

# Messung von Wasserstoffverteilungen in Eisen und Stahl mittels Neutronenradiographie und -tomographie

Axel GRIESCHE<sup>1</sup>, Thomas KANNENGIEBER<sup>1</sup>, Nikolay KARDJILOV<sup>2</sup>, Ingo MANKE<sup>2</sup>, Burkhard SCHILLINGER<sup>3</sup>

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

<sup>2</sup> Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB), Berlin

<sup>3</sup> Technische Universität München, Garching

## Kurzfassung

In den letzten Jahren hat die Optimierung der Radiographie-Messplätze an Forschungsreaktoren und hier insbesondere die Weiterentwicklung der Neutronendetektoren die Messung von Wasserstoffverteilungen mit immer höherer Ortsauflösung bei gleichzeitig empfindlicherer Nachweisgrenze ermöglicht. Wasserstoff besitzt im Vergleich zu Eisen einen hohen Wechselwirkungsquerschnitt für Neutronen und erlaubt somit mit einfachen radiographischen Methoden die zwei- und dreidimensionale Visualisierung von Wasserstoffverteilungen im Gefüge. Dies ermöglichte uns erstmals die Messung von Wasserstoffdiffusionsströmen in zentimeterdicken Stahlproben mit einer zeitlichen Auflösung von 20 s [1] sowie die quantitative Messung von Wasserstoffansammlungen an Rissflanken in wasserstoffversprödeten Eisenproben [2]. Dabei konnte auch erstmals gasförmiger Wasserstoff in den Hohlräumen der Risse nachgewiesen werden und dessen Druck bestimmt werden. Diese neue Qualität der Information auf der Mikrostrukturskala gewährt noch nie dagewesene Einblicke für die Aufklärung von Schädigungsmechanismen z. B. bei der Wasserstoffversprödung. Durch die Bereitstellung von lokalen in situ Informationen, die mit herkömmlichen Methoden wie der Trägergas-Heißextraktion nicht zugänglich sind, können so auch Analysen in drei Dimensionen mit einer Ortsauflösung von 20-30 µm durchgeführt werden.

In diesem Beitrag werden Beispiele gezeigt, die die Orts- und Zeitauflösung der Neutronenradiographie und -tomographie nutzen, um Wasserstoffverteilungen in und an Rissen zu visualisieren und zu quantifizieren. Die Messungen wurden an den Forschungsreaktoren BER II des HZB in Berlin und FRM II der Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz in Garching durchgeführt.

[1] Griesche A, Solórzano E, Beyer K, Kannengiesser T, The advantage of using in-situ methods for studying hydrogen mass transport: Neutron radiography vs. carrier gas hot extraction, Int J Hydrogen Energy 38 (2013) 14725

[2] Griesche A, Dabah E, Kardjilov N, Hilger A, Manke I, Kannengiesser T, Three-dimensional imaging of hydrogen blister in iron with neutron tomography, Acta Mater 78 (2014) 14



## Messung von Wasserstoffverteilungen in Eisen und Stahl mittels Neutronenradiographie und -tomographie

Axel GRIESCHE<sup>1</sup>, Thomas KANNENGIEßER<sup>1</sup>, Nikolay KARDJILOV<sup>2</sup>,  
Ingo MANKE<sup>2</sup>, Burkhard SCHILLINGER<sup>3</sup>

<sup>1</sup> BAM - FB 9.4 Integrität von Schweißverbindungen, Berlin

<sup>2</sup> Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB), Berlin

<sup>3</sup> Technische Universität München, Garching

### Überblick



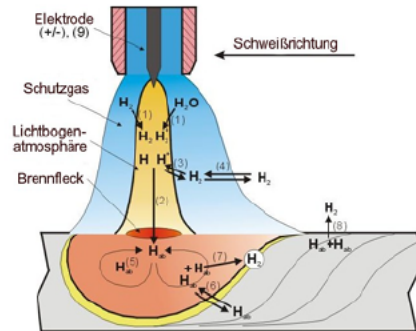
- **Motivation**
  - Wasserstoffaufnahme beim Schweißen
  - Wasserstoffunterstützte Rissbildung
  
- **Methoden und Beispiele**
  - Zeitaufgelöste Neutronenradiographie
  - Ortsaufgelöste Neutronentomographie
  - Bragg-Kanten Neutronentomographie
  
- **Zusammenfassung**



## Wasserstoffaufnahme



- Wasserstoffeintrag durch Schweißzusatzwerkstoff, Schutzgas, Feuchtigkeit und Verunreinigungen



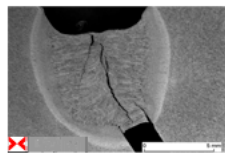
- Nach Erstarren des Schmelzbades zwei Kategorien von Wasserstoff, diffusiblen und gefangen (engl.: trapped)

3

## Wasserstoffunterstützte Rissbildung

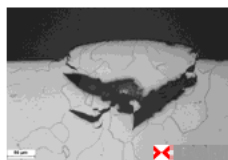


- Kaltrisse beim Schweißprozess



Tekken-Test an hochfestem Stahl

- Blister beim elektrochemischen Beladeprozess



Blister in technischem Eisen

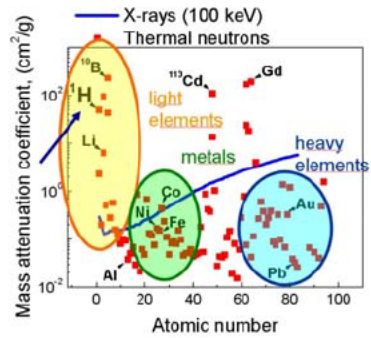
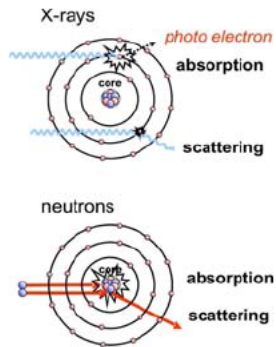
- Untersuchung des Wasserstofftransportverhaltens
- Zusammenspiel mit Mikrostruktur und mechanischen Spannungen

4

## Interaktion von Neutronen mit Materie



- Neutronen wechselwirken mit dem Atomkern durch Absorption und Streuung

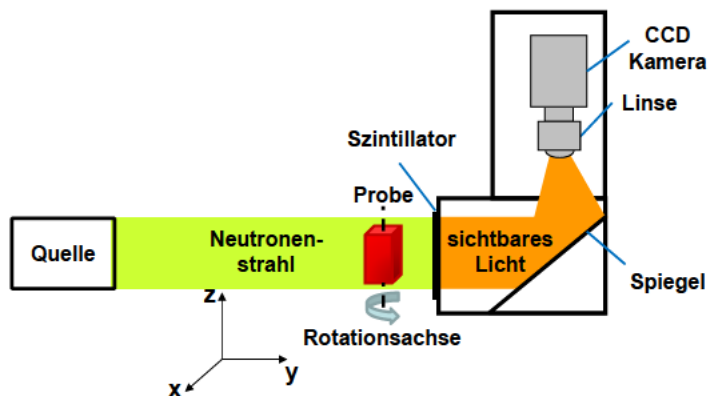


→ Neutronen ermöglichen einen hohen Bildkontrast zwischen H und Fe

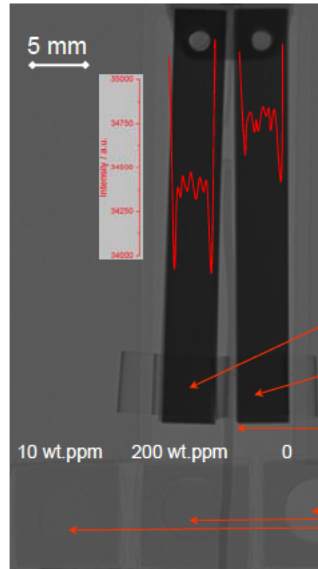
## Experimentelles



- Elektrochemische Beladung der Proben mit Wasserstoff, Mengenbestimmung mittels Trägergasheiextraktion
- Neutronenradiographie (NR) und Neutronentomographie (NT)



## NR: $c_H(t)$ - Effusionsmessungen



ANTARES@FRM II (Garching)

- $t_{exp} = 20 \text{ s}$
- $\Delta x \sim 70 \mu\text{m}$
- $D = 1 \text{ cm}$

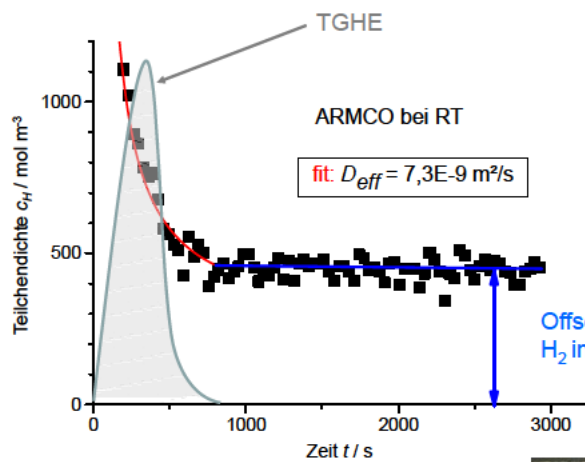
Probe  
Referenz  
Thermoelement

Kalibrierstandards ( $\text{TiH}_2 + \text{SiC}$ )

Beyer et al., J Mat Sci 46 (2011) 5171

7

## NR: $c_H(t)$ - Effusionsmessungen



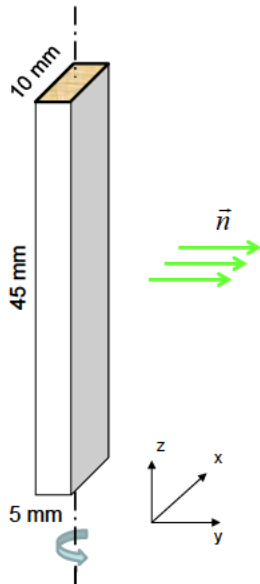
NR ist eine  
in situ NDT Messmethode



Griesche et al., Int. J. Hydrogen Energ. 38 (2013) 14725

8

## NT: $c_H(x, y, z)$ -Verteilung in Eisen

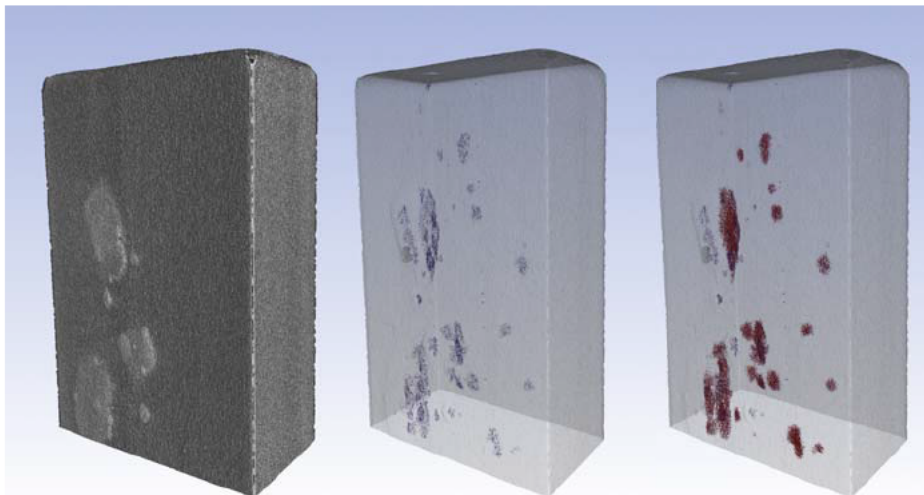


CONRAD@BER II (Berlin)

- $t_{exp.} = 80 \text{ s}$
- 600 Projektionen
- $\Delta v \sim 20 \mu\text{m} - 30 \mu\text{m}$

9

## NT: Wasserstoff & Risse



Oberfläche

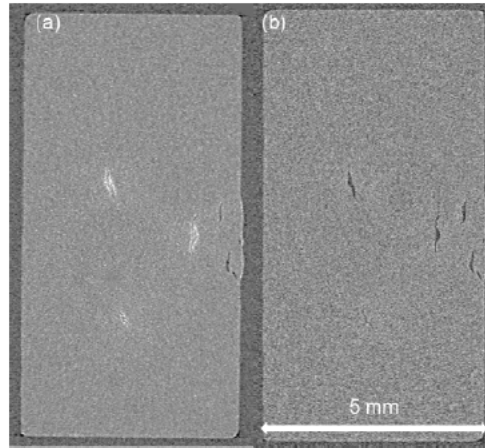
Risse

Risse + H

## NT: Wasserstoff & Risse

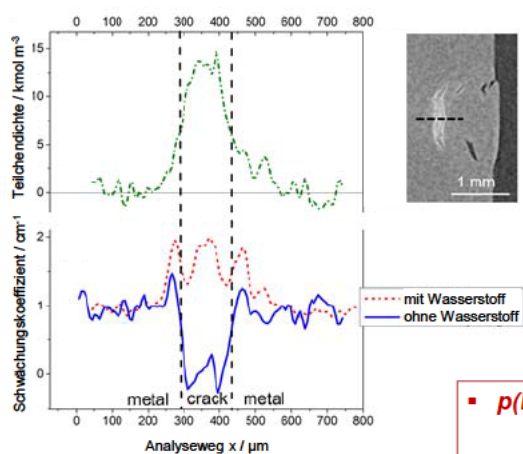


- Entgasen der Probe bei 50 °C für 48 h (nach ISO 3690)



11

## NT: Quantifizierung Wasserstoffkonzentration $c_H$



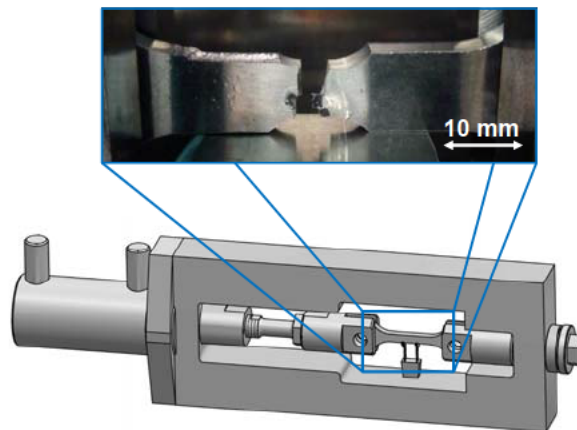
- $p(H_2) \sim 100$  bar (max. 400 bar)  
(= 20%  $R_{p,0.2}$ )
- $c_H$  (Rissflanke)  $\sim 100 - 200$  wt.ppm

12

## NR/NT: Zugexperimente unter Wasserstoffeinfluss

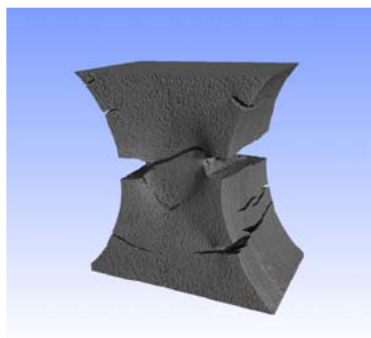


- Zugexperimente an supermartensitischem Stahl unter Wasserstoffeinfluss
- *In situ* Informationen über Wasserstofftransport

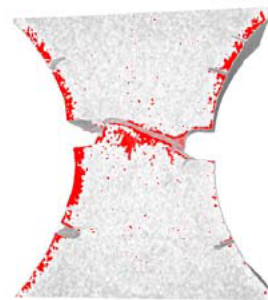


13

## NR/NT: Zugexperimente unter Wasserstoffeinfluss



Oberfläche des gekerbten Bereichs



Schnitt mittig im gekerbten Bereich  
rot: Wasserstoff

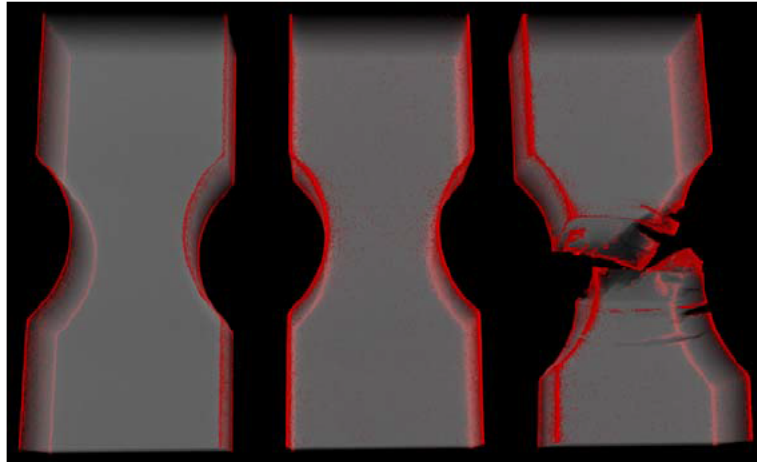
Tomographie © CONRAD (Berlin)

→ Wasserstoffansammlung im plastischen Bereich der Bruchzone und im Kerbgrund

14



## NR/NT: Zugexperimente unter Wasserstoffeinfluss



Wasserstoffausgangskonzentration

Belastet bei 70 %  $R_{p0,2}$  für 1 h, elastisch

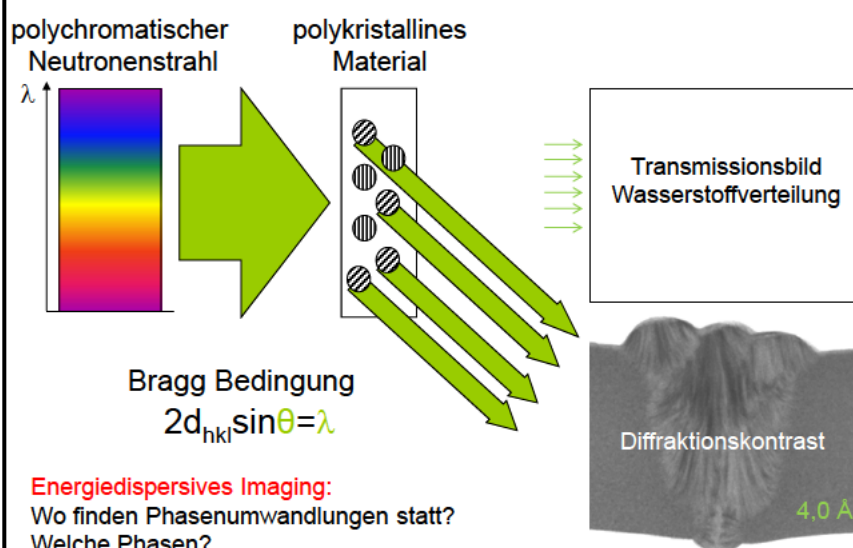
Belastet bei 35 %  $R_{p0,2}$  für 1 h, elastisch + zerrissen

Tomographie @ ANTARES (Garching)

→ Wasserstoffdiffusion in Bereiche höchster Spannung und Plastizität

15

## Bragg-Kanten- und Transmissions-Radiography



## Zusammenfassung



- NR & NT liefern *in situ* Informationen, erlauben die direkte Visualisierung und sind quantifizierbare Methoden
- NDT-Methode für z. B. Schadensanalyse
- Messung von Wasserstoffansammlungen mit hoher Auflösung möglich:
  - NR:  $\Delta x \sim 15 \mu\text{m}$ ,  $t_{\text{exp.}} = 20 \text{ s}$
  - NT:  $\Delta v \sim 20\text{-}30 \mu\text{m}$
  - Detektionslimit  $\sim 20 \text{ wt.ppm}$
  - Probendicken im cm-Bereich (Stahl)

### Ausblick:

- Kombinierte Bildgebung aus Transmission und Diffraktion zur Untersuchung von:
  - H-induzierten Phasentransformationen
  - Gitterdehnungen  $\leftrightarrow$  Wasserstoffdiffusion

17



Vielen Dank für Ihre Aufmerksamkeit!



... den Kollegen  
@ FRM II  
@ BER II  
@ FB 9.4  
für ihre Unterstützung.

18