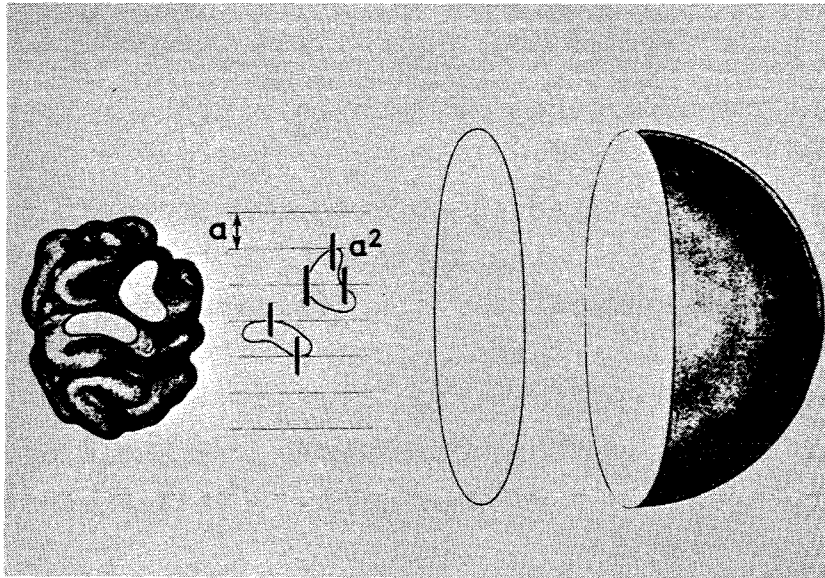


Abb.3: Von links nach rechts: Rekonstruktion (Wachsplattenmodell) der Grundhäutchenfläche eines Glomerulum der Forellenniere mit abgenommenem ersten Serienschchnitt. -Linienraster mit aufgelegtem ersten Serienschchnitt und senkrecht zu den Linien errichteten Flächen (a^2) in den Schnittpunkten des Grundhäutchens mit den Rasterlinien. - Überführen des Produktes aus der Zahl der Schnittpunkte (P) und der Flächengröße (a^2) in eine Kreisfläche ($P \cdot a^2 = r^2$). - Berücksichtigung der verschiedenen Neigungen der Flächen (a^2) durch Überführen der Kreisfläche (r^2) in die Oberfläche der zugehörigen Halbkugel ($2 \cdot r^2$).
(Aus Heinzel und Scharmann 1967)

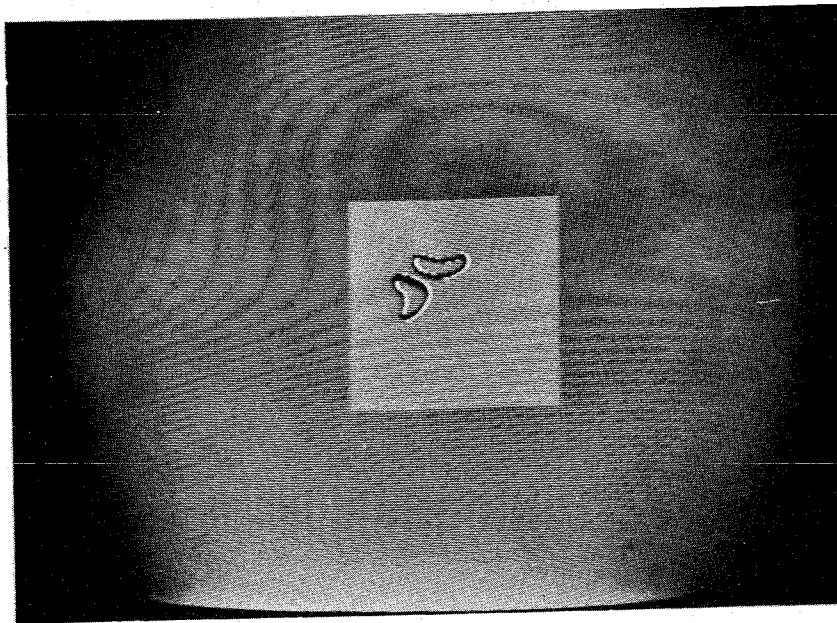


Abb.4: Verwendung des QTM im Zusammenhang mit einer Zeicheneinspiegelung für die in Abb.3 geschilderte Oberflächenmessung. Der Zeilenabstand "a" kann durch Veränderung des Abbildungsmaßstabes der Zeichnung stufenlos variiert werden. QTM-Einstellung: "projection".

an ein Elektronenmikroskop anzuschliessen, aber bei den meisten biologischen Fragestellungen wird man ohnehin auf die Anfertigung eines photographischen Zwischenbildes nicht verzichten, schon weil sich hierdurch bestimmte Strukturen "QTM-gemäss" herausarbeiten lassen (s. Abb. 5 und 6). Ausserdem kann man auf diese Weise leichter auf archivierte frühere Befunde zurückgreifen. Als Beispiel einer solchen Auswertung seien hier elektronenoptische Aufnahmen der Noradrenalin-Granula in der Nebenniere des Goldhamsters gezeigt (s. Abb. 7 bis 10).

2. Bildgrösse des Monitors

Zum zweiten kann diese Einspiegelung die Feststellung von Grössen auf dem Schirm erleichtern, indem man ein Millimeterpapier abbildet (s. Abb. 11). Die bisher üblichen Messungen "von aussen" waren durch die Wölbung der Röhrenoberfläche sehr erschwert.

3. "Okularmikrometer"-Funktion

Ein zusätzlich zum mikroskopischen Bild eingespiegeltes Millimeterpapier kann die Funktion eines Okularmikrometers übernehmen. Die Einspiegelung ist diesem sogar überlegen, weil der Vergrösserungsmaßstab nicht starr festgelegt ist, sondern man sich bei seiner Wahl an den Strukturen des Objektes orientieren kann. Wird durch die stufenlose Änderung der Entfernung zwischen ^{zu}Prisma und Fläche ein "Okular"-Maßstab gefunden, der sich/den Einheiten eines Objektmikrometers ganzzahlig verhält, so können die erforderlichen Umrechnungen sehr vereinfacht werden (s. Abb. 12). Durch negativen Kontrast lässt sich diese Einrichtung auch dem Dunkelfeld anpassen (s. Abb. 13).

4. Eichungsmessungen

Schliesslich wird mit dieser Einspiegelung dem QTM-Benutzer die Kontrolle und Eichung verschiedener Funktionen seines Gerätes ermöglicht, wie im folgenden an der Untersuchung der "Minimum-Chord" gezeigt werden soll.

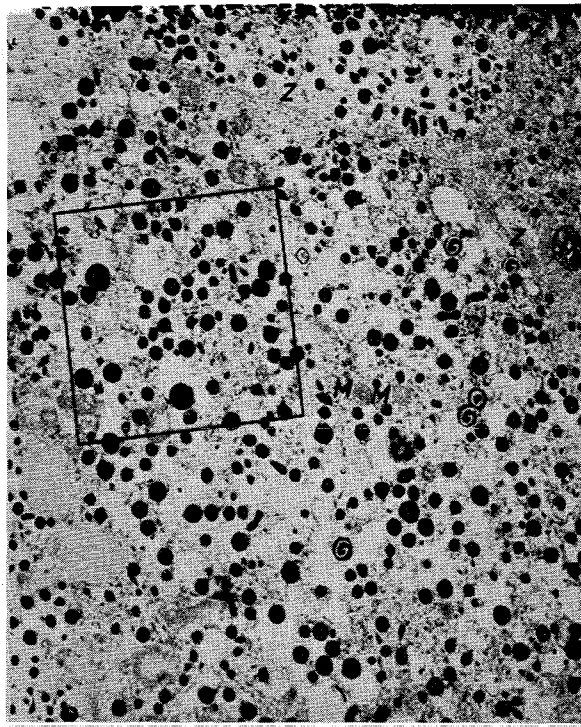


Abb.5: Noradrenalin-Granulä im Nebennierenmark des Goldhamsters. Elektronenmikroskopische Aufnahme, Vergrößerung 20 340-fach. Übliche photographische Technik. Z = Zellgrenzen, M = Mitochondrien, G = Granula. (Fixierung in Glutardialdehyd bei pH 8, Nachbehandlung mit Kaliumbichromat, Bleikontrastierung nach Karnovsky). Quadratischer Ausschnitt: vgl. Abb.7 - 10

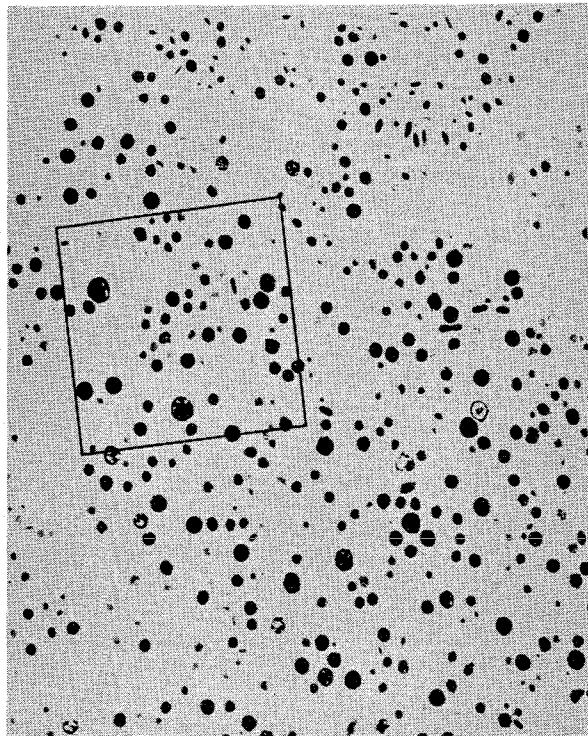


Abb.6: Dasselbe Präparat wie in Abb.5. Spezialvergrößerung für die QTM-Auswertung

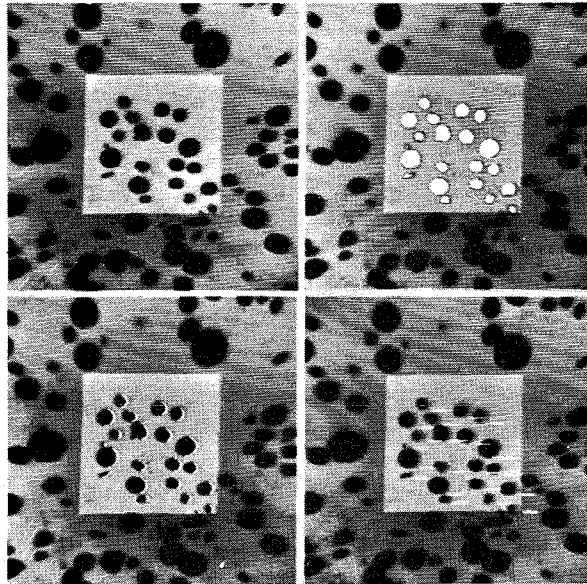


Abb.7 - 10: Quantitative Auswertung eines elektronenoptischen Bildes mit Hilfe der Zeicheneinspiegelung (vgl. Abb.5 und 6). 7: Übersicht, 8: Flächenmessung, 9: Projektion, 10: Zählung. Schirmbildaufnahmen

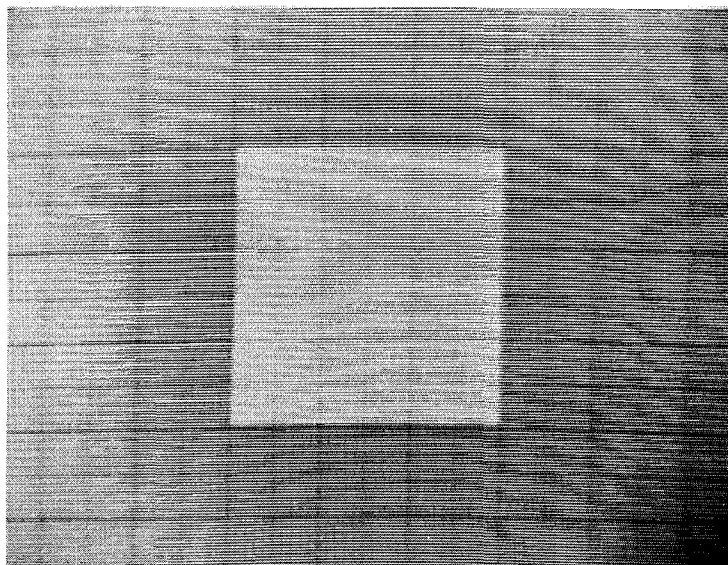


Abb.11: Einspiegelung von Millimeterpapier mit dem Zeichengerät. Die Feststellung von Größen auf dem Schirm wird gegenüber der Messung an der gewölbten Aussenoberfläche wesentlich erleichtert.

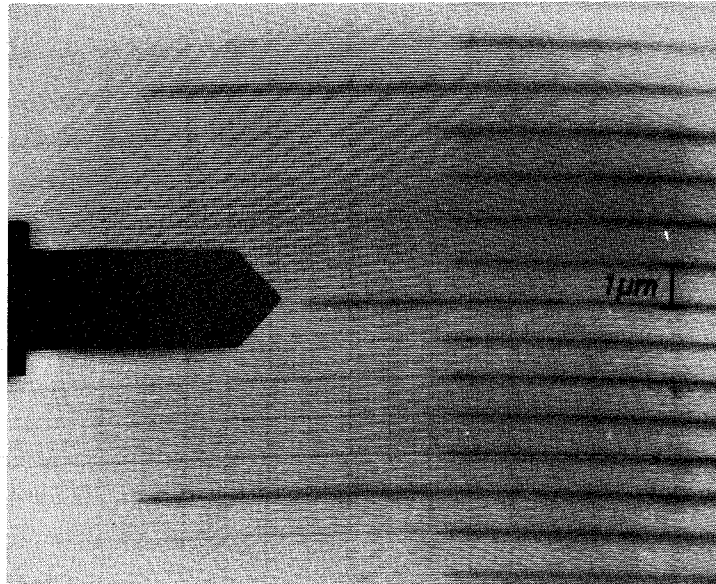


Abb.12: Zeicheneinspiegelung als "Okularmikrometer": Gleichzeitige Abbildung eines Objektmikrometers (Leitz) und eines Millimeterpapiers. 1μ entspricht 5 mm. Schirmbildaufnahme.

Längenmessungen mit Hilfe der "Minimum-Chord"

Mit dem QTM ist es möglich, Längen in der Form von Durchmessern zu bestimmen. Liegen in einem Präparat Objekte gleicher optischer Dichte, aber unterschiedlicher Grösse vor, so kann man bei der Zählung ("count") eine grössenabhängige Auswahl unter ihnen treffen, indem man Mindestgrössen vorgibt, unterhalb derer die Zählfunktion unterdrückt wird. Diese Auswahl wird nach der Länge der Zeit getroffen, die der Elektronenstrahl braucht, um ein Objekt zu überqueren; sie ist dessen Durchmesser proportional. Man kann nun mit Hilfe eines von der Herstellerfirma als linear bezeichneten zehngängigen Potentiometers Mindestzeiten reproduzierbar vorgeben. Somit lässt sich der Durchmesser eines Objekts bestimmen, indem man beobachtet, bei welcher Potentiometerstellung der Zählimpuls gerade verschwindet. Die abgelesene Zeit (in willkürlichen Potentiometereinheiten von 0-1000) muss der Grösse des Teilchens proportional sein.

Nun ist es nicht einfach, das Potentiometer so zu eichen, dass man aus dem abgelesenen Wert auf eine echte absolute Strecke schliessen kann. Denn dazu müsste man Objekte definierter Grösse vorlegen, eine für den mikroskopischen Bereich kaum zu erfüllende Forderung. Hier kann es nützlich sein, ein Epidiaskop oder die oben angegebene Einspiegelungsvorrichtung anzuwenden und mit dieser Hilfe makroskopische Objekte auf den Schirm zu projizieren. Immerhin bleibt auch dann das Problem, Objekte herzustellen, die nicht nur in ihrer Grösse genau definiert sind, sondern bei denen diese Grösse herstellungsbedingt auch um denselben Betrag schwankt (Forderung identischer Fehlergrösse). Es ist deshalb sehr aufwendig, einen Standard herzustellen, der z.B. aus kreisförmigen Scheiben wachsender Durchmesser oder aus Bändern wachsender Länge aufgebaut ist und der diesen Bedingungen genügt.

Zur Lösung des Problems kann man sich die Natur des Fernsehbildes zunutze machen, wenn man von folgender Überlegung ausgeht: Eine dreieckige Fläche beinhaltet von der

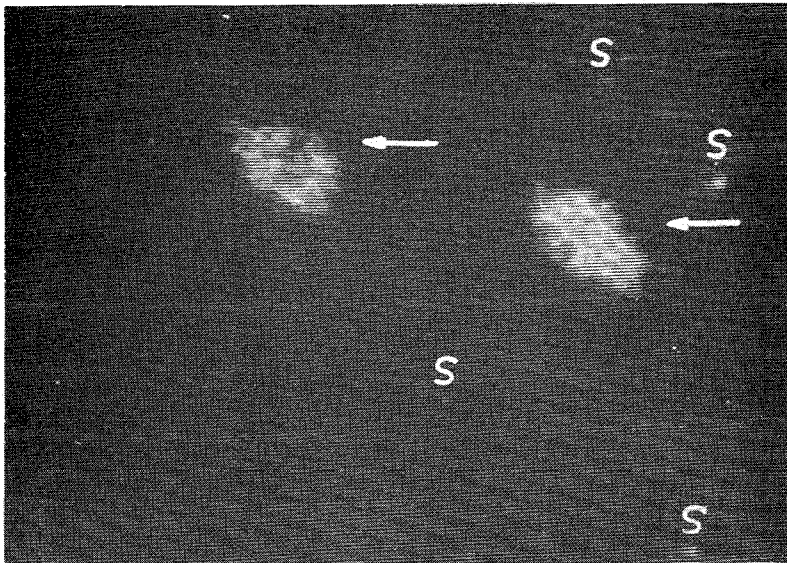


Abb.13: Einspiegelung eines negativen Millimeterpapiers (auf photographischem Wege hergestellt), gleichzeitig mit normaler Auflicht-Dunkelfeld-Mikroskopie. Die Pfeile bezeichnen zwei Silberkornanhäufungen über Zellkernen in einem histologischen Schnitt (Autoradiographie).
S = einzelne Silberkörner. Schirmbildaufnahme.

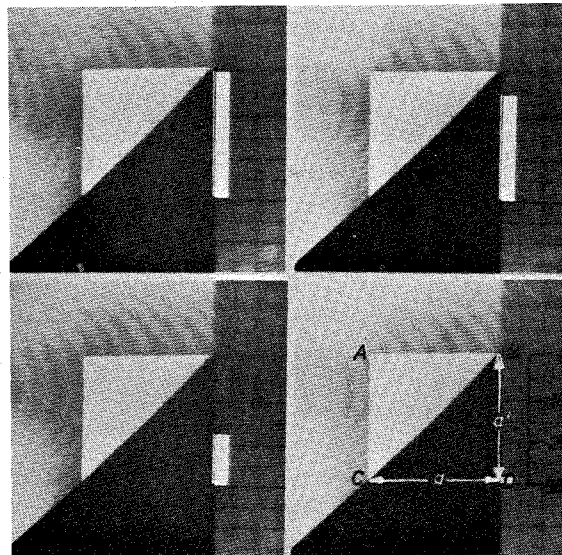


Abb.14 bis 17: Standard zur Eichung der "Minimum-Chord"-Funktion. Gleichschenkliges, rechtwinkliges Dreieck, über die Zeicheneinrichtung eingespiegelt (schwarz). Durch das Zeilenraster wird das Dreieck in Streifen definierter Länge zerlegt: Da die horizontale Strecke "a" gleich der vertikalen "a" ist, kann ihre Länge an dem seitlichen Maßstab (Millimeterpapier) abgelesen werden. So läßt sich jeder gemessenen Strecke ein Potentiometerwert zuordnen (In den Beispielen abzulesende Meßwerte: 0; 5; 17 und 28 mm).

Spitze bis zur Basis Linien wachsender Länge. Sie haben alle dieselbe Fehlergrösse, bedingt durch die beim Zeichnen an den Umrissen entstehende Ungenauigkeit. Man kann es nun dem Zeilenraster der Kamera überlassen, entsprechende Streifen aus dem Dreieck "herauszuschneiden".

Bewährt hat sich folgende Methodik: Aus dünnem schwarzen Zeichenkarton wird mit einer Papierschneidemaschine ein gleichschenkeliges, rechtwinkeliges Dreieck ausgeschnitten. Um den Fehler an der Kante möglichst niedrig zu halten, wird es mehrfach photographisch verkleinert. Dabei wird ein feinkörniger Film, hart arbeitender Entwickler und sogenanntes "technisches Papier" verwendet. Zuletzt wird ein solches Photo zusammen mit einem Streifen Millimeterpapier auf einen Karton aufgezogen. Dieses Vorgehen erlaubt, die Länge jedes horizontalen Abstandes an der senkrechten Millimeter-skala abzulesen. Damit ist die Forderung erfüllt, für jede messbare Länge eine definierte Strecke vorlegen und die dazugehörigen Potentiometereinheiten-Zahl feststellen zu können (s. Abb. 14 - 17).

Messversuche mit dieser Anordnung ergaben tatsächlich eine weitgehende Linearität des "Minimum-Chord"-Potentiometers. Es wurden dazu in neun Messreihen die Potentiometereinheiten festgestellt, die den Längen von 1 - 17 mm (obere Grenze bei dem zur Messung gewählten Abbildungsmaßstab) entsprachen. Der erhaltene Zusammenhang ist in der Abb. 18 graphisch dargestellt. Im Mittel entspricht 1 mm im Objekt $58,32 \pm 6,40$ Potentiometereinheiten (PE). Die Regressionsgerade ist

$$y = - 15,37 + 58,37 \cdot x$$

Bei genauer Betrachtung der aufgetragenen Messpunkte ist zu erkennen, dass sie nicht auf einer Geraden, sondern auf einer nach oben konkaven Kurve liegen. Dieser Effekt wurde zunächst einer Nicht-Linearität des Potentiometers

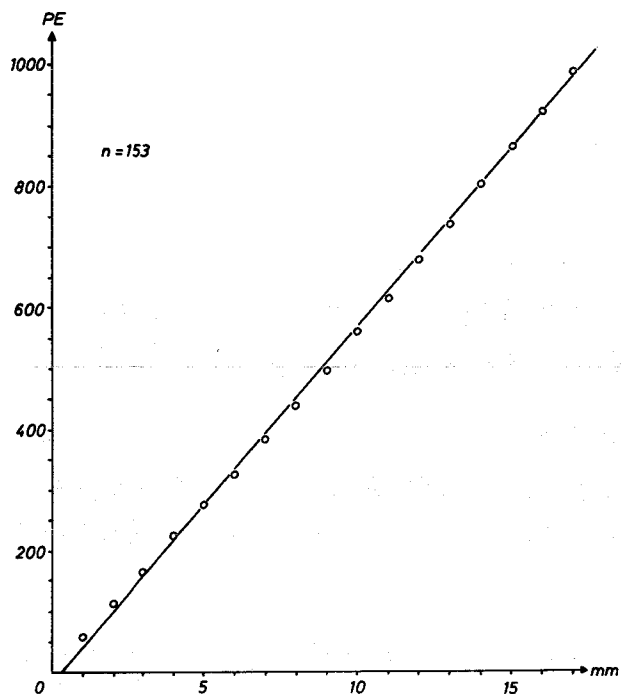


Abb.18: Zusammenhang zwischen gemessener Strecke in Millimetern (x-Achse) und abgelesenen Potentiometereinheiten (y-Achse; PE) des "Minimum-Chord"-Potentiometers. Mittelwerte aus 153 Messungen. Standardabweichung und Regressionsgrade siehe Text.

zugeschrieben. Eine Prüfung der Schirmbildaufnahmen ergab jedoch, dass er wohl auf einen Abbildungsfehler zurückzuführen ist. Die Untersuchungen darüber, ob dieser optischer oder elektronischer Natur ist, sind noch nicht abgeschlossen.

Literatur

Heinzel, W. und I.Scharmann:

Die Bestimmung der Grundhäutchenfläche des Glomerulum
Gegenbaurs morph. Jb. 111, 275 - 278 (1967)

Metals Research Ltd.:

The Quantimet (QTM) Image Analysing Computer.
Instruction Manual. p. 23, Cambridge, England

Romeis, B.:

Mikroskopische Technik, 15 Aufl., S.215, § 906.
München: R.Oldenbourg 1948

Vergleich der Aussagen der Diergartenrichtreihe
für Automatenstähle mit den Ergebnissen des QTM
und Gegenüberstellung von Schliffauswertungen
nach beiden Verfahren ⁺)

D. Schreiber und H. Ziehm

Hoesch AG. Versuchsanstalt, Hohenlimburg.

Zusammenfassung

Die Diergarten-Richtreihe für die Beurteilung der Automatenstähle läßt sich mit Hilfe des quantitativen Fernsehmikroskopes (QTM) beschreiben. Damit ist die Möglichkeit gegeben, Auswertungen objektiv zu vergleichen. Es sind jedoch einige Sprünge in den absoluten Werten für den Flächenanteil zu beobachten.

Ähnliches gilt für den Streckungsgrad der Schlacken.

Eine Auswertung an Schliffen nach Richtreihe und QTM zeigt die gleichen Zusammenhänge, wie sie bei der Auswertung der Bilder aus der Richtreihe selbst zu finden waren.

Subjektive Einflüsse, die in das Ergebnis nach der Richtreihenauswertung durch den Metallografen hineingebracht werden, können mit dem QTM vermieden werden.

1. Einleitung

Nachdem in letzter Zeit der Zusammenhang zwischen Verteilung, Form und Größe der Sulfide im Automatenstahl und der Zerspanbarkeit untersucht und aufgezeigt worden ist, wird die Notwendigkeit deutlich, diese Merkmale bei einer Beschreibung der Schlacken stärker zu berücksichtigen, als es bisher üblich war.

Der Trend bei den Automatenstahlherstellern geht in der Richtung einer quantitativen Beschreibung der Sulfide, da diese Methode die Überwachung des Materials und der Fabrikation erleichtern soll.

⁺) Vorgetragen im Quantimet-Kolloquium in Frankfurt (Main) (8. - 10.5.1968) und auf der Metallographietagung der Deutschen Gesellschaft für Metallkunde in Giessen (9. - 11.10.1968)

Mit der Entwicklung eines quantitativen Fernsehmikroskopes der Metals Research Ltd., Cambridge, im folgenden mit der Abkürzung QTM bezeichnet, war die Grundlage für eine quantitative Gefügeauswertung geschaffen. Ziel der vorliegenden Untersuchung ist, die Eignung der Bildreihe nach Diergarten für eine Übersetzung in die Meßdaten des QTM zu prüfen.

Das hierbei gefundene Ergebnis soll dazu beitragen, bei der Aufstellung neuer Richtreihen die Anwendung sowohl des lichtmikroskopischen als auch des elektronischen Verfahrens nebeneinander zu ermöglichen.

2. Auswertung der Richtreihenbilder für Automatenstähle mit dem QTM

Es wurden die Abbildungen einer Tafel verwendet, die für eine mikroskopische Auswertung bei 100facher Vergrößerung vorgesehen ist. Für diese Messung wurden die Abbildungen fotomechanisch auf die Hälfte, also auf Flächen von 40 mm Durchmesser, verkleinert, um die gesamte Fläche über einen Epidiaskopzusatz mit einer Messung des QTM erfassen zu können. Ausgewertet wurde jeweils eine Bildeinstellung.

Als Meßgrößen des QTM wurden der Flächenanteil der Schlackenabbildungen, der mittlere Streckungsgrad, d.h. das Verhältnis von Länge zu Dicke einer abgebildeten Schlacke und die Einschlußlängenverteilung für jedes Bild aufgenommen.

Die Flächenanteile unter Berücksichtigung des Umrechnungsfaktors $4/\pi$ (Flächenverhältnis von Quadrat zu einbeschriebenen Kreis) liegen für die 24 Bilder der 4 Reihen (Bild zwischen 0,15% und 7,5%. Die Verteilung der Einzelwerte auf diese Skalenbreite ist ungleichmäßig. Wie aus Bild 2 zu entnehmen ist, liegt der Hauptanteil um 2%.

Nimmt man die zu einer einzigen Bildreihe gehörigen Flächenanteile zusammen, so zeigt sich, daß die Reihe 1.11.0 unter den 4 Reihen die niedrigsten Werte bei den entsprechenden Bildreihenzahlen hat. Außerdem liegt z.B. der gemessene Flächen-

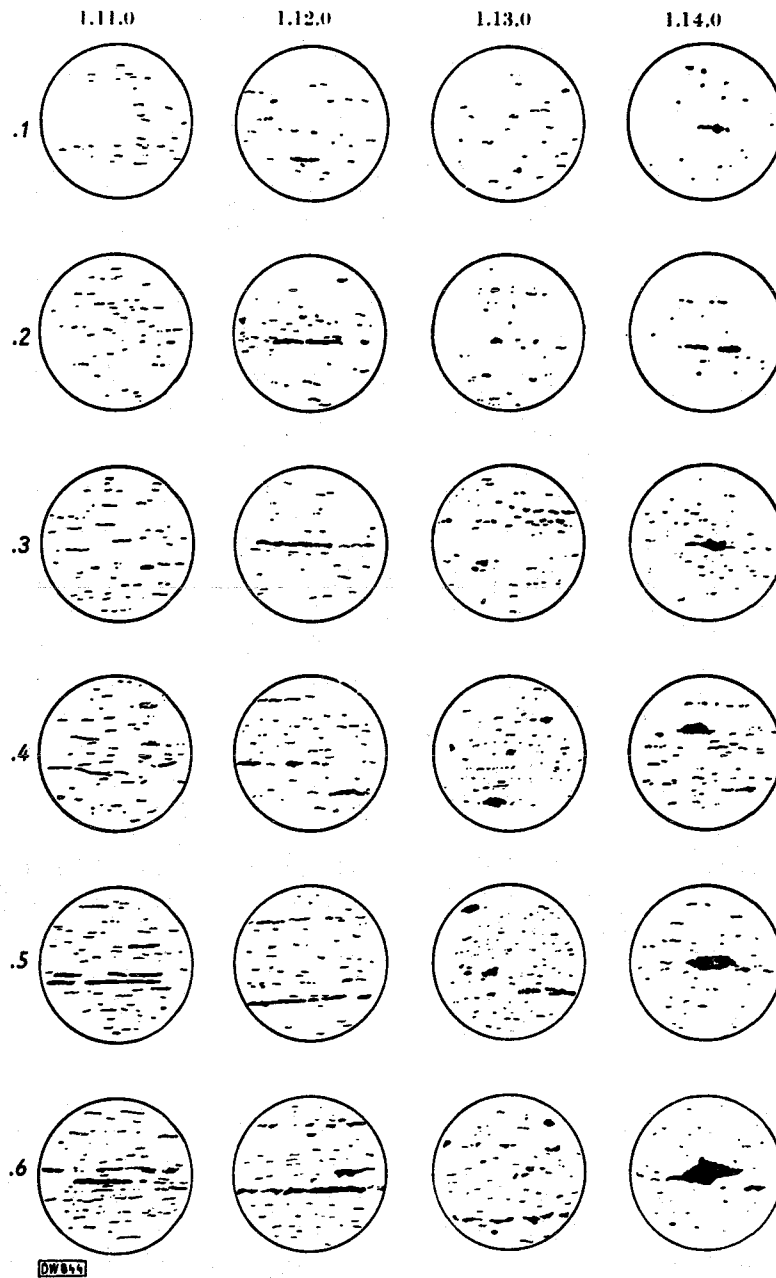


Abb.1: Richtreihe zur Beurteilung von Einschlüssen in Automatenstählen.

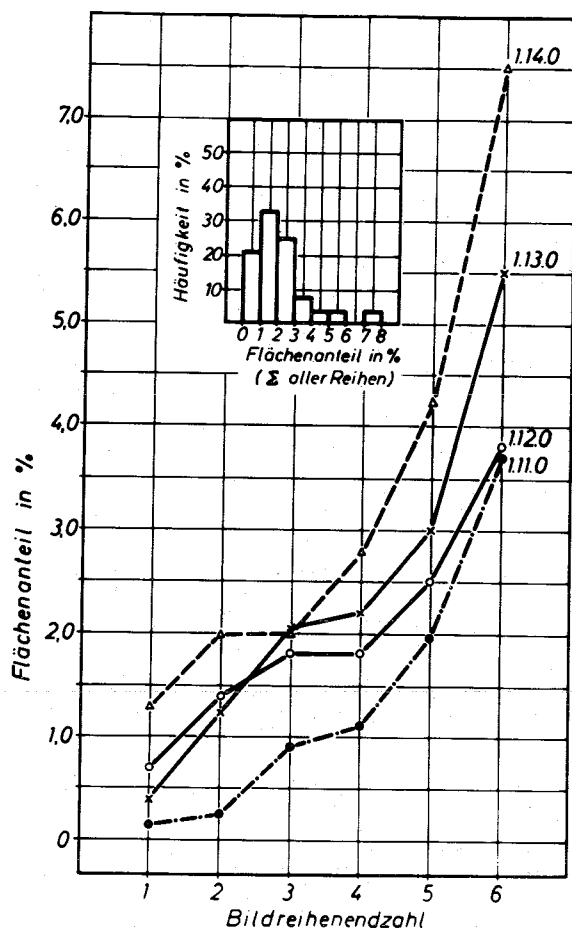


Abb.2: Flächenanteil in % bei der Ausmessung der Diergarten-Richtreihe für Automatenstähle

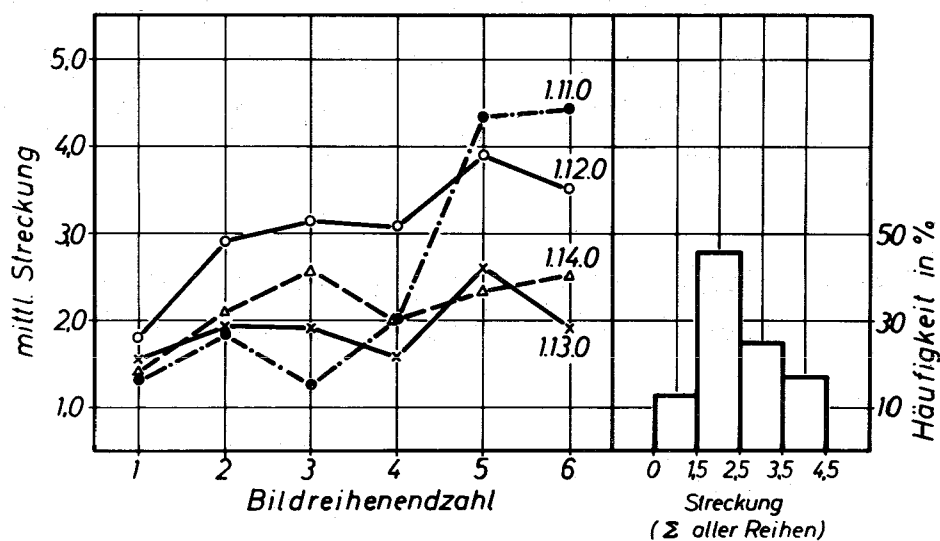


Abb.3: Verteilung der Streckung für die Richtreihen in Abhängigkeit von der Bildreihenendzahl

anteil von 1.11.4 unter dem von 1.12.2, 1.13.2 oder 1.14.1. Der Flächenanteil nimmt zudem mit steigender Bildreihenendzahl nicht linear zu.

Grundsätzlich gilt dieses auch für die übrigen drei Bildreihen, nur sind hier vornehmlich bei den kleineren Bildreihenendzahlen (1, 2 und 3) stärkere Abweichungen vorhanden.

Die in dem Bild 3 dargestellten Werte für das S t r e c k - k u n g s v e r h ä l t n i s (Dicke zu Breite der Schlacken) liegen zwischen 1,2 und 4,5. Das Häufigkeitsmaximum liegt zwischen 1,5 und 2,5.

Für die einzelnen Bildreihen ist mit steigender Bildreihenendzahl mehr oder weniger deutlich eine Zunahme der Streckung zu erkennen. Die Ursache für das Abfallen der Streckung bei einer Bildreihenendzahl, z.B. 1.13.4 gegenüber 1.13.3, ist in der Zunahme der Darstellungen sehr kleiner Schlacken zu suchen, die wegen ihres eigenen geringen Streckungsgrades den Mittelwert herabsetzten.

Die Bilder 4 und 5 enthalten die Meßergebnisse der Bildreihen 1.11.0 bis 1.14.0. In vielen Fällen fächern die Kurvenzüge mit steigender Endziffer in der Bildreihe nach rechts zu höheren Einschlußlängen auf.

Der Anfangsbereich für Schlackenlängen von 8 μm kann als Maß für die Höhe eines Untergrundes an Schlacken angesprochen werden. Das Bild 5 für die Reihe 1.13.0 zeigt z.B., daß 90% der Schlackenlängen für alle Bildreihenendzahlen außer .5 \leq 40 μm sind. Erst die restlichen verbleibenden 10% der Schlacken führen zu einem unterschiedlichen Endwert für die längste Schlacke. Die Abbildung der Bildendzahl 5 macht in dem Bereich 40 bis 80 μm mit längeren Schlacken eine Ausnahme. Ein linearer Anstieg der Häufigkeit der Einschlußlängen ist nur bei wenigen Bildreihenendzahlen gegeben, d.h. eine Gauß-Verteilung liegt bei der Diergartenreihe nur teilweise vor.

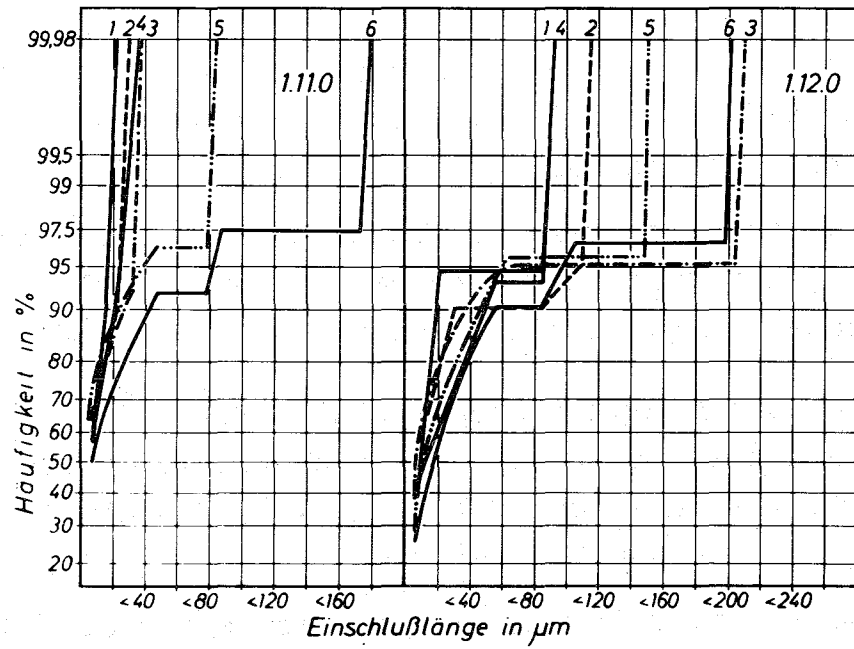


Abb.4: Verteilung der Einschlußlängen bei der Auswertung der Richtreihen, Reihen 1.11.0 und 1.12.0

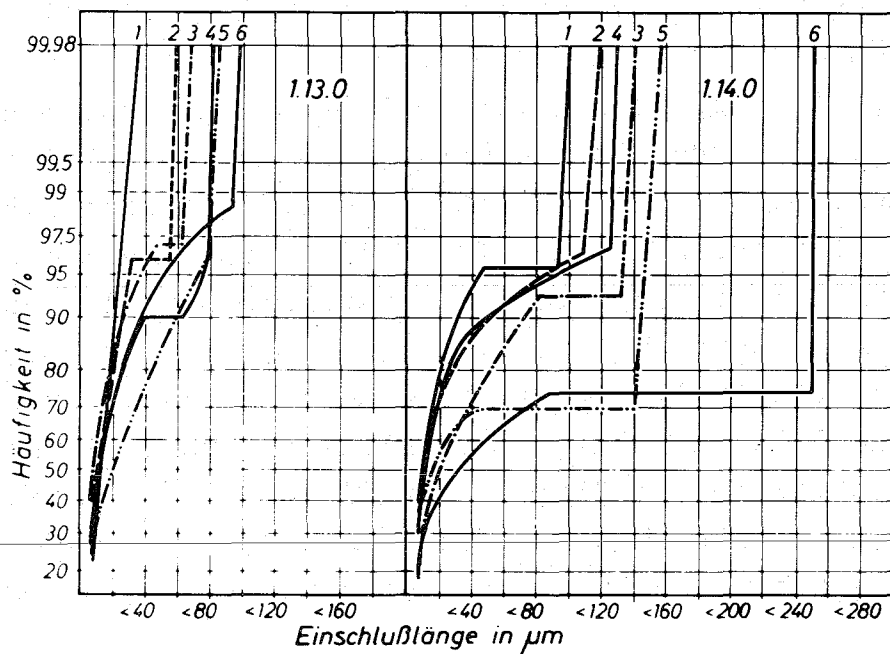


Abb.5: desgl.
Reihen 1.13.0 und 1.14.0

3. Gegenüberstellung von Schliffauswertungen nach der Diergartenreihe und dem QTM

Im folgenden Abschnitt soll anhand von Schliffauswertungen ein Vergleich der beiden Bestimmungsverfahren durchgeführt werden. An zwei Automatenstahlchargen der Güte 9 S Mn 28 mit den Abmessungen 37 mm Durchmesser (Charge A) und 27 mm Durchmesser (Charge B) sind über einen gekennzeichneten Durchmesser die Schlackengehalte gemessen worden. Die Abstände zwischen den einzelnen Meßfeldern betragen 0,5 mm, so daß 70 bzw. 50 Messungen auf jedem Schliff erfolgten. Die Beschreibung des Schlackengehaltes nach Diergarten beschränkt sich auf eine Eingliederung in die 1.11.0-Reihe, während die QTM-Messung den Flächenanteil und das Streckungsverhältnis der Schlacken umfaßt.

In den Darstellungen der Bilder 6 und 7 sind die Flächenanteile und die mittlere Streckung den Diergartenwerten zugeordnet worden. Die absolute Höhe des prozentualen Anteiles an Schlacken ist bei der gleichen Bildreihenendzahl unterschiedlich und von dem untersuchten Muster, möglicherweise der Güte und der Abmessung, abhängig. Die Unterschiede im Flächenanteil werden bei einer Auswertung nach Diergarten lediglich mit den Begriffen "zahlreicher" o.ä. bewertet.

Ähnlich ist es bei dem Streckungsverhältnis. Die bei der mikroskopischen Beschreibung verwendeten Begriffe wie "feiner, länger" o.ä. drücken sich bei den Streckungsverhältnissen in ähnlicher Weise aus (Bilder 6 und 7). Die Einschlußlängenverteilung der Reihe 1.11.0 (Bild 4) zeigt nur sehr geringe Unterscheidungen für die einzelnen Bildreihenendzahlen. In Bild 8 sind die bei der Schliffauswertung gewonnenen Ergebnisse mit den Messungen an der Richtreihe gegenübergestellt. Die Bildreihenanzahl 1.11.1 war dabei nicht vertreten und ist daher in der Darstellung nicht berücksichtigt. Sonst zeigt das Bild, daß die Gehalte an feinen Schlacken im ausgemessenen Schliff höher sind. Die Streuungen bei Schlacken kleiner 8 μm als auch bei den längsten Einschlüssen sind bei der Schliffauswertung für die einzelnen Bildreihenendzahlen weniger

Stahl A: 9SMn 28 (37mm²)

Analyse: C Si Mn P S N₂
 0,10 <0,01 0,83 0,064 0,29 0,007

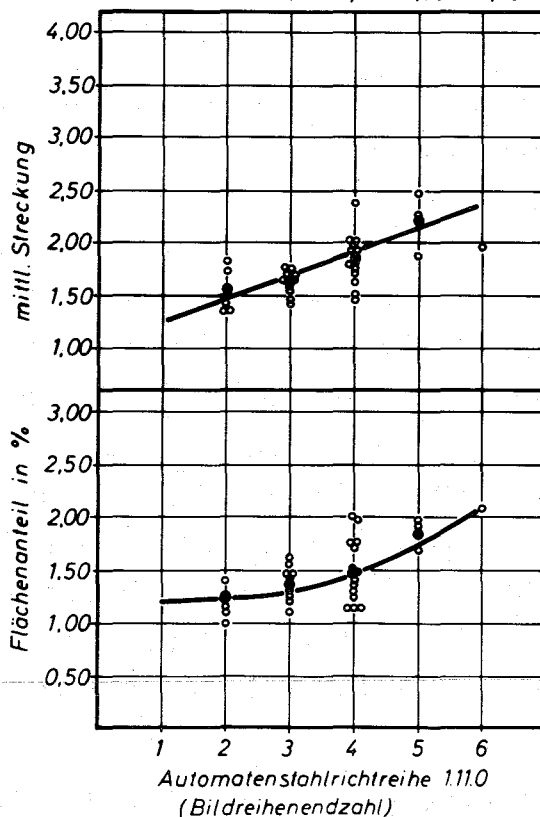


Abb.6: Flächenanteil und Streckung von Schliffstellen, die nach Richtreihe 1.11.0 eingestuft wurden

Stahl B: 9SMn 28 (27mm²)

Analyse: C Si Mn P S N₂
 0,11 0,03 1,09 0,050 0,27 0,006

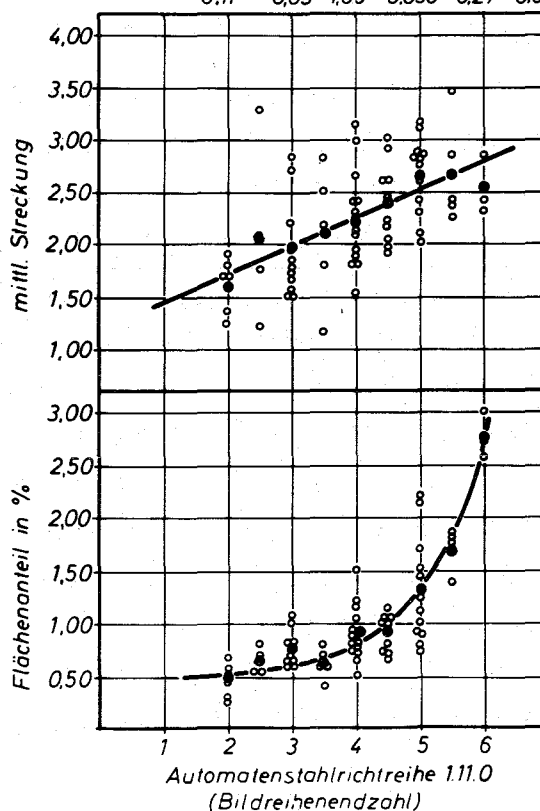


Abb.7: wie Bild 5

breit. Hinzu kommt, daß sich die Streubereiche weitgehend überdecken.

Diese Auswertung zeigt also, daß Schlackenanordnungen, die vom Metallografen in 1.11.3 - 5 nach Bildreihe eingestuft werden, mit dem QTM über die Einschlußlängenverteilung nicht zu differenzieren sind.

4. Zur Frage nach der Anzahl notwendiger Einzelmessungen

Die von Diergarten aufgestellte Richtreihe läßt sich in die Daten des QTM umsetzen. Bei der Beschreibung des Flächenanteiles sind nach dem für diese Untersuchung angewendeten Verfahren die größten Differenzierungen möglich. Es ist jedoch noch die Frage zu beantworten, mit wieviel Mengen am QTM ein Schliff repräsentativ beschrieben werden kann. Dazu wurde abschließend eine Versuchsreihe durchgeführt, bei der man die Anzahl der Messungen von 64 auf 30 erniedrigte (Methode B, Bild 9 ~~xx~~).

Das Ergebnis ist, daß mindestens 30 Messungen pro Schliff erforderlich sind, um den Flächenanteil der Schlacken mit hinreichender Genauigkeit beschreiben zu können.

Wenn durch den Metallografen bereits beim Abfahren des Schliffes eine vorausgehende Beurteilung erfolgt, so kann die Zahl der Einzelmessungen gesenkt werden (Methode A, Bild 9).

~~xx~~) Die 64 Messungen sind wie unter Abschnitt 3 beschrieben durchgeführt. Dagegen wurden die 30 Blickfelder willkürlich auf dem Durchmesser eingestellt und nach Diergarten und QTM ausgewertet.

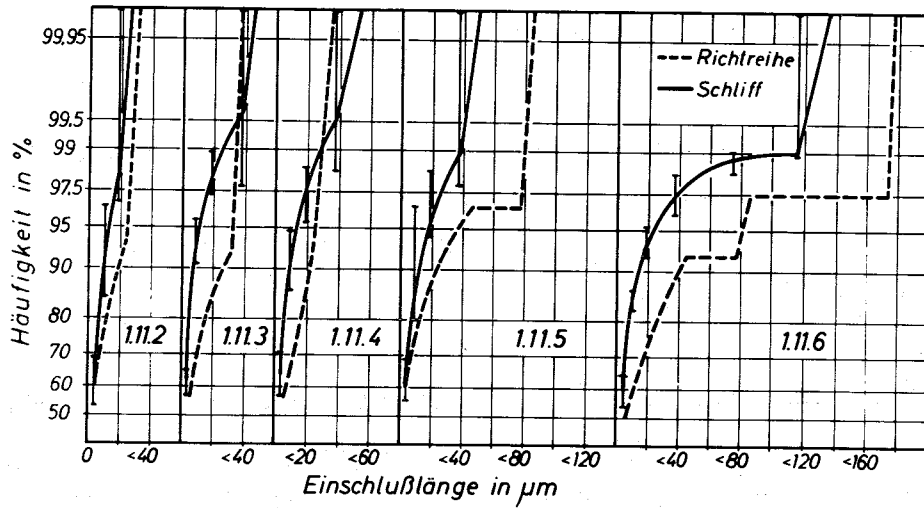


Abb.8: Verteilung der Einschlußlängen an Schliiffstellen, die nach der Richtreihe eingestuft wurden

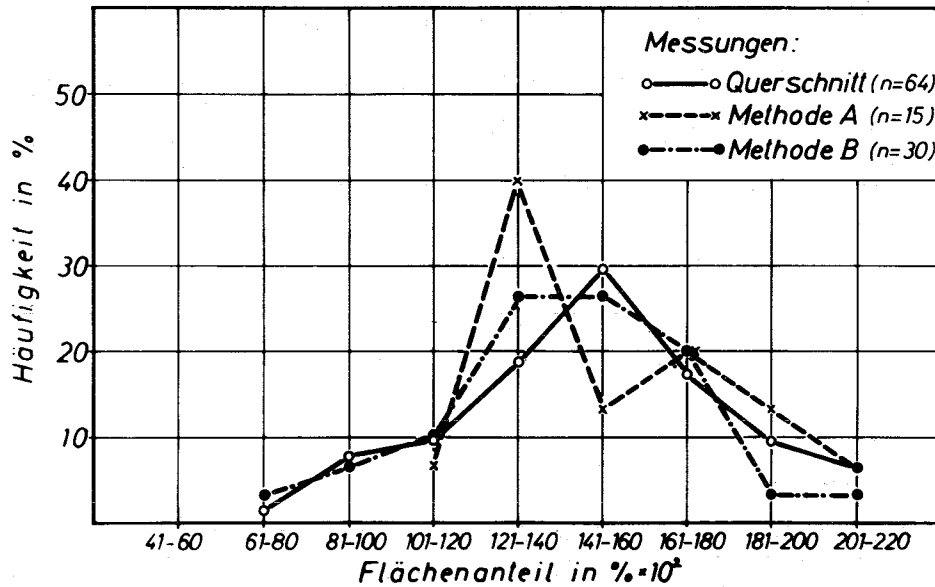


Abb.9: Häufigkeitsverteilung im Flächenanteil bei unterschiedlicher Anzahl von Einzelmessungen