
Stahlgefüge besser verstehen –
Kontrastierung, Bildanalyse und
Klassifizierung niedriglegierter Stähle



UNIVERSITÄT
DES
SAARLANDES

Dissertation

zur Erlangung des Grades
des Doktors der Ingenieurwissenschaften
der Naturwissenschaftlich-Technischen Fakultät
der Universität des Saarlandes

Von

Dominik Britz

Saarbrücken

2018

Tag des Kolloquiums:	20. Mai 2019
Dekan:	Prof. Dr. Guido Kickelbick
Berichterstatter:	Prof. Dr.-Ing. F. Mücklich Prof. Dr. G. Kickelbick Prof. Dr. G. Schneider
Vorsitz:	Prof. Dr.-Ing. S. Diebels
Akad. Mitarbeiter:	Dr.-Ing. J. Schmitt

„Man entdeckt keine neuen Länder ohne das Ufer für eine lange Zeit aus den Augen zu verlieren.“ André Gide

Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, aufbauend auf dem EU-Projekt Micro-Quant, eine Methode zu entwickeln, um die komplexen Gefüge thermo-mechanisch gewalzter, niedriglegierter Stähle quantitativ beschreiben und klassifizieren zu können.

Klassische Ansätze der Metallographie, Bildverarbeitung und Gefügeanalyse stoßen bei der Quantifizierung und Klassifizierung derartiger Stähle zunehmend an ihre Grenzen.

Durch die gezielte (in situ) Untersuchung und Anwendung von Farbätzungen nach LePera und Beraha konnten thermo-mechanisch gewalzte, niedriglegierte Stähle optimal und reproduzierbar – sowohl für die Analyse mittels Lichtmikroskopie als auch mittels Rasterelektronenmikroskopie – kontrastiert werden.

Zur vollständigen Gefügebeschreibung wurden darüber hinaus Arbeitsabläufe zur Bildregistrierung und Merkmalsextraktion in Fiji und Matlab implementiert sowie neue Segmentierungsansätze nach Chan & Vese erfolgreich etabliert.

Mit dem in der vorliegenden Arbeit entwickelten, ganzheitlichen Ansatz, der von der Probenpräparation über die Kontrastierung hin zur Segmentierung reicht, konnte schließlich eine objektive und automatische Gefügeklassifizierung mit den Methoden des maschinellen Lernens (Support Vector Machine und Deep Learning) entwickelt werden. Für den gegebenen Probensatz konnten somit Klassifizierungsgenauigkeiten von bis zu 95% erreicht werden.

Die entwickelte Methodik ist nicht nur auf andere Stähle anwendbar, sondern kann als Vorlage für sämtliche Materialklassen herangezogen werden.

Abstract

The aim of the present work is to develop a method based on the EU project Micro-Quant to quantitatively describe and classify the complex microstructure of thermo-mechanically rolled, low-alloyed steels.

Classical approaches of metallography, image processing and microstructure analysis increasingly reach their limits in the quantification and classification of such steels.

Through the targeted (in situ) investigation and application of LePera and Beraha color etching, thermo-mechanically rolled, low-alloyed steels could be contrasted in the best possible and reproducible way – both for analysis using light microscopy and scanning electron microscopy.

In addition, workflows for image registration and feature extraction were implemented in Fiji and Matlab and new segmentation approaches according to Chan & Vese were successfully established for the complete microstructure description.

With the holistic approach developed in the present work, which ranges from sample preparation to contrasting and segmentation, an objective and automatic microstructure classification with the methods of machine learning (Support Vector Machine and Deep Learning) could finally be developed. Classification accuracies of up to 95% could thus be achieved for the given sample set.

The developed methodology is not only applicable to other steels, but can also be used as a template for all material classes.

Inhaltsverzeichnis

Danksagung.....	ix
Abkürzungsverzeichnis.....	xi
1 Motivation.....	1
2 Einleitung.....	3
3 Erweiterte Aufgabenstellung.....	8
4 Probenmaterial und Präparation.....	9
5 Gefügekontrastierung.....	15
5.1 Grundlagen der Gefügekontrastierung und gegenwärtiger Kenntnisstand	16
5.2 Versuchsaufbau.....	26
5.2.1 Aufbau zur systematischen Gefügekontrastierung.....	26
5.2.2 Aufbau zur in situ Betrachtung von Gefügekontrastierungen.....	28
5.3 Gefügekontrastierung mittels LePera-Ätzung.....	32
5.3.1 Versuchsgestaltung	33
5.3.2 Ergebnisse Gefügedarstellung mittels LePera-Ätzung.....	36
5.3.3 Diskussion der Ergebnisse	47
5.3.4 Fazit Gefügekontrastierung mittels LePera.....	56
5.4 Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung.....	58
5.4.1 Versuchsgestaltung	59
5.4.2 Ergebnisse Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung	60
5.4.3 Diskussion der Ergebnisse	71
5.4.4 Fazit Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung.....	82
5.5 Fazit Gefügekontrastierung.....	84
6 Bildverarbeitung.....	87
6.1 Bildregistrierung und Merkmalextraktion.....	87

6.1.1	Grundlagen Bildregistrierung.....	88
6.1.2	Konzept zur Bildregistrierung.....	89
6.1.3	Konzept zur Merkmalsextraktion	91
6.1.4	Ergebnisse und Diskussion der Bildregistrierung	93
6.1.5	Ergebnisse und Diskussion der Merkmalsextraktion.....	94
6.1.6	Fazit der Bildregistrierung und Merkmalsextraktion.....	96
6.2	Neue Möglichkeiten der Gefügesegmentierung.....	97
6.2.1	Grundlagen der Segmentierung.....	98
6.2.2	Segmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus	100
6.2.3	Konzept zur Gefügesegmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus.....	103
6.2.4	Ergebnisse der Segmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus.....	104
6.2.5	Diskussion der Ergebnisse	109
6.2.6	Fazit der Gefügesegmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus	112
6.3	Fazit Bildverarbeitung.....	113
7	Gefügeanalyse.....	115
7.1	Gefügeklassifizierung mittels Data Mining	115
7.2	Klassifizierung mittels Support Vector Machine.....	116
7.2.1	Gegenwärtiger Kenntnisstand	118
7.2.2	Versuchsgestaltung	119
7.2.3	Ergebnisse der Klassifizierung mittels Support Vector Machine	123
7.2.4	Diskussion der Ergebnisse	127
7.2.5	Fazit der Klassifizierung mittels Support Vector Machine.....	131
7.3	Klassifizierung mittels Deep Learning.....	132
7.3.1	Gegenwärtiger Kenntnisstand	134
7.3.2	Versuchsgestaltung	136
7.3.3	Ergebnisse der Klassifizierung mittels Deep Learning	140

7.3.4	Diskussion der Ergebnisse	145
7.3.5	Fazit der Klassifizierung mittels Deep Learning.....	149
7.4	Ausblick Gefügeanalyse.....	150
7.5	Fazit Gefügeanalyse	152
8	Fazit.....	153
	Abbildungsverzeichnis	I
	Tabellenverzeichnis	XIV
	Anhang	XVI
	Übersicht Ätzrezepte.....	XVI
	Technische Zeichnung Durchflusszelle	XVII
	Möglicher Verfahrensablauf zur Gefügerekonstruktion	XVIII
	Literaturverzeichnis	XIX

Danksagung

Zu Recht steht die Danksagung ganz am Anfang dieser Ausarbeitung. Sie steht zugleich am Ende eines langen, nicht immer einfachen, Weges, den ich niemals alleine hätte bestreiten können und wollen. Nicht immer habe ich mich dabei in ausreichendem Maße bei den Menschen bedankt, die mir auf diesem Weg halfen. Denn ohne Kritik, Diskussionen und Unterstützung – sowohl fachlich als auch außerfachlich – ist eine derartige Arbeit nicht möglich.

Mein ganz besonderer Dank gilt zunächst Prof. Dr.-Ing. Frank Mücklich. Er begleitet mich nun seit dem Beginn meines Studiums. Gestartet als Hiwi am Lehrstuhl für Funktionswerkstoffe im zweiten Semester lernte ich mit viel Freude auch die angewandte Forschung im Rahmen meiner Diplomarbeit in Zusammenarbeit mit dem MECS kennen. Anschließend gab er mir die Möglichkeit auch eine Promotion im industriellen Umfeld anzufertigen. Dass das Thema Stahl nicht unbedingt am Lehrstuhl für Funktionswerkstoffe beheimatet ist, war nie wirklich ein Problem und Prof. Mücklich ließ mir alle erdenklichen Freiheiten auch ganz neue Wege zu gehen. Aus einer Ein-Mann-Abteilung durfte ich so in den letzten Jahren eine ganze Stahlgruppe aufbauen. Für diese Chance und alle Freiheiten möchte ich mich besonders bedanken. Den endgültigen Vertrauensbeweis erbrachte er mir allerdings, indem er mir vor drei Jahren die Geschäftsführung des MECS übertrug.

Frank, ich danke Dir von ganzem Herzen für alles, was Du mir ermöglicht hast und freue mich auf die Zukunft.

Herrn Prof. Dr. Guido Kickelbick möchte ich ebenfalls danken. Nicht nur für das Zweitgutachten, sondern für viele interessante Diskussionen, die Betreuung als wissenschaftlicher Begleiter und die nötigen (chemischen) Verbindungen.

Den Kollegen der F&E bei Dillinger unter der Leitung von Volker Schwinn danke ich für die tolle und vertrauensvolle Zusammenarbeit. Ein besonderer Dank geht an Dr. Christoph Rivinius, der mir zu Beginn des Projektes die Einarbeitung sehr leicht machte, Dr. Andreas Schneider für viele Stunden intensiver Diskussion, gemeinsamer Initiativen und Gewaltmärsche und Dr. Thorsten Staudt für den guten Draht, organisatorische und fachliche Unterstützung sowie ein immer offenes Ohr.

Meinen Kollegen am Lehrstuhl danke ich für eine tolle Zeit – ein besseres Arbeitsumfeld kann es nicht geben. Aus Kollegen wurden Freunde, die mich auch stressige Zeiten haben meistern lassen. Vielen Dank an Sebi, der mein treuer Begleiter und verlässlicher Partner seit dem

Mathevorkurs war und ist, Leander und Michael für ihre Hilfe und den „trockenen“ respektive feucht-fröhlichen Humor, Christoph für sein stetes Bemühen, mich auf den Boden der Tatsachen zurückzuführen sowie den weiteren Adelbodener PL-Skifreunden Flavio, Jeni und Seba.

Einen riesen Dank möchte ich „meiner“ Stahlgruppe aussprechen. Bessere Kollegen kann ich mir nicht vorstellen. Auf viele weitere Gruppentreffen, Stahltage und Weihnachtsfeiern ;)

Bedanken möchte ich mich ebenfalls bei all meinen Bachelor- und Masterarbeitern: Johannes, Andreas, Jessica, Stephan, Bente, Nils, Ayadi, Maita, Majid, Tilo, Franziska, Manisha und Yannik (dem besten saarländischen Werkstoffprüfer und Metallographen der Welt). Ohne Euch wären viele Ideen nur solche geblieben.

Eine derart interdisziplinäre Arbeit ist nur durch die Zusammenarbeit mit offenen, begeisterungsfähigen und hilfsbereiten Menschen möglich.

Aus der Chemie danke ich besonders Herrn PD Dr. Harald Natter für die Unterstützung beim Aufbau der Versuchsstände zur reproduzierbaren Ätzung. Herrn Reiner Wintringer, dem ich leider nicht mehr persönlich danken konnte, danke ich für die Unterstützung bei den Refraktometermessungen.

Sascha Schneider und Rudolf Richter möchte ich für die stets schnelle und unbürokratische Hilfe beim Prototypenbau und die tollen konstruktiven Ideen danken.

Vielen Dank an Herrn Dr. Sebastian Hoffmann für die Chance, neue Segmentierungsansätze ausprobieren zu können. Herrn Prof. Dr. Joachim Weickert danke ich für die fachliche Diskussion und die Betreuung der gemeinsamen Abschlussarbeit.

Am Max-Planck-Institut für Informatik möchte ich mich ganz besonders bei Herrn Dr. Mario Fritz für die tolle Zusammenarbeit bedanken, die schließlich zu dem Nature – Scientific Reports-Paper führte.

Yannik, Christoph, Michael, Nils, Johannes, Alexandra, Carmen und Thorsten danke ich für das kritische Lektorat und Korrektorat.

Zu guter Letzt danke ich aus tiefstem Herzen meinen Eltern, die mir diesen Weg ermöglicht haben, meinem Bruder für die kreative Unterstützung und das stets kritische Hinterfragen sowie meiner Frau – für ihre Hilfe in allen Lebenslagen, ihre Geduld und ihr unendliches Verständnis.

Ohne Euch wäre ich nicht dort, wo ich heute bin – vielen Dank!

Abkürzungsverzeichnis

BI	Brechungsindex
CNN	Convolutional Neural Networks
CV	Chan-Vese
DFG	Deutsche Forschungsgemeinschaft
EBSD	Elektronenrückstreubeugung
EDX	Energiedispersive Röntgenspektroskopie
ETD	Everhart-Thornley-Detektor
EU	Europäische Union
FCNN	Fully Convolutional Neural Networks
FIB	Focused Ion Beam
LBP	Local Binary Patterns
Limi	Lichtmikroskop
LSM	Laser-Scanning-Mikroskopie
MA	Martensit/Austenit
MVFCNN	max voted fully connected neural network
PVC	Polyvinylchlorid
px	Pixel
RBF	radial basis function
ReLu	Rectified Linear Units
REM	Rasterelektronenmikroskop
RGB	Rot-Grün-Blau
ROI	Region of Interest
SIFT	Scale-Invariant-Feature-Transformation
STEM	Scanning Transmission Electron Microscope
SVM	Support Vector Machine
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TRIP	Transformation induced plasticity
UV	Ultraviolettstrahlung
VDEh	Verein Deutscher Eisenhüttenleute
ZTU	Zeit-Temperatur-Umwandlungsdiagramm

1 Motivation

Stahl ist mit seiner enormen Vielfalt an Zusammensetzungen, Prozessrouten und Wärmebehandlungen sowie mit den sich daraus ergebenden vielseitigen mechanisch-technologischen Eigenschaften für unterschiedlichste Anwendungsfelder von großer Relevanz. Auch die Forschung am Werkstoff Stahl ist nach wie vor höchst aktuell – was die Zahl von mehr als 15.000 Veröffentlichungen im Jahr 2017 belegt – und liefert stets neue Innovationen.

Seit einigen Jahren stellt sich in der Stahlbranche ein Paradigmenwechsel ein – von der erfahrungsbasierten Prozess-Eigenschafts-Korrelation hin zu einer **gefügebasierten Werkstoffentwicklung**. Dazu wird das Gefüge als der zentrale Informationsträger verstanden, der skalenübergreifend Informationen über die verschiedenen Prozessschritte speichert und gleichfalls die mechanischen Eigenschaften bestimmt (Abbildung 1-1). Demnach kommt dem Gefüge eine zentrale Rolle in der Forschung, Weiterentwicklung und auch in der Qualitätssicherung zu. Die passenden Werkzeuge zur Präparation, Kontrastierung, Quantifizierung und Klassifizierung, die unter dem Begriff Metallographie zusammengefasst werden, sind daher unerlässlich.

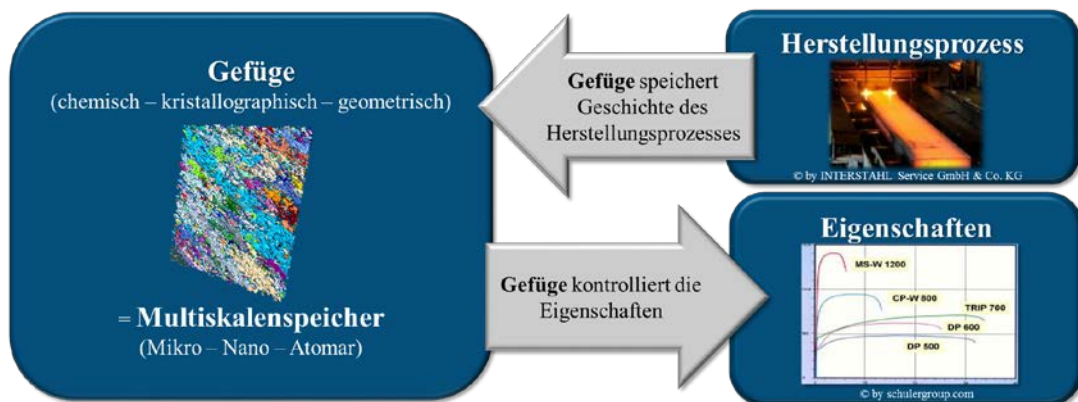


Abbildung 1-1: Das Gefüge als Multiskalenspeicher und Schlüssel zur Verknüpfung von der Herstellung hin zu den finalen Materialeigenschaften.

Durch die zunehmend komplexeren und kleiner werdenden Gefügebestandteile im Stahl stoßen die bisherigen Methoden jedoch zunehmend an ihre Grenzen. Fehlende Reproduzierbarkeit der meist empirisch eingesetzten Kontrastierungen sowie fehlendes Verständnis über die ablaufenden Wirkweisen eben dieser auf die vorliegenden Gefügebestandteile führen sowohl in der metallographischen Praxis als auch in der Forschung und Entwicklung zu erheblichen

1. Motivation

Herausforderungen. Darüber hinaus bieten sich auch für die Quantifizierung und die dazu notwendigen Schritte der Phasenseparierung neue Möglichkeiten, die bis dato nicht ausgeschöpft wurden. Das zentrale Problem auf dem Weg zur gefügebasierten Werkstoffentwicklung ist jedoch die Gefügeklassifizierung. Noch immer wird diese meist rein subjektiv von Experten vorgenommen und ist Ausgangspunkt für eine Vielzahl von Arbeitskreisen und Forschungsprojekten. Bisher gibt es jedoch weder ein einheitliches Bewertungssystem noch eine einheitliche Nomenklatur. Die Notwendigkeit neuer Methoden ist daher essentiell und von größter Relevanz.

Aus den aufgeführten Gründen kann nur durch eine gezielte, methodische Gefügeforschung der Fortschritt und die Innovationskraft des Werkstoffs Stahl im Speziellen und anderer Werkstoffe im Allgemeinen nachhaltig gewährleistet werden.

2 Einleitung

Um neue Stahlwerkstoffe entwickeln zu können ist es wichtig, die möglichen Gefügebestandteile gemäß Abbildung 1-1 zu kennen sowie diese schließlich auch sichtbar machen zu können. Eine grundlegende Betrachtung des Werkstoffs Stahl ist daher essentiell.

Das wichtigste Legierungselement des Eisens im Stahl ist Kohlenstoff. Dem gleichgewichtsnahen bzw. metastabilen Zustandsdiagramm sind die wesentlichen Phasen und Gefügebestandteile, wie sie bei langsamer Abkühlung entstehen, zu entnehmen (Abbildung 2-1).

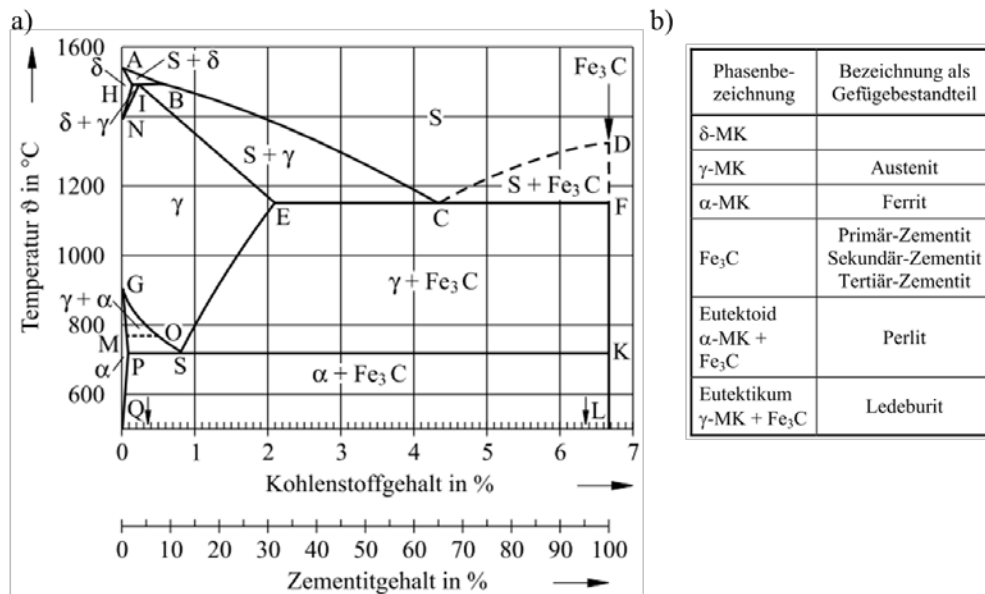


Abbildung 2-1: a) Metastabiles Eisen-Kohlenstoff-Phasendiagramm mit dem Eckpunkt Zementit (Fe_3C) bei 6,67 % C. Der Bereich des Kohlenstoffgehaltes unterhalb 2,06 % wird als Stahl, oberhalb als Gusseisen bezeichnet. Das auftretende Eutektikum wird durch den Punkt C bei 1147 $^{\circ}\text{C}$ beschrieben. Die eutektoide Umwandlung erfolgt bei 723 $^{\circ}\text{C}$ im Punkt S. Die auftretenden Phasen bzw. Gefügebestandteile sind in b) aufgeführt. (Modifiziert nach [1].)

Ferrit liegt im kubisch-raumzentrierten Gitter vor und weist bei 723 $^{\circ}\text{C}$ die maximale Kohlenstofflöslichkeit auf (Abbildung 2-1 a), Punkt P). Die Hochtemperaturphase, **Austenit**, weist eine kubisch-flächenzentrierte Kristallstruktur auf und kann daher deutlich mehr Kohlenstoff lösen als der Ferrit (Abbildung 2-1 a), Punkt E). Im eutektoiden Punkt (Abbildung 2-1 a), Punkt S) bei 723 $^{\circ}\text{C}$ wandelt schließlich der Austenit in Ferrit sowie

2. Einleitung

Zementit (Fe_3C) um und bildet **Perlit**. Kohlenstoffkonzentrationen über 2,06 % sind lediglich für Gusseisen relevant und werden daher nicht weiter betrachtet. [1], [2]

In technischen Prozessen ist eine gleichgewichtsnaher Abkühlung nur selten realisierbar. Die höheren Abkühlgeschwindigkeiten führen zu weiteren Phasen und Gefügebestandteilen, die von essentieller Bedeutung für moderne Stähle sind. Diese höheren Umwandlungsgeschwindigkeiten beeinflussen bzw. beschränken in erster Linie die Diffusionsmöglichkeiten des Kohlenstoffs. Die für eine gegebene Stahlgüte auftretenden metastabilen Phasen können beispielsweise in sog. kontinuierlichen Zeit-Temperatur-Umwandlungsdiagrammen (kurz: ZTU-Diagramme, Abbildung 2-2) dargestellt werden.

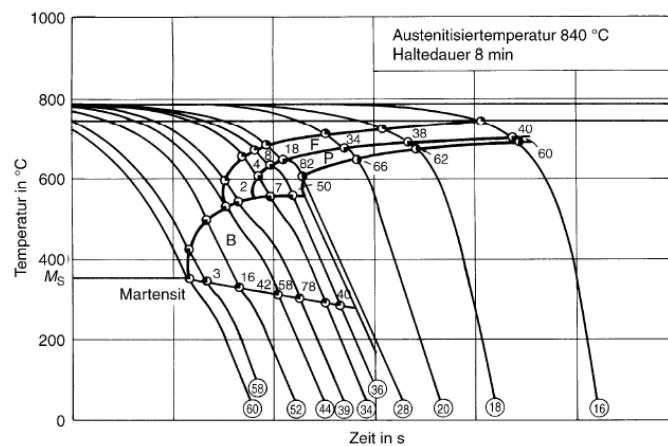


Abbildung 2-2: Darstellung eines kontinuierlichen ZTU-Diagramms (41Cr4). Je nach Abkühlgeschwindigkeit werden verschiedene Phasenbereiche durchlaufen: Bei langsamer Abkühlung startet die Umwandlung zunächst zum Ferrit (F) und anschließend zum Perlit (P). Bei schnelleren Abkühlungen wird die sog. Bainit-Nase (B) durchlaufen. Wird die Abkühlgeschwindigkeit weiter erhöht, liegt ein martensitisches Gefüge vor. Die angegebenen Zahlen geben die jeweiligen Phasenanteile an. Jede Abkühlkurve beinhaltet zudem die zu erwartende Rockwell-Härte (umkreiste Zahlen). (nach [3])

Ausgehend von einer definierten Austenitierung des Gefüges werden unterschiedliche Abkühlgeschwindigkeiten durchlaufen und die auftretenden Phasen z. B. mittels Dilatometrie und metallographischer Untersuchung erfasst. Während bei langsamen Abkühlungen, ähnlich dem metastabilen Phasendiagramm, Ferrit und Perlit entstehen, liegt bei schnelleren Abkühlungen ein bainitisches Gefüge vor. Wird die Abkühlgeschwindigkeit weiter erhöht, entsteht Martensit. [1]–[3]

Je nach Legierungszusammensetzung unterscheiden sich die ZTU-Diagramme hinsichtlich der auftretenden Phasen, der Gefügeanteile und der Umwandlungstemperaturen erheblich. Als weiterer, entscheidender Parameter kommt die Verformung hinzu. In sog. Umform-ZTU-

2. Einleitung

Diagrammen werden daher auch Umformbedingungen des Austenits berücksichtigt. Auch dies führt zu erheblichen Veränderungen der Umwandlungstemperaturen und Gefügeanteile. [4], [5]

Die über derartige Abkühl- und Umformschritte erhaltenen, metastabilen Phasen und deren gezielte Einstellung bilden die Voraussetzung für sämtliche industriell relevanten Stahlgüten ([6]). Daher ist eine genaue Beschreibung dieser Gefügebestandteile unumgänglich.

Martensit wandelt diffusionslos und displaziv aus dem Austenit um. Der Kohlenstoff hat somit keine Zeit zu diffundieren und wird im kubisch-raumzentrierten Gitter zwangsgelöst, was je nach Kohlenstoffgehalt eine unterschiedlich stark ausgeprägte, tetragonale Verzerrung bedingt. Dies führt auch zu einer signifikanten Härtesteigerung. Generell gibt es unterschiedliche Ausprägungen des Martensits, die, ebenfalls abhängig vom Kohlenstoffgehalt, von lattenförmig bis plattenförmig reichen. Um die Härte, Sprödigkeit und Festigkeit zu reduzieren, wird meist eine Wärmebehandlung bei vergleichsweise niedrigen Temperaturen ($> 100^{\circ}\text{C}$) angeschlossen. Dies reicht aus, um den Kohlenstoff aus der Zwangslösung teilweise als Zementit ausscheiden zu lassen. Diese Gefügebrauchung wird als **angelassener Martensit** bezeichnet. Eine entsprechende Ausscheidung des Zementits kann auch durch sog. Selbstanlasseffekte erreicht werden. [7], [8]

Durch entsprechende Legierungselemente und eine angepasste Prozessführung kann jedoch auch Austenit bei Raumtemperatur stabilisiert werden. Meist liegt diese als **Restaustenit** bezeichnete Phase, die stark mit Kohlenstoff angereichert ist, in Kornzwickeln vor. Restaustenit zeichnet sich durch seine hohe Zähigkeit aus und ist wesentlicher Bestandteil vieler Hochleistungsstähle ([9]). Die Charakterisierung dieses Gefügebestandteils ist jedoch äußerst schwierig, da diese Bereiche bei der Präparation in Martensit umklappen können. Eine eindeutige Unterscheidung zwischen Martensit und Austenit ist somit nur eingeschränkt möglich, sodass diese Bereiche als Martensit/Austenit (**MA**) bezeichnet werden.

Während Martensit sehr gut beschrieben und seine Umwandlung weitestgehend verstanden ist, wird der **Bainit** kontrovers diskutiert. Nach Bhadeshia ([10]) handelt es sich bei Bainit um eine Kombination aus einer teils diffusionslosen Umformung des Austenits in Ferritlatten, bei welcher der Kohlenstoff allerdings im Vergleich zum Martensit noch Möglichkeiten der Diffusion hat. Je nach Umwandlungstemperatur kann schließlich zwischen **oberem Bainit**, bei dem der Kohlenstoff aus den Ferritlatten heraus diffundieren kann, und **unterem Bainit**

2. Einleitung

unterschieden werden. Beim unteren Bainit ist der Zementit meist unter 60° zu den Ferritplatten innerhalb dieser angeordnet, da er nicht bis an die Grenzfläche diffundieren kann. Darüber hinaus gibt es eine Vielzahl an weiteren Untergruppen, wie den sog. **granularen Bainit**. Unter dieser Bainit-Variante wird eine Anordnung aus irregulärem Ferrit (auch als nicht polygonaler oder bainitischer Ferrit bezeichnet) mit einer zweiten Phase (z. B. Zementit, Martensit oder Restaustenit) verstanden, welche zwischen den Ferritkörnern angeordnet ist ([11], [12]). In der Literatur gibt es eine Vielzahl an unterschiedlichen Schemata und Klassifizierungsversuchen, um den Bainit mit all seinen Unterklassen einzuteilen ([11]–[17]).

Um die Gefügebestandteile darstellen zu können gibt es eine Vielzahl an metallographischen Rezepten, die in erster Linie auf eine lichtmikroskopische Charakterisierung abzielen und in Standardwerken festgehalten sind ([18]–[20]). Die klassische Metallographie für moderne Stähle mit feinkörnigen Gefügen und mikrostrukturellen Bestandteilen im Submikrometerbereich ist allerdings durch die Auflösung der Lichtmikroskopie (Limi) begrenzt, wengleich verschiedene Standards vorliegen, um eine Gefügequantifizierung durchzuführen (DIN EN ISO 643 und ASTM E112). Insbesondere Gefüge mit kleinen Bestandteilen (z. B. MAs) oder bainitischen Strukturen stellen jedoch eine Herausforderung für eine derartige Charakterisierung dar. Mittels Rasterelektronenmikroskopie (REM) sind diese Substrukturen bei geeigneter Kontrastierung darstellbar ([21]–[23]). Jedoch bedarf es meist einer weiterführenden Bildverarbeitung, um die gewonnenen Daten nutzen zu können ([17], [24]–[26]). Eine weitere Alternative ist die Gefügebeschreibung anhand der phasenspezifischen Versetzungsdichten mittels Elektronenrückstreubeugung (engl. Electron backscatter diffraction, kurz EBSD) [27]–[40]. Ein Ansatz derartige Versetzungsdichten zu erfassen beruht zumeist auf der Auswertung der Qualität der EBSD-Pattern ([41]) oder auf Missorientierungsdarstellungen (Kernel Average Misorientation, Grain Orientation Spread, Grain Average Misorientation [42], [43]). Alle derartigen Techniken führen jedoch zu einer enormen Streuung bei der Quantifizierung. Dies ist insbesondere auf fehlende Referenzen für die gewählten Schwellwerte zurückzuführen, womit auch fraglich ist, wie allgemeingültig diese Ansätze sind. Da die untersuchten bainitischen und martensitischen Gefüge meist fließende Übergänge aufweisen, ist ebenfalls unklar, wie gut leicht abweichende Gefüge mit einem solchen Ansatz erfasst werden können. Weitere Gründe für die Streuung sind neben Präparationseinflüssen die Variationen im experimentellen Aufbau. Besonders kritisch sind jedoch die Messparameter (Kameraauflösung, Binning, Einstellung im Hough-Raum, [44])

2. Einleitung

sowie die unterschiedliche Nachbearbeitung der Daten ([45], [46]). Angaben darüber werden jedoch in den Veröffentlichungen nicht aufgeführt – obwohl sie die Missorientierungsbestimmung maßgeblich beeinflussen. Auch weitere Ansätze unabhängig der EBSD-Technik werden in der Literatur beschrieben. Ein vielversprechenderer Ansatz ist z. B. die Kombination verschiedener Methoden, wie beispielsweise die Korrelation von EBSD und lokalen Härtemessungen ([47], [48]) um eine Quantifizierung der verschiedenen Phasen zu erhalten. Im Gegensatz zu einer einzelnen Charakterisierungstechnik hat der korrelative Ansatz generell den Vorteil, dass er Informationen aus verschiedenen Schlifffbildern und Informationstiefen kombiniert und die Möglichkeit bietet, die Daten zu validieren und Schwellwerte für die Phasentrennung abzuleiten. Ein allgemeingültiger Ansatz zur Charakterisierung von Stählen existiert jedoch auch im Rahmen der korrelativen Untersuchungen bislang nicht.

Aus diesem Grund gibt es diverse vorwettbewerbliche Bemühungen im Rahmen regelmäßiger Arbeitskreise (u. a. des VDEH) oder auch in öffentlich geförderten Großprojekten. Ein derartiger Versuch wurde u. a. im Rahmen eines von der EU geförderte RFCS-Antrags mit dem Titel „Microstructural Quantification of Multi-Phase Steels (Micro-Quant)“ ([15]) gestartet. Jedoch konnte auch innerhalb dieses Projektes kein zufriedenstellendes, allgemeingültiges Ergebnis zur reproduzierbaren und objektiven Gefügebeschreibung erzielt werden. Es wurde deutlich, dass es bereits bei der klassischen metallographischen Kontrastierung bis hin zur objektiven Bewertung enorme Herausforderungen in der jeweiligen Methodik gibt.

Eine wesentliche Verbesserung kann somit nur mit neuen, ganzheitlichen Ansätzen der Gefügecharakterisierung erreicht werden.

3 Erweiterte Aufgabenstellung

Die vorliegende Arbeit hat das Ziel, im Bereich der Gefügeanalyse von niedriglegierten Stählen neue Ansätze und Lösungsvorschläge zu liefern. Als Grundlage jeder Gefügeanalyse kommt der **metallographischen Präparation** (Kapitel 4) und der **Gefügekontrastierung** (Kapitel 5) eine herausragende Bedeutung zu. Entsprechend liegt der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit insbesondere auf der Kontrastierung mittels chemischen Ätzungen, um das Gefüge mit seinen teils sehr feinen Unterschieden bestmöglich herauszuarbeiten und sichtbar zu machen. Neben apparativen Konzepten rückt auch das Verständnis über die bei der Kontrastierung ablaufenden Reaktionen in den Fokus, um die Reproduzierbarkeit von Ätzungen deutlich zu erhöhen. Bei der **Bildverarbeitung** (Kapitel 6) werden unter anderem methodische Arbeiten und neue Konzepte der Bildregistrierung und Segmentierung aufgezeigt. Den finalen Schritt stellt die **Gefügeanalyse** (Kapitel 7) dar. Durch das Zusammenführen verschiedener Informationsquellen – zusammengefasst unter dem Stichwort korrelative Mikroskopie – wird gezeigt, dass auch komplexe Gefügebestandteile qualitativ und quantitativ mittels Methoden des maschinellen Lernens erfasst werden können. Diese objektiven Verfahren zur Gefügeklassifizierung stellen vielversprechende Lösungsansätze dar, um sowohl in der Forschung als auch in der Qualitätssicherung neue Maßstäbe zu setzen.

Große Teile der vorliegenden Arbeit wurden bereits in peer-review Journalen veröffentlicht ([49]–[60]).

4 Probenmaterial und Präparation

Eine methodische Weiterentwicklung in den Bereichen Gefügekontrastierung, Bildverarbeitung und Gefügeanalyse von niedriglegierten Stählen setzt geeignetes Probenmaterial sowie eine ausgezeichnete Probenpräparation voraus. Für die vorliegende Arbeit und die erweiterte Aufgabenstellung (Kapitel 3) ist weder die Herstellungshistorie noch die genaue chemische Zusammensetzung von besonderer Relevanz. Aus diesem Grund werden im Folgenden die verwendeten, niedriglegierten Stahlproben, die allesamt dem industriellen Umfeld entnommen wurden, mit dem Fokus auf das Gefüge aufgeführt und hinsichtlich ihrer Phasenbestandteile beschrieben. Die Kontrastierung erfolgte dabei, wenn nicht anderes angemerkt, mittels der im anschließenden Kapitel 5.4 erläuterten Beraha-Ätzung und soll an dieser Stelle lediglich einen ersten Eindruck über die verwendeten Proben liefern. Die mittlere Ferritkorngröße wurde mittels EBSD bestimmt. Die jeweilige Gefügeidentifizierung und -einteilung wurde in einer Expertenkommission bestehend aus Metallographen und Forschern aus der Stahlindustrie diskutiert und festgelegt.

Der Fokus der Arbeit liegt auf methodischen Neuentwicklungen und Konzeptstudien zur Gefügeanalyse. Zweiphasige Proben demonstrieren daher besonders anschaulich die Vorteile der vorgestellten Ansätze. Außerdem ist es für derartige Proben sehr gut möglich, die vollständige Kornstruktur nach geeigneter Kontrastierung komplett zu erfassen. Im Bereich der vollständig umgewandelten martensitischen Stähle sind ebenfalls Arbeiten durchgeführt worden ([50]), für welche die hier aufgeführte Methodik analog angewendet werden kann. Aus Gründen der Anschaulichkeit wird im Weiteren jedoch lediglich auf die dualphasigen Stähle eingegangen. Die entwickelten Methoden und gewonnen Erkenntnisse können jedoch weitestgehend auf Mehrphasenstähle und andere Materialien übertragen werden. Im Folgenden werden die für die jeweiligen Fragestellungen genutzten Proben vorgestellt.

Die ablaufenden Reaktionen während einer Ätzung konnten bisher nicht direkt beobachtet und somit auch nicht kontrolliert werden (Kapitel 5.1). Aus diesem Grund wurde eine Durchflusskammer konstruiert, um Ätzungen in situ verfolgen zu können (Kapitel 5.2.2). Zur besseren Nachvollziehbarkeit der ablaufenden Kontrastierung wurde eine Probe mit großen Körnern ($1500 \mu\text{m}^2$) gewählt, wie sie in Abbildung 4-1 dargestellt ist. Somit ist es trotz der begrenzten Auflösung des verwendeten Mikroskops möglich, die ablaufenden Reaktionen

4. Probenmaterial und Präparation

beobachten zu können. Die Probe weist mit einem Kohlenstoffäquivalent von 0,65 % bei einem Kohlenstoffgehalt von 0,13 Gew% einen höheren Legierungsgrad auf als die übrigen Proben, die in der vorliegenden Arbeit verwendet wurden.

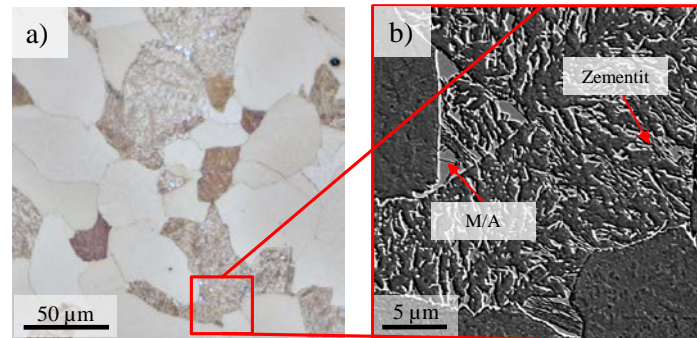


Abbildung 4-1: Repräsentativer Gefügeausschnitt der normalisierten Probe mit einer bainitischen Substruktur. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.

Es handelt sich in diesem Fall um eine nachträglich normalisierte Probe, die eine bainitische Substruktur bestehend aus Zementit-Agglomerationen und MAs aufweist. Diese Probe wurde zudem für die objektive Gefügeklassifizierung, wie sie in Kapitel 7.2 und Kapitel 7.3 beschrieben wird, herangezogen.

Ein deutlich feineres Gefüge weisen die bainitischen Proben, wie sie stellvertretend in Abbildung 4-2 aufgeführt sind, auf. Am Beispiel dieser Proben werden die systematischen Untersuchungen der Beraha-Ätzung (Kapitel 5.4) und der LePera-Ätzung (Kapitel 5.3) durchgeführt. Mittels klassischer Nital-Ätzung können derartige Proben aufgrund ihrer kleinen Gefügebestandteile bislang nicht ausreichend kontrastiert und somit auch nicht hinreichend charakterisiert werden. Selbst hochaufgelöste Verfahren wie EBSD können die bainitischen Bereiche nicht zufriedenstellend erfassen, da die vorhandenen Zementit-Agglomerationen aufgrund ihrer Größe nicht aufgelöst werden können. Diese Proben stehen somit stellvertretend für thermo-mechanisch gewalzte Stähle, deren Beschreibung bislang nur unzureichend möglich ist und für die ein großer Bedarf an verbesserten Kontrastierungsmöglichkeiten – auch für die metallographische Praxis – besteht.

Eine repräsentative Darstellung dieser Proben im Limi sowie eine Detailaufnahme der Substruktur mittels REM ist in Abbildung 4-2 dargestellt. Die Proben haben ein Kohlenstoffäquivalent von 0,42 % bei einem Kohlenstoffgehalt von 0,06 Gew%.

4. Probenmaterial und Präparation

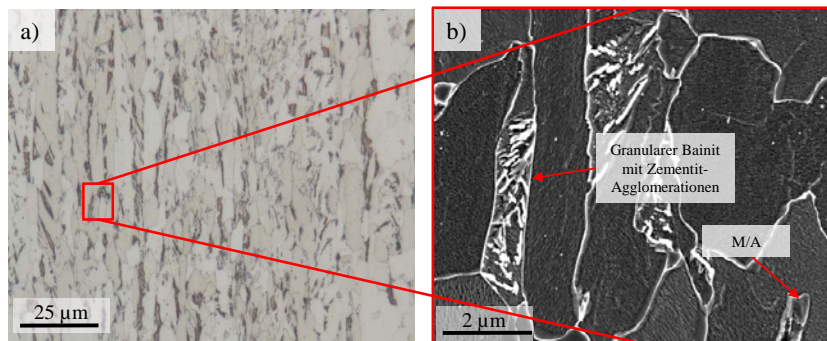


Abbildung 4-2: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer ferritisch-bainitischen Probe. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM. Neben bainitischen Körnern mit Zementit-Agglomerationen sind auch MAs vorhanden.

Die mittlere Korngröße des Ferrits liegt bei $10 \mu\text{m}^2$. Die zweite Phase kann nach einer Beraha-Ätzung (Kapitel 5.4) gemäß der Einteilung nach Zajac et al. ([12]) dem granularen Bainit zugeordnet werden. Die bainitischen Bereiche weisen überwiegend feine Zementit-Agglomerationen auf, wobei auch MAs in Kornzwickeln vorzufinden sind.

Für die zu entwickelnde, objektive Gefügeklassifizierung (Kapitel 7) werden eindeutige, zweiphasige Stahlproben benötigt, um ein bestmögliches Training der Algorithmen zu ermöglichen. Im Folgenden werden daher Proben vorgestellt, bei denen unterschiedliche, gut von der Matrix abgegrenzte und eindeutige Körner der zweiten Phasen vorliegen.

In Abbildung 4-3 ist ein Ausschnitt einer ferritisch-martensitischen Probe (durchschnittliche Ferrit-Korngröße = $55 \mu\text{m}^2$) gezeigt.

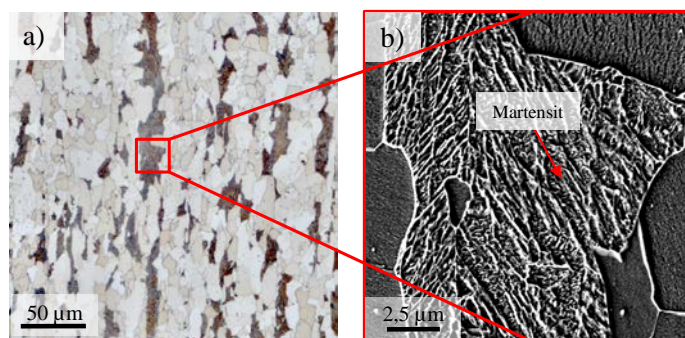


Abbildung 4-3: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer Dualphasen-Probe mit einer ferritischen Matrix und martensitischer, zweiter Phase. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.

4. Probenmaterial und Präparation

Abbildung 4-4 zeigt ebenfalls eine ferritische Matrix (durchschnittliche Korngröße $30 \mu\text{m}^2$) mit einer martensitischen zweiten Phase. Durch eine Anlassbehandlung hat sich jedoch Zementit ausgeschieden.

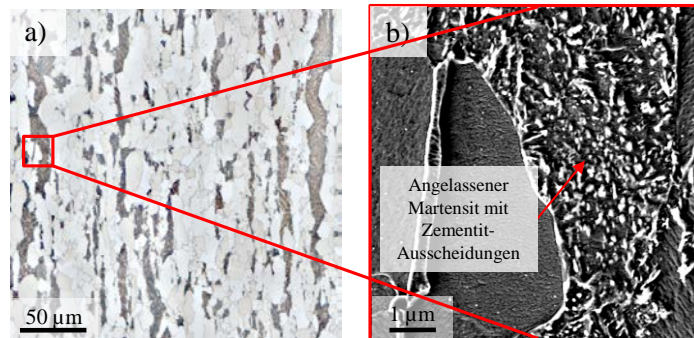


Abbildung 4-4: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer angelassenen Dualphasen-Probe mit einer ferritischen Matrix und martensitischer, zweiter Phase, die durch das Anlassen Zementit-Ausscheidungen aufweist. a) Lini-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.

Um die Möglichkeiten der Klassifizierungsansätze abschätzen zu können, wurden stellvertretend für die Bainit-Klasse ebenfalls Proben ausgewählt, ohne auf die weitere Unterteilung nach [12], [13], [15] einzugehen. In Abbildung 4-5 ist eine Probe dargestellt, in welcher der Bainit im Vergleich zu den bainitischen Proben in Abbildung 4-2 in einem abgeschlossenen Korn und somit recht deutlich abgrenzbar vorliegt. Die mittlere Korngröße des Ferrits liegt bei $35 \mu\text{m}^2$.

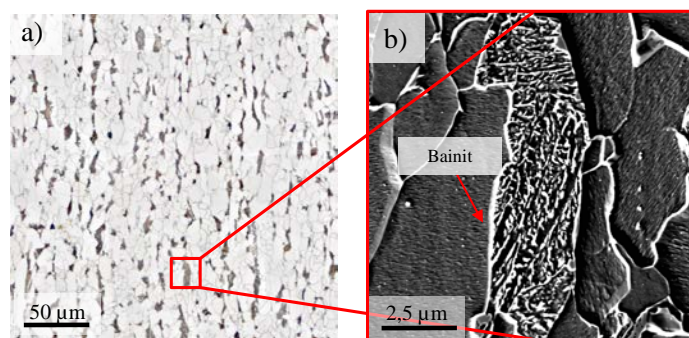


Abbildung 4-5: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer zweiphasigen-Probe mit einer ferritischen Matrix und bainitischer, zweiter Phase bestehend aus Zementit-Agglomerationen. a) Lini-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.

Auch der Perlit soll in der Klassifizierung berücksichtigt werden, sodass auch für diese Klasse Proben, repräsentativ in Abbildung 4-6 dargestellt, benötigt werden. Die Körner sind im Vergleich zu den martensitischen und bainitischen Proben wesentlich größer, was auch die mittlere Ferritkorngröße von $500 \mu\text{m}^2$ belegt.

4. Probenmaterial und Präparation

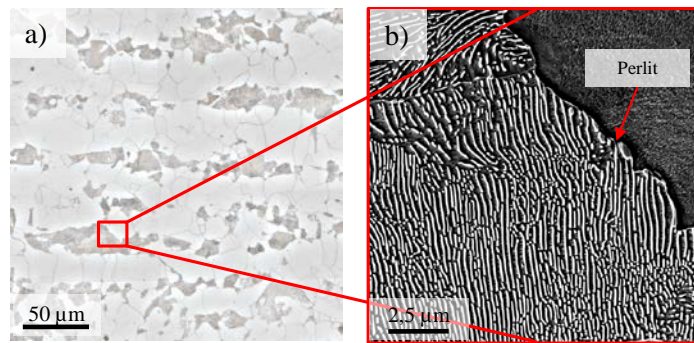


Abbildung 4-6: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer ferritisch-perlitischen Probe. a) Lichtmikroskopische Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.

Alle Proben wurden, sofern nicht explizit anders erwähnt, gemäß der in Tabelle 4-1 aufgeführten Schritte präpariert. Dabei wurde stets auf eine verformungs- und möglichst artefaktfreie Oberfläche geachtet. Zur Überprüfung bietet sich der Dunkelfeldmodus oder der differentielle Interferenzkontrast im Limi an, da Unebenheiten oder Kratzer besonders leicht erkennbar sind. Nur wenn eine ausgezeichnete Oberflächenqualität gewährleistet werden kann, können reproduzierbare Ergebnisse erzielt werden ([18], [20], [61]). Die Proben wurden nicht eingebettet.

Tabelle 4-1: Detaillierte Darstellung der Präparationsschritte für weitergehende Untersuchungen. Angegeben sind die verwendeten Schleif- und Polierunterlagen, Suspension/Lubrikant (alle von Fa. Struers), aufgebrachte Kraft über die Poliermaschine (Struers TegraPol 21), Relativbewegung der Schleif-/Polierscheibe zum Probenhalter (e = Gegenlauf, g = Gleichlauf) sowie die Präparationszeit des jeweiligen Schrittes.

Tuch/Scheibe	Suspension	Kraft pro Probe (N)	Relativbewegung Unterlage zu Probenhalter	Zeit (min:s)
MD-Piano 80		25	e	Bis plan
MD-Piano 120		25	e	3:30
MD-Piano 220		25	e	3:00
MD-Piano 500		25	e/g	3:00/3:00
MD-Piano 1200		20	e/g	3:00/3:00
MD-Piano 2000		20	e/g	3:00/3:00
MD-Allegro	DiaDuo-2, 6 µm	15	e	4:00
MD-Mol	DiaDuo-2, 3 µm	15	e	6:30
MD-Nap	DiaDuo-2, 1 µm	10	e	5:00
MD-Chem	APD-Pulver, 0,05 µm/Wasser		e	1:00/1:00

4. Probenmaterial und Präparation

Die Lini-Aufnahmen erfolgten an einem Zeiss Axio Imager Z2, einem Olympus BX-10 sowie an einem Leica DX-6000. Auch ein Laserscanningmikroskop des Typs Olympus OLS 4100 kam der höheren lateralen Auflösung wegen zum Einsatz. Die REM-Aufnahmen wurden an einem Zeiss Merlin, einem Zeiss Supra sowie an einer Dual-Beam Anlage (kombiniertes REM mit Fokussiertem Ionenstrahl (FIB)) von FEI (Helios 600) mit folgenden Einstellungen, sofern nicht anders aufgeführt, angefertigt: Beschleunigungsspannung von 5 kV sowie einem Strom von 0,69 nA (für Sekundärelektronendetektor) und 86 pA (für In-Lens-Detektor). EBSD-Untersuchungen wurden mittels EDAX-Hikari (OIM DC) an den o. a. REMs durchgeführt. Die Auswertung der EBSD-Daten erfolgte mit der Software OIM Analysis 7. Die Dual-Beam Anlage kam darüber hinaus zur Anfertigung von Querschnitten (Beschleunigungsspannung von 30 kV und Strahlströme von 20 nA, 6,5 nA, 2,7 nA und 0,9 nA) sowie zur Zielpräparation von TEM-Folien gemäß [62] zum Einsatz.

5 Gefügekontrastierung

Bereits die Geburtsstunde der Metallographie durch Sorby und Martens gegen Ende des 19. Jahrhunderts ist eng mit dem Werkstoff Stahl verbunden ([20]). Auch zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist der Werkstoff Stahl durch sein enormes Anwendungsspektrum und die kontinuierliche Weiterentwicklung zentraler Gegenstand der Metallographie und Innovations-treiber auf diesem Sektor. Neben der adäquaten Schliﬀpräparation (Kapitel 4) ist die Gefügekontrastierung für die meisten mikroskopischen Verfahren wie Licht- und Rasterelektronenmikroskopie bei Stahl notwendig, um anschließende qualitative und quantitative Gefügeanalysen zu ermöglichen.

Neben physikalischen Methoden der Kontrastierung, wie beispielsweise dem thermischen Ätzen, kommen in der Metallographie von Stahl überwiegend (elektro-)chemische Ätzungen zum Einsatz. Eine Redoxreaktion, die zwischen dem Metall und einer entsprechenden Ätzlösung abläuft, führt durch unterschiedliche elektrochemische Potentiale zwischen den Gefügebestandteilen zu einem selektiven Angriff der Schliﬀoberfläche ([18]). Während bei Strukturätzungen in erster Linie die Korn- und Phasengrenzen angegriffen werden, können sog. Niederschlags- bzw. Farbätzungen Interferenzschichten auf den Kornflächen ausbilden, die für eine Färbung verantwortlich sind ([19]). Obwohl die Strukturätzung Nital die häufigste Ätzung für Stähle mit niedrigem Kohlenstoffgehalt ist, haben Farbätzungen nach LePera ([63]) und Beraha ([64]) ein enormes Potenzial in der praktischen Metallographie. Sie ermöglichen nicht nur die verschiedenen Phasen des Gefüges zu unterscheiden, sondern auch Orientierungsunterschiede und Substrukturen sichtbar zu machen ([65]). Farbätzungen zeigen jedoch bisweilen eine schlechte Reproduzierbarkeit und es fehlt eine solide Wissensbasis für ihre Anwendung.

5.1 Grundlagen der Gefügekontrastierung und gegenwärtiger Kenntnisstand

Nur wenige Methoden in der Gefügecharakterisierung können oder müssen an polierten Proben durchgeführt werden (z. B. EBSD oder REM-Abbildung mittels Rückstreuelektronen [66]). Der überwiegende Teil an Methoden zur Gefügeabbildung setzt eine Topographie voraus, die auf die unterschiedlichen Phasen- oder Gefügebestandteile zurückzuführen ist. Diese Kontrastierung wird unter dem Begriff metallographisches Ätzen zusammengefasst. Gemäß [18] umfasst dies jedoch nicht ausschließlich Ätzungen im eigentlichen Wortsinn (selektive Lösungsvorgänge von Metallen), sondern auch sog. optisches Ätzen. Dies bezieht sich insbesondere auf die unterschiedlichen Kontrastierungsverfahren im Limi ([67]).

Für Stähle allgemein und für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten niedriglegierten Stahlproben im Speziellen wird üblicherweise eine Kontrastierung mittels elektrochemischem Ätzen gewählt, um die unterschiedlichen Phasen mittels Licht- und Rasterelektronenmikroskopie darstellen zu können (eine Übersicht gängiger Ätzungen für niedriglegierte Stähle kann dem Anhang – Übersicht Ätzrezepte entnommen werden).

Das elektrochemische Ätzen beruht auf Redox-Prozessen. Die Oxidation, die eine Abgabe von Elektronen bedeutet, steht im Gleichgewicht mit der Reduktion, die eine Aufnahme von Elektronen bedeutet. Ein anschauliches Beispiel dafür ist die Korrosion von Eisen ([68]). Welches Element oxidiert und welches reduziert wird, hängt vom jeweiligen chemischen Potential und somit von der Position in der elektrochemischen Spannungsreihe ab. Wird ein Metall in einen Elektrolyten bzw. eine Lösung gegeben, oxidiert das Metall unter Abgabe von Elektronen und Bildung von Metallionen ([69]). Diese Redoxreaktionen laufen auch auf der Gefügeskala ab. Die unterschiedlichen Gefügebestandteile weisen unterschiedliche Potentiale auf und bilden somit mikroskopische Lokalelemente. Dabei spielt nicht nur die chemische Zusammensetzung – die im Stahl im Wesentlichen durch den Kohlenstoffgehalt der jeweiligen Phase bestimmt wird – eine Rolle. Auch chemische und physikalische Inhomogenitäten, wie sie beispielsweise an Korngrenzen vorliegen, haben ein unterschiedliches Potential und werden somit unterschiedlich stark angegriffen ([18]). Die unterschiedlichen Potentiale führen somit zu einem selektiven Abtrag der verschiedenen Gefügebestandteile an der Probenoberfläche und

5. Gefügekontrastierung

bilden eine Topographie, die über die unterschiedliche Lichtbrechung im Lini ([67]) oder durch einen Topographiekontrast im REM ([66]) genutzt werden kann.

Grundsätzlich kann zwischen Struktur- und Niederschlagsätzungen unterschieden werden ([20]). Bei der Strukturätzung kommt es in Folge der beschriebenen Potentialunterschiede zwischen den Gefügebestandteilen zu einem selektiven Ätzangriff der Gefügebestandteile. Während die kohlenstoffreicheren Phasen sowie Korngrenzen, an denen verschiedene Elemente höher konzentriert sind (z. B. Korngrenzensegregation), von den meisten Strukturätzungen nicht oder lediglich schwach angegriffen werden, gehen die unedleren Phasen wie beispielsweise der Ferrit in Lösung. Allgemein kann diese Art der Ätzungen wiederum in Korngrenzen-, Relief- und Kornflächenätzungen unterteilt werden, je nach dominierender Wirkweise. Beispielhaft sei in Abbildung 5-1 eine Korngrenzenätzung schematisch dargestellt.

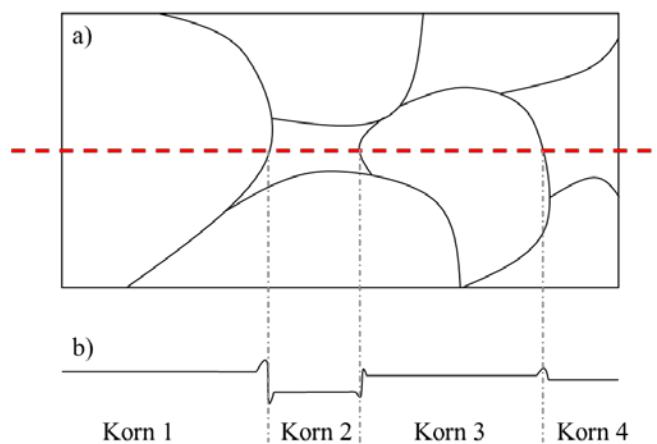


Abbildung 5-1: Schematische Darstellung einer Korngrenzenätzung: a) Betrachtung der geätzten Schlieffläche. Die Korngrenzen werden dargestellt. b) Höhenprofil entlang der roten Linie. Durch das unterschiedliche Potential zwischen den Körnern und Korngrenzen werden die Kornflächen abgetragen, während die Korngrenzen stehen bleiben. Darüber hinaus sind unterschiedlich starke Abtragsniveaus zwischen den Körnern ersichtlich, die auf Orientierungsunterschiede, die ebenfalls das Potential beeinflussen, zurückzuführen sind.

Wie aus Abbildung 5-1 zu entnehmen ist, werden die Korngrenzen nicht angegriffen und sind gegenüber der Kornflächen erhaben. Darüber hinaus führen die Potentialunterschiede aufgrund der verschiedenen Kornorientierungen ebenfalls zu einem unterschiedlich großen Abtrag. Diese Erscheinungsform einer Strukturätzung ist nur eine von vielen Möglichkeiten. Je nach Ätzung können auch die Korngrenzen gezielt angegriffen werden, während die Körner weniger stark abgetragen werden. Der Orientierungseinfluss auf das Potential ist schließlich auch die Grundlage für die Relief- oder Kornflächenätzungen. Bei der Reliefätzung kommt es zu einer orientierungsabhängigen Reliefbildung, während bei der Kornflächenätzung die Körner

5. Gefügekontrastierung

orientierungsabhängig unterschiedlich stark, aber innerhalb der Körner vergleichsweise homogen abgetragen werden. In der Praxis verlaufen die Übergänge zwischen diesen Ätztypen zumeist fließend oder liegen gleichzeitig vor. [18], [20]

Da die Strukturätzungen lediglich Topographien erzeugen, sind diese durch die entstehenden unterschiedlichen Grauschattierungen nur eingeschränkt aussagekräftig. In vielen Fällen besteht das zu untersuchende Gefüge jedoch aus mehreren Phasen. Auch die bereits genannten Einflüsse auf das Potential wie Orientierung und chemische Inhomogenitäten können mit Strukturätzungen nur unzureichend dargestellt werden. Abhilfe schaffen für diese Fälle die Niederschlags- bzw. Farbätzungen ([70]). Bei dieser Gruppe der Ätzungen erfolgt neben dem selektiven Ätzangriff auch eine Abscheidung eines Niederschlages auf bestimmten Gefügebestandteilen. Je nach Niederschlagsätzung werden entweder die anodischen Bereiche mit einer Deckschicht versehen (anodische Niederschlagsätzung) oder die kathodischen (kathodische Niederschlagsätzung). Die während der Farbätzung entstehenden Niederschläge bestehen zumeist aus einer schwerlöslichen Verbindung aus Sauerstoff, Schwefel, Chrom oder auch Molybdän und dem in Lösung gegangenen Metall. [18], [20], [71]

Die Niederschläge liegen bei korrekter Durchführung der Ätzung in einem Bereich von 40 - 500 nm. Die eigentliche Färbung entsteht schließlich durch Interferenz des einfallenden Lichtes. Während ein Teil des Lichtes am Film reflektiert wird, wird der andere Teil erst an der Substratoberfläche unterhalb der Interferenzschicht reflektiert. Den unterschiedlichen Brechungsindex der Schicht berücksichtigt, kommt es beim Austreten des Lichtes aus der Schicht zur Interferenz (Abbildung 5-2).

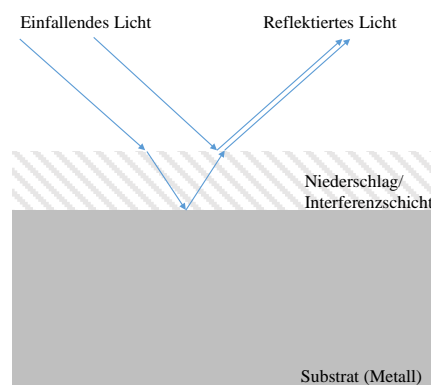


Abbildung 5-2: Prinzip der Interferenz durch die während der Niederschlagsätzung gebildete Deckschicht. Ein Teil des Lichtes wird an der Schicht, ein Teil an der Metalloberfläche reflektiert. Beim Austritt des Lichtes kommt es zur Interferenz. (Modifiziert nach [71].)

5. Gefügekontrastierung

Bei der Betrachtung mit weißem Licht ist die Bedingung für destruktive Interferenz durch die Deckschicht stets für eine Wellenlänge erfüllt, sodass diese ausgelöscht wird. Entsprechend erscheint die Schicht in der Komplementärfarbe der ausgelöschten Wellenlänge. Die Farben der Niederschlagsschicht durchlaufen sukzessive unterschiedliche Ordnungen, beginnend mit gelb, rot, violett und blau. Ab der zweiten Ordnung kommt auch grün hinzu. Nach Jeglitsch et al. nimmt die Leuchtkraft mit zunehmender Ordnung allerdings ab. Bei Erreichen einer bestimmten Schichtdicke ist schließlich keine Interferenz mehr möglich und es bildet sich eine kompakte, dichte Schicht, die eine Gefügebewertung unmöglich macht. [71]

In mehreren Standardwerken sind für viele Metalle Ätzrezepturen hinterlegt ([18]–[20], [72]; siehe auch Anhang – Übersicht Ätzrezepte). Da diese Rezepte jedoch sehr allgemein gehalten sind, meist empirisch entwickelt wurden und von den Umgebungs- und Versuchsbedingungen hochgradig abhängig sind, ist es stets notwendig, eine für die gegebene Aufgabenstellung passende Rezeptur auszuwählen und diese in geeigneter Weise anzuwenden. Die Farbätzungen stellen dabei meist die größere Herausforderung dar – nicht zuletzt weil die Wirkweise nicht vollständig geklärt ist. Ein detaillierter Blick auf die Entwicklung von Niederschlags- bzw. Farbätzungen ist daher für einen zielgerichteten Einsatz notwendig. Generell ist zu beachten, dass die Geschwindigkeit der ablaufenden Ätzung nach [69] von der Temperatur, der elektrischen Leitfähigkeit und dem Dissoziationsgrad des Oxidationsmittels abhängt. Auch das Lösungsmittel hat einen erheblichen Einfluss auf die Ätzung. So kann grundsätzlich durch ein organisches Lösungsmittel ein im Vergleich zu Wasser gleichmäßigerer Angriff erreicht werden ([61], [73]), da es die Dissoziation der Säure hemmen kann.

Die Farbätzung wurde 1951 von H. Klemm unter Verwendung von Metabisulfiten eingeführt ([74]). Es wurde dazu eine gesättigte wässrige Natriumthiosulfatlösung ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$) unter Zugabe von Kaliummetabisulfit ($\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_5$) zur Kontrastierung von Zementit und Restaustenit in einer ferritischen Matrix verwendet. Durch ihre hervorragenden Ergebnisse fand diese Ätzlösung auch in vielen weiteren Anwendungsbereichen Einzug. [74]

Auch E. Beraha verwendete Metabisulfite in seinen Arbeiten. 1966 veröffentlichte er ein Ätzverfahren mit Kaliummetabisulfit, das bei rostfreien und hitzebeständigen Stählen eingesetzt wurde ([64]). 1967 entwickelte er zwei weitere Ätzlösungen, die es ermöglichten, chemische und physikalische Inhomogenitäten in Eisen, Kohlenstoff und legierten Stählen darzustellen ([75]). Die erste Ätzung basierte auf einer wässrigen 3 %-igen Kaliummetabisulfitlösung, die

5. Gefügekontrastierung

auf den verschiedenen Gefügebestandteilen einen Sulfidfilm erzeugte, aber z. B. Karbide, Nitride oder Chromschichten nicht angriff. In der zweiten Ätzung wurde Natriumthiosulfat verwendet. In [76] wurde Salzsäure (HCl) verwendet, um das Kaliummetabisulfit, das zur Bildung eines Sulfidfilms auf den ferritischen, martensitischen und austenitischen Körnern verwendet wurde, zu zersetzen. Dies führte zu deutlich sichtbaren Korngrenzen und einer farbigen Matrix. Mit der Entwicklung weiterer Farbätzungen zeigte Beraha das enorme Potenzial dieser Kontrastmethode und ihr breites Anwendungsspektrum. [77], [78]

LePera verwendete für seine Arbeit ebenfalls Sulfidfilme. Er nutzte jedoch eine Ätzung auf Pikrinsäurebasis ($C_6H_3N_3O_7$, Abbildung 5-3) mit einer wässrigen Natriummetabisulfitlösung, ($Na_2S_2O_5$, auch als Natriumdisulfit oder Natriumpyrosulfit bezeichnet), um die verschiedenen Phasen in hochfesten Dualphasenstählen darzustellen.

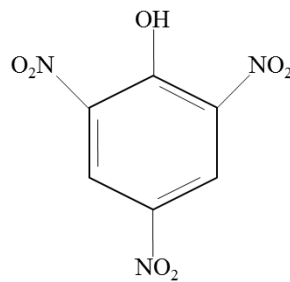


Abbildung 5-3: Strukturformel der Pikrinsäure. An dem Benzolring sind drei Nitrogruppen sowie eine Hydroxygruppe gebunden.

Dies war notwendig, da die detaillierte quantitative Gefügeanalyse aufgrund des fehlenden Kontrastes bisweilen problematisch war ([79]). Er betonte, dass die Probe keine Verformungsschicht aufweisen darf. Um diese zu gewährleisten, empfahl er diese Schicht durch abwechselndes Polieren und Ätzen mit einer alkoholischen Salpetersäure (HNO_3), auch bekannt als Nital, zu entfernen. Die Ätzung basierte auf einer 1 %-igen wässrigen Natriumbisulfitlösung und einer 4 %-igen alkoholischen Pikrinsäure, die zu gleichen Teilen gemischt wurden. Die zu kontrastierende Probe wurde unmittelbar nach dem Mischen der beiden Komponenten für sieben bis zwölf Sekunden in die Ätzlösung eingetaucht. Anschließend wurde die Probe mit Ethanol gereinigt, wonach die Oberfläche blau-orange erschien. Bainit wurde demnach schwarz, Ferrit hellbraun und Martensit weiß eingefärbt, wobei die Ätzzeit verlängert wurde, wenn der erzielte Kontrast nicht ausreichend war.

5. Gefügekontrastierung

In [63] zeigte LePera die gleiche Ätzung auf hochfesten, chromhaltigen Dualphasenstählen. Die Deformationsschicht wurde mit einer Lösung aus alkoholischer Pikrinsäure (Pikral) statt Nital entfernt und die Endpolitur mit 0,05 µm Gamma-Aluminiumoxid durchgeführt. Die Ätzzeit betrug nur fünf bis sechs Sekunden, danach leuchtete die Probe gold-orange bis blau. Je nach Zusammensetzung der Probe, z. B. bei Proben mit einem Chromgehalt von weniger als 0,1 Gew.-%, wurde gelegentlich ein unzureichender Kontrast zwischen den Phasen erzielt, der durch eine längere Ätzzeit jedoch kompensiert werden konnte. Darüber hinaus zeigte sich, dass die Ätzung für Standard-Dualphasenstähle mit einem Martensitgehalt von bis zu 60 % geeignet war. Anderenfalls ging der Kontrast zwischen Martensit und Ferrit verloren.

In der Folge wurden die Rezepturen von Klemm, Beraha und LePera meist für verschiedene Fragestellungen untersucht, teils leicht modifiziert und untereinander verglichen. So nutzten Shui et al. verschiedene Ätzungen, um den Bainit und Martensit eines molybdänhaltigen Stahls zu quantifizieren ([80]). Die verwendeten Proben unterschieden sich in der Menge an Bainit, die bei 10 % bzw. 45 % lag, und in der martensitischen Matrix. Der Erfolg der verschiedenen Ätzungen hing weitgehend von den vorhandenen Phasenverhältnissen ab, weshalb die Auswahl des Ätzmittels stets angepasst werden sollte. Die LePera-Ätzung war die einzige Ätzung, die alle Orientierungen des Ferrits in beiden Gefügeständen sowie den größten Bereich des Bainitgehaltes abdecken konnte. Der Kontrast zwischen Bainit und Martensit war jedoch nicht immer ausreichend für eine Unterscheidung. Dieses Problem konnte durch eine zusätzliche Ätzung mit Natriummetabisulfit gelöst werden, die den Kontrast erhöhte. Für hohe Bainitgehalte sorgten die Klemm-Ätzung und eine kochende, alkalische Natrium-Pikrat-Lösung ($C_6H_2N_3NaO_7$) für den besten Kontrast.

Marder und Bencoter zeigten, dass auch das Ergebnis einer quantitativen Gefügeanalyse in hohem Maße von der verwendeten Ätzung abhängt ([81]). Der ermittelte Volumenanteil der zweiten Phase in einem Dualphasenstahl war bei der Verwendung einer LePera-Ätzung geringer als bei der Verwendung einer 1 %-igen wässrigen Natriummetabisulfitlösung, da die LePera-Ätzung auch kohlenstoffarmen Martensit wie Ferrit farbig erscheinen ließ.

Pokorny zeigte in ihrer Arbeit den Einfluss der Oberflächenbeschaffenheit auf die Ätzwirkung von kupferhaltigen Niederschlagsätzen nach Heyn und Oberhoffer auf Stahlproben ([82]). Neben den mechanischen Einflüssen aus der Probenvorbereitung, was auch von Ray et al. ([83]) berichtet wurde, waren die chemischen Einflüsse ein entscheidender Faktor für den Ätzerfolg.

5. Gefügekontrastierung

Zu diesen Einflüssen gehörte unter anderem eine chemisch adsorbierte Schicht, die sich beim Polieren bildete. Diese hatte keinen Einfluss auf Strukturätzungen, da sie durch den Ätzprozess entfernt wurde. Da Farbätzungen einen weniger ausgeprägten Ätzangriff zeigen, reagierte die Farbätzung mit Natriumthiosulfat deutlich empfindlicher auf mechanische und chemische Einflüsse. Die Erkenntnisse über die chemisch adsorbierte Schicht wurden mittels Auger-Elektronenspektroskopie und Sekundär-Ionen-Massenspektroskopie vertieft. Die Ergebnisse zeigten, dass die Schicht aus Sauerstoff-Metallverbindungen sowie Schwefel- oder Ammoniumverbindungen bestand. Interessanterweise konnte ein Unterschied festgestellt werden, ob der letzte Polierschritt in Stadt- oder Landluft stattfand. Die daraus resultierende Erhöhung des chemischen Potentials an der Oberfläche durch die adsorbierten Elemente unterdrückte die Ätzung. Dieses Phänomen konnte beim Kupferätzen beobachtet werden, da frisch polierte Proben schlechtere Ergebnisse lieferten als Proben, die 20 Stunden lang an Luft oder im Vakuum gelagert wurden.

Bandoh et al. entwickelten ein Ätzverfahren basierend auf Natriumthiosulfat, Natriumthiosulfat-Pentahydrat ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$), Pikral und Nital, um die Struktur hochfester Stähle zu charakterisieren ([84]). Auch sie konstatierten, dass es eine Reihe von Faktoren gibt, die das Ätzergebnis beeinflussen. Die wichtigsten Faktoren waren die Wahl des Einbettmittels, die Ätzzeit, die Ätztemperatur und die Luftfeuchtigkeit der Trocknungsluft. Nach dem Polieren wurden die Proben mit einer relativen Luftfeuchtigkeit von maximal 45 % luftgetrocknet. Die verschiedenen Ätzkomponenten wurden mit Argon entgast und die Probe unmittelbar nach dem Mischen in der Lösung geätzt. Die Probenoberfläche wurde zunächst braun, nach wenigen Sekunden erfolgte die Einfärbung der verschiedenen Phasen. Nach der Reinigung der Proben wurden sie mit warmer Luft mit einer relativen Luftfeuchtigkeit von weniger als 40 % getrocknet. Dies war notwendig, da die Ätzung sonst nicht fixiert werden konnte. Als Folge davon erschienen der Ferrit blau, Martensit und Restaustenit gelb und Bainit braun.

Um die unterschiedlichen Bestandteile in einem TRIP-Stahl auch für elektronenmikroskopische Untersuchungen sichtbar zu machen, untersuchten Girault et al. ebenfalls diverse Ätzungen ([85]) und erachteten auch für diesen Zweck die Farbätzung nach LePera für geeignet. Im Limi erschien der Ferrit grün-blau, Bainit braun und Martensit sowie Restaustenit weiß. Es wurde festgestellt, dass in einigen Fällen das Verhältnis der beiden Ätzkomponenten die Färbung bestimmt. Für den Fall, dass die Oberfläche lediglich einen bläulichen Kontrast für alle Phasen

5. Gefügekontrastierung

zeigte, konnte durch eine erhöhte Zugabe von Pikrinsäure zur Ätzlösung ein sehr gutes Resultat erreicht werden. Wurde das Gefüge hingegen lediglich bräunlich kontrastiert, wurde mehr Natriumbisulfit der Lösung zugegeben. Darüber hinaus wurde die Farbgebung maßgeblich durch die Stahlzusammensetzung, insbesondere durch den Kohlenstoff- und Siliziumgehalt, bestimmt. Durch den zunehmenden Kohlenstoffgehalt änderte sich die Farbe des Ferrits von blau nach braun. Ein Siliziumgehalt von mehr als 1 Gew% erleichterte die Unterscheidung zwischen Ferrit und Bainit.

Während die wesentlichen Entwicklungen und Untersuchungen zu Ätzungen von Stählen in den siebziger und achtziger Jahren stattfanden, folgten zwei Jahrzehnte ohne nennenswerte Veröffentlichungen. Auf dem Gebiet der Farbätzung setzten Füreder und Angeli erst ab 2006 wieder neue Impulse. Sie stellten u. a. Modellüberlegungen zum selektiven Ätzen und Kontrastieren von Struktur- und Farbätzungen an niedriglegierten Dualphasen- und TRIP-Stählen an, um weitere Einblicke in die Ätzprozesse und die anschließende Phasenidentifikation zu gewinnen ([22]). Um das Auflösungsverhalten der unterschiedlichen Bestandteile in Mehrphasenstählen abschätzen zu können, wurden Potentialdifferenzen für die Phasen Ferrit, Bainit, Martensit und Restaustenit unter Vernachlässigung der Legierungselemente berechnet. Neben der chemischen Zusammensetzung reduzieren auch Defekte der regulären Gitterstruktur, wie Versetzungen, das Potential. Infolgedessen wurde Martensit als weniger edel in Bezug auf Austenit eingestuft. Um diese Theorie zu verifizieren, wurde eine Nital-Ätzung durchgeführt. Dies führte zu einer leichten Ätzstruktur auf der Oberfläche des Martensits, die der Austenit nicht zeigte. Bainit wurde ähnlich zum Ferrit angegriffen, jedoch ohne dass die Karbide angegriffen wurden. Zudem konnte bei Ferrit ein Einfluss der Orientierung beobachtet werden, da Körner mit einer Orientierung von (100) weniger stark angegriffen wurden als (111)-orientierte Körner. Um die Modellüberlegungen auch für anodische Farbätzungen zu überprüfen, wurden drei Ätzverfahren auf TRIP-Stähle angewendet. Anodische Farbätzungen nach Klemm und LePera sowie kathodische Farbätzungen mit Molybdänsäure ($\text{MoO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) wurden durchgeführt und es wurde gezeigt, dass die Ätzung nach LePera nur als reines Farbätzen auf Proben mit einem Kohlenstoffgehalt von ca. 0,6 Gew% anwendbar ist. Füreder et al. nutzten die Beraha-Ätzung und die LePera-Ätzung zur quantitativen Gefügecharakterisierung von niedriglegierten Dualphasenstählen ([23]). Die erhaltene Färbung entsprach den Ergebnissen von [22], [63], [79], [85]. Es zeigte sich jedoch, dass die Verwendung der Beraha-Ätzung den Martensit aufräute und nur eine geringe Schichtbildung

5. Gefügekontrastierung

auftrat, während der Ferrit keinen Ätzangriff erfuhr. Im Gegensatz dazu zeigte die LePera-Ätzung sowohl auf Ferrit als auch auf Martensit eine Schicht, die weniger entwickelt war als auf den ferritischen Körnern. REM-Untersuchungen zeigten, dass der Ätzangriff bei beiden Farbätzungen nur schwach ausgeprägt ist. Der Abtrag war bei der Beraha-Ätzung jedoch noch ausgeprägter als bei der LePera-Ätzung. Daher wurde gefolgert, dass der Kontrast durch die Beraha-Ätzung hauptsächlich durch einen Ätzabtrag entstand und der Kontrast durch die Lepera-Ätzung zu gleichen Teilen durch Ätzabtrag und Schichtbildung verursacht wurde.

Auch Zakerinia et al. ([86]) nutzten die LePera-Ätzung für ihre Untersuchungen, stellten jedoch fest, dass Bainit und Martensit nicht immer eindeutig unterscheidbar waren und verwendeten daher eine Ätzlösung auf der Basis einer wässrigen Natriummetabisulfidlösung, die jedoch keine Unterscheidung zwischen Ferrit und Austenit ermöglichte. Ähnliche Probleme hatten Hairer et al. ([87]), die zwar mittels LePera-Ätzung Ferrit und Martensit in seinen Komplexphasenstählen gut unterscheiden konnten, jedoch keinen angelassenen Martensit, Bainit und Restaustenit.

Durch die Kombination aus einer Pikralätzung gefolgt von einer Kaliummetabisulfid- bzw. einer Natriumthiosulfat-Ätzung konnten Szabo et al. ([88]) den Orientierungseinfluss durch zusätzliche EBSD-Messungen nachweisen. Dabei wurde festgestellt, dass gleiche Kornorientierung zu gleicher Kornfärbung führt. In weiterführenden Arbeiten wurde zudem ein direkter Zusammenhang zwischen der Farbe und der Orientierungsabweichung zur Probennormale eines Kornes zur $\langle 100 \rangle$ -Richtung hergestellt ([89]). Ähnliche Ergebnisse erzielte auch Reisinger ([90]).

Aus der Literaturübersicht und der metallographischen Praxis wird deutlich, dass die Kontrastierung mittels Farbätzungen auch zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch eine große Bedeutung hat. Durch eine Vielzahl von Faktoren, die das Ätzergebnis beeinflussen können, kann das Potential dieser Farbätzungen jedoch nicht ausgeschöpft werden und führt zu schlechter Reproduzierbarkeit und Fehlinterpretationen. Darüber hinaus hat sich gezeigt, dass es praktisch keine systematische Untersuchung dieser Einflüsse gibt. Dies ist ein möglicher Grund, warum die Ätzergebnisse nicht immer zufriedenstellend oder reproduzierbar sind. Um eine Charakterisierung der immer komplexer werdenden Gefüge zu ermöglichen, müssen die Farbätzungen und ihre Einflussfaktoren genauer untersucht und besser verstanden werden. Ziel der folgenden Kapitel ist es daher, eine systematische Parameterstudie durchzuführen, indem ein geeigneter Aufbau zum Ätzen etabliert wird. Nur so können die Einflüsse auf das Ätzen

5. Gefügekontrastierung

nach LePera und Beraha ermittelt, die auftretenden Kontrastmechanismen verstanden und schließlich ein reproduzierbares Ätzergebnis für niedriglegierte Stähle erzielt werden. Vorrangiges Ziel ist, die in den Kapiteln 2 und 4 beschriebenen Phasen bzw. Proben bestmöglich zu kontrastieren und schließlich zur Quantifizierung zu separieren. Dies ist mit den Verfahren des gegenwärtigen Kenntnisstandes lediglich sehr eingeschränkt und nie reproduzierbar möglich.

5.2 Versuchsaufbau

Um die in Kapitel 5.1 dargestellten Herausforderungen in Bezug auf elektrochemische Ätzungen im Allgemeinen und Niederschlags- bzw. Farbätzungen im Speziellen systematisch untersuchen zu können, sind definierte Bedingungen sowie eine genaue Analyse der Einflussparameter während des Ätzprozesses erforderlich. In Kapitel 5.2.1 wird zu diesem Zweck ein kontrollierter Ablauf der Ätzungen sowie ein Versuchsaufbau, der sämtliche, für den Ätzprozess relevante Parameter steuern und konstant halten kann, vorgestellt.

Die gängige Praxis zur Bestimmung der passenden Ätzzeiten, wie sie beispielsweise in [18] beschrieben und vorgeschlagen wird, besteht aus einer nicht näher spezifizierten Anzahl an Versuchen unter Variation der Verweilzeit des metallographischen Schliffes in der Ätzlösung, bis schließlich ein zufriedenstellendes Ergebnis erreicht wird. In Kapitel 5.2.2 wird zu diesem Zweck ein neuer Ansatz vorgestellt, um einerseits den Ablauf der Ätzungen besser zu verstehen und andererseits den notwendigen Aufwand zur Identifizierung der korrekten und optimalen Ätzzeit effektiv zu bestimmen.

Die entwickelten Methoden wurden weitestgehend in [53] und [57] veröffentlicht.

5.2.1 Aufbau zur systematischen Gefügekontrastierung

Farbätzungen setzen kontrollierte Umgebungs- und Versuchsbedingungen voraus. In der metallographischen Praxis herrschen diese Bedingungen jedoch selten vor. In metallographischen Laboren werden die Ätzungen zumeist in einem Abzug durchgeführt ohne auf weitere Rahmenbedingungen zu achten. Die Ergebnisse können von inhomogenen Ätzungen über fehlende Reproduzierbarkeit bis hin zu Fehlversuchen reichen.

Der in der vorliegenden Arbeit entwickelte Ansatz ermöglicht die Durchführung systematischer Parameterstudien zur gezielten und verlässlichen Anwendung von Ätzungen unter kontrollierten Bedingungen. Der entwickelte Versuchsaufbau ist in Abbildung 5-4 dargestellt.

5. Gefügekontrastierung

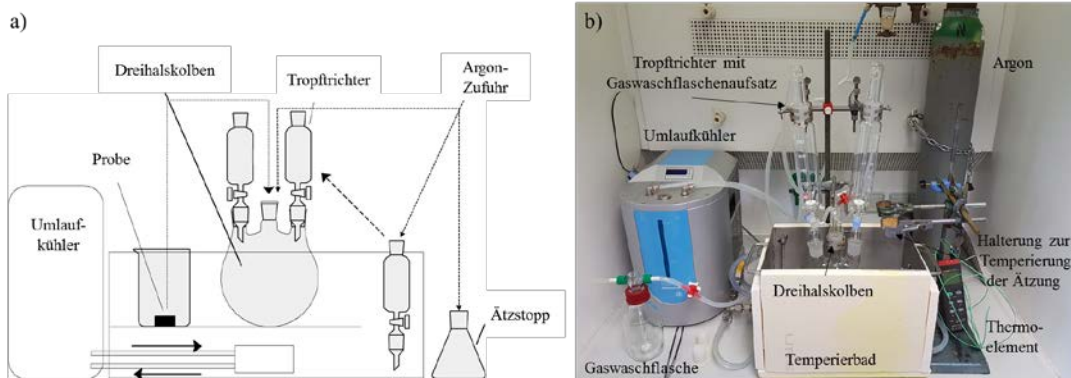


Abbildung 5-4: Versuchsaufbau zur systematischen Untersuchung von Ätzungen. Die Hauptkomponenten sind ein Umlaufkühler, ein Kühl-/Heizbad, ein geschlossenes System mit Argonanschluss sowie eine Gaswaschflasche für den Ätzstopp. Nach der Entgasung mittels Argon werden die Tropftrichter mit den Ätzlösungen, die im Temperierbad auf Temperatur gebracht werden, auf den Dreihalskolben gebracht. Anschließend wird die Probe, die ebenfalls temperiert wird, in den Dreihalskolben überführt, sodass der Ätzprozess starten kann. Um die Ätzung zu stoppen, wird die Probe aus dem Kolben entnommen und in ein Behältnis mit Ethanol (ebenfalls mit Argon gespült) gegeben; a) Schematische Darstellung des Aufbaus; b) Darstellung des tatsächlichen Aufbaus im Labor.¹

Um das Ätzen bei unterschiedlichen Temperaturen durchführen zu können, ist ein Temperierbad erforderlich, das die Temperatureinstellung ermöglicht sowie in der Versuchsvorbereitung die notwendigen Lösungen über eine separate Halterung auf Temperatur bringt. Zusätzlich kann die freigesetzte Reaktionswärme während des Ätzens über das Temperierbad abgeführt und die Temperatur während der Ätzung weitestgehend konstant gehalten werden. Diese Randbedingungen machen ein träges System und somit ein relativ großes Füllvolumen erforderlich. Eine höhenverstellbare Tauchplattform sowie eine Umwälzpumpe, die für eine gute und kontinuierliche Durchmischung des Flüssigkeitsvolumens sorgt, ergänzen den Aufbau. Die eigentliche Temperaturregelung wird über einen Umlaufkühler, der an eine Kühlschlange angeschlossen ist und im isolierten Wasserbad liegt, gespeist. Für Ätzbehandlungen bei Temperaturen über Raumtemperatur ist zudem eine Heizplatte mit Temperaturregelung integriert. Argon wird benötigt, um Umwelteinflüsse wie die Atmosphäre oder die Luftfeuchtigkeit konstant zu halten. Das Ätzen in der vorliegenden Arbeit erfolgt daher, wenn nicht anders erwähnt, stets unter Argonatmosphäre und mit entgasten Ätzlösungen. Die Säuren werden in Tropftrichtern entgast, indem Argon für mindestens eine Stunde durch die Gaswaschflaschendeckel geleitet wird. Dieser Schritt wird im Temperierbad durchgeführt, um die Ätzlösungen auf die gewünschte Temperatur vorzubereiten. Um den gesamten Ätzprozess

¹ Modifiziert nach [57], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

ohne Sauerstoff durchführen zu können, wird auch das Ethanol, mit dem der Ätzprozess gestoppt wird, entgast.

Der eigentliche Ätzvorgang läuft wie folgt ab. Der Dreihalskolben wird in das Temperierbad gestellt, mit Stopfen verschlossen und über einen Gaswaschflaschenaufsatz mit Argon gespült. Die Proben werden nach der Präparation und einer Desoxidation mit Zitronensäure erhitzt bzw. gekühlt, um einen Temperaturabfall an der Probenoberfläche beim Eintauchen in die Ätzlösung zu verhindern. Die Temperaturen der Proben und Ätzlösungen werden mittels Thermoelementen überprüft. Bei Erreichen der gewünschten Temperatur und nach der Entgasung werden die Tropftrichter aus dem Temperierbad entnommen und auf den Dreihalskolben gesetzt. Je nach verwendeter Ätzung werden die notwendigen Lösungen in den Dreihalskolben einlaufen gelassen und die Probe wird unverzüglich in das Ätzmittel eingetaucht. Die Ätzlösung wird während der Ätzzeit mehrmals gerührt. Die Probe wird schließlich in das entgaste Ethanol getaucht, um den Ätzprozess zu stoppen, gründlich gereinigt und (ohne weiteres Spülen) mit Druckluft getrocknet. Die Proben müssen kontinuierlich getrocknet werden, um unerwünschte Rückstände auf der Probenoberfläche zu vermeiden. Diese Rückstände sind schädlich und stören das spätere Ätzergebnis. Um kritische Parameter wie die Temperatur, die Leitfähigkeit, den pH-Wert oder den gelösten Sauerstoff während des Prozesses messen zu können, gibt es zudem die Möglichkeit, über zusätzliche Kolbenöffnungen die jeweiligen Messsonden in den Aufbau zu integrieren.

In der vorliegenden Arbeit wurden Sonden der Firma Hanna Instruments (HI 763100; HI 11310, HI 764080) verwendet.

5.2.2 Aufbau zur in situ Betrachtung von Gefügekontrastierungen

Die gängige Praxis zur Bestimmung der richtigen Ätzzeiten erfolgt durch das sog. „Ätzen auf Sicht“ ([18]). Eine unbekannte Probe wird demnach solange in die Ätzlösung getaucht, bis mit dem bloßen Auge eine Färbung der Schliffoberfläche erkennbar ist. Sobald dies der Fall ist, wird die Probe entnommen, die Ätzung gestoppt, die Probe getrocknet und im Liniemikroskop begutachtet. Dieser Schritt wird beliebig oft an jeweils neu polierten Proben wiederholt, bis ein zufriedenstellendes Ergebnis erzielt wird. Selbst bei bekannten Proben kann jedoch durch die selten konstanten Bedingungen während des Ätzens eine deutliche Abweichung der zuvor bestimmten Zeiten notwendig sein, sodass eine Anpassung der Zeit erfolgen muss.

5. Gefügekontrastierung

Dieses empirische Vorgehen ist nicht nur extrem zeitaufwendig, da jeweils eine erneute Probenpräparation erforderlich ist, sondern liefert im besten Fall nur ein lokales Optimum.

Der im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte Ansatz löst diese Probleme. Durch die Konstruktion einer Durchflusszelle in Kombination mit einem Licht- bzw. Digitalmikroskop können die Ätzzvorgänge in Echtzeit (in situ) mitverfolgt werden. Das Prinzip eines solchen Messaufbaus ist im Bereich der Biologie etabliert, um u. a. das Wachstum von Zellkulturen zu untersuchen ([91]). Im Bereich der Korrosionsforschung wurde ein solcher Ansatz ebenfalls erfolgreich angewendet ([92]).

Im Laufe der vorliegenden Arbeit wurde der in situ Aufbau kontinuierlich optimiert und weiterentwickelt. Ein Aufbau der ersten Generation ist in Abbildung 5-5 a) dargestellt und besteht im Wesentlichen aus einer Spritzenpumpe (kd scientific), einer selbstkonstruierten Durchflusszelle (engl. flow cell) und einem Digitalmikroskop (Keyence VHX 2000). Die Durchflusszelle ist mit einem kleinen Glasfenster ausgestattet, welches die direkte Beobachtung der Probenoberfläche während des Ätzzvorgangs ermöglicht (Abbildung 5-5 b)). Jede Seite der Durchflusszelle wird über einen kleinen Schlauch mit einer Spritze verbunden, die die Ätzzlösung enthält (ca. 60 ml). Die Spritzen werden anschließend auf der Spritzenpumpe installiert, die das Ätzzmittel kontinuierlich über die Probenoberfläche von einer Spritze zur anderen und umgekehrt pumpt (Flussrate: 5 ml/min).

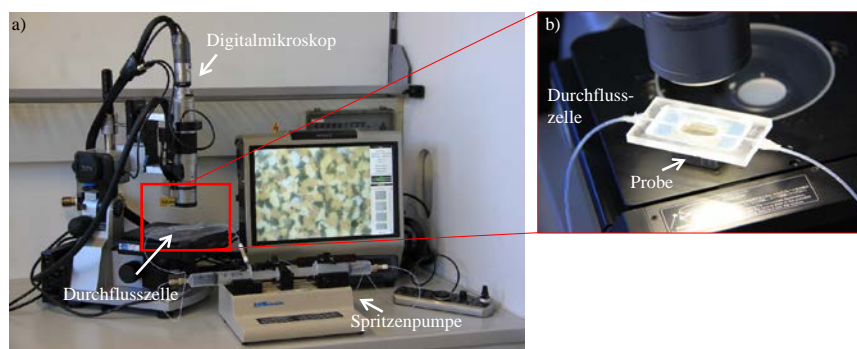


Abbildung 5-5: Anfänglicher In situ Aufbau: a) Gesamtanlage bestehend aus Digitalmikroskop mit Monitor, Durchflusszelle für die Ätzzung und Spritzenpumpe für den kontrollierten Durchfluss der Lösung; b) Nähere Betrachtung der Durchflusszelle, die an die zu kontrastierende Probe aufgeklebt wurde.²

Die Fixierung der Durchflusszelle an der Probe ist mit erheblichem Aufwand verbunden. Um die Probe vor Korrosion zu schützen, bedarf es eines Klebstoffs, der beim Aushärten keine

² Modifiziert nach [53], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

weiteren Produkte freisetzt. Heißkleber eignet sich für diese Aufgabe sehr gut. Während die Klebung der Beraha-Ätzung standhält, können aggressivere Ätzungen (u. a. mit Pikrinsäure) in diesem Aufbau nicht getestet werden.

Aus diesem Grund wurde schließlich ein Aufbau realisiert, der universell einsetzbar ist und sämtliche Schwächen der ersten Generation beheben konnte. Um die Ätzbedingungen konstant zu halten, wurde darüber hinaus der Aufbau aus Kapitel 5.2.1 direkt integriert (Abbildung 5-6).

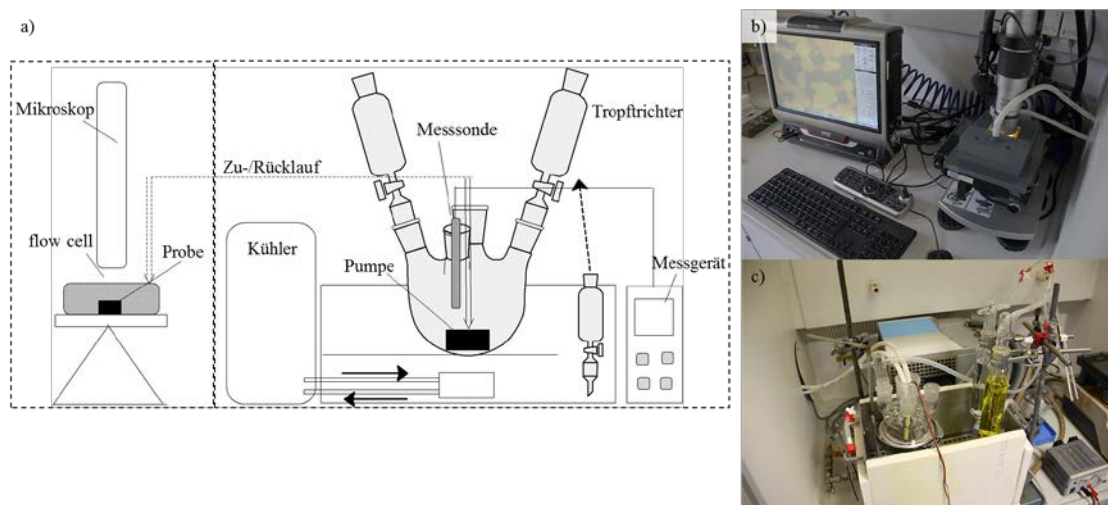


Abbildung 5-6: Finale Version des in situ Ätzaufbaus. Neben den Komponenten aus Abbildung 5-4 sind die Durchflusszelle (flow cell), das Digitalmikroskop sowie der Zu- und Rücklauf von besonderer Bedeutung. a) Schematische Darstellung des Aufbaus, b) und c) Darstellung des tatsächlichen Aufbaus im Labor; b) Flow cell, c) Ätzaufbau zur systematischen Ätzung.

Das Herzstück der Anlage ist eine zweiteilige Durchflusszelle aus PVC (Anhang - Technische Zeichnung Durchflusszelle). Sie wurde derart konstruiert, dass die zu untersuchende Probe direkt in den unteren Teil eingelegt und fixiert werden kann. Anschließend wird der obere Teil der Zelle, der auch das Sichtfenster aus Dünnglas³ mit einer Dicke von ca. 200 µm beinhaltet, mit einer Dichtung an den unteren Teil angeschraubt (Abbildung 5-7).

³ Sollten Ätzungen mit Flusssäure durchgeführt werden, muss statt des Dünnglases ein transparentes Polymer verwendet werden.

5. Gefügekontrastierung

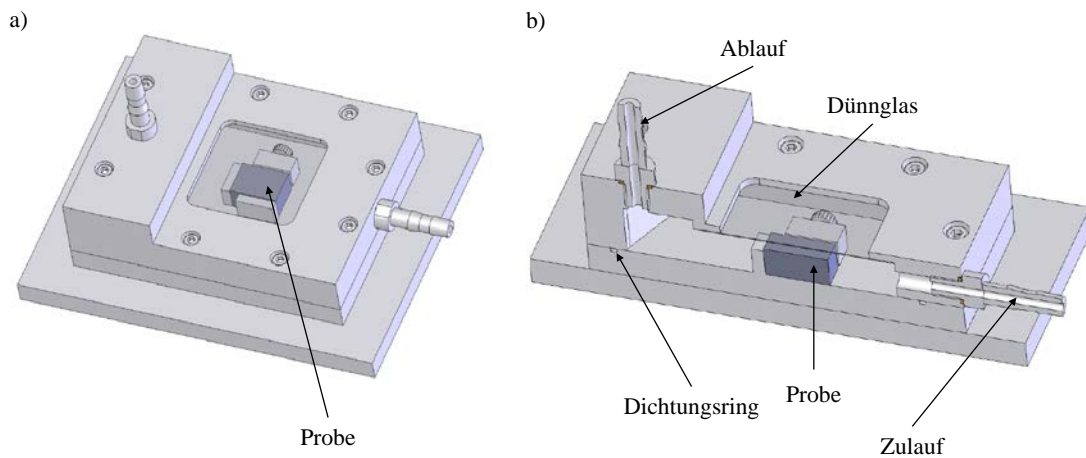


Abbildung 5-7: a) Technische Zeichnung der Durchflusszelle. Zur Ätzung wird die Probe in den unteren Teil eingebaut und mit dem oberen Teil mit Sichtfenster verschraubt. b) Querschnitt des Aufbaus. Um ein gleichmäßiges, möglichst blasenfreies Befüllen zu gewährleisten erfolgt die Zuführung des Mediums von unten.

Das (Ätz-)Medium wird schließlich über eine kleine Pumpe mit einer definierten Durchflussrate aus dem Aufbau zur systematischen Ätzung in die Durchflusszelle befördert. Um möglichst keine Luftblasen beim Befüllen zu erhalten, erfolgt der Zufluss des Mediums unterhalb des Probenniveaus

Dieser Aufbau wird auf einem Mikroskoptisch platziert, um die Ätzung live verfolgen zu können.

Der Aufbau wurde im Rahmen einer Erfindungsmeldung bei der Patentverwertungsagentur der Universität des Saarlandes eingereicht ([93]).

5.3 Gefügekontrastierung mittels LePera-Ätzung

Frank S. LePera entwickelte Ende der 1970er eine neue Ätzung basierend auf Pikrinsäure zur Kontrastierung von Dualphasenstählen. Wie bereits in Kapitel 5.1 erläutert, leitete sich seine Motivation aus dem Umstand ab, dass die gängige Nital-Ätzung ([18]) zur Bewertung und insbesondere zur Quantifizierung von Dualphasenstählen nicht ausreichend ist. Insbesondere sollten Martensit und Bainit in chromhaltigen Dualphasenstählen unterschieden werden. Durch eine zweikomponentige Lösung aus vierprozentiger, alkoholischer Pikrinsäure und einprozentiger, wässriger Natriummetabisulfidlösung gelang es ihm, eine deutliche Färbung zu erreichen: Während der Ferrit hellbraun und der Bainit schwarz erschienen, waren die martensitischen Bereiche weiß. Eine anschließende Quantifizierung konnte somit erfolgreich durchgeführt werden. [63], [79]

Trotz der guten Ergebnisse kommt die LePera-Ätzung in den meisten Metallographielaboren nicht oder nur sehr eingeschränkt zum Einsatz. Einerseits ist die Durchführung einer LePera-Ätzung aufgrund der zweikomponentigen Lösung vergleichsweise aufwendig und schwierig. Darüber hinaus wird in der Praxis oft über Probleme mit der erfolgreichen Kontrastierung und von der fehlenden Reproduzierbarkeit berichtet. Die beschriebenen Herausforderungen werden bei niedriglegierten Stählen, wie sie in der vorliegenden Arbeit verwendet werden, noch größer. Andererseits liegt dies an der notwendigen Pikrinsäure, die gemäß Europäischer Kommission nach [94] als Sprengstoff klassifiziert wird und damit in der industriellen Praxis mit hohen Sicherheitsvorkehrungen einhergeht. Werden jedoch die folgenden Maßnahmen ergriffen, steht einem sachgemäßen Gebrauch auch in der Metallographie nichts im Wege. Generell sollte Pikrinsäure nur von fachkundigem Personal unter Berücksichtigung des Sicherheitsdatenblattes verwendet werden. Zudem sollte keine Berührung mit Metallen erfolgen, da sich explosive Salze bilden können (entsprechend sollte bei der Entnahme der Pikrinsäure aus dem Aufbewahrungsbehälter auf Polymerspatel zurückgegriffen werden). Eine Lagerung muss zudem immer in Lösemittel mit einem Wassergehalt von mindestens 33 % erfolgen. Alternativ können auch angesetzte Pikrinsäurelösungen kommerziell erworben werden.

Basierend auf den Ergebnissen der Originalveröffentlichungen ist das Ziel der vorliegenden Arbeit, die Ätzung nach LePera ([63]) auf Ihre Anwendbarkeit für die vorliegenden Stähle zu überprüfen, kritische Parameter zu bestimmen, eine geeignete Möglichkeit zur verlässlichen

5. Gefügekontrastierung

Anwendung von Pikrinsäure zu entwickeln und somit eine reproduzierbare Farbätzung an niedriglegierten Stählen zu schaffen.

Die Ergebnisse wurden weitestgehend in [57] veröffentlicht.

5.3.1 Versuchsgestaltung

Zum allgemeinen Verständnis der LePera-Ätzung werden zunächst in situ Untersuchungen (Ätzdauer 740 s) gemäß Kapitel 5.2.2 an der normalisierten Stahlprobe (Abbildung 4-1) durchgeführt.

Zur gezielten Anwendung und tiefergehenden Untersuchung der LePera-Ätzung werden die in Kapitel 4 beschriebenen bainitischen Proben (Abbildung 4-2) genutzt. Das Gefüge besteht aus einer ferritischen Matrix mit einem geringen Anteil an Martensit/Austenit (MA) und bainitischen Körnern mit Zementit-Agglomerationen.

Vor den Ätzversuchen werden die Proben gemäß Tabelle 4-1 präpariert. Entsprechend der Originalarbeit ([79]) ist darauf zu achten, dass die finale Politur mit Gamma-Aluminiumoxid erfolgt. Für ein reproduzierbares und homogenes Ergebnis ist es wichtig, dass die Proben nicht eingebettet werden.

Vor der eigentlichen Ätzung in dem in Abbildung 5-4 dargestellten Versuchstand werden die Proben für eine Minute in einem Ultraschallbad mit einer einprozentigen Zitronensäurelösung desoxidiert, um die gleichen Ausgangsbedingungen für alle Proben zu gewährleisten. Um eine abermalige Oxidation der Proben zu verhindern, müssen diese unmittelbar nach diesem Schritt geätzt werden.

Das verwendete Ätzrezept entspricht der Zusammensetzung gemäß [63] aus 4,6 %-iger Pikrinsäure-Lösung in Ethanol (kurz Pikral-Lösung) und 1 %-iger wässriger Natriummetabisulfit-Lösung, die vor dem Ätzen im Verhältnis 1:1 gemischt werden.

Die eigentliche Parameterstudie wird in drei verschiedene Versuchsreihen aufgeteilt:

- Konstante Zeit ($t = 135$ s) und variierende Temperatur (0-60°C)
- Konstante Temperatur ($T = 5$ °C) und längere Ätzzeiten (40-420 s)
- Konstante Temperatur ($T = 40$ °C) und variierende kürzere Ätzzeiten (20-40 s)

5. Gefügekontrastierung

Diese Parameterbereiche wurden mithilfe einer Vielzahl an Voruntersuchungen definiert.

Das Ätzverfahren wird für das Limi optimiert, da dies auch heute noch ein entscheidendes und wichtiges Werkzeug zur Gefügecharakterisierung in der metallographischen Praxis ist. Die notwendige Phasentrennung erfolgt mittels klassischer Bildverarbeitungssoftware (Zeiss AxioVision). Zusätzlich werden Glättungs-, Schärfe- und Binärbildfunktionen zur Bildoptimierung innerhalb der Software eingesetzt. Die Phasentrennung erfolgt durch eine Schwellwertsegmentierung. Es werden keine manuellen Korrekturen vorgenommen. Ein möglicher Ablauf zur Bildbearbeitung und Gefügerekonstruktion kann dem Anhang (Möglicher Verfahrensablauf zur Gefügerekonstruktion) entnommen werden.

Wie Vorversuche gezeigt haben, ist es nicht möglich, die Konzentration der Pikral-Lösung durch einfache Zugabe von Ethanol oder durch Verwendung vorgefertigter Lösungen so einzustellen, dass ein reproduzierbarer Ätzvorgang durchgeführt werden kann. Im vorliegenden Fall wird daher die Konzentration der Lösung über eine Kalibriergerade bestimmt.

Zur Erstellung der Kalibriergerade werden zunächst kleine Mengen phlegmatisierter (stabilisierter) Pikrinsäure mit Hilfe eines Teflonspatels gewogen und in einem leeren Exsikkator mindestens zwei Tage lang mit Trockenperlen (Silica-Gel) getrocknet. Die getrocknete Substanz der Säure wird abgewogen und sofort in Ethanol gelöst. Die Lösungen mit definierter Menge an Pikrinsäure werden schließlich refraktometrisch ([95], [96]) (Refraktometer Atago 3T) vermessen⁴ und die Ergebnisse zur Erstellung der Kalibriergeraden genutzt. In Abbildung 5-8 ist der Brechungsindex (BI) gegen die Konzentration der Pikrinsäure in Ethanol aufgetragen.

Aufgrund des linearen Zusammenhangs eignet sich der BI sehr gut zur Bestimmung der genauen Konzentration der angesetzten Pikral-Lösung.

⁴ Messungen wurden bei Standardbedingungen von $T=20^{\circ}\text{C}$ und einer Wellenlänge von $\lambda=589,3\text{ nm}$ durchgeführt.

5. Gefügekontrastierung

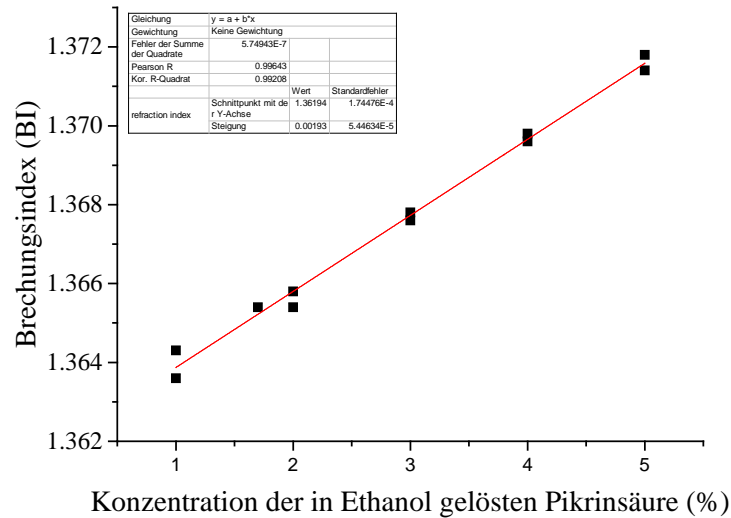


Abbildung 5-8: Darstellung des Brechungsindex in Abhängigkeit von unterschiedlich konzentrierten Pikrinsäure-Ethanol-Lösungen, gemessen bei $T=20^{\circ}\text{C}$ und $\lambda=589,3\text{ nm}$. Der Brechungsindex (BI) steigt linear mit der Konzentration an.⁵

Zum Ansetzen einer Ätzlösung wird schließlich wie folgt vorgegangen. Phlegmatisierte Pikrinsäure wird abgewogen und in Ethanol gelöst. Anschließend muss die Lösung mittels Refraktometrie vermessen und der tatsächliche Gehalt an Pikrinsäure anhand der Kalibriergerade abgelesen werden. Je nach Konzentration muss die angesetzte Lösung anschließend entweder mit Ethanol verdünnt (falls die gemessene Konzentration höher als die gewünschte Konzentration ist) oder weitere Pikrinsäure hinzugegeben werden (falls die Konzentration zu niedrig ist). Somit kann eine definierte Lösung ohne aufwendiges Trocknen der Pikrinsäure hergestellt werden.

Da die Konzentration der Ätzlösung einen großen Einfluss auf das Ätzergebnis hat, muss die Konzentration nach Ansetzen der Lösung stets anhand der Kalibrierkurve überprüft und nach Auswertung der Vorversuche auf 4,6 % eingestellt werden.

⁵ Modifiziert nach [57], © ASTM International.

5.3.2 Ergebnisse Gefügedarstellung mittels LePera-Ätzung

Basierend auf der im vorangegangenen Kapitel 5.3.1 beschriebenen LePera-Ätzung nach [63], [79] wird zunächst der generelle Ablauf des Ätzprozesses im in situ Aufbau untersucht. Durch die in der Ätzung enthaltene Pikrinsäure erscheint die komplette Ätzung unter einem Gelbstich.

Der prinzipielle Ablauf der Ätzung wird an der normalisierten Stahlprobe (Abbildung 4-1) in der Durchflusszelle bei einer eingestellten Temperatur von 20°C untersucht. Aufgrund der großen Gefügebestandteile in dieser Probe können die einzelnen Kontrastierungsschritte im Video leicht nachvollzogen werden. In Abbildung 5-9 sind Ausschnitte aus dem in situ Video zu bestimmten Zeiten beispielhaft dargestellt.

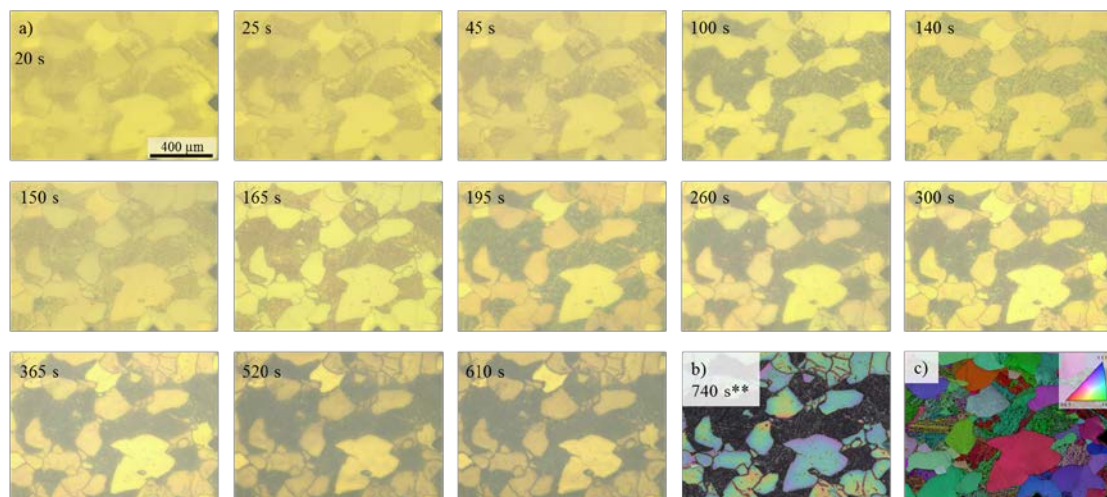


Abbildung 5-9: a) Zeitaufgelöste LePera-Ätzung an der normalisierten Stahlprobe. Bereits nach 20 Sekunden sind eine deutliche Kontrastierung der zweiten Phase sowie unterschiedliche Schattierungen der ferritischen Matrix erkennbar. Für die korrelative Mikroskopie wurden Härteeindrücke (schwarze Raute) angefertigt. Das Experiment wurde nach 740 s abgebrochen. Nach Entfernen der Durchflusszelle, Spülen und Trocknen ist im Lini (b) eine deutliche Färbung der ferritischen Matrix erkennbar. c) EBSD-Darstellung der Orientierung (Inverse Polfigur überlagert mit Image Quality) zur direkten Zuordnung der Körner, wobei die Messung vor der Ätzung erfolgte.

Trotz des Gelbstichs durch die Pikrinsäure ist der Ablauf der Ätzung gut nachvollziehbar. Direkt zu Beginn erfolgt ein starker Angriff auf die zweite Phase. Gleichzeitig werden jedoch auch bereits die Korngrenzen angegriffen. Ein Orientierungseinfluss der ferritischen Matrix ist ebenfalls in Ansatzpunkten durch unterschiedliche Schattierungen erkennbar. Bereits nach 100 s ist das Gefüge voll ausgeprägt dargestellt. Im weiteren Verlauf wird lediglich die ferritische Matrix durch die Interferenzschichtbildung beeinflusst. Nach 740 s wird die Ätzung schließlich abgebrochen, da keine signifikanten Änderungen mehr feststellbar sind. Nach dem Ätzstopp, der Reinigung und Trocknung ist eine deutliche Unterscheidung der Matrix von der

5. Gefügekontrastierung

zweiten Phase möglich (Abbildung 5-9 b)). Gleichwohl bleibt anzumerken, dass aufgrund der langen Ätzzeit die Schicht bereits so dick ist, dass es zu deutlichen Farbgradienten innerhalb der Ferritkörner und vereinzelt Rissen kommt. Zur Gefügecharakterisierung ist eine derartige Probe somit nicht mehr nutzbar. Dennoch ist im Abgleich mit der vorangegangenen EBSD-Messung (Abbildung 5-9 c)) noch immer ein Orientierungseinfluss erkennbar.

Während der in situ Ätzung wird zudem sowohl die elektrische Leitfähigkeit der Lösung als auch die Temperatur gemessen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5-10 dargestellt.

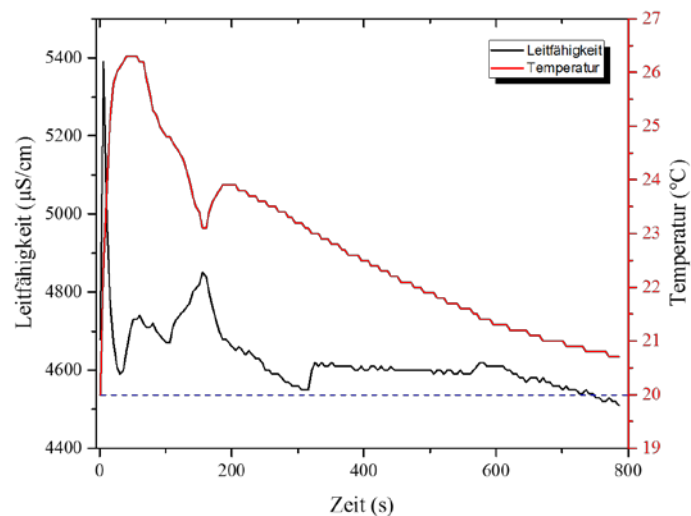


Abbildung 5-10: Auftragung der Leitfähigkeit und der Temperatur während der in situ LePera-Ätzung. Während die Leitfähigkeit nur leicht schwankt, ist ein kontinuierlicher Abfall der Temperatur zu verzeichnen. Die Temperatur des Kühlbades ist als blaue gestrichelte Linie bei 20 $^{\circ}\text{C}$ eingezeichnet.

Demnach zeigt sich, dass die Leitfähigkeit nur leicht schwankt. Die Temperatur steigt hingegen zu Beginn der Ätzung rasant um 6 $^{\circ}\text{C}$ an, und fällt schließlich kontinuierlich auf die ursprüngliche Temperatur der Lösungen von 20 $^{\circ}\text{C}$ ab.

Der pH-Wert der Ätzlösung wird unmittelbar vor und direkt nach der Ätzung gemessen. In beiden Fällen beträgt er jeweils 1,82. Der Sauerstoffanteil liegt bei weniger als 1 %.

Zur tiefergehenden Analyse der Interferenzschicht sowie des Ätzangriffs wird mittels FIB-Zielpräparation eine TEM-Folie erstellt und im STEM (Scanning Transmission Electron Microscope), wie in Abbildung 5-11 ersichtlich, untersucht.

5. Gefügekontrastierung

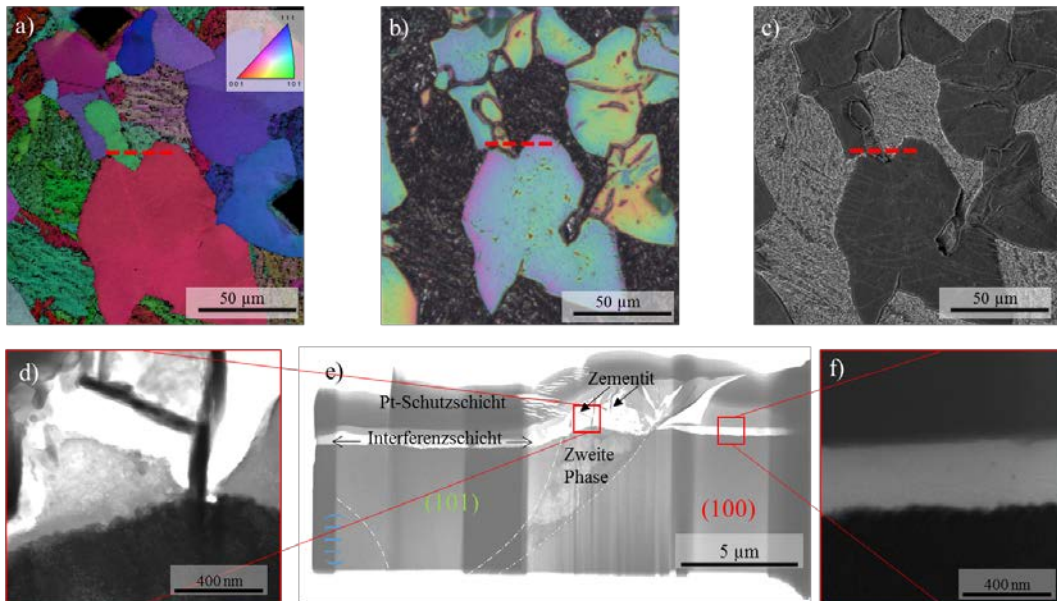


Abbildung 5-11: STEM-Untersuchung der Interferenzschicht der LePera-Ätzung: a) Position der FIB-Zielpräparation (rote gestrichelte Linie) an einer Stelle, an der nahezu die drei Ebenen (100), (101) und (111) nebeneinander liegen (EBSD); b) gleiche Stelle im Linienscan. Die drei unterschiedlichen Farben lassen unterschiedliche Schichtdicken vermuten; c) REM-Aufnahme der FIB-Zielpräparation; d) Vergrößerte Darstellung der präparierten TEM-Lamelle (e), STEM-Hellfeldaufnahme). Der Zementit wurde nicht angegriffen, lediglich der dazwischenliegende Ferrit wurde abgetragen und bildet ebenfalls eine Schicht aus. f) Hochauflösende Darstellung der Interferenzschicht auf einem Ferrit-Korn. Eine kompakte Schicht ist erkennbar.

Aus den STEM-Aufnahmen wird ersichtlich, dass die Interferenzschicht als kompakte Deckschicht vorliegt. Im Bereich der zweiten Phase ist außerdem gut zu erkennen, dass der Zementit nicht angegriffen wird, sich die Schicht aber sehr wohl zwischen den Zementitnadeln ausbildet. Werden die Zementitnadeln als Referenz angenommen, ist auch der generelle Abtrag der ferritischen Bereiche gut zu erkennen. Darüber hinaus zeigen die STEM-Untersuchungen sowie weitere FIB-Querschnitte, dass die (100)-Orientierung am wenigsten stark angegriffen wird und die dünnste Schichtdicke aufweist. Den deutlichsten Abtrag mit der dicksten Schicht zeigen Körner nahe (101)-Orientierung. Körner mit einer (111)-Orientierung (nicht in Abbildung 5-11 dargestellt, sondern über FIB-Querschnitte an anderen Stellen untersucht) sind bezogen auf den Abtrag als auch auf die Schichtdicke nahe der (101)-Orientierungen, jedoch minimal weniger stark ausgeprägt.

Die chemische Zusammensetzung der entstehenden Interferenzschicht kann aus STEM-EDX-Untersuchungen ermittelt werden (Abbildung 5-12).

5. Gefügekontrastierung

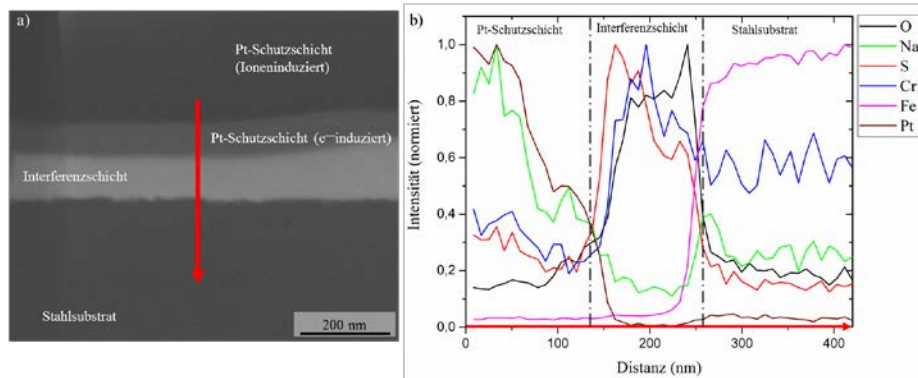


Abbildung 5-12: STEM-EDX Untersuchung der Interferenzschicht. a) STEM-Hellfeldbild: Die oberste Schicht aus Platin schützt das System vor Oberflächenveränderungen während der Zielpräparation. Anschließend folgt eine dichte Interferenzschicht, welche direkt an das Stahlsubstrat angebunden ist. Die Position des EDX-Linienscans und die Richtung des Scans wird durch einen roten Pfeil angezeigt; b) EDX-Linienscan der angegebenen Position: die verschiedenen Bereiche können den verschiedenen Bereichen in a) zugeordnet werden.

Aus den STEM-EDX-Messungen geht hervor, dass die Schicht im Wesentlichen aus Schwefel, Sauerstoff, Eisen und einer erhöhten Konzentration an Chrom besteht. Natrium ist lediglich in einer sehr geringen Menge und lokalisiert am Übergang zwischen Stahlsubstrat und Interferenzschicht vorhanden. EDX-Messungen an der Oberfläche bestätigen diese Erkenntnisse.

Unter Berücksichtigung dieser Ergebnisse und unter Auswertung einer großen Anzahl an Voruntersuchungen wird schließlich eine systematische Parameterstudie an den weitaus anspruchsvolleren, bainitischen Proben (Abbildung 4-2) mit dem entwickelten Ätzaufbau durchgeführt (Abbildung 5-4). Durch Variation der Parameter Temperatur und Zeit sollen reproduzierbare Ätzergebnisse erzielt werden, die anschließend eine zuverlässige und reproduzierbare Phasendifferenzierung und Gefügecharakterisierung ermöglichen. Dazu ist es notwendig, den Einfluss der jeweiligen Parameter auf die Ätzung zu untersuchen, indem jeweils ein Parameter konstant gehalten wird.

Zunächst wird der Einfluss der Temperatur auf das Ätzen nach LePera untersucht. Die Ätzzeit wird bei 135 s konstant gehalten. Abbildung 5-13 zeigt repräsentative Gefügeaufnahmen, wie sie bei ausgewählten Temperaturen erzielt wurden.

5. Gefügekontrastierung

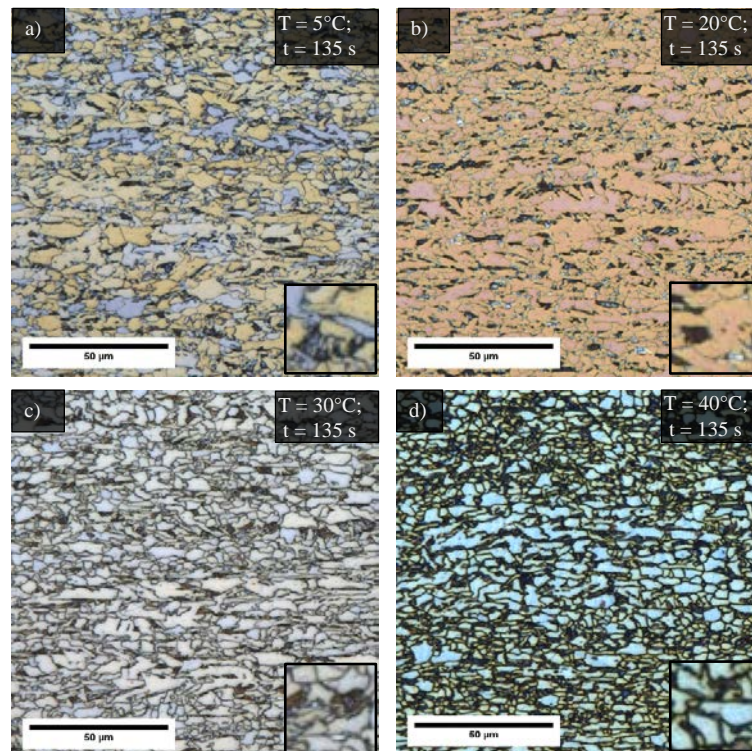


Abbildung 5-13: Darstellung des Einflusses der Temperatur auf die LePera-Ätzung für eine Ätzzeit von 135 s an Gefügeaufnahmen nach Ätzungen bei a) 5°C; b) 20°C; c) 30°C und d) 40°C. ([57], © ASTM International)

Bei einer Temperatur von 5°C (Abbildung 5-13 a)) ist ein deutlicher Einfluss der Orientierung erkennbar und die Zementit-Agglomerationen erscheinen schwarz. Die Korngrenzen bleiben deutlich kontrastiert, was eine Unterscheidung zwischen Ferrit und Zementit-Agglomerationen erlaubt. Dieses Ätzergebnis ist vergleichbar mit denen nach Ätzen bei 20°C, jedoch ist der Orientierungseffekt des Ferrits weniger ausgeprägt, was in Abbildung 5-13 b) dargestellt ist. Die bainitischen Bereiche sind nach wie vor schwarz kontrastiert und lassen sich leicht von der Matrix unterscheiden, während die Korngrenzen nicht mehr als markantes Merkmal erkennbar sind. Die (weißen) MAs sind hingegen gut zu erkennen.

Nach dem Ätzen bei 30°C geht die Färbung fast vollständig verloren (Abbildung 5-13c)). Dies zeigt den Abschluss der ersten Farbordnung an ([70]). Die Korngrenzen sind deutlich sichtbar und die bainitischen Körner setzen sich von der Matrix ab. Der Kontrast der MAs geht jedoch nahezu vollständig verloren.

5. Gefügekontrastierung

Bei 40°C erscheint die Probe deutlich überätzt, wie in Abbildung 5-13 d) dargestellt. Die Korngrenzen und bainitischen Körner sind kaum voneinander zu unterscheiden. Der Orientierungseinfluss der Ferritkörner ist gering. Die Ätzungen bei 50°C und 60°C sind für eine Charakterisierung unbrauchbar, da sie ebenfalls überätzt sind.

Der Kontrast der MAs hängt stark von den gewählten Ätzparametern ab. Die Charakterisierung von MAs in einem klassischen Limi ist dennoch zumeist schwierig. Durch den Einsatz eines Laser-Scanning-Mikroskops (LSM) ist der Kontrast der MAs aufgrund ihres Reflexionsvermögens deutlich besser (Abbildung 5-14). Ein weiterer Vorteil des LSM ist seine höhere Auflösung (bis 125 nm ([97], [98])), sodass sich auch Vorteile für die spätere Segmentierung bzw. Phasentrennung und Quantifizierung ergeben.

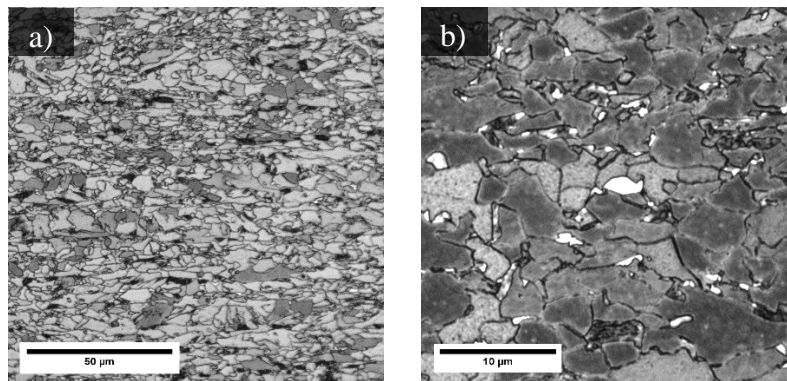


Abbildung 5-14: Beispielhafte und repräsentative Darstellung der MAs im LSM bei zwei verschiedenen Vergrößerungen (a, b)), geätzt bei 0°C und für 135 s. Die MAs erscheinen strahlend weiß. ([57], © ASTM International)

Im Rahmen der ersten Messreihe (Variation der Temperatur) zeigt die Ätzung bei 5°C ein sehr gutes Ätzergebnis in Bezug auf den Kontrast der Korngrenzen und der zweiten Phase bei gleichzeitig ausgeprägtem Orientierungskontrast der Matrix. In einer weiteren Versuchsreihe wird daher die Ätztemperatur bei 5°C konstant gehalten und die Ätzzeit systematisch variiert (Abbildung 5-15).

5. Gefügekontrastierung

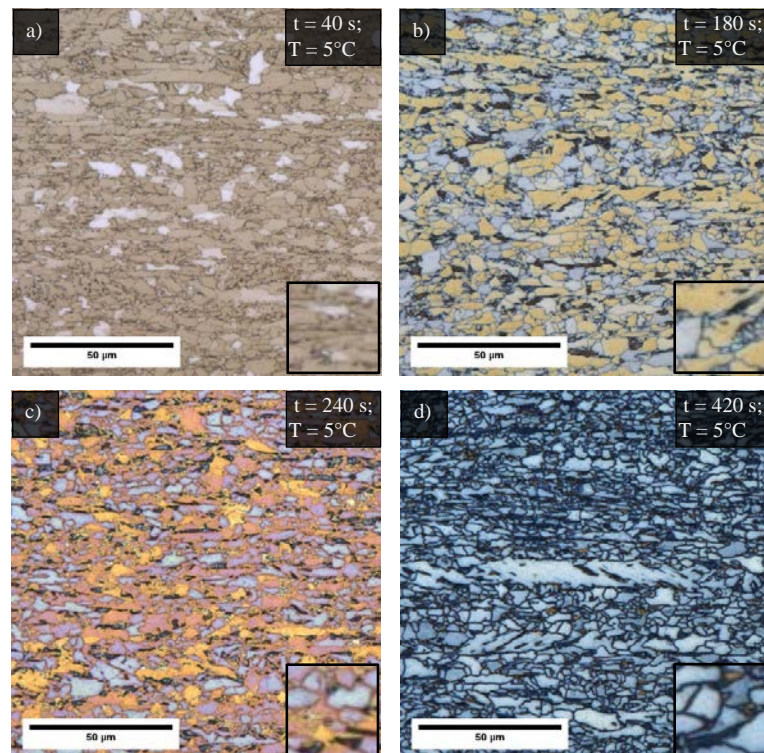


Abbildung 5-15: Gefügeaufnahmen nach der LePera-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei 5°C. Proben geätzt für a) 40 s; b) 180 s; c) 240 s und d) 420 s. ([57], © ASTM International)

Nach einer Ätzzeit von 40 s (Abbildung 5-15 a)) sind die Korngrenzen deutlich sichtbar und es ist ein ausgeprägter Orientierungskontrast erkennbar, der den Kontrast der MAs überlagert. Die Zementit-Agglomerationen sind relativ schwach kontrastiert.

Eine Erhöhung der Ätzzeit auf 180 s (Abbildung 5-15 b)) ergibt einen besseren Kontrast zwischen den Korngrenzen und den anderen Gefügebestandteilen. Eine weitere Erhöhung der Ätzzeit auf 240 s führt bereits zu einer leichten Überätzung der Probe (Abbildung 5-15 c)). Die Korngrenzen sind kaum sichtbar und es gibt einen starken Einfluss der Kornorientierung. Die schwarzen bainitischen Körner sind hingegen deutlich von der Matrix getrennt.

Eine Ätzzeit von 420 s (Abbildung 5-15 d)) führt zu einem Verlust des Orientierungskontrastes. Eine durchgehende Blaufärbung des Gefüges schließt eine eindeutige Phasentrennung aus. Die Korngrenzen bleiben jedoch gut kontrastiert.

Die Proben, die bei 5°C und zwischen 120 s und 240 s geätzt wurden, eignen sich besonders für eine Phasentrennung mittels Schwellwertsegmentierung. Beispielhaft ist dies in Abbildung 5-16

5. Gefügekontrastierung

dargestellt. Eine Quantifizierung der verschiedenen Gefügebestandteile sowie Korngrößenmessungen sind somit gut möglich.

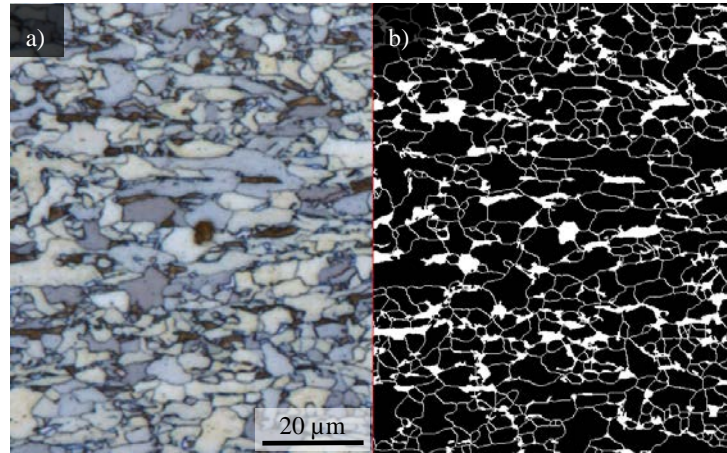


Abbildung 5-16: Gefügeaufnahme der LePera-geätzten Probe bei 5°C für 120 Sekunden (a) sowie das zugehörige Binärbild nach Schwellwertsegmentierung (b). ([57], © ASTM International)

Die bisherigen Versuchsreihen (Variation der Temperatur und Variation der Zeit bei einer Ätztemperatur von 5°C) liefern noch keine Aussagen, ob es grundsätzlich möglich ist auch bei vergleichsweise hohen Temperaturen ein reproduzierbares und zuverlässiges Ätzergebnis zu erreichen. Aus diesem Grund wird in einer weiteren Versuchsreihe die Ätztemperatur konstant bei 40°C gehalten und die Ätzzeit systematisch variiert. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5-17 dargestellt.

Abbildung 5-17 a) zeigt das Ergebnis der Ätzung bei 40°C für 20 s. Das Gefüge zeigt einen deutlichen Kontrast zwischen Ferrit und MA (weiße Bereiche). Die Korngrenzen sind jedoch relativ schwach ausgeprägt. Eine Erhöhung der Ätzzeit auf 40 s erhöht den Einfluss der Orientierung, und die Korngrenzen sind deutlich besser erkennbar (Abbildung 5-17 b)). Die MAs sind noch ausreichend kontrastiert, wobei die bainitischen Bereiche nur schwer von der ferritischen Matrix zu unterscheiden sind. Durch Erhöhung der Ätzzeit auf 60 s sind die bainitischen Körner als braune Bereiche zwischen den Ferritkörnern und den MAs erkennbar (Abbildung 5-17 c)). Ein leichter Orientierungseinfluss ist noch sichtbar und die Korngrenzen sind deutlich kontrastiert.

5. Gefügekontrastierung

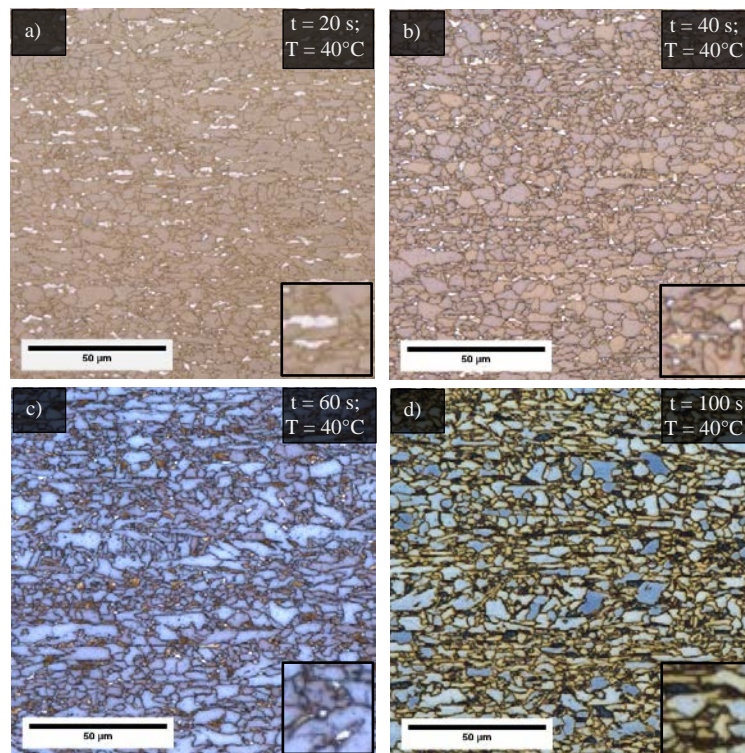


Abbildung 5-17: Gefügeaufnahmen nach der LePera-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei einer Temperatur von 40°C. Proben geätzt für a) 20 s; b) 40 s; c) 60 s und d) 100 s. ([57], © ASTM International)

Mit einer Ätzzeit von 100 s wird der Einfluss der Orientierung noch deutlicher, da sich einige Ferritkörner durch ihre blaue Färbung von der ansonsten gelblich eingefärbten Ferrit-Matrix unterscheiden (Abbildung 5-17 d)). Die Ergebnisse liegen am Rande einer Überätzung, die sich durch breite und schwarze Korngrenzen äußert. Die bainitische Phase, ebenfalls schwarz, geht in diesen breiten Korngrenzen nahezu gänzlich verloren. Auch die MAs sind nicht länger sichtbar.

Um den in diesen Tests erzielten Farb- und Ätzangriff genauer beurteilen zu können, werden an allen Proben der drei Testreihen FIB-Querschnittsuntersuchungen durchgeführt. Auf diese Weise kann der Abtrag des Ferrits während der LePera-Ätzung bestimmt werden. Dazu wird der relative Unterschied zwischen den Ferritkörnern und den MAs oder den Zementit-Agglomeraten (die beide durch einen höheren Kohlenstoffgehalt edler als Ferrit sind und daher nicht oder nur schwach angegriffen werden) bestimmt sowie die resultierende Interferenzschichtdicke vermessen. Abbildung 5-18 zeigt ein Beispiel für einen solchen FIB-Querschnitt.

5. Gefügekontrastierung

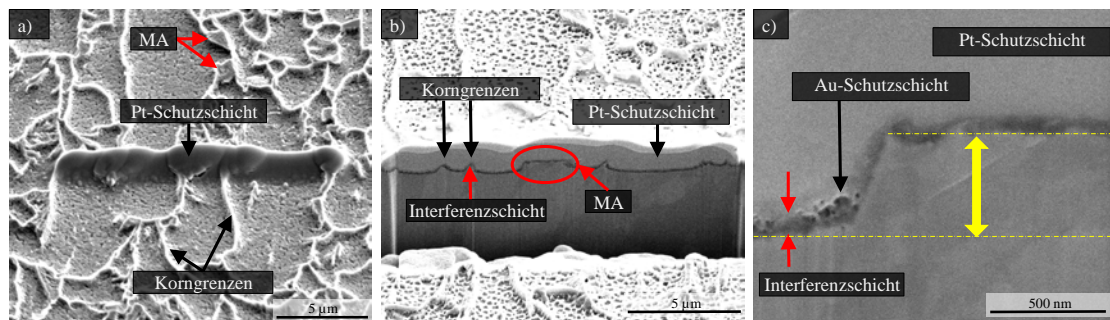


Abbildung 5-18: Details eines FIB-Querschnitts, angefertigt an einer bei 50°C für 135 s geätzten Probe. a) 52° geneigte REM-Aufnahme der genauen Probenposition des FIB-Querschnitts. Die Korngrenzen sind deutlich sichtbar. Der interessierende Bereich ist mit einer Schutzschicht aus Pt versehen. b) Übersicht über den Querschnitt. Es gibt eine ausgeprägte Topographie, die durch den Ätzangriff entstanden ist. Der Höhenunterschied zwischen den MAs bzw. bainitischen Bereichen und dem Ferrit ist deutlich sichtbar. Die Interferenzschicht ist an der dünnen dunklen Schicht (rot markiert) zu erkennen. c) Detailansicht der Interferenzschicht (rot markiert) auf dem Stahlsubstrat. Bei dieser Temperatur ist bereits eine Schicht auf der zweiten Phase sichtbar. Um die Leitfähigkeit der Probe zu gewährleisten und eine Abgrenzung zwischen der Pt-Schutzschicht und der Interferenzschicht zu erzielen, wurden die Proben mit einer sehr dünnen Schicht aus Gold (helle Linie über der Interferenzschicht) besputtert. Zur relativen Abtragsbestimmung der ferritischen Matrix wird die Höhe zwischen der erhabenen zweiten Phase und dem Ferrit gemessen (gelber Pfeil).⁶

In Abbildung 5-18 ist das Ergebnis der Ätzung bei 50°C für 135 s und stellvertretend die anhand des FIB-Schnitts erfolgte Abtragsbestimmung zusammengefasst. Die Korngrenzen erscheinen deutlich und heben sich von der Matrix ab. Generell ist ein starker Ätzangriff erkennbar, der eine ausgeprägte Topographie erzeugt (Abbildung 5-18 b)). Es ist ersichtlich, dass die MAs höher als die Matrix liegen und wenig bis keinen Ätzangriff aufweisen. In Abbildung 5-18 c) ist die Interferenzschicht (rot markiert) zu sehen. Bei dieser Temperatur bildet sich auch bereits eine dünne Interferenzschicht auf der zweiten Phase aus. Generell ist an diesen Aufnahmen jedoch auch zu erkennen, dass diese Ätzung für eine REM-Charakterisierung ungeeignet ist, da die Substruktur nicht eindeutig identifizierbar ist und eine starke Topographie vorliegt.

Die Abtragsbestimmung und Schichtdickenmessung anhand der FIB-Querschnitte zeigen, dass sowohl der Ätzabtrag als auch die Interferenzschichtbildung einem linearen Trend folgen (Abbildung 5-19). Es ist zu beachten, dass die Messungen mit erheblichen Streuungen behaftet sind, da die Abtragsrate stets relativ zu den nur in geringem Maße vorliegenden MAs bzw. Zementit-Anordnungen erfolgt. Auf einen linearen Fit wird daher verzichtet.

⁶ Modifiziert nach [57], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

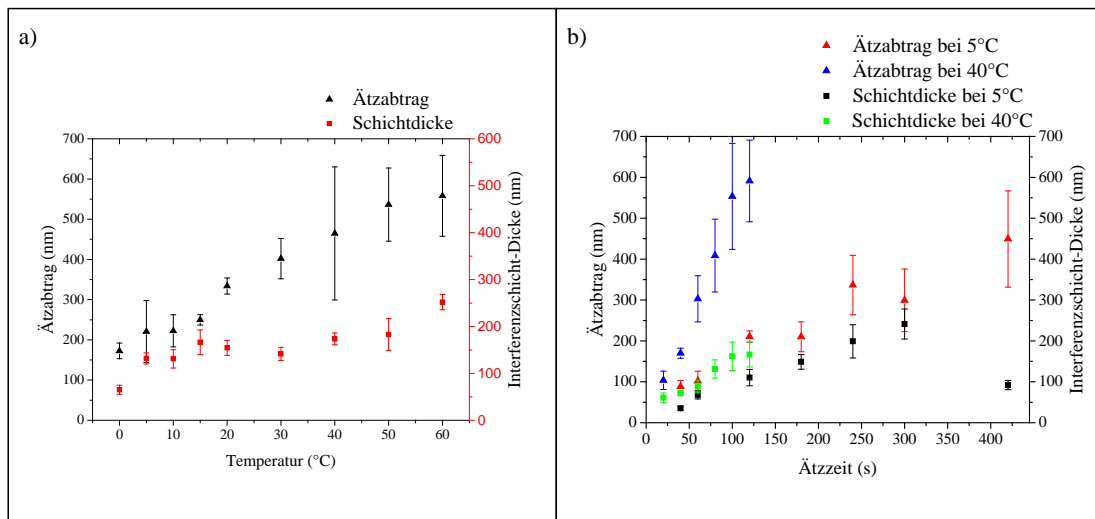


Abbildung 5-19: Vergleich von Ätzabtrag und Schichtdickenmessung für die durchgeführten Messreihen. a) Ätzabtrag und Schichtdickenmessung für die erste Serie nach 135 s, (Temperaturänderung). b) Ätzabtrag und Schichtdickenmessungen für die zweite und dritte Messreihe (Zeitänderung bei 5°C und 40°C).⁷

Die Interferenzschichtdicke wird jeweils an den Ferritkörnern gemessen. Die FIB-Querschnitte an den Proben der Parameterstudie zeigen jedoch, dass längere Ätzzeiten und höhere Ätztemperaturen auch zur Bildung von Interferenzschichten auf den Zementit-Agglomerationen und den MAs führen.

Ein weiterer Grund für die starke Streuung ist der Einfluss der Kornorientierung des Ferrits auf die Interferenzschichtbildung und den Ätzabtrag. Um diesen Einfluss quantifizieren zu können, wird, wie bereits bei den in situ Versuchen, vor einer LePera-Ätzung ein EBSD-Scan aufgenommen und korrelativ nach der Kontrastierung untersucht. Dazu wird die Orientierungsdarstellung mit dem finalen Ätzergebnis verglichen (Abbildung 5-20).

⁷ Modifiziert nach [57], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

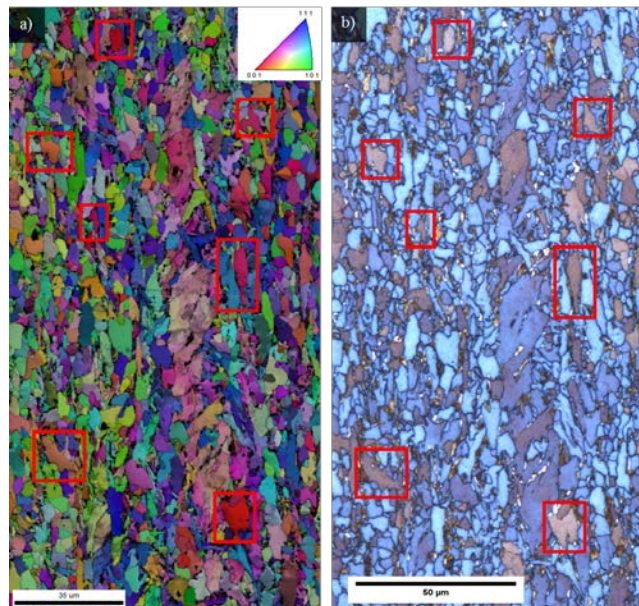


Abbildung 5-20: Gegenüberstellung der Orientierungsverteilung und des Ätzergebnisses. a) Darstellung der Orientierungsmessung mittels EBSD (Inverse Polfigur Darstellung, überlagert mit der Image Quality). b) Ergebnis nach der Farbätzung im Limi. Gleiche Orientierungen zeigen dabei die gleiche Färbung (im dargestellten Fall sind einige (100)-orientierte Körner rot umrandet).

Aus Abbildung 5-20 wird deutlich, dass gleiche Orientierungen gleiche Farben nach der Ätzung aufweisen. Unter Berücksichtigung der in situ Ergebnisse kann geschlossen werden, dass (100)-orientierte Körner den deutlichsten Unterschied aufweisen und gemäß der auftretenden Farben auch die geringste Schichtdicke auf diesen Körnern zu finden ist.

5.3.3 Diskussion der Ergebnisse

Ziel der vorliegenden Arbeit im Bereich der Gefügecharakterisierung mittels LePera-Ätzung war die Etablierung einer reproduzierbaren Farbätzung für niedriglegierte, kohlenstoffarme Stähle. Die allgemeinen Erfahrungen aus der Literatur und der metallographischen Praxis mit der LePera-Ätzung hinsichtlich Anspruch, Homogenität und Reproduzierbarkeit konnten in den durchgeführten Vorversuchen bestätigt werden. Neben der Konzentration der Lösungen konnte sowohl die Ätztemperatur als auch die Ätzzeit hinsichtlich ihres Einflusses auf das Erscheinungsbild des resultierenden, kontrastierten Gefüges quantifiziert werden.

Es sei erwähnt, dass gemäß [18], [70] der Probenpräparation eine entscheidende Bedeutung zukommt. Durch ein streng eingehaltenes Präparationsprotokoll wurde im vorliegenden Fall stets eine sehr gute Endpolitur der Probe, die frei von Artefakten und Oberflächenverformungen ist, erzielt. Als zentraler Aspekt beim Ätzen mit der LePera-Lösung konnte nachgewiesen

5. Gefügekontrastierung

werden, dass die Konzentration der Pikrinsäure-Lösung einen wesentlichen Einfluss auf das Ergebnis und die Reproduzierbarkeit hat. In der Literatur (u. a. [63]) wird die Konzentration mit 4 % angegeben, ohne dies jedoch weiter zu diskutieren. Über die Herstellung der Pikral-Lösung einerseits und die Messung der Konzentration andererseits wird nicht berichtet. Zudem weicht die handelsübliche Pikrinsäure mitunter erheblich von der Nennkonzentration ab, was refraktometrische Messungen bestätigten. Die tatsächliche Konzentration wird nach Angaben eines Herstellers auch bei fertig angesetzten Lösungen nicht überprüft. Dies kann ein Grund für die großen Diskrepanzen mit der LePera-Ätzung und die fehlende Reproduzierbarkeit sein.

In der vorliegenden Arbeit wurde durch Trocknung der Pikrinsäure eine konstante und definierte Pikrinsäurekonzentration hergestellt. Das verwendete Trocknungsverfahren und die Bestimmung der Konzentration mittels Refraktometrie sind geeignet, um eine konstante Konzentration zu gewährleisten. Bei diesen Messungen ist es wichtig, die Temperatur konstant zu halten, da der Brechungsindex temperaturabhängig ist ([99]). Es ist jedoch nicht völlig auszuschließen, dass nach der Trocknung noch geringe Mengen an Wasser in der Pikrinsäure enthalten sind, was zu einer minimalen Abweichung der angegebenen Konzentration oder der erstellten Kalibriergerade führt. Um vollständig wasserfreie Pikrinsäure zu erhalten, müssten weitere Trocknungsprozesse eingesetzt werden, um eine statistisch abgesicherte BI-Kalibriergerade zu erstellen. Eine denkbare Möglichkeit wäre die Trocknung unter Schutzgasatmosphäre bei leicht erhöhter Temperatur oder die Messung des Restwassergehaltes.

Allerdings ist es aus Sicherheitsgründen nicht empfehlenswert, die Pikrinsäure im Arbeitsalltag zu trocknen. Vorbereitete Lösungen von Pikrinsäure sind im Handel erhältlich. Das Refraktometer muss in diesem Fall nur noch zur Bestimmung der tatsächlichen Konzentration verwendet werden und die Lösung eventuell verdünnt oder aufkonzentriert werden. Basierend auf den vorgestellten Ergebnissen ist es denkbar, zukünftig Unterschiede in der Konzentration der Pikral-Lösung alternativ auch durch eine Anpassung der Ätztemperatur oder -zeit auszugleichen.

Durch die Sicherstellung einer konstanten und wohldefinierten Pikrinsäure-Lösung konnte eine systematische Parameterstudie zur LePera-Ätzung durchgeführt werden. Entscheidend dafür war der in Abbildung 5-4 dargestellte Ätzaufbau, der konstante Ätzbedingungen und eine homogene Kontrastierung ermöglicht (Abbildung 5-21).

5. Gefügekontrastierung

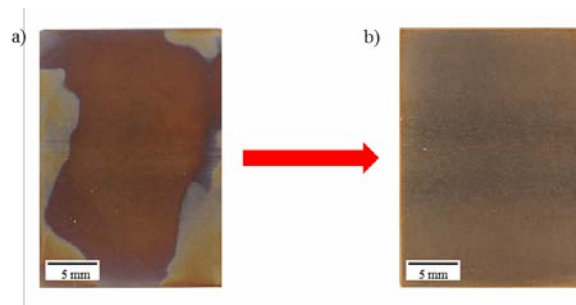


Abbildung 5-21: Darstellung der Verbesserung des Ätzergebnisses durch den entwickelten Versuchsaufbau. a) Makroaufnahme des gewöhnlich geätzten Schliffes mit deutlicher Inhomogenität; b) Makroaufnahme des im entwickelten Versuchsaufbau geätzten Schliffes ohne nennenswerte Inhomogenitäten.

Neben der Temperaturkontrolle bietet der Versuchsstand die Möglichkeit, die Ätzlösungen zu entgasen und die Ätzungen unter Schutzgas durchzuführen, um die wesentlichen Voraussetzungen für die Parameterstudie zu schaffen und eine reproduzierbare Ätzung zu ermöglichen. Die Temperierung der Ätzlösungen erfolgt mit Hilfe von Tropftrichtern im Temperierbad, wobei die Temperatur der Lösungen ebenfalls sehr genau eingestellt werden kann. Lediglich beim Aufsetzen der Tropftrichter auf den Dreihalskolben wird die Temperaturkonstanz unterbrochen und somit kurzfristig von der Umgebungstemperatur beeinflusst.

Um den Einfluss der Umgebungstemperatur vollständig auszuschließen wäre es entweder notwendig einen Weg zu finden, den Ätzprozess durchzuführen ohne die Ätzlösungen aus dem Temperierbad zu entfernen, oder die Umgebungstemperatur konstant zu halten, um den Ätzprozess durch koordinierte Erwärmung/Kühlung der Ätzlösungen entsprechend anpassen zu können.

Die Entgasung der Ätzlösungen erfolgt durch eine Argon-Spülung, welche den gelösten Sauerstoff physikalisch entfernt. Diese Methode der Entgasung ist als reproduzierbar anzusehen, da dieser Prozessschritt immer gleich durchgeführt werden kann. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass nach der Entgasungsbehandlung noch eine geringe Menge an Sauerstoff in den Ätzlösungen verbleibt.

Um diesen Restsauerstoff vollständig zu entfernen oder den Sauerstoffgehalt auf ein Minimum zu reduzieren, müssten aufwendige Verfahren wie die sog. "Freeze-Pump-Thaw-Methode" ([100]) angewendet werden. Weitere prozessbedingte Situationen führen zu einem nicht

5. Gefügekontrastierung

ununterbrochenen, sauerstofffreien Prozess. Die Probe muss aus dem Bad in den Dreihalskolben übergeben sowie bei der Entnahme nach der Ätzung aus dem Bad entnommen werden, was jeweils zu einem kurzen Kontakt mit der Umgebungsluft führt. Das eigentliche Ätzen im Dreihalskolben (der vor dem Ätzen mit Argon gespült wurde) erfolgt hingegen unter Argonatmosphäre. Dadurch ist es möglich, die Atmosphäre während des Ätzens konstant zu halten und Einflüsse durch Parameter wie die Zusammensetzung der Luft oder den Feuchtigkeitsgrad auszuschließen.

Alternativ könnte das Ätzen in einem Handschuhkasten durchgeführt werden. Dies würde eine vollständig kontrollierte und sauerstofffreie Atmosphäre gewährleisten. Die Notwendigkeit eines Temperierbades und ggf. einer Ätzlösungsentgasung führt jedoch zu zusätzlicher Komplexität und einem hohen Schwierigkeitsgrad für den Bediener.

Der vorgestellte Versuchsaufbau wird unter Abwägung aller Punkte als ausreichend und praktikabel angesehen, um Ätzvorgänge unter definierten und gut kontrollierten Bedingungen durchzuführen. Umwelteinflüsse werden stark reduziert und die wichtigsten Parameter – Ätzzeit, Ätztemperatur und Säurekonzentration – können gezielt eingestellt und kontrolliert werden.

Anhand der normalisierten Probe konnten zunächst einige grundsätzliche Untersuchungen zur Wirkweise der LePera-Ätzung an niedriglegierten Stählen aufgezeigt werden. Zu diesem Zweck wurde der in Kapitel 5.2.2 vorgestellte in situ Aufbau verwendet.

Bereits nach wenigen Sekunden ist das Gefüge deutlich kontrastiert. Innerhalb der ersten Sekunden kommt es zu einem Abtrag des Ferrits, auch und insbesondere innerhalb der zweiten Phase, sodass lediglich die Zementit-Agglomerationen und MAs weitestgehend unversehrt bleiben. Dies führt zu einer Lichtstreuung innerhalb der Bereiche der zweiten Phase, sodass diese im Lini dunkel erscheinen. Parallel zum Abtrag erfolgt die Ausbildung der orientierungsabhängigen Interferenzschicht, die im Wesentlichen aus Schwefel, Sauerstoff, Eisen und Chrom besteht.

Die Ergebnisse der Leitfähigkeits- und Temperaturmessungen (Abbildung 5-10) können mit den Beobachtungen während der in situ Messung korreliert werden. Dabei wird deutlich, dass die zu Beginn deutliche Kontrastierung der zweiten Phase mit dem Anstieg der Leitfähigkeit zusammenfällt. Die Erhöhung der Leitfähigkeit kann mit dem in Lösung gehenden Eisen

5. Gefügekontrastierung

korreliert werden. Die Veränderung bei Beobachtung der Ätzung im weiteren Verlauf hingegen ist weniger stark ausgeprägt. Gegen Ende nimmt sowohl die Leitfähigkeit als auch die Temperatur ab, was mit einer beobachteten, vernachlässigbaren Änderung der Kontrastierung (Abbildung 5-9) in Verbindung gebracht werden kann.

Um die Ursache der Temperaturerhöhung zu identifizieren wurde die Ätzlösung, wie in Kapitel 5.3.1 beschrieben, angesetzt, jedoch keine Probe hinzugegeben. Es konnte eine Temperaturerhöhung von $6,5^{\circ}\text{C}$ beobachtet werden. Wurde anstelle der wässrigen Natriummetabisulfit-Lösung lediglich 40 ml destilliertes Wasser hinzugegeben, kam es zu einer Temperaturerhöhung von 7°C . Die Temperaturerhöhung kann demzufolge auf die Deprotonierung der Pikrinsäure, die stark exotherm verläuft, zurückgeführt werden.

Die Berichte aus der Literatur und der metallographischen Praxis, wonach die LePera-Ätzung stets nur kurz und unmittelbar nach Mischung der beteiligten Lösungen angewendet werden soll ([79]), kann mit dieser Temperaturerhöhung in Verbindung gebracht werden und ist somit nachvollziehbar.

Basierend auf diesen Erkenntnissen und den Vorversuchen wurde eine Parameterstudie durchgeführt.

Die Ergebnisse bei konstanter Ätzzeit von 135 s und variierender Temperatur zeigen, dass bei Temperaturen bis 30°C je nach Ziel der Kontrastierung (Phasen- oder Korngrenzendarstellung) zufriedenstellende Ätzergebnisse erreicht werden können. Die Ätzdauer wich dabei erheblich von den in der Literatur angegebenen Zeiten ab, die mit wenigen Sekunden angegeben sind (z. B. [63], [85]). Dies kann sowohl auf das verwendete Probenmaterial (das je nach chemischer Zusammensetzung und vorliegendem Gefüge einen wesentlichen Einfluss auf das Ätzergebnis hat), als auch auf die Pikrinsäurekonzentration zurückzuführen sein. Darüber hinaus zeigte sich, dass niedrige Temperaturen zu einem sehr guten und homogenen Kontrast des gesamten Gefüges führten.

Aus diesem Grund wird eine Temperatur von 5°C zum Ätzen empfohlen, da sowohl die zweite Phase als auch die Korngrenzen der ferritischen Matrix gut sichtbar sind (Abbildung 5-15 b)). Zudem ist der gesamte Prozess vergleichsweise langsam, was eine bessere Kontrolle der Ätzung ermöglicht. Ätztemperaturen von 15°C oder 20°C führen bei dieser Zeit zu einem Verlust des

5. Gefügekontrastierung

Korngrenzenkontrastes (Abbildung 5-13 d)). Dies liegt an der zunehmend dickeren Interferenzschicht auf den Ferritkörnern, die den Abtrag durch den Ätzangriff ausgleicht.

Generell ist zu beachten, dass die für gute Ergebnisse zur Phasentrennung erforderlichen Ätzzeiten mit steigender Temperatur immer kürzer werden. Dadurch wird das kontrollierte Ätzen – auch hinsichtlich der Reproduzierbarkeit und Homogenität – immer schwieriger, auch wenn die Ergebnisse bei 40°C unter den gegebenen Bedingungen (kurze Zeiten) sehr gute Ergebnisse lieferten (Abbildung 5-17 b)). Temperaturen über 40°C werden für niedriglegierte Stähle nicht empfohlen, da eine Überätzung bereits nach kürzesten Zeiten unvermeidlich ist.

Es bleibt festzuhalten, dass längere Ätzzeiten und/oder höheren Temperaturen zu einem besseren Kontrast der zweiten Phase unter Verlust der scharfen Korngrenzen führen, bis schließlich der Orientierungseinfluss der Matrix zunehmend verloren geht und schließlich auch eine Darstellung der zweiten Phase schwierig bis unmöglich wird.

Ist das Ziel der Gefügekontrastierung eine Charakterisierung der MAs, ist eine Ätzung bei 40°C und einer Zeit von 20-40 s empfehlenswert, da sich in diesem Fall die MAs als weiße Objekte deutlich von der Matrix absetzen (Abbildung 5-17 a) und b)). Dieser Kontrast kann generell durch ein zusätzliches Besputtern mit Gold weiter verbessert werden (Abbildung 5-22).

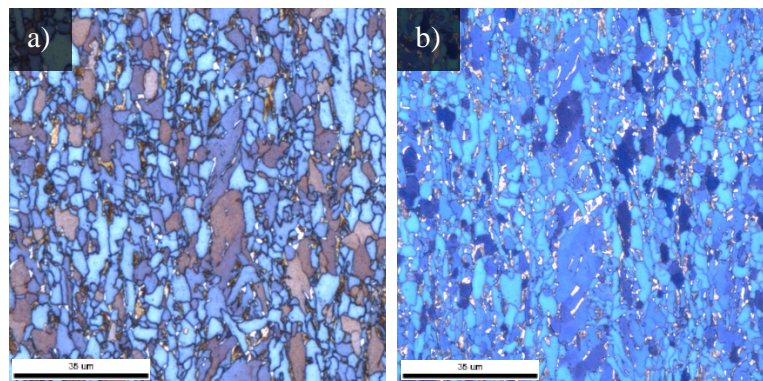


Abbildung 5-22: Vergleich einer Probe nach der LePera-Ätzung (a) und der gleichen Probe nach zusätzlichem Besputtern mit einer dünnen Goldschicht (b). Der Orientierungskontrast nimmt ab, während die MAs (weiß) hervorgehoben werden.

In Abbildung 5-22 ist deutlich zu erkennen, dass durch die zusätzliche Goldschicht beim Sputtern die Interferenzschicht verändert wird und der Orientierungseinfluss der ferritischen Matrix schwächer wird. Gleichzeitig werden die MAs jedoch deutlicher hervorgehoben.

5. Gefügekontrastierung

Die Schichtdickenmessungen anhand von FIB-Querschnitten zeigen, dass sowohl der Ätzabtrag als auch die Interferenzschichtbildung einem linearen Trend folgen (siehe Abbildung 5-19). Zu beachten ist, dass die Messungen signifikante Streuungen aufweisen. Einerseits ist die auf die relative Messung in Bezug auf die sehr kleinen MAs bzw. bainitischen Bereiche zurückzuführen. Weiterhin kann ein recht starker Einfluss der Orientierung festgestellt werden, der zu einer Schwankung der Schichtdicke um ca. 15-25 % und damit auch zu Schwankungen in den Messungen führt. Generell weisen Körner nahe der (100)-Orientierung den geringsten Abtrag und die geringste Schichtdicke auf, gefolgt von (111)- und (101)-orientierten Körnern. Dieser Sachverhalt kann auch aus den in situ Messungen nachvollzogen werden. Weitergehende Untersuchungen, um diesen Einfluss statistisch abzusichern und auch bei verschiedenen Ätzparametern (T, t) darzustellen sind jedoch notwendig. Die grundsätzliche Abhängigkeit bei Farbätzungen zwischen Orientierung und Färbung wurde u. a. auch in [88], [90], [101] beschrieben.

Die Interferenzschichtdicken wurden nur an den Ferritkörnern gemessen. Die FIB-Querschnitte in der Parameterstudie zeigen jedoch, dass längere Ätzzeiten und höhere Ätztemperaturen auch zur Bildung von Interferenzschichten auf den Zementit-Agglomerationen führen. Dieses Ergebnis stimmt mit den von E. Füreder ([21]) veröffentlichten Ergebnissen überein, die ebenfalls zeigen, dass sich eine derartige Interferenzschicht auch auf den edleren Gefügebestandteilen bilden kann. In diesen Arbeiten wird dieser Einfluss jedoch überbewertet und eine Abgrenzung zwischen anodischen und kathodischen Ätzungen ist nicht mehr möglich.

Es soll nicht unerwähnt bleiben, dass in den meisten FIB-Querschnitten ein hohes Maß an Porosität innerhalb der Interferenzschicht detektiert wurde (Abbildung 5-23 a)).

5. Gefügekontrastierung

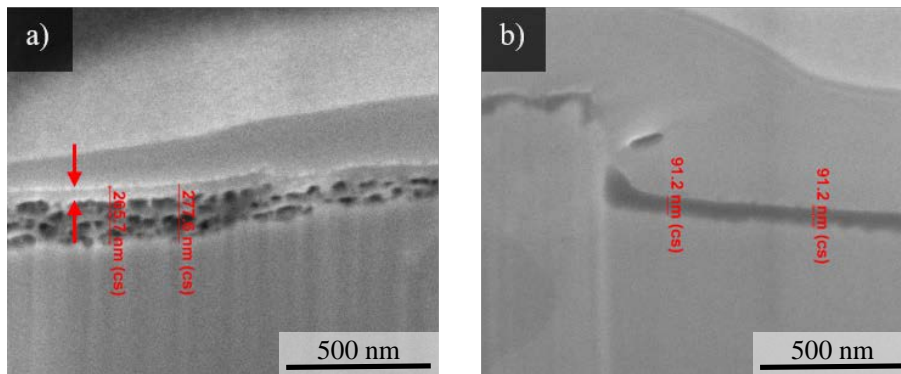


Abbildung 5-23: REM-Aufnahme von zwei FIB-Querschnitten einer Interferenzschicht nach der LePera-Ätzung. a) Poröse Schicht mit einer kleinen dichten Schicht (rote Pfeile) nach dem Ätzen bei 5°C für 300 s; b) Sehr dichte Interferenzschicht nach dem Ätzen bei 5°C für 420 s. ([57], © ASTM International)

In der in Kapitel 5.1 dargestellten Literaturübersicht wird diese Beobachtung für die LePera-Ätzung nicht erwähnt. Ätzungen wie Klemm und Beraha, von denen es hochaufgelöste Querschnittsaufnahmen in der Literatur gibt (u. a. [90]), zeigen hingegen keine Porosität. Der in den Ätzlösungen verbliebene physikalisch gelöste Sauerstoff ist als mögliche Ursache für derartige Poren naheliegend. Durch Entgasen der Ätzlösungen und Ätzen unter Argonatmosphäre konnten die Poren jedoch nicht reduziert oder gar vermieden werden. In der Literatur wird lediglich von Bandoh ([84]) von einer solchen Entgasung berichtet, jedoch ohne jegliche Begründung. Andere mögliche Ursachen für die Poren in der Interferenzschicht der LePera-Ätzung können auf den beim Ätzen freigesetzten Wasserstoff zurückzuführen sein, der sich in der Interferenzschicht einlagert. Weiterhin ist nicht auszuschließen, dass Wasserstoff trotz intensiver und mehrstufiger Probenvorbereitung und Entgasung vor dem Ätzprozess an der Probenoberfläche adsorbiert.

Die Porenbildung ließe sich möglicherweise durch Erweiterung des Aufbaus um einen Ultraschallfinger aufheben, der den adsorbierten Wasserstoff entfernt und die Ätzlösung deutlich besser und gleichmäßiger vermischt. Dass eine adsorbierte Schicht generell das Ätzergebnis beeinflussen kann, zeigte Pokorny ([82]). In dieser Studie wurde eine Schicht aus Sauerstoff-Metallverbindungen sowie Schwefel- und Ammoniumverbindungen untersucht. Pokorny zeigte, dass diese Schichten Ätzungen beeinflussen oder gar vollständig unterdrücken können. Daher kann nicht ausgeschlossen werden, dass eine adsorbierte Schicht aus Wasserstoff oder anderen Elementen einen signifikanten Einfluss auf das Ätzergebnis hat.

5. Gefügekontrastierung

Bei genauer Betrachtung der porösen Schicht ist jedoch erkennbar, dass die Poren in der Interferenzschicht von einer dichten Schicht bedeckt sind (siehe rote Pfeile in Abbildung 5-23 a)). Dies ist vergleichbar mit der Schicht aus Abbildung 5-23 b), die bei gleicher Temperatur, aber für eine andere Ätzzeit (420 s) hergestellt wurde. Durch die Messung dieser kompakten, dünnen Schicht aller FIB-Querschnitte, die eine derartige Porosität aufweisen, konnte festgestellt werden, dass sich diese kompakte Schicht ebenfalls linear mit der Zeit entwickelt. Basierend auf diesen Erkenntnissen kann angenommen werden, dass die Färbung nur aus dem dichten Interferenzschichtanteil resultiert und die Porosität lediglich einen Einfluss auf die Intensität der Färbung hat. Somit hat die Porosität keinen kritischen Einfluss auf die Ätzung und soll daher in der weitergehenden Betrachtung vernachlässigt werden.

Aus den bisherigen Erkenntnissen zum Ätzmechanismus lässt sich nicht eindeutig ableiten, inwieweit der Abtrag und die Bildung der Interferenzschicht gemeinsam wirken. Es wird angenommen, dass beide Prozesse gleichzeitig im Gleichgewicht ablaufen. Zunächst wird beim Eintauchen der Probe in die Lösung die native Oxidschicht entfernt, die je nach Kornorientierung unterschiedlich dick ist und somit zur Potentialdifferenz beiträgt. Darüber hinaus bilden die Eisenionen, die aus dem Probenmaterial entfernt werden, durch die Verbindung mit Natriummetabisulfit die Interferenzschicht. Das Gleichgewicht dieses Prozesses konnte durch Ätzen mit einer höheren Konzentration an Natriummetabisulfit, das für die Bildung der Schicht verantwortlich ist, bestätigt werden (Abbildung 5-24).

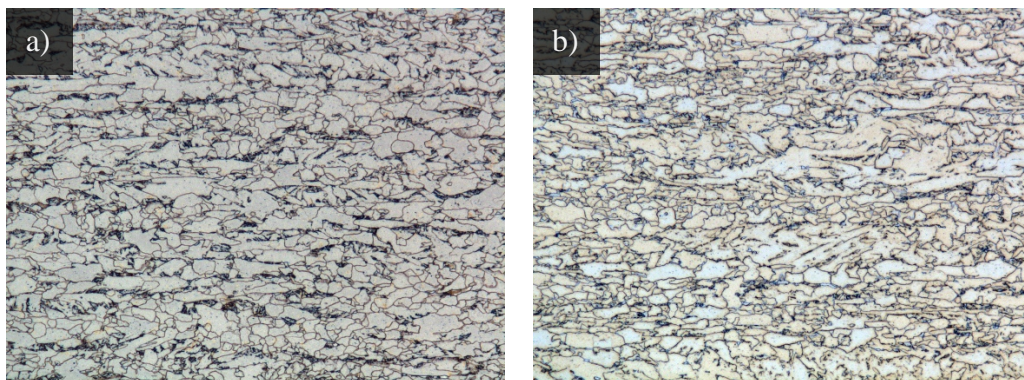


Abbildung 5-24: Darstellung des Einflusses des Anteils an Natriummetabisulfit. a) LePera-Ätzung bei RT für 90 s mit 1 %iger Natriummetabisulfitlösung b) LePera-Ätzung mit 1,1 %iger Natriummetabisulfitlösung bei RT für 90s. Bereits bei dieser geringen Konzentrationsänderung ist eine Färbung der ferritischen Matrix in verschiedenen Blau-Nuancen erkennbar.

Bereits eine leichte Erhöhung der Konzentration führt demnach zu einer Erhöhung der Schichtdicke.

5. Gefügekontrastierung

Aus diesen Erkenntnissen lässt sich schließen, dass eine Variation der Konzentration der Bestandteile der Ätzlösung zu signifikanten Veränderungen des Kontrastes sowie der Färbung – insbesondere der ferritischen Matrix – führen kann.

Zudem ist die Mitte der Probe stets etwas weniger kontrastreich als die Probenecken und -kanten. Der Grund dafür ist wahrscheinlich eine leichte Variation der Legierungselemente im Stahl über die Blechdicke oder eine stärkere Ätzreaktion in diesen Bereichen, da sich die Eisenionen leichter auflösen lassen und aufgrund der höheren Dynamik der Flüssigkeit ein besserer Ionenaustausch stattfinden kann. Daher ist es sehr wichtig, Gefügebildungen stets von der gleichen Position (im vorliegenden Fall Blechviertel) aufzunehmen.

5.3.4 Fazit Gefügekontrastierung mittels LePera

Durch die Entwicklung eines Ätzaufbaus, in dem sämtliche Parameter gesteuert werden können, einen in situ Ätzaufbau sowie durch diverse Parameterstudien konnte eine Methodik zur reproduzierbaren Ätzung von niedriglegierten Stählen nach LePera erreicht werden. Mit Hilfe des Versuchsaufbaus konnten die Umgebungsparameter weitestgehend konstant gehalten und die beiden Schlüsselparameter Ätzzeit und Ätztemperatur kontrolliert werden. Mittels Refraktometrie wurde die genaue Konzentration der verwendeten Pikrinsäure bestimmt. Dadurch war es möglich, diese Variable als mögliche Ursache für Schwankungen, wie sie in der Literatur oft der LePera-Ätzung zugeschrieben werden, auszuschließen. In der Parameterstudie wurden die oben genannten Parameter schließlich zur Optimierung des Ätzprozesses in Bezug auf Reproduzierbarkeit und Ätzergebnis verwendet, um quantitative Gefügeanalysen zu ermöglichen. Die Ergebnisse dieser Studie zeigen, dass Abtrag und Interferenzschichtbildung im Gleichgewicht stattfinden und dass diese Mechanismen einem linearen Trend in Bezug auf die verwendete Ätzzeit und Ätztemperatur folgen. Die FIB/REM-Untersuchungen machen allerdings auch deutlich, dass die LePera-Ätzung nicht für die Charakterisierung im REM geeignet ist.

Die Ergebnisse der in situ Ätzung in Kombination mit den anschließenden Untersuchungen zeigen jedoch, dass eine phasenspezifische Färbung mit Ausnahme von MAs, die weiß erscheinen, nicht erreicht werden kann. Abhängig von den Ätzparametern durchläuft die ferritische Matrix weite Teile des Farbspektrums. Dies steht im Widerspruch zu der Originalarbeit von LePera ([63], [79]) wonach der Ferrit stets hellbraun, der Bainit schwarz und der

5. Gefügekontrastierung

Martensit weiß nach der Ätzung erscheint. Dies bedeutet, dass ein direkter Vergleich mit den meist hochlegierten und kohlenstoffreichen Stahlproben sowie mit Proben mit anderen Gefügen nicht ohne weiteres möglich ist und eine Angabe von Farben stets unter den Eindrücken der vorgestellten Entwicklung der Interferenzschicht zu bewerten ist.

Aufgrund der starken Abhängigkeit zwischen chemischer Zusammensetzung und Gefüge sowie dem Ätzergebnis kann die vorliegende Arbeit Hinweise zur Einstellung der zu wählenden Ätzparameter geben. Ein allgemeiner Zeit-, Temperatur- und Konzentrationsbereich für die Ätzlösung kann jedoch nicht ohne weiteres im Vorfeld angegeben werden. Der in situ Aufbau reduziert jedoch den Arbeitsaufwand und die Anzahl der Vorversuche auf ein absolutes Minimum. Zudem können die gewonnenen Erkenntnisse zur systematischen Untersuchung von Ätzungen zur Darstellung ehemaliger Austenitkorgrenzen basierend auf Pikrinsäure eingesetzt werden. Diese Aufgabe stellt seit Jahrzehnten eine enorme Herausforderung in der metallographischen Praxis ([102]–[109]) dar. Voruntersuchungen sowie die Validierung mittels EBSD-basierter Ansätze erfolgten bereits und wurden auszugsweise in [50] veröffentlicht.

Die Ergebnisse dieser Experimente an niedriglegierten Stählen haben gezeigt, dass es möglich ist, auch sehr anspruchsvolle Materialien zu ätzen, die über eine gewöhnliche Nital-Ätzung nur unzureichend kontrastiert werden können. Je nach Wahl der Ätzparameter ist es somit möglich, zuverlässige Phasenbestimmung und -quantifizierung an Lini-Aufnahmen durchzuführen (Abbildung 5-25).

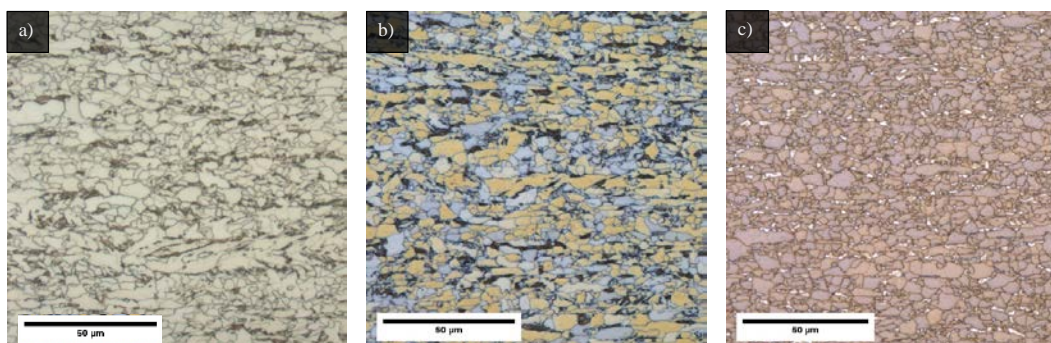


Abbildung 5-25: Vergleich zwischen Nital- und LePera-Ätzung. a) Ergebnis einer parameteroptimierten Nital-Ätzung (zwei Prozentig, 35 s Ätzzeit). Die bainitischen Bereiche sind braun dargestellt, MAs sind nicht detektierbar. Durch ähnliche Färbung von Korngrenzen und zweiter Phase ist eine Segmentierung und Quantifizierung allerdings nur sehr schwierig möglich. b) LePera-Ätzung (5°C, 180 s) verbesserter Kontrast durch die Einfärbung deutlich. Auch die bainitischen Bereiche sind in einem sehr dunklen Farbton deutlich von der Matrix und den Korngrenzen trennbar. c) Um die MAs deutlicher darstellen zu können, ist eine Anpassung der Parameter der LePera-Ätzung notwendig (40°C, 40 s).

5.4 Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung

Emanuel Beraha gilt als einer der Pioniere der Farbätzungen. In seinen zahlreichen Arbeiten zur Farbätzung ([53], [64], [75]–[78], [110]–[113]) zeigte er vielfältige Möglichkeiten auf, um Gefügebestandteile gezielt zu kontrastieren und somit einer Charakterisierung und Quantifizierung zugänglich zu machen. Seine Motivation entstand aus der Tatsache, dass bekannte (Struktur-)Ätzungen wie die Nital-Ätzung lediglich einen sehr geringen Kontrast liefern. So erarbeitete Beraha u. a. ein Ätzmittel, das die Unterscheidbarkeit zwischen der Stahlmatrix und massiven Karbid- und Nitridpartikeln ermöglichte. Dazu schlug er eine kombinierte Ätzung und Färbung von Stahlproben auf der Basis von Kaliummetabisulfit vor. Diese neue Rezeptur zeigte nicht nur einen Ätzangriff, sondern lagerte gleichzeitig einen dünnen Film auf der Matrix ab. Der resultierende Kontrast hing von der Topographie der geätzten Oberfläche und der Schichtdicke ab ([64]). Durch die Anpassung der Konzentrationen der Bestandteile der Ätzung war es ihm möglich, den Ätzangriff im Verhältnis zur Schichtbildung zu steuern. 1967 modifizierte Beraha seine Ätzlösung. Er verwendete dazu eine Mischung aus 3 g Kaliummetabisulfit in 100 ml destilliertem Wasser, in der er die zu kontrastierende Probe für 1 bis 15 min bei Raumtemperatur eintauchte ([75]). Damit war es möglich, Ferrit, Martensit, und Bainit voneinander zu trennen. Auch die Orientierung des Ferrits konnte dargestellt werden.

Lichtenegger und Blöch gaben schließlich weitergehende Hinweise zum Ablauf der Vorgänge bei der Beraha-Ätzung ([114]). Demnach dissoziiert das Kaliummetabisulfit ($K_2S_2O_5$) in K^+ und sog. Pyrosulfit ($S_2O_5^-$) in der Lösung. In verschiedenen Zerfallsreaktionen entstehen u. a. SO_2 bzw. H_2SO_3 , die zu einer Depassivierung der Probenoberfläche führen. Somit kann die Reaktion der Schichtbildung fortschreiten. Daneben zerfällt das Pyrosulfit in weiteren Schritten, bis sich schließlich auf den anodischen Bereichen des Gefüges ein Sulfidfilm bildet. Wie genau der Sulfidfilm entsteht, ist bislang nicht geklärt. Laut Hemmingsen et al. ([115]) gibt es folgende Optionen:

- Eisenionen werden mit Sulfit auf der Probenoberfläche abgelagert, wo das Sulfit schließlich durch das Eisen reduziert wird.
- Die Sulfitionen werden auf der Probenoberfläche adsorbiert und durchlaufen eine Vielzahl an verschiedenen Reduktionsschritten bis sich schließlich ein Sulfidfilm bildet.
- Es entstehen diverse Zwischenprodukte, die immer wieder desorbieren und erneut adsorbiert werden.

Ist der Film einmal gebildet, können die Eisenionen durch den Sulfidfilm migrieren und eine FeS-Schicht bilden.

Die von Beraha vorgeschlagene Ätzung ist insbesondere hinsichtlich ihrer unkomplizierten Herstellung und einfachen Anwendung noch immer eine sehr interessante Farbätzung. Zudem eignet sie sich entgegen der Ätzung nach LePera auch für die Gefügeuntersuchung im REM. Nach zahlreichen Voruntersuchungen mit weiteren Ätzungen nach [18], [20] zeigte die Ätzung nach Beraha ([75]) für die in Kapitel 4 vorgestellten Proben ebenfalls sehr vielversprechende Ansätze. Um das Potential der Ätzung voll auszuschöpfen und um eine weitere Alternative zur Ätzung nach LePera (Kapitel 5.3) vorhalten zu können, wurde ebenfalls eine systematische Untersuchung mit Hilfe der Aufbauten aus Kapitel 5.2.1 und 5.2.2 durchgeführt.

Die vorgestellten Ergebnisse wurden auszugsweise bereits in [49], [53] veröffentlicht.

5.4.1 Versuchsgestaltung

Zum allgemeinen Verständnis der Beraha-Ätzung nach [75] werden wie bereits bei der LePera-Ätzung zunächst in situ Untersuchungen gemäß Kapitel 5.2.2 an der normalisierten Stahlprobe (Abbildung 4-1) durchgeführt.

Zur gezielten Anwendung und tiefergehenden Untersuchung der Beraha-Ätzung werden, wie bereits im Rahmen der LePera-Ätzung, die in Kapitel 4 beschriebenen bainitischen Proben (Abbildung 4-2) genutzt. Das Gefüge besteht aus einer ferritischen Matrix mit einem geringen Anteil an MAs und bainitischen Körnern mit Zementit-Agglomerationen.

Vor den Ätzversuchen werden die Proben gemäß Tabelle 4-1 präpariert. Für ein reproduzierbares und homogenes Ergebnis ist es auch in diesem Fall wichtig, dass die Proben nicht eingebettet werden.

Vor der eigentlichen Ätzung in dem in Abbildung 5-4 dargestellten Versuchstand werden die Proben für eine Minute in einem Ultraschallbad mit einer 1 %-igen Zitronensäurelösung desoxidiert, um die gleichen Ausgangsbedingungen für alle Proben zu gewährleisten. Um eine weitere Oxidation der Proben zu verhindern, erfolgt anschließend umgehend die Ätzung.

5. Gefügekontrastierung

Das verwendete Ätzrezept entspricht der Zusammensetzung gemäß [75] aus einer Lösung bestehend aus 3 g Kaliummetabisulfit und 100 ml destilliertem Wasser. Bei einigen Versuchen wird darüber hinaus gemäß [76] Amidosulfonsäure ($\text{H}_2\text{NSO}_3\text{H}$) hinzugegeben.

Der Ätzstopp erfolgt in Wasser, da eine Reinigung mit Ethanol zu einer inhomogenen Kontrastierung führt.

Die eigentliche Parameterstudie wird in vier verschiedene Versuchsreihen aufgeteilt:

- Konstante Zeit ($t = 60$ s) und variierende Temperatur (5 - 60°C)
- Konstante Temperatur ($T = 5^\circ\text{C}$) und variierende Ätzzeiten (20 - 600 s)
- Konstante Temperatur ($T = 5^\circ\text{C}$ bzw. $T = 20^\circ\text{C}$), Zugabe von $0,5$ % Amidosulfonsäure, und variierende Ätzzeiten (60 - 600 s)
- Konstante Temperatur ($T = 5^\circ\text{C}$ bzw. $T = 20^\circ\text{C}$), Zugabe von 1 % Amidosulfonsäure, und variierende Ätzzeiten (60 - 600 s)

Diese Parameterbereiche ergaben sich nach einer Vielzahl an Voruntersuchungen (Variation der Zusammensetzung (Kaliummetabisulfit, Amidosulfonsäure, Salzsäure, Ammoniumbifluorid), Ätzzeiten und Temperatur).

Das Ätzverfahren eignet sich sowohl zur Charakterisierung im Limi, als auch im REM. Die notwendige Phasentrennung erfolgt mittels klassischer Bildverarbeitungssoftware (Zeiss AxioVision). Zusätzlich werden Glättungs-, Schärfe- und Binärbildfunktionen zur Bildoptimierung innerhalb der Software eingesetzt. Die Phasentrennung erfolgt durch eine Schwellwertsegmentierung. Zur Darstellung der Korngrenzen ist es teilweise notwendig, Korngrenzen manuell nachzuzeichnen.

5.4.2 Ergebnisse Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung

Um zunächst den Ablauf der Ätzung besser verstehen zu können, wird die normalisierte Probe (Abbildung 4-1) im in situ Aufbau mit der Beraha-Ätzung nach [75] bestehend aus 3 g Kaliummetabisulfit und 100 ml destilliertem Wasser untersucht. So kann die Entwicklung des Kontrastes bestmöglich nachvollzogen werden.

5. Gefügekontrastierung

Einzelaufnahmen, die dem Film der in situ Ätzung entnommen wurden, zeigen den Fortschritt der Beraha-Ätzung als Funktion der Zeit (Abbildung 5-26). Nach wenigen Sekunden wird ausschließlich die zweite Phase kontrastiert und es ist weder eine Farbbildung noch ein Angriff der Korngrenzen der ferritischen Matrix sichtbar. Eine leichte Farbschattierung der Matrix ist nach ca. 170 s zu beobachten, während die zweite Phase schwarz erscheint. Eine nahezu gleichmäßige blau-violette Färbung der Matrix ist nach ca. 300 s zu erkennen. Eine klare Unterscheidung der verschiedenen Ferritkörner ist nach zehn Minuten möglich und schließlich erscheint die Matrix in einer Vielzahl unterschiedlicher Farben. Nach 1.800 s werden die Farben immer unschärfer und nach 2.400 s erscheinen vertikale helle Linien, die zunehmend besser sichtbar sind. Nach einer Ätzzeit von zwei Stunden (12.000 s) gibt es schließlich keine Färbung mehr und lediglich die Körner und die hellen Linien können unterschieden werden. Nach dem Ätzstopp und dem Trocknen der Probe erscheint die Matrix mit einer von Rissen durchsetzten Schicht bedeckt, während die zweite Phase ohne Risse dunkel gefärbt ist, was im letzten Bild (12.000 s**) in Abbildung 5-26 zu sehen ist.

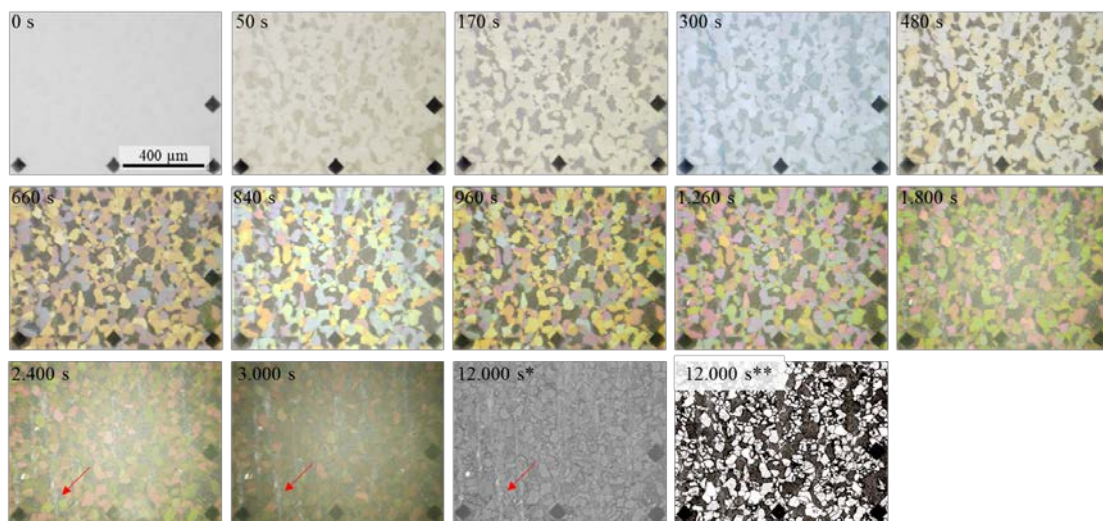


Abbildung 5-26: Zeitaufgelöste Beraha-Ätzung der normalisierten Stahlprobe. Das Gefüge wird Schritt für Schritt herausgestellt: Kontrastierung der zweiten Phase und anschließende Einfärbung der Matrix. Für die korrelative Mikroskopie wurden Härteeindrücke (schwarze Raute) angefertigt. Nach 2.400 s erscheinen helle Linien (rote Pfeile). Das Experiment wurde nach zwei Stunden abgebrochen. Das Bild nach 12.000 s (*) wurde aufgenommen, während die Ätzlösung noch in der Zelle war, während das Bild nach 12.000 s (**) nach Entfernen der Durchflusszelle, Spülen und Trocknen aufgenommen wurde. ([53], © ASTM International)

Ein zweites in situ Experiment wird nach 960 s abgebrochen, um die entstandenen Farben direkt mit der Orientierung korrelieren zu können. Repräsentative Aufnahmen aus dem in situ Film sind in Abbildung 5-27 dargestellt.

5. Gefügekontrastierung

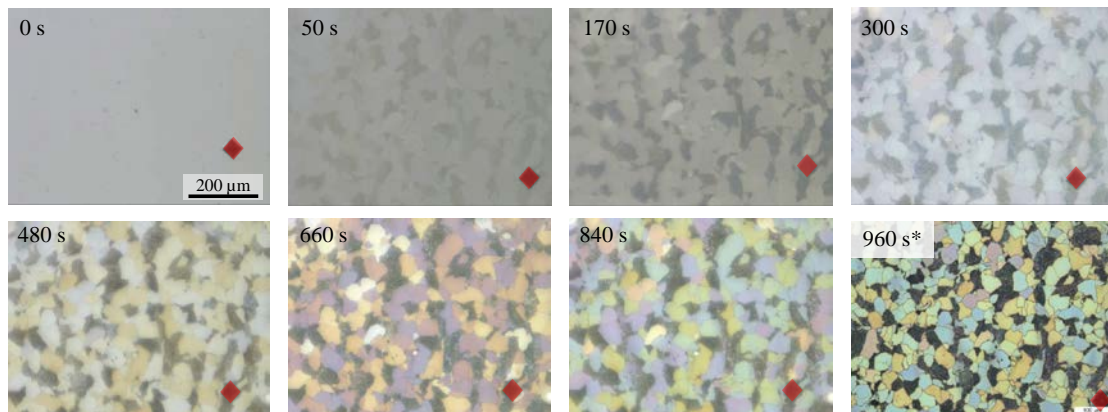


Abbildung 5-27: Zeitaufgelöste Beraha-Ätzung der normalisierten Stahlprobe. Das Gefüge wird Schritt für Schritt herausgearbeitet: Kontrastierung der zweiten Phase und anschließende Einfärbung der Matrix. Ein Härteeindruck (rote Raute in der rechten Ecke) dient als Referenzmarke für die korrelative Mikroskopie. Nach 960 s wurde die Ätzung gestoppt und das Gefüge anschließend nach der Trocknung unter dem Limi begutachtet (960 s*).⁸

Aufgrund identischer Ätzbedingungen ist die Kontrast- und Filmbildung identisch zu dem Verlauf in Abbildung 5-26. Dies zeigt die grundsätzlich sehr gute Reproduzierbarkeit der Beraha-Ätzung. Nach 50 s entsteht ein guter Kontrast der zweiten Phase, wobei eine sehr leichte Schattierung der Matrix zu erahnen ist. Nach 960 s wurde die Ätzung gestoppt, um die Abhängigkeit der verschiedenen Farben von der Orientierung der Matrix weiter zu untersuchen.

Abbildung 5-28 zeigt die Farbentwicklung eines einzelnen Kornes als Funktion der Ätzdauer aus dem in Abbildung 5-27 gezeigten in situ Experiment. Es ist erkennbar, dass der Interferenzfilm auf dem Ferritkorn verschiedene Interferenzordnungen durchläuft. Beginnend mit einem leicht gelben Film nach 60 s können innerhalb der ersten 240 s alle Farben erster Ordnung (rot, violett und blau) erkannt werden. Das Auftreten einer weiteren gelben Färbung nach 330 s zeigt den Beginn des Interferenzfilms zweiter Ordnung an. Zusätzlich zu den Farben erster Ordnung ist in diesem Fall nach 720 s ein grüner Film sichtbar. Die Interferenz dritter Ordnung zeigt nur eine gelbe und leichte rote Färbung, nachdem das Experiment gestoppt wurde. Es soll noch einmal erwähnt werden, dass die gleiche Entwicklung der Färbung auch im ersten in situ Experiment beobachtet wurde (Abbildung 5-26).

⁸ Modifiziert nach [53], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

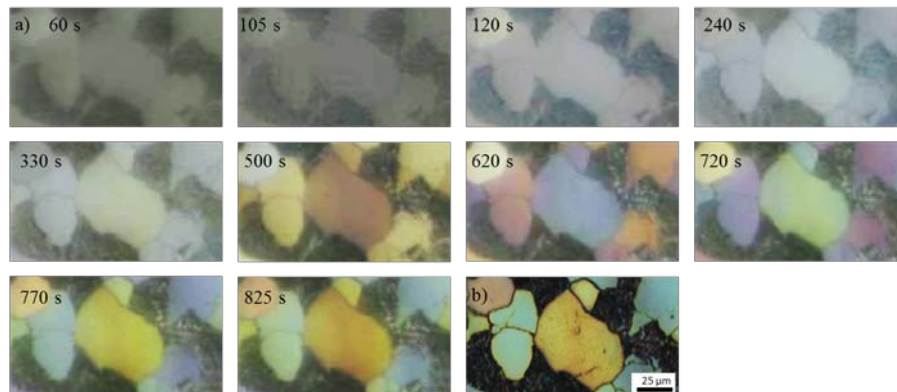


Abbildung 5-28: Schichtentwicklung auf einem bestimmten Korn zu definierten Zeiten des in situ Films. a) Die Farbe wechselt von Interferenz erster Ordnung (leicht gelb (60 s) zu leicht rot (105 s), leicht violett (120 s) und leicht blau (240 s)) zu Interferenz zweiter Ordnung (von gelb (330 s) zu rot (500 s), blau (620 s) und grün (720 s)) und endet mit Interferenz dritter Ordnung (gelb (770 s) und rot (825 s)) mit dem Ätzstopp. Das lichtmikroskopische Bild nach dem Ätzen ist in b) dargestellt.⁹

Die durch die Beraha-Ätzung im zweiten Experiment verursachte Färbung wird ebenfalls mit einem EBSD-Scan der gleichen Probenposition korreliert, wie in Abbildung 5-29 gezeigt. Die korrespondierenden Körner des EBSD-Scans und dem Limi sind rot umrandet. Darüber hinaus werden in Ferrit-Körnern FIB-Schnitte angefertigt, um die tatsächliche Schichtdicke des Interferenzfilms bestimmen zu können. Die Schichtdicke wird schließlich in Bezug auf die Kornorientierung des Ferrits in einer inversen Polfigur-Karte als Farbinformation (rot: dicke Schicht, blau: dünne Schicht) aufgetragen.

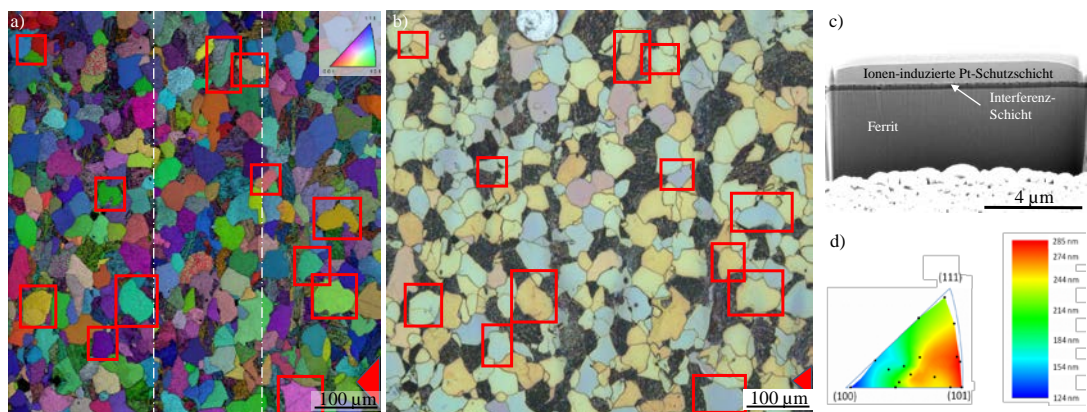


Abbildung 5-29: Untersuchung des Zusammenhangs zwischen Orientierung und Schichtbildung durch Beraha-Ätzung (rote Rechtecke): a) Korrelativer EBSD-Scan (Inverse Polfigur Darstellung überlagert mit Image Quality) vor dem Ätzen; b) Limi-Aufnahme nach dem Ätzen; c) Repräsentativer FIB-Querschnitt zur Bestimmung der Interferenz-Schichtdicke; d) Darstellung der farbcodierten Schichtdicken in einem Orientierungsdreieck mit einer Interpolation zwischen den nach FIB-Schnitten in den entsprechenden Ferrit-Körnern gemessenen Schichtdicken.

⁹ Modifiziert nach [53], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

Aus Abbildung 5-29 ist ein eindeutiger Zusammenhang zwischen der Ferrit-Orientierung und der -Färbung, die durch die Dicke der Interferenzschicht bestimmt wird, erkennbar. Demnach zeigen Körner mit einer (100)-Orientierung die dünnsten Schichten, gefolgt von (111)-orientierten Körnern. Die dicksten Interferenzschichten sind demnach auf Körnern der (101)-Orientierung zu finden.

Um die sich bildende Interferenzschicht tiefergehender zu untersuchen, werden auch in diesem Fall weiterführende Untersuchungen mittels einer im FIB zielpräparierten TEM-Folie im STEM vorgenommen. Dazu wird u. a. ein Bereich ausgewählt, in dem Körner nahe der drei Richtungen (100), (101) und (111) nebeneinander liegen (Abbildung 5-30).

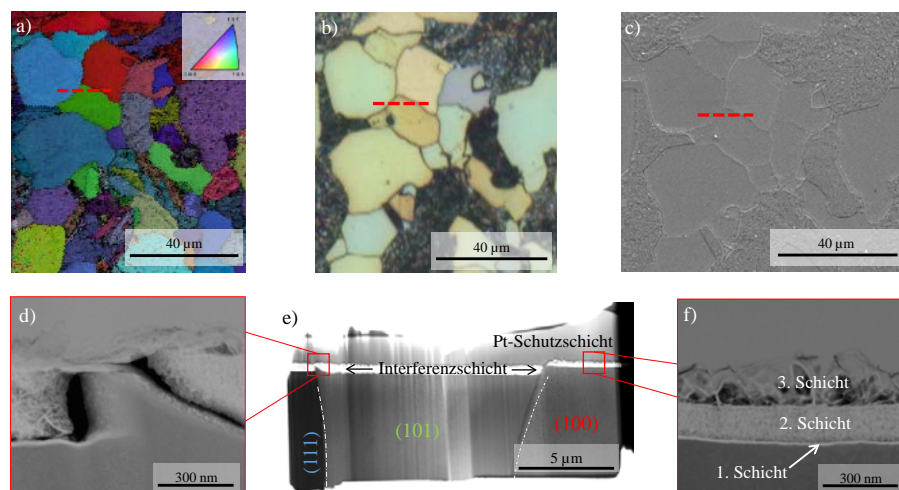


Abbildung 5-30: STEM-Untersuchung der Interferenzschicht: a) Position der FIB-Zielpräparation (rote gestrichelte Linie) an einer Stelle, an der nahezu die drei Hauptebenen nebeneinander liegen (EBSD); b) gleiche Stelle im Lini. Die drei unterschiedlichen Farben lassen unterschiedliche Schichtdicken vermuten; c) REM-Aufnahme der FIB-Zielpräparation; d) Vergrößerte Darstellung der präparierten TEM-Lamelle (e, STEM-Hellfeldaufnahme). Die Korn- grenze wurde weniger stark angegriffen und zeigt keine Schichtbildung. f) Hocho aufgelöste Darstellung der Interferenzschicht auf einem Ferrit-Korn: drei verschiedene Schichten können unterschieden werden.

Neben den orientierungsabhängigen Schichtdicken ist deutlich zu erkennen, dass die Korn- grenzen weniger stark angegriffen werden und keine Schichtbildung aufweisen. Generell zeigt das (100)-Korn nicht nur die dünnste Interferenzschicht, sondern auch der Angriff des darunterliegenden Ferrits ist im Vergleich zu den anderen beiden Orientierungen deutlich weniger stark ausgeprägt. Die eigentliche Schicht kann in einen sehr dünnen, hellen Bereich an der Stahloberfläche (1. Schicht), eine kompakte Zone (2. Schicht) und eine lose Schicht (3. Schicht), die aus einzelnen Fäden besteht und wahrscheinlich beim Trocknen der Probe

5. Gefügekontrastierung

entsteht, unterteilt werden. Weiterführende EDX-Untersuchungen an der TEM-Folie ermöglichen eine hohe Auflösung, da keine Rückstreuung innerhalb der Probe erfolgt.

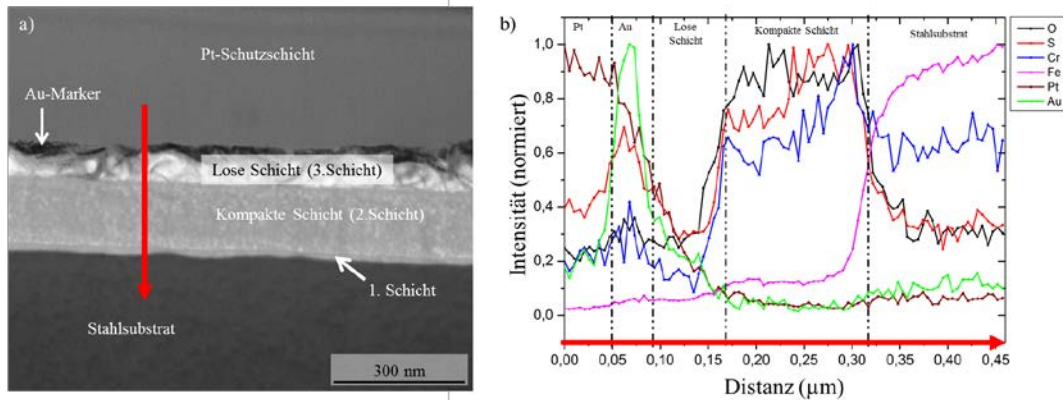


Abbildung 5-31: STEM-EDX Untersuchung der Interferenzschicht. a) STEM-Hellfeldbild: Auf der Stahlprobe sind die drei verschiedenen Schichten zu sehen. Um eine Referenzlinie zu erhalten, wurde nach dem Ätzprozess eine Goldschicht aufgesputtert; die oberste Schicht aus Platin schützt das System vor Oberflächenveränderungen während der Zielpräparation. Die Position des EDX-Linienscans und die Richtung des Scans wird durch einen roten Pfeil angezeigt; b) EDX-Linienscan der angegebenen Position (Intensität auf jeweils maximale Intensität normiert): die verschiedenen Bereiche können den Bereichen in a) zugeordnet werden.

Der EDX-Linienscan zeigt qualitativ die Zusammensetzung der Interferenzschicht. In der ersten Schicht ist eine Anreicherung von Chrom erkennbar. Auch die folgende Schicht weist eine erhöhte Konzentration an Chrom auf. In beiden Schichten ist darüber hinaus Eisen, Schwefel und Sauerstoff vorhanden (Normierung der Intensität beachten). Eine genaue Beschreibung der losen Schicht (3. Schicht) ist nicht möglich. Eine minimale Konzentration von Kalium (wahrscheinlich aus der Ätzlösung) konnte lediglich in einigen Punktmessungen detektiert werden. Darüber hinaus konnten keine signifikanten Mengen an weiteren Elementen nachgewiesen werden.

Basierend auf den Erkenntnissen der Vorversuche und der in situ Messungen wird schließlich die systematische Parameterstudie durchgeführt.

Zunächst wird, wie bereits bei der LePera-Ätzung, der Einfluss der Temperatur untersucht. Die Ätzzeit wird basierend auf den Vorversuchen auf 60 s festgelegt. Repräsentative Ergebnisse dieser Testreihe bei bestimmten Temperaturen sind in Abbildung 5-32 festgehalten.

5. Gefügekontrastierung

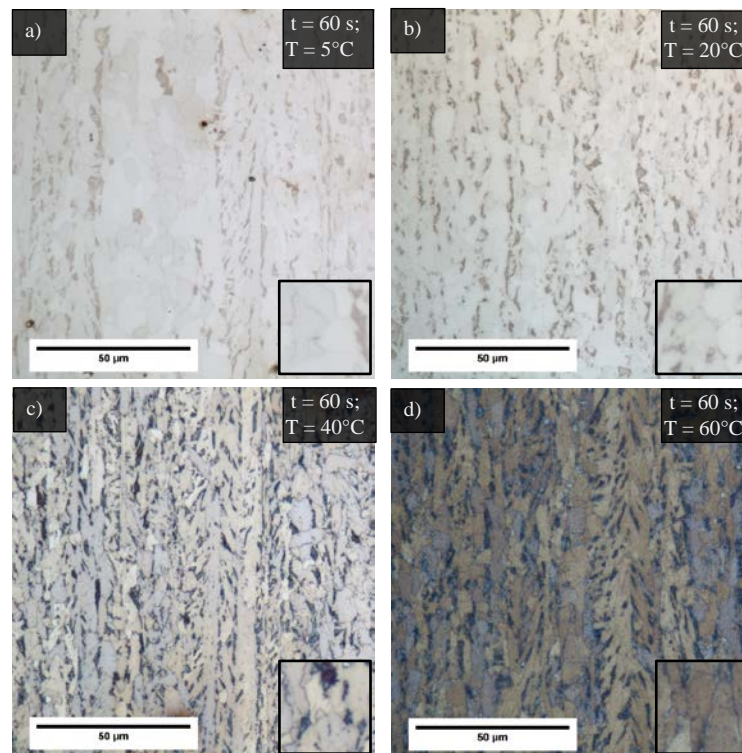


Abbildung 5-32: Darstellung des Einflusses der Temperatur auf die Beraha-Ätzung für eine Ätzzeit von 60 s an Gefügeaufnahmen nach Ätzungen bei a) 5°C; b) 20°C; c) 40°C und d) 60°C.

Wie bereits in der *in situ* Ätzung festgestellt, kommt es bei diesen kurzen Zeiten bei niedrigen Temperaturen bis 20°C lediglich zu einer Kontrastierung der zweiten Phase, ohne deutliche Unterscheidung der Körner der ferritischen Matrix. Somit sind die bainitischen Bereiche deutlich von der Matrix unterscheidbar. Bei höheren Temperaturen ändert sich das Erscheinungsbild vollständig und es kommt nicht nur zu einer zusätzlichen Kontrastierung der Korngrenzen, sondern auch zu einem deutlichen Orientierungseinfluss der Matrix. Bei weiterer Erhöhung der Temperatur auf 60°C ist die Interferenzschicht auf der Matrix bereits so dick, dass eine weitere Kontrastierung oder Quantifizierung nicht mehr möglich ist. Gemäß den Erkenntnissen aus der *in situ* Ätzung ist im Fall der Ätzung bei 60°C bereits eine höhere Interferenzordnung erreicht, sodass die Intensität der Interferenzschicht deutlich abgeschwächt ist. Die Zementit-Agglomerationen erscheinen sehr dunkel.

Eine Unterscheidung zwischen den MAs und den Zementit-Agglomerationen ist im Lichtmikroskop bei diesen Vergrößerungen nicht möglich. REM-Untersuchungen hingegen machen das Potential der Beraha-Ätzung bei kurzen Zeiten sehr deutlich. Beispielhaft ist die Ätzung bei 20°C und einer Ätzdauer von 60 s in Abbildung 5-33 dargestellt.

5. Gefügekontrastierung

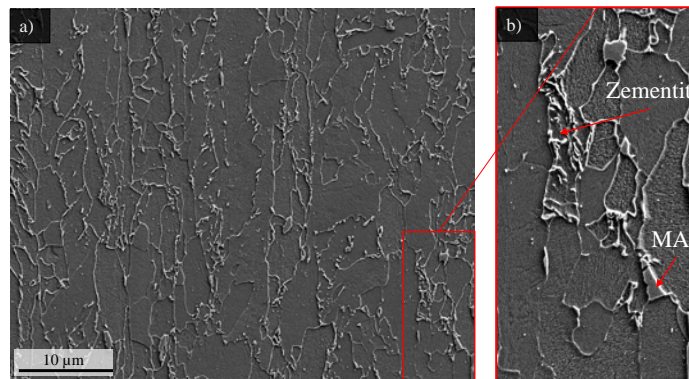


Abbildung 5-33: REM-Aufnahme bei 5 kV und 300 pA mit SE-Detektor (ETD). a) Das Gefüge ist sehr detailliert dargestellt, wobei die Korngrenzen nur sehr schwach erkennbar sind. b) Bei genauer Betrachtung sind die Zementitnadeln gut erkennbar. MAs erscheinen als glatte Flächen.

Im SE-Kontrast sind die Gefügebestandteile sehr fein herausgearbeitet, sodass die Substruktur deutlich erkennbar ist. Die Korngrenzen sind im Vergleich zum Lini etwas deutlicher, jedoch noch immer sehr schwach und unterbrochen dargestellt. Ein direkter Orientierungseinfluss des Ferrits durch eine Interferenzschicht ist nicht erkennbar, wobei es leichte Unterschiede im Niveau der Körner gibt.

Ergänzend zur in situ Messung wird in einer weiteren Versuchsreihe der Einfluss der Zeit bei niedriger Temperatur (5°C) bestimmt (Abbildung 5-34).

Ähnlich der Ergebnisse mit variierender Temperatur nimmt auch mit zunehmender Zeit die Kontrastierung der Matrix zu. Wird zunächst nur die zweite Phase kontrastiert (Abbildung 5-34 a)), kommt es mit voranschreitender Zeit (Abbildung 5-34 b)) auch zu einer deutlichen Darstellung der Ferritkörner. Ein leichter Orientierungseinfluss ist ebenfalls erkennbar, was sich in unterschiedlichen Schattierungen der ferritischen Matrix äußert. Die zweite Phase erscheint zu diesen Zeiten deutlich dunkel und lässt sich somit leicht von der Matrix unterscheiden. Bei 480 s ist das Gefüge bereits überätzt, wobei die Bereiche der zweiten Phase noch erkennbar sind. Im Vergleich zur Ätzung bei hohen Temperaturen bzw. zur in situ Messung kommt es jedoch nicht zu einer deutlichen Einfärbung der Matrix, sondern lediglich zu unterschiedlichen Brauntönen, die der Orientierung des Ferrits zuzuordnen sind.

5. Gefügekontrastierung

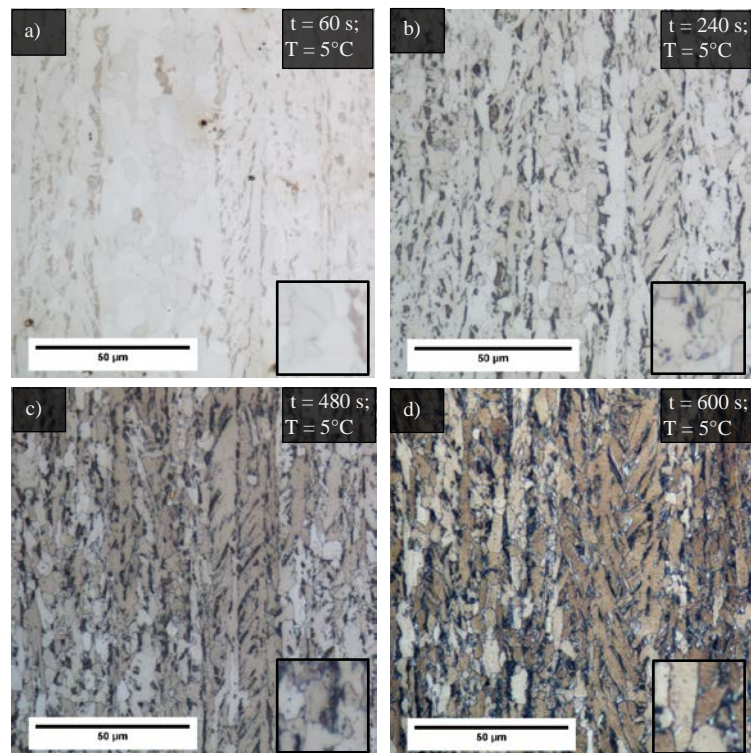


Abbildung 5-34: Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei 5°C. Proben geätzt für a) 60 s; b) 240 s; c) 480 s und d) 600 s.

Nach 600 s ist aufgrund der starken Kontrastierung (Abbildung 5-34 d)) der Matrix keine Unterscheidung zwischen Ferrit und zweiter Phase mehr möglich. Die unterschiedlichen Brauntöne sind, wie bereits bei kürzeren Zeiten erwähnt, auf die unterschiedlichen Orientierungen des Ferrits zurückzuführen. Insgesamt ist das Gefüge jedoch deutlich überätzt. Im Vergleich zu den anderen Zeiten und Temperaturen sind nun jedoch kleine, helle Bereiche in den Kornwickeln deutlich erkennbar, die nach Abgleich mit den EBSD-Messungen und den REM-Aufnahmen den MAs zugeordnet werden können.

Um die ferritische Matrix deutlicher darzustellen, wird gemäß [76] Amidosulfonsäure der Ätzlösung hinzugegeben. Die Amidosulfonsäure sorgt für eine stärkere Depassivierung der Metalloberfläche und ist im Vergleich zur alternativ bei höherlegierten Stählen einsetzbaren Salzsäure weniger aggressiv ([64]). Der Angriff wird somit zwar generell im Vergleich zum Rezept ohne weitere Bestandteile stärker, die Amidosulfonsäure greift den Stahl jedoch im Vergleich zur Salzsäure langsamer und gleichmäßiger an, wodurch die Ätzung besser kontrolliert werden kann.

5. Gefügekontrastierung

Zunächst werden 0,5 g Amidosulfonsäure auf 100 ml Ätzlösung hinzugegeben und sowohl bei 5 C als auch bei 20 C an den bainitischen Proben angewendet. Die Ergebnisse der Ätzung nach 60 s bzw. 600 s sind in Abbildung 5-35 dargestellt.

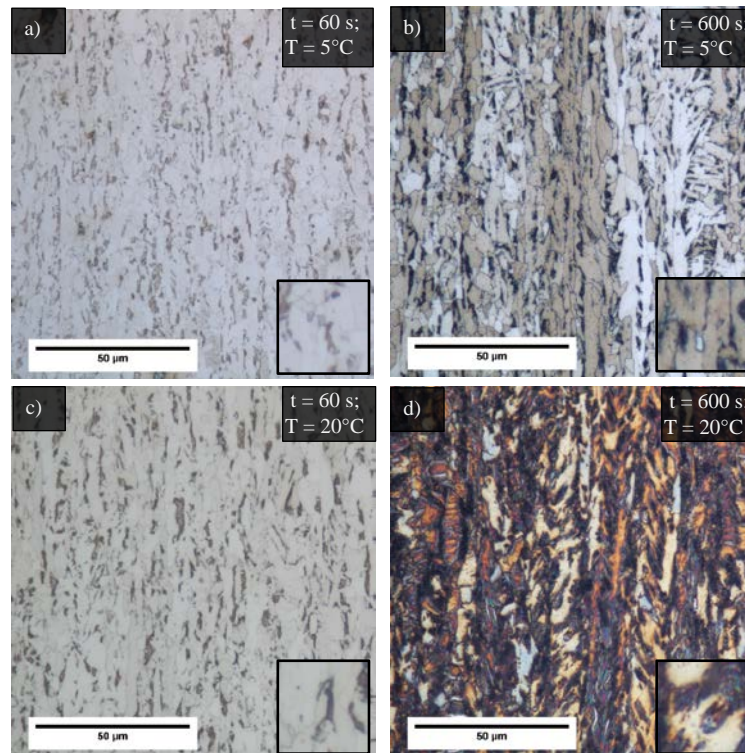


Abbildung 5-35: Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung mit einem zusätzlichen Anteil von 0,5 % Amidosulfonsäure unter Variation der Ätzzeit bei 5°C bzw. 20°C. Proben geätzt für a) 60 s und b) 600 s bei 5°C; c) 60 s und d) 600 s bei 20°C.

Der Unterschied zwischen der Ätzung mit (Abbildung 5-35) und ohne (Abbildung 5-34) Amidosulfonsäure ist direkt ersichtlich. Die Korngrenzen sind bereits nach 60 s erkennbar (Abbildung 5-35 a)). Nach 600 s ist bei 5°C (Abbildung 5-35 b)) ein deutlicher Orientierungseinfluss der Matrix zu erkennen, wobei Brauntöne überwiegen. Trotz der langen Ätzzeit sind die einzelnen Phasenbestandteile noch unterscheidbar und MAs sind ebenfalls erkennbar. Der Temperatureinfluss in Kombination mit der Amidosulfonsäure ist sehr deutlich, was die Ergebnisse bei 20°C verdeutlichen (Abbildung 5-35 c) und d)). Eine Gefügecharakterisierung ist praktisch nicht mehr möglich, da die ferritische Matrix eine deutliche Überätzung und Färbung aufweist. Die Interferenzschicht ist dabei bereits so dick, dass es partiell zu Rissen kommt.

5. Gefügekontrastierung

In einer letzten Testreihe wird die Menge an Amidosulfonsäure verdoppelt. Auch der Temperatureinfluss wird dabei untersucht und in Abbildung 5-36 zusammengefasst.

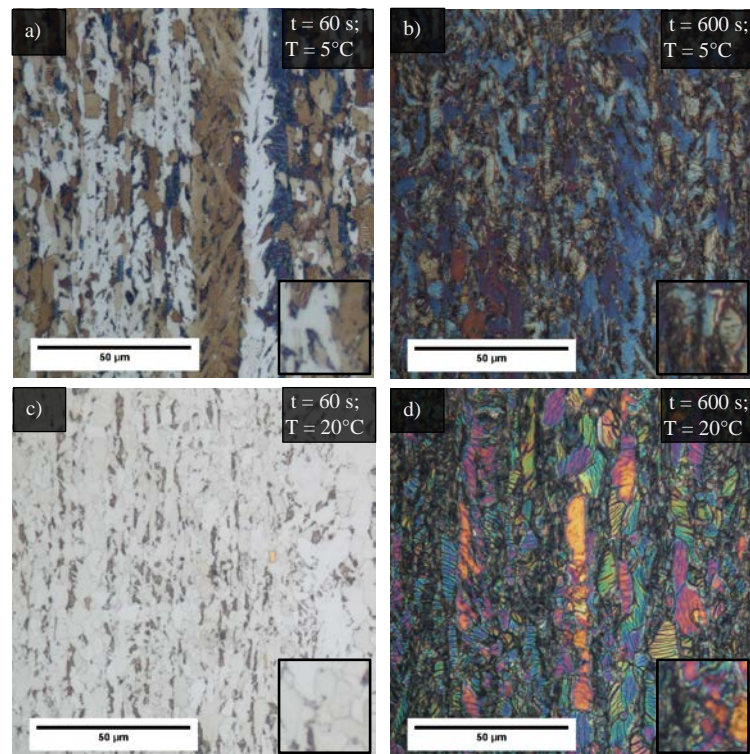


Abbildung 5-36: Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung mit einem zusätzlichen Anteil von 1 % Amidosulfonsäure unter Variation der Ätzzeit bei 5°C bzw. 20°C. Proben geätzt für a) 60 s und b) 600 s bei 5°C; c) 60 s und d) 600 s bei 20°C.

Mit einem höheren Anteil an Amidosulfonsäure wird sowohl der Ätzangriff als auch die Interferenzschichtbildung verstärkt. Bereits bei 60 s und einer Ätztemperatur von 5°C ist ein deutlicher Orientierungseinfluss des Ferrits zu erkennen (Abbildung 5-36 a)). Gleichzeitig sind die Korngrenzen und die zweite Phase jedoch noch nicht stark ausgeprägt. Nach 600 s ist eine deutliche Überätzung erkennbar (Abbildung 5-36 b)) und eine Gefügecharakterisierung ist unmöglich. Im Gegensatz zur Ätzung bei 5°C ist bei 20°C nach 60 s ähnlich der Ergebnisse aus Abbildung 5-35 zunächst nur eine Kontrastierung der Zementit-Agglomerationen und Korngrenzen ersichtlich. Der Orientierungseinfluss wird weitestgehend unterdrückt. Nach 600 s ist ebenfalls eine Überätzung eingetreten (Abbildung 5-36 d)), was sich auch in der rissigen Interferenzschicht äußert.

5.4.3 Diskussion der Ergebnisse

Für ein besseres Verständnis der Mechanismen des Farbätzens nach Beraha wurde zunächst mittels des in situ Aufbaus eine korrelative Mikroskopie-Studie durchgeführt. Limi, FIB, REM und EBSD wurden angewendet, um einen besseren Einblick in die Schichtbildung beim Farbätzen zu erhalten.

Zu Beginn des Ätzprozesses wird der Unterschied zwischen der Matrix und der zweiten Phase deutlich. Die beiden Phasen unterscheiden sich durch unterschiedliche Helligkeitskontraste, jedoch noch nicht durch eine Farbentwicklung. Der Kontrastunterschied ist auf die unterschiedliche Oberflächenrauheit der beiden Phasen zurückzuführen. Während Ferrit sehr gleichmäßig angegriffen und entfernt wird, wird die zweite Phase, die aus Zementit-Agglomerationen besteht, sehr unregelmäßig angegriffen. Nur der Ferrit zwischen den Zementitnadeln wird entfernt, während die Zementitpartikel selbst nicht angegriffen werden und somit an der Oberfläche verbleiben. Durch diesen Höhenunterschied wird das Licht in diesen Bereichen stark gestreut, was zu einem dunkleren Erscheinungsbild der Phase im Mikroskop führt. Daher kann in diesem frühen Stadium die "Farbätzung nach Beraha" als Strukturätzung angesehen werden. Im Gegensatz zu herkömmlichen Strukturätzlösungen wie Nital wird jedoch nur der Kontrast zwischen Ferrit und der zweiten Phase sichtbar. Die Korngrenzen zwischen einzelnen Ferritkörnern werden kaum angegriffen und sind daher im Lichtmikroskop lediglich sehr schwach sichtbar.

Mit zunehmender Ätzzeit wird eine Eisensulfid-Oxidschicht auf den Ferritkörnern abgeschieden. Diese Schicht ist nach [70] für die Farbgebung verantwortlich. Die Reihenfolge der mit zunehmender Ätzdauer der Beraha-Ätzung beobachteten Farben, d. h. zunehmende Schichtdicke des abgeschiedenen Films, stimmt mit den Ergebnissen von Evans ([116]) überein, der die auf verschiedenen Metallen mit unterschiedlichen Oberflächenschichten auftretenden Farben untersuchte. Zu Beginn der Ätzung ist die Schichtdicke zu gering, um Interferenz im sichtbaren Wellenlängenbereich zu ermöglichen. Lediglich Wellenlängen im UV-Bereich werden ausgelöscht. Dadurch bleibt die Probenoberfläche farblos. Mit zunehmender Schichtdicke wird der Bereich destruktiver Interferenz für das sichtbare (blaue) Lichtspektrum erreicht. Als Folge davon ist zunächst Gelb als Komplementärfarbe von Blau zu sehen. Der Bereich der destruktiven Interferenz durchzieht das gesamte Spektrum von Blau über Grün, bis hin zu Gelb und schließlich Rot. Entsprechend verschwindet die destruktiv

5. Gefügekontrastierung

interferierende Wellenlänge im IR-Bereich. Für das menschliche Auge erscheint die Schicht in gelben, dann rötlichen und schließlich blauen Tönen. Grün ist nicht sichtbar, was auch mit [116] übereinstimmt. Die Farbfolge ist die gleiche wie bei der ersten Ordnung, nur dass alle Farben einschließlich Grün im Film erscheinen. Gahn und Jeglitsch ([70]) haben gezeigt, dass vor allem Farben erster Ordnung gut zu verarbeiten sind, da sie die brillantesten Farben sind. Im Gegensatz zu diesen Ergebnissen konnte in der vorliegenden Arbeit gezeigt werden, dass Farben höherer Ordnung heller und intensiver erscheinen als Farben erster Ordnung.

In Abbildung 5-37 sind drei Ferrit-Körner dargestellt, die drei unterschiedliche Orientierungen in Bezug auf die Oberfläche aufweisen. Für diese drei Körner wurden Aufnahmen aus dem Video des *in situ* Experiments (entsprechend Abbildung 5-26) zu jeweils den Zeiten entnommen, bei denen ein Übergang der Interferenzordnung auftrat. Das Kriterium zur Unterscheidung der Interferenzordnungen war die Farbänderung des Korns durch das Spektrum, bis wieder eine gelbe Farbe angenommen wurde. Die erste Ordnung konnte eindeutig identifiziert werden, da während des *in situ* Experiments in diesem Zeitraum keine grüne Farbe festgestellt werden konnte.

5. Gefügekontrastierung

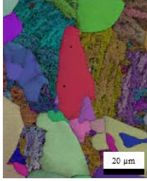





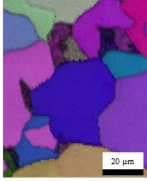





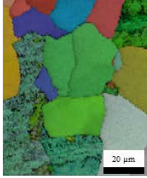





EBSD	1. Ordnung	2. Ordnung	3. Ordnung	4. Ordnung	5. Ordnung
(100) 	3,5 min 	9,5 min 	18 min 	26,5 min 	35 min 
(111) 	3 min 	9 min 	17 min 	26 min 	33 min 
(101) 	2 min 	7 min 	13 min 	19 min 	25 min 

Abbildung 5-37: Aufnahmen ausgewählter Körner gemäß Abbildung 5-26 zur Darstellung der Entwicklung der Interferenzschicht; in der ersten Spalte werden die von EBSD (IQ überlagert mit IPF) ermittelten Orientierungen ausgewählter Körner gezeigt; jede Zeile zeigt ein Korn mit einer der drei Hauptorientierungen; in den Spalten rechts neben den EBSD-Karten wird die Zeit und eine Aufnahme dieser Körner mit der zugehörigen Interferenzordnung aufgezeigt.¹⁰

Die kristallographische Orientierung der Körner spielt eine wichtige Rolle für die Färbung während der Farbätzung. Abbildung 5-29 verdeutlicht, dass unterschiedlich orientierte Körner unterschiedlich gefärbt sind und dass Körner mit der gleichen Orientierung die gleiche Farbe haben. Die Wahrscheinlichkeit, dass zwei Körner mit unterschiedlichen Ausrichtungen die gleiche Farbe haben, aber aus unterschiedlichen Interferenzordnungen stammen, kann vernachlässigt werden, da es selbst bei den drei gezeigten Orientierungen, die die Grenzen des möglichen Schichtdickenspektrums definieren, (Abbildung 5-37) keine zeitliche Überschneidung der verschiedenen Ordnungen gibt. Durch die Betrachtung der farbgeätzten Oberfläche kann somit ein Eindruck über eine mögliche Vorzugsorientierung auf der Probenoberfläche gewonnen werden. Im Vergleich zur LePera-Ätzung sind die Farben jedoch deutlich stärker und intensiver ausgeprägt. Auch der Unterschied zwischen den einzelnen Orientierungen kommt deutlicher zum Vorschein.

¹⁰ Modifiziert nach [53], © ASTM International.

5. Gefügekontrastierung

Weiterführende Untersuchungen, z. B. mittels Kelvin-Probe-Rasterkraftmikroskopie ([117], [118]) könnten helfen, die unterschiedlichen Potentialdifferenzen der verschiedenen Phasen und Orientierungen vor dem Ätzen genau zu bestimmen und somit vorherzusagen, welche Gefügebestandteile angegriffen werden. Weiterhin könnten somit die gefundenen Ergebnisse verifiziert werden.

Mithilfe von FIB-Querschnitten konnte nachgewiesen werden, dass die Schichtbildung stark orientierungsabhängig ist. (100)-orientierte Körner zeigen die dünnste Schicht, (101)-orientierte Körner die dickste Schicht, wobei die Schichtdicke von (111)-orientierten Körnern dazwischen rangiert. Diese Reihenfolge gilt auch für die Abtragsrate des Ferrits. (100)-orientierte Körner werden am schwächsten angegriffen, (101)-Orientierungen am stärksten, wobei der Unterschied zwischen dem Angriff auf (101)- und (111)-orientierte Körner sehr gering ist. Dies ist in Übereinstimmung mit dem Ätzangriff nach LePera. Im Verhältnis zur Matrix ist der Angriff auf die zweite Phase (Zementit-Agglomerationen) wesentlich geringer. Insgesamt kann ein leichter Anstieg der Schichtdicke vom Korninneren zu den Korngrenzen auf allen Körnern festgestellt werden, was durch ein unterschiedliches Potential an den Korngrenzen erklärt werden kann.

Die in der vorliegenden Arbeit präsentierten Ergebnisse zum Orientierungseinfluss des Ferrits stehen im Widerspruch zu Szabo et al. ([88], [119]) und Bonyar ([120]), wonach behauptet wurde, dass (100)-orientierte Körner nicht nur die dichteste Interferenzschicht aufweisen, sondern auch den größten Abtrag erfahren. Diese Aussagen beruhen in diesen Veröffentlichungen jedoch lediglich auf REM-Annahmen der Oberfläche und nicht auf tatsächlichen Messungen an Querschnitten.

Eine Porosität der Interferenzschicht, wie sie bei der LePera-Ätzung beobachtet wurde, konnte bei der Beraha-Ätzung nicht festgestellt werden.

Die durchgeführten Untersuchungen zeigen eindeutig, dass es sich entgegen der Aussage von Füreder ([21]) bei der Ätzung nach Beraha um eine anodische Farbätzung handelt, da der Zementit nicht angegriffen wird und sich eine Interferenzschicht auf dem Ferrit bildet.

Die Schicht selbst besteht aus drei Teilschichten. Die erste und die letzte Schicht innerhalb der Interferenzschicht sind nicht orientierungsempfindlich, lediglich die zweite hängt stark von der Orientierung des darunterliegenden Ferritkorns ab. Die erste Schicht ist sehr dünn und kompakt

5. Gefügekontrastierung

und zeigt eine deutliche Anreicherung von Chrom. Die zweite und gleichzeitig farbbestimmende Schicht besteht aus kleinen schwammartigen Strukturen. Diese Strukturen sind bei der (100)-Orientierung kompakter und werden bei der (111)- und (101)-Orientierung poröser, wobei das (101)-orientierte Korn die poröseste Schicht aufweist.

Generell werden Metabisulfite in der Industrie häufig zur Reduzierung von Restsauerstoff aus Wasser verwendet ([121]). Unter anaeroben Bedingungen kann es demnach zu einer Reduzierung zu Sulfid (S^{2-}) kommen. Das Eisen wird während der Ätzung somit oxidiert, während das Metabisulfit (S_2O_5) reduziert wird und sich eine Deckschicht ausbilden kann.

Die chemische Zusammensetzung der Interferenzschicht besteht im Wesentlichen aus Schwefel, Sauerstoff, Eisen, und Chrom. Kalium konnte nur punktuell nachgewiesen werden.

Somit ist die chemische Zusammensetzung der Interferenzschicht ähnlich der Schicht nach der LePera-Ätzung. Auch Bandoh ([84]) hat mittels Augerelektronenspektroskopie an Farbätzungen nachweisen können, dass die Interferenzschichten aus Eisen, Sauerstoff und Schwefel bestehen. Er konnte dabei auch feststellen, dass der Anteil der Eisenkonzentration zur Oberfläche hin abnimmt, während der Sauerstoff- und Schwefelgehalt leicht zunimmt. Dieser Trend konnte in der vorliegenden Arbeit bestätigt werden. Eine mögliche Ursache liegt in der zunehmend erschwerten Migration der Eisenionen durch die anwachsende Interferenzschicht.

Weiterführende Untersuchungen mit einem Nano-Sekundärionen-Massenspektrometer in Kombination mit einer Tiefenmessung scheinen zur detaillierteren Betrachtung des Schichtaufbaus sehr vielversprechend, da diese Methode wesentlich sensitiver für leichte Elemente ist.

Versuche, in denen die gleiche Probe mehrmals nacheinander geätzt wurde, zeigen, dass, entgegen der in der Metallographie verbreiteten Meinung und der Originalarbeit von Beraha ([75]), eine Mehrfachätzung nicht zu dem gleichen Ergebnis führt wie eine Ätzung ohne Unterbrechung. Es kann weder die Brillanz erreicht werden, noch eine reproduzierbare Kontrastierung, da es offensichtlich zu einem stets neuen Angriff (vermutlich durch Oxidation) der Interferenzschicht kommt. In einem Versuch wurde dazu die normalisierte Probe wiederholt (insgesamt sechs Mal) aus der Ätzlösung entnommen und getrocknet. Insgesamt wurde eine Netto-Ätzzeit von 20 min gewählt. Die entstandene Schicht wurde schließlich nach einer TEM-Zielpräparation im STEM untersucht (Abbildung 5-38).

5. Gefügekontrastierung

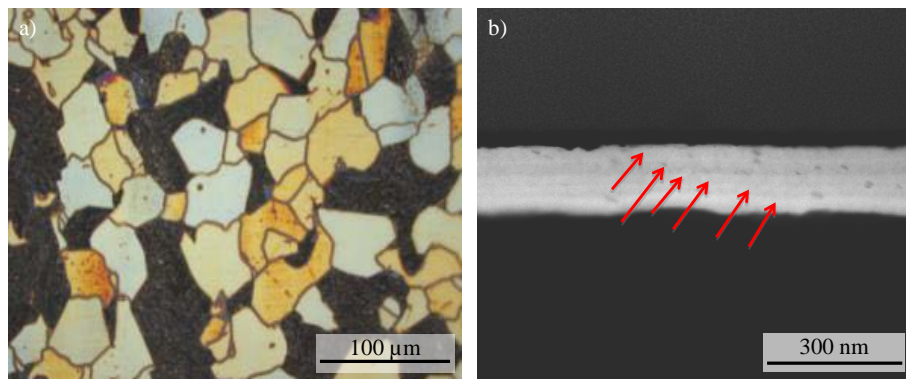


Abbildung 5-38: a) Lini-Aufnahme der normalisierten Probe nach einer sechsfachen Farbätzung nach Beraha (jeweils unterbrochen und getrocknet), b) Nach einer FIB-Zielpräparation zeigt die STEM-Hellfeld-Abbildung sechs verschiedene Schichten, die den sechs verschiedenen Ätzschritten zugeordnet werden können.

Die Schicht erscheint generell dichter als nach den Ätzungen ohne Unterbrechungen, jedoch auch deutlich dünner (je nach Orientierung 80 - 130 nm im Vergleich zu 120 - 240 nm und kürzerer Zeit). Bei genauer Betrachtung sind Grenzflächen zwischen den Schichten zu erkennen (rote Pfeile in Abbildung 5-38 b)), die den jeweiligen Ätzschritten zugeordnet werden können.

Basierend auf diesen Erkenntnissen und den Vorversuchen wurde schließlich eine Parameterstudie mittels systematischem Ätaufbau durchgeführt. Der deutliche Einfluss der chemischen Zusammensetzung der zu kontrastierenden Proben sowie die darin auftretenden Gefügebestandteile sind in allen Testserien sehr deutlich. War der grundsätzliche Ablauf der Ätzung gleich, so lag der Unterschied insbesondere in der unterschiedlichen Darstellung der ferritischen Matrix. Während bei der in situ Messung der normalisierten Probe die Färbung sehr deutlich und ausgeprägt war, wurden bei gleicher Ätzlösung für die bainitischen Proben überwiegend Brauntöne oder leichte Farbschattierungen beobachtet. Neben einem möglichen Einfluss der Größe der Gefügebestandteile ist der deutlichste Unterschied in unterschiedlichen Potentialen innerhalb der jeweiligen Proben zu suchen. Die bainitischen Proben weisen zudem durch ihre Herstellungsrouten eine deutlich höhere Versetzungsdichte auf, die nach [122] auch einen wesentlichen Einfluss auf das Potential haben. Im Gegensatz dazu zeigt die normalisierte Probe eine deutlich geringe Versetzungsdichte im Ferrit auf.

Durch die vielversprechenden Ergebnisse der in situ Ätzung bei kurzen Zeiten, in denen der Charakter der Beraha-Ätzung der einer Struktur- und nicht einer Farbätzung entspricht, wurde zunächst der Einfluss der Temperatur bei einer Ätzzeit von 60 s untersucht. Bei Temperaturen bis 30°C war es somit möglich, die Bereiche zweiter Phase deutlich zu kontrastieren.

5. Gefügekontrastierung

Korngrenzen werden unter diesen Umständen nur sehr schwach angegriffen, was insbesondere hinsichtlich Phasenseparierung mit klassischen Schwellwert-Segmentierungen interessant ist, da die relativen Mengen einer bestimmten Phase in einem Dualphasenstahl ohne Beeinträchtigung der Korngrenzen leicht bestimmt werden können. Beispielhaft ist dies in Abbildung 5-39 aufgezeigt.

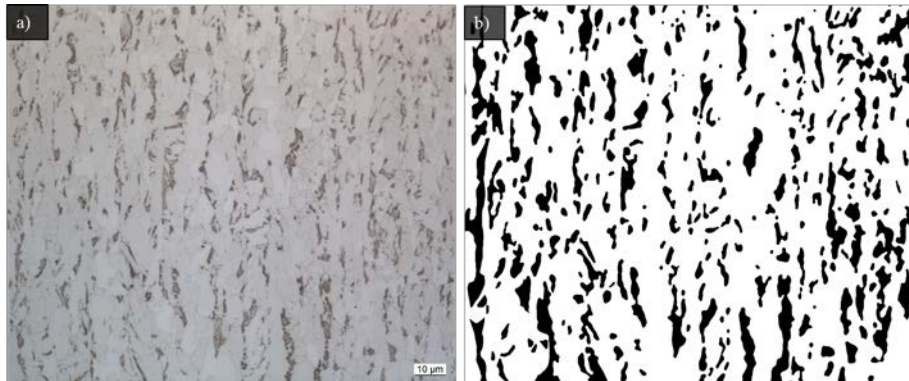


Abbildung 5-39: Segmentierung einer Lini-Aufnahme der bainitischen Probe nach einer 60-sekündigen Berah-Ätzung (a). b) Ergebnis der Schwellwertsegmentierung (schwarz: Bereiche zweiter Phase, weiß: ferritische Matrix).

Das Segmentierungsergebnis zeigt, dass die zweite Phase sehr gut über eine Schwellwertsegmentierung erfasst werden kann. Im vorliegenden Fall wird die zweite Phase dennoch leicht überschätzt, da ein morphologisches Schließen angewendet wurde, um die Bereiche der zweiten Phase als geschlossene Bereiche vorliegen zu haben.

Ab 20°C ist ein leichter Orientierungseinfluss erkennbar, der sich allerdings nur in leichten, bräunlichen Schattierungen auf dem Ferrit äußert. Dieser Orientierungseinfluss wird ab 40°C deutlicher, sodass auch bereits Farbgradienten erkennbar sind. Die Zementit-Agglomerationen sind als schwarze Bereiche noch immer erkennbar. Wird die Temperatur weiter erhöht, kommt es bereits nach kurzen Zeiten zu einer Überätzung. Die ferritische Matrix weist eine deutliche Interferenzschicht auf, wobei die Farben nicht intensiv erscheinen. Die Bereiche zweiter Phase sind nur noch schwach erkennbar.

Mit dem Ziel einer ausschließlichen Kontrastierung der Bereiche zweiter Phase ist daher eine Temperatur von 20°C oder weniger für niedriglegierte, bainitische Proben empfehlenswert, wobei je geringer die Temperatur, desto länger die Ätzzeiten, sodass eine bessere Kontrollierbarkeit der Ätzung gegeben ist.

5. Gefügekontrastierung

Mittels REM kann darüber hinaus bei diesen Parametern eine genaue Betrachtung der Substruktur erfolgen, da die Phasenbestandteile sehr detailliert dargestellt werden. Über die geeignete Wahl der REM-Parameter ist außerdem auch eine deutliche Unterscheidung zu den MAs möglich (siehe auch Abbildung 5-33). Für sämtliche weiterführenden Schritte und Analysen (Kapitel 6.1 sowie Kapitel 7) ist dieses Ergebnis von herausragender Bedeutung.

Im direkten Vergleich zwischen unterschiedlichen mikroskopischen Kontrastierungsverfahren wird der Nutzen einer solchen Ätzung abermals deutlich. In Abbildung 5-40 sind von der gleichen Stelle EBSD-, Limi- und REM Aufnahmen dargestellt.

Sowohl die Darstellung im Limi (Abbildung 5-40 b)) als auch im REM (Abbildung 5-40 c)) zeigen die bainitischen Bereiche sehr deutlich. Die Substruktur ist allerdings nur im REM möglich. Die MAs und die Bereiche der Zementit-Agglomerationen sind mittels EBSD (Abbildung 5-40 a)) nur indirekt (Bereiche niedriger Image Quality) erkennbar. Eine vollständige Gefügebeschreibung ist daher nur aus der Kombination verschiedener Verfahren möglich.

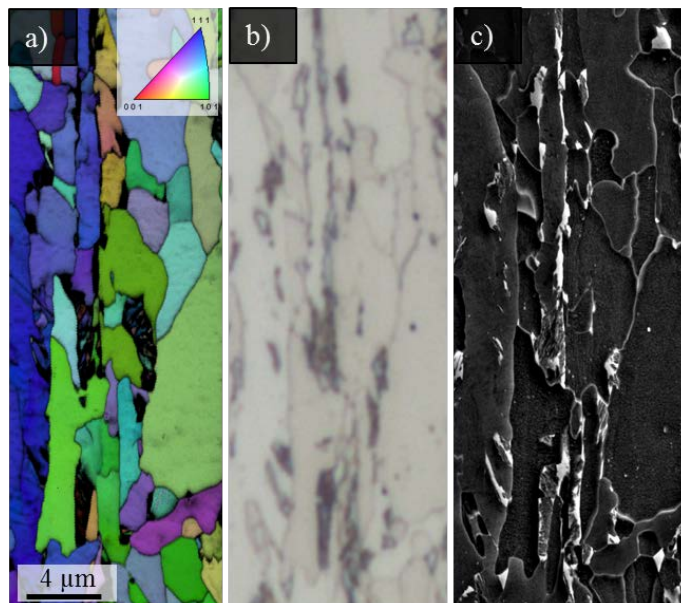


Abbildung 5-40: Korrelative Darstellung der Beraha Ätzung bei 20°C (Ätzzeit 60 s). a) EBSD-Darstellungen (aufgenommen vor der Ätzung) der Orientierungsverteilung (IPF) überlagert mit der Image Quality. Die Bereiche der zweiten Phase können nicht aufgelöst werden und sind als dunkle Bereiche erkennbar. b) Limi-Aufnahme nach der Ätzung. Die Bereiche zweiter Phase sind dunkel dargestellt. Vereinzelt sind auch kleine, sehr helle Bereiche erkennbar, die auf Restaustenit hindeuten. c) REM-Aufnahme der gleichen Position (bei 20 kV, 10 nA, SE-Kontrast). Die Substruktur ist deutlich erkennbar. Insbesondere die MAs erscheinen deutlich erhaben und strahlend weiß.

5. Gefügekontrastierung

Um auch die Korngrenzen nach einer Beraha-Ätzung für weitergehende Untersuchungen zugänglich zu machen, eignet sich eine nachträgliche Nital-Ätzung (2 ml Salpetersäure, 97 ml Ethanol, 1 ml vollentsalztes Wasser, anzuwenden auf die bereits bestehende Beraha-geätzte Probe). Korrelativ eingesetzt kann die Segmentierung der zweiten Phase als Maske für die Rekonstruktion der Korngrenzen (bestehend aus euklidischer Distanztransformation und anschließender Wasserscheide) genutzt werden (Abbildung 5-41).



Abbildung 5-41: Kombination aus Beraha und Nital-Ätzung. a) Lini-Aufnahme nach der Beraha-Ätzung. Die Bereiche zweiter Phase sind deutlich erkennbar. b) Lini-Aufnahme der gleichen Stelle nach einer zusätzlichen Nital-Ätzung (35 s). Die Korngrenzen sind deutlich erkennbar, die zweite Phase erscheint dunkel aber deutlich größer als nach der Beraha-Ätzung. c) Ergebnis der Schwellwertsegmentierung zur Rekonstruktion der Korngrenzen.

Um die Ätzung nach Beraha bestmöglich zu kontrollieren, wurde darüber hinaus eine Versuchsreihe bei 5°C durchgeführt. Während es bei dieser Versuchsreihe sehr gut möglich war, die Bereiche zweiter Phase deutlich herauszuarbeiten, konnte keine signifikante Ausbildung eines Interferenzfilms festgestellt werden. Im Vergleich zu anderen Testreihen war es hingegen möglich, die MAs durch ihre weiße Erscheinung nach längeren Ätzzeiten bereits bei kleinen Vergrößerungen zu erkennen.

Beraha hat je nach chemischer Zusammensetzung der zu kontrastierenden Stähle auch weitere Ätzrezepturen basierend auf der Lösung mit Kaliummetabisulfit vorgestellt ([64], [75], [76], [112]). Nach Voruntersuchungen, bei denen Ammoniumbifluorid und Salzsäure zu einem deutlich zu starken Angriff führten und es teilweise gar zu Lochfraßkorrosion kam, wurde als Alternative die Hinzugabe von Amidosulfonsäure gewählt. Die Amidosulfonsäure (Säureamid der Schwefelsäure) führt zu einer deutlich schnelleren und ausgeprägten Kontrastierung der ferritischen Matrix. Dies kann sowohl durch einen stärkeren Ätzangriff als auch durch die Ausbildung der Interferenzschicht begründet werden. Auch die Korngrenzen werden deutlich dargestellt.

5. Gefügekontrastierung

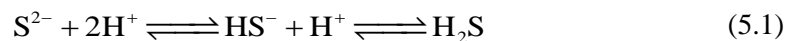
Demnach sollte Amidosulfonsäure zur Ätzlösung hinzugegeben werden, um eine bessere Darstellung der Matrix und gegebenenfalls von Texturen oder Seigerungen zu erzielen. Für eine weitergehende Charakterisierung der zweiten Phase im Limi oder REM ist eine solche Ätzlösung allerdings nicht empfehlenswert.

Zum besseren Verständnis der ablaufenden Reaktionen wurde der pH-Wert bei allen Ätzungen bestimmt. Dabei ist erkennbar, dass der pH-Wert mit der Temperatur leicht zunimmt und vor der Ätzung stets etwas niedriger ist als nach der Ätzung (Tabelle 5-1).

Tabelle 5-1: Auftragung des pH-Wertes vor und nach der Ätzung bei definierten Temperaturen. Ein Anstieg mit der Temperatur ist gut erkennbar. Generell liegt der pH-Wert nach der Ätzung auch stets höher in Bezug auf den Startpunkt.

Versuchsreihe	pH (vorher)	pH (nachher)
5°C	3,68	4,25
10°C	3,84	4,50
20°C	4,21	5,08
40°C	4,48	5,06
60°C	4,86	5,21

Eine mögliche Ursache für die Zunahme des pH-Wertes mit steigender Temperatur liegt im H₂S-Gleichgewicht begründet ([123]). Demnach gilt für das aus dem Disulfit (S₂O₅) entstehenden Schwefelion (S²⁻) folgendes Gleichgewicht in der wässrigen Lösung:



Die für die Reaktion notwendigen Wasserstoffionen stammen aus der Dissoziation des Wassers:



Mit steigender Temperatur verschiebt sich das Gleichgewicht in (5.2) nach rechts und es kann mehr Schwefelwasserstoff (H₂S) entstehen. Gleichzeitig nimmt die Konzentration an OH⁻ zu, was wiederum den steigenden pH-Wert erklären kann. Die exakten, während der Berah-Ätzung ablaufenden, Reaktionen und die somit erhöhten pH-Werte nach der jeweiligen Ätzung können nicht final geklärt werden, da es auch in der Literatur widersprüchliche Aussagen gibt ([115], [121]). Dies sollte Ziel weiterführender Arbeiten sein.

5. Gefügekontrastierung

Der pH-Wert kann darüber hinaus noch deutlicher über die Zugabe von Amidosulfonsäure gesteuert werden (Tabelle 5-2).

Tabelle 5-2: Auftragung des pH-Wertes vor und nach der Ätzung bei unterschiedlichen Zusammensetzungen der Ätzlösung. Demnach erniedrigt die Zugabe von Amidosulfonsäure den pH-Wert deutlich.

Versuchsreihe	pH (vorher)	pH (nachher)
5°C	3,68	4,25
5°C/0,5 % Amido	2,78	3,11
5°C/1 % Amido	2,05	2,63
20°C	4,21	5,08
20°C/0,5 % Amido	2,54	2,92
20°C/1 % Amido	2,27	2,35

Durch die Hinzugabe von Amidosulfonsäure wird der pH-Wert deutlich reduziert. Auch in dieser Konstellation zeigt sich, dass eine Temperaturerhöhung zu einer Erhöhung des pH-Wertes führt. Mit Reduzierung des pH-Wertes kann nach [115] mehr Schwefel aus der Kaliummetabisulfidlösung zur Verfügung gestellt werden, was zu einer schnelleren Schichtbildung führen könnte. Bei niedrigerem pH-Wert gehen zudem mehr Eisenionen in Lösung, sodass auch dieser Umstand eine deutlichere Schichtausbildung begünstigt. Dies passt zu den Ergebnissen der LePera-Ätzung, bei denen ein pH-Wert von 1,82 vorlag und somit eine deutlich stärkere Oxidation der Eisenionen zu erwarten ist, was sich ebenfalls in einer deutlicheren Ausprägung der Interferenzschicht bemerkbar machte.

Am Beispiel der Leitfähigkeit kann die erhöhte Reaktivität bei zunehmender Temperatur bzw. mit Hinzugabe von Amidosulfonsäure ebenfalls nachvollzogen werden (Abbildung 5-42).

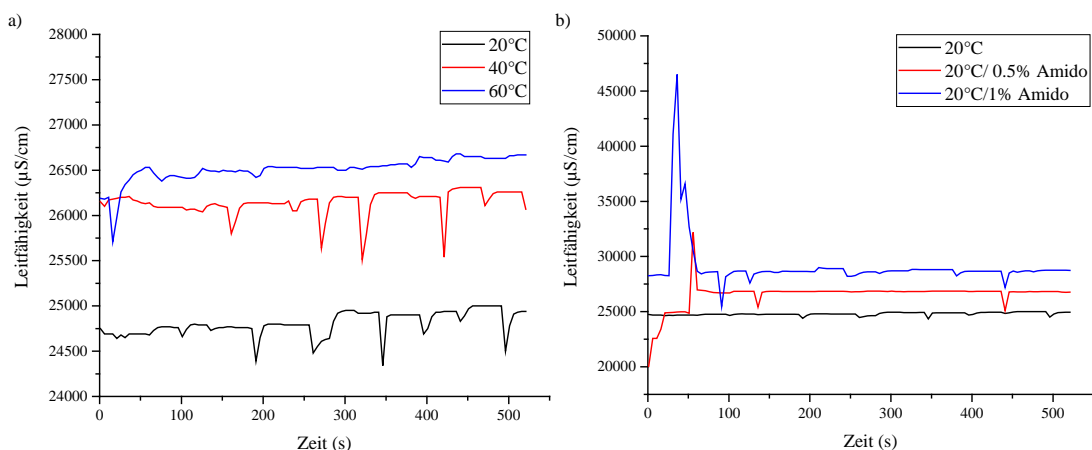


Abbildung 5-42: a) Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Temperatur während der Ätzung. b) Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Zusammensetzung während der Ätzung.

5. Gefügekontrastierung

Wie Abbildung 5-42 a) zu entnehmen ist, bewegt sich die Leitfähigkeit während einer Ätzung auf einem ähnlichen Niveau. Generell ist die Leitfähigkeit gemäß [69] über den Diffusionskoeffizienten und die Viskosität mit der Temperatur verbunden. Durch die zunehmende Reaktivität mit steigender Temperatur gehen außerdem mehr Ionen aus der Probe in die Lösung, was ebenfalls zu einem Anstieg der Leitfähigkeit führt. Der gleiche Effekt ist auch bei Zugabe der Amidosulfonsäure erkennbar (Abbildung 5-42 b)). Dies lässt sich auch direkt in den Ätzresultaten nachvollziehen (stärkere Kontrastierung bzw. Interferenzschichtausbildung). Im Vergleich zur LePera-Ätzung ist eine deutlich höhere Leitfähigkeit gegeben. Dies kann auf die höhere Konzentration an Disulfiten bei der Beraha-Ätzung (3 g Kaliummetabisulfit auf 100 ml Wasser im Vergleich zu 0,5 g Natriummetabisulfit auf 50 ml vollentsalztes Wasser und 50 ml Pikral-Lösung) zurückgeführt werden.

Eine anfängliche Temperaturerhöhung bei der Ätzung mit der Beraha-Lösung im Vergleich zur LePera-Ätzung kann nicht beobachtet werden. Demzufolge muss eine Probe nicht zwangsläufig unmittelbar bei Ansätzen der Beraha-Lösung geätzt werden.

Somit ist es durch eine angepasste Temperatur und Ätzlösung möglich, den Ätzangriff des Eisens bzw. die Phasenkontrastierung zu kontrollieren. Darüber hinaus kann diese Information genutzt werden, um gezielt nach weiteren Ätzrezepten bzw. infrage kommenden Säuren zu suchen.

5.4.4 Fazit Gefügekontrastierung mittels Beraha-Ätzung

Da Farbätzungen ein großes Potenzial zur Gefügeanalyse haben, wurden in situ Ätzversuche mit einer Beraha-Ätzung durchgeführt, um den Ätzprozess besser zu verstehen. Mit dem entwickelten in situ Aufbau konnte der zeitliche Ablauf der Beraha-Ätzung genau verfolgt werden. Es konnte gezeigt werden, dass zu Beginn der Ätzung der Kontrast der zweiten Phase dominiert. In diesem Stadium werden die Korngrenzen nahezu überhaupt nicht angegriffen. Dieser Zustand ist insbesondere für eine Phasenseparierung interessant. REM-Aufnahmen von Beraha-geätzten Proben nach solch kurzen Zeiten bieten darüber hinaus beste Voraussetzungen zur Charakterisierung der Substruktur. Nach etwa einer Minute beginnt die Kontrastierung der Matrix und erste leichte Einfärbungen können beobachtet werden. Im Laufe der Zeit werden die Farben kräftiger und die Farbvielfalt der Matrix nimmt zu. Die Interferenzschichten der dritten Ordnung sind am kontrastreichsten, erscheinen deutlich kräftiger und sind somit für die

5. Gefügekontrastierung

weitere Analyse von Vorteil. Die Farbentwicklung auf den Ferritkörnern ist orientierungsempfindlich und es konnte durch den Abgleich mit EBSD-Messungen gezeigt werden, dass ähnlich orientierte Körner auch annähernd gleiche Farben haben. Die Orientierung der benachbarten Körner scheint keinen Einfluss auf die Schichtbildung zu haben. Mittels korrelativer Mikroskopie konnte darüber hinaus erstmalig auch die Interferenzschicht hochaufgelöst dargestellt werden. Mehrfachätzungen sind generell zu vermeiden, da sie deutlich schlechtere Kontraste als einmalige Ätzungen aufweisen.

Die absolute Notwendigkeit, derartige Ätzungen anzuwenden, wird durch den Umstand verstärkt, dass insbesondere die feinen Zementit-Agglomerationen (abgesehen von hochaufgelösten Analyseverfahren wie TEM) für eine quantitative Gefügeanalyse nur über einen derartigen Ansatz dargestellt werden können.

Die gewonnenen Erkenntnisse führen zu einem besseren Verständnis der Beraha-Ätzung im Allgemeinen und somit zu einer gezielten Anwendung der Ätzung und damit zur Verbesserung der Ätzergebnisse.

5.5 Fazit Gefügekontrastierung

Durch die exakte Steuerung von Ätzungen durch die entwickelte Methodik ist es – entgegen der allgemeinen Meinung – möglich, Farbätzungen kontrolliert durchzuführen und somit ihr enormes Potenzial in der Metallographie auszuschöpfen. Mit diesem Ansatz können sämtliche Arten von Ätzungen systematisch eingesetzt werden, um Gefüge reproduzierbar zu kontrastieren.

In der vorliegenden Arbeit wurden neben der methodischen Weiterentwicklung zur Reproduzierbarkeit von Ätzverfahren im Allgemeinen zwei Ätzungen im Speziellen untersucht: Die Ätzung nach LePera und nach Beraha. Der wesentliche Vorteil von Farbätzungen im Allgemeinen liegt in der besseren Kontrastierung von (Stahl-)Gefügen durch die selektive, phasenspezifische Einfärbung im Vergleich zu reinen Grautönen, wie sie nach einer Strukturätzung (z. B. einer standardmäßig eingesetzten Nital-Ätzung) vorliegen ([83]). Die untersuchten Ätzungen ermöglichen mit der orientierungsabhängigen Färbung der Matrix erste Hinweise auf Texturen oder Vorzugsorientierungen oder können zur Visualisierung von Seigerungen genutzt werden. Außerdem ermöglichen diese Ätzungen bei geeigneter Parameterwahl selbst mit klassischen Schwellwertverfahren eine sehr gute Phasenseparierung und Korngrenzenrekonstruktion im Vergleich zur Nital-Ätzung. Auch bei der Beobachtung im REM ergeben sich durch die Verwendung der Beraha-Ätzung wesentliche Vorteile im direkten Vergleich zu anderen Ätzungen. Die Substruktur ist bestens zugänglich und kann zur Phasenidentifizierung genutzt werden.

Je nach Zielstellung der Kontrastierung und der zur Verfügung stehenden Mikroskopie ist es somit möglich, basierend auf den vorgestellten Parameterstudien, eine bestmögliche Gefügecharakterisierung zu erreichen. Die Ergebnisse ermöglichen darüber hinaus, eine weiterführende Klassifizierung, wie sie in Kapitel 7 vorgestellt werden.

Abbildung 5-43 soll je nach Kontrastierungsziel und gewählter Methodik eine allgemeine Empfehlung für die Auswahl einer passenden Ätzung von niedriglegierten Stählen geben.

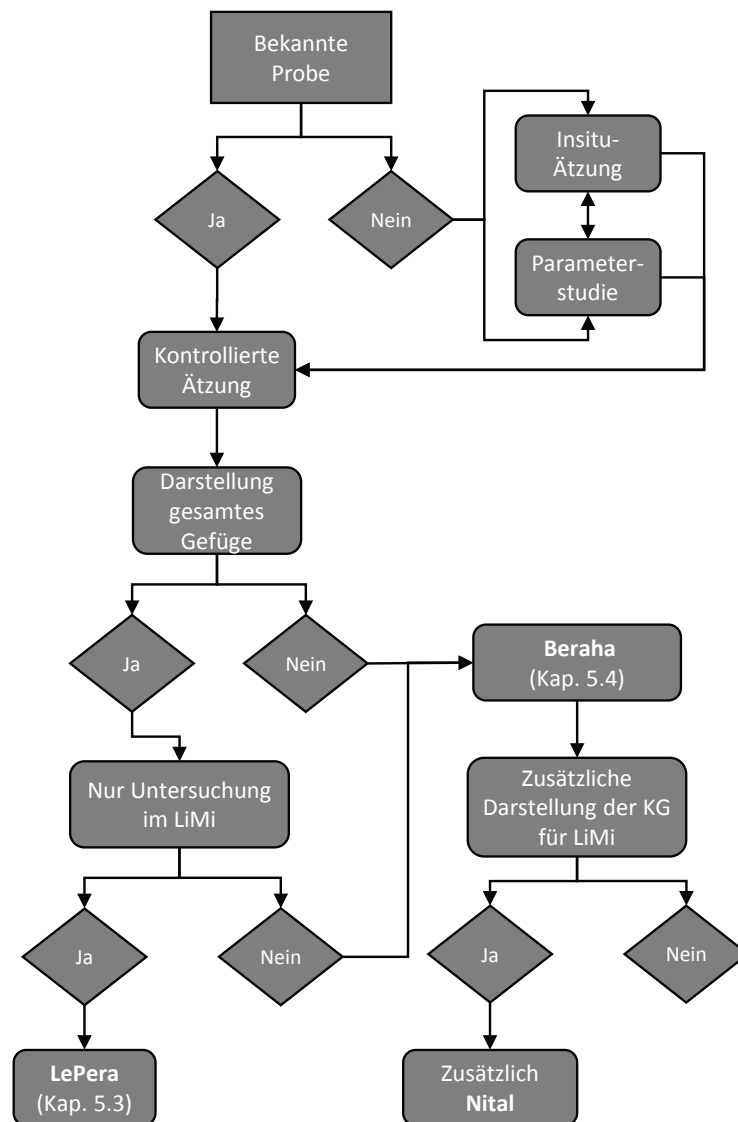


Abbildung 5-43: Flussdiagramm zur Auswahl der passenden Ätzung für niedriglegierte Stähle in Abhängigkeit von der gewählten Charakterisierung und dem Ziel der Kontrastierung.

Während die LePera-Ätzung für eine lichtmikroskopische Untersuchung, wie sie zumeist in der Qualitätssicherung und Abnahme angewendet wird, sehr gute Ergebnisse liefert, da sie gleichzeitig die ferritische Matrix und die Bereiche zweiter Phase deutlich darstellt, liegt die Stärke der Beraha-Ätzung in der Darstellung der Substruktur. Ein abschließender Vergleich der beiden Ätzungen zur Darstellung des Anwendungsspektrums für die in der vorliegenden Arbeit verwendeten, niedriglegierten bainitischen Gefüge ist in Abbildung 5-44 dargestellt.

5. Gefügekontrastierung

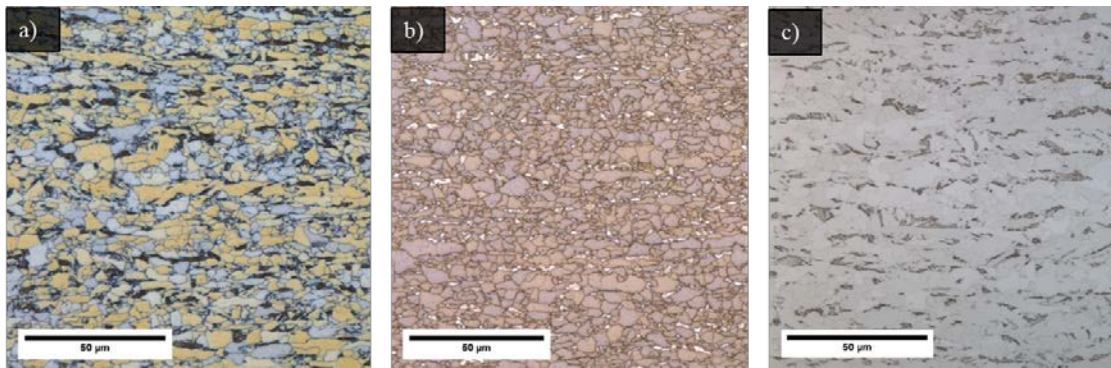


Abbildung 5-44: Gegenüberstellung der untersuchten Ätzungen: a) LePera-Ätzung (5°C, 180 s) zur Gefügedarstellung im Limi. Die Matrix zeigt eine orientierungsabhängige Färbung. Gleichzeitig sind die bainitischen Bereiche in einem sehr dunklen Farbton deutlich von der Matrix und den Korngrenzen trennbar. b) Um die MAs deutlicher darstellen zu können, ist eine Anpassung der Parameter der LePera-Ätzung notwendig (40°C, 40 s). c) Durch eine Beraha Ätzung nach kurzen Zeiten (20°C, 60 s) ist eine ausschließliche Kontrastierung der Bereiche zweiter Phase möglich. Diese Kontrastierung ist zudem bestens für eine Gefügecharakterisierung im REM geeignet.

6 Bildverarbeitung

Durch die in Kapitel 5 vorgestellten Ätzrezepturen ist es möglich, das Gefüge bestmöglich zu kontrastieren. Zur quantitativen Erfassung und objektiven Bewertung des Gefüges und der darin auftretenden Substrukturen müssen die Gefügebestandteile und Phasen im nächsten Schritt mittels Bildanalyse aus den Schliffbildern erfasst bzw. separiert werden. Zur detaillierten Charakterisierung ist zudem eine Extraktion der morphologischen Parameter notwendig ([124]). Mit zunehmender Komplexität der Gefüge können bzw. müssen auch verschiedene Abbildungsverfahren kombiniert werden, um möglichst vielfältige, skalenübergreifende Informationen zur ganzheitlichen Beschreibung des Gefüges zusammenzuführen (siehe z. B. Abbildung 5-40). Neben einer geeigneten Zusammenführung bzw. Überlagerung der Abbildungen, der sog. Bildregistrierung ([125], Kapitel 6.1), ist die Segmentierung besonders wichtig, da in diesem Schritt das Eingangsbild in ein Binärbild umgewandelt wird, welches weiterverarbeitet werden kann (Kapitel 6.2). Auch wenn in der täglichen Praxis im Bereich der Materialwissenschaft diese Segmentierung nach wie vor in den meisten Fällen auf der Basis des Graustufen-Histogramms durchgeführt wird und die meisten kommerziellen Softwarepakete ebenfalls auf diesem Prinzip beruhen, gibt es eine Vielzahl an alternativen Verfahren der Segmentierung, die erhebliche Verbesserungen versprechen.

6.1 Bildregistrierung und Merkmalextraktion

Eine Möglichkeit Gefüge besser bzw. vollständig beschreiben zu können, ist die Kombination von Abbildungen, die mit verschiedenen bildgebenden Verfahren wie REM und Limi aufgenommen wurden (z. B. Abbildung 4-1 bis Abbildung 4-6). Trotz vielfältiger kommerzieller Softwarelösungen lassen sich diese unterschiedlichen Abbildungen nicht ohne einen erheblichen Anteil an manueller Arbeit zusammenführen. Aus diesem Grund wird ein Arbeitsablauf zur Kombination von Gefügaufnahmen verschiedener Bildquellen mittels Bildregistrierung mit dem Open-Source-Tool FiJi ([126]) vorgestellt (Kapitel 6.1.1 und 6.1.2). Zudem wird ein Verfahren zur Extraktion und Analyse von Einzelkörnern hinsichtlich ihrer Substruktur mittels Matlab dargestellt (Kapitel 6.1.3). Die vorgestellten Methoden bilden die Voraussetzung für die spätere Gefügeklassifizierung (Kapitel 7).

Die Ergebnisse wurden in [55] veröffentlicht.

6.1.1 Grundlagen Bildregistrierung

Das Limi ist nach wie vor unverzichtbar für die Beurteilung von Gefügen. In Kombination mit angepassten Kontrastierungen, wie z. B. Farbätzungen (Kapitel 5.3 und Kapitel 5.4), hilft das Limi bei der Unterscheidung verschiedener Bestandteile im Gefüge und bei der Analyse vergleichsweise großer Flächen. Die Auflösungsgrenze der halben Wellenlänge des sichtbaren Lichts reicht jedoch nicht aus, um die feinen Substrukturen bestimmter Phasen – insbesondere der in der vorliegenden Arbeit betrachteten Stähle – darstellen zu können. Aus diesem Grund kommt dem REM, auch im industriellen Umfeld, eine zunehmend wichtigere Aufgabe zur Gefügebeurteilung zu. Insbesondere die hohe Auflösung und die verschiedenen Kontrastmechanismen bieten erweiterte Möglichkeiten zur Gefügeanalyse.

In der täglichen, metallographischen Arbeit, insbesondere in Bezug auf die Gefügequantifizierung, bietet das REM jedoch nicht nur Vorteile. Einerseits erlaubt es die Untersuchung kleinster Gefügemerkmale, andererseits kann die Bildverarbeitung wesentlich komplizierter als bei Limi-Bildern sein, da beispielsweise bei REM-Aufnahmen lediglich Graustufenbilder erzeugt werden und Merkmale wie Korngrenzen oder Topographie innerhalb der Matrixphase im Vergleich zum Limi je nach Vergrößerung und Auflösung deutlich erkennbar sind. Eine anschließende, schwellwertbasierte Segmentierung ist daher mit einer Vielzahl von Filtern und morphologischen Operationen verbunden, die meist das Ergebnis der Quantifizierung signifikant beeinflussen können ([15]).

Um die Vorteile verschiedener Abbildungsverfahren und -kontraste kombinieren zu können, bedarf es einer Bildregistrierung. Darunter wird der Prozess der "Überlagerung von Aufnahmen (zwei oder mehr) desselben Bereichs, die zu unterschiedlichen Zeitpunkten, aus unterschiedlichen Perspektiven und/oder mit unterschiedlichen Sensoren gemacht wurden" ([125]) verstanden. Für jeden korrelativen Ansatz in der Gefügeanalyse ist dies ein unverzichtbarer Schritt, um die Informationen, die auf den verschiedenen Kontrasten basieren, zu sammeln und zu kombinieren. Die größte Herausforderung bei der Verwendung unterschiedlicher Bildquellen besteht darin, dass die resultierenden Abbildungen nicht zueinander ausgerichtet sind, sodass eine einfache translatorische oder rotatorische Überlagerung nicht möglich ist ([127]). Grund dafür sind die grundlegend unterschiedlichen Kontrastmechanismen (Wechselwirkung, Informationstiefe, Detektor, Eingangssignal) ([66], [67]). Zusätzlich machen die Aufnahmebedingungen (Neigungswinkel, Rotation oder

6. Bildverarbeitung

Ausrichtung der Probenoberfläche) die Überlagerung der Bilder noch anspruchsvoller. Die Effekte werden weiter verstärkt, wenn große Flächen abgebildet werden und Objektdrift oder Aufladungseffekte hinzukommen.

Neben den kommerziellen Softwarepaketen zur Bildverarbeitung bieten Open Source Tools wie ImageJ ([128]) und FiJi ([126]) verschiedene Algorithmen, um eine präzise Bildregistrierung zu ermöglichen. Die zugrunde liegenden Arbeiten entstammen zumeist der Biologie und Medizin, da in diesen Bereichen sehr oft unterschiedliche kontrastgebende Verfahren eingesetzt werden ([129]). Solche Registrierungen bestehen meist aus einer Merkmalerkennung, einer Merkmalanpassung, einer Anpassung eines Transformationsmodells und schließlich einer Skalierung und Transformation der Aufnahmen ([125]).

All diese Ansätze setzen eine ausreichende, für die verschiedenen Abbildungsverfahren geeignete, Probenkontrastierung voraus. In diesem Zusammenhang sei daher noch einmal auf die Wichtigkeit und Unverzichtbarkeit einer ausgezeichneten Präparation (Kapitel 4) und Gefügekontrastierung (Kapitel 5) verwiesen.

6.1.2 Konzept zur Bildregistrierung

Am Beispiel der martensitischen Proben (Abbildung 4-3) nach entsprechender Präparation (Tabelle 4-1) und Ätzung nach Beraha (Kapitel 5.4) wird im Folgenden der Arbeitsablauf der Bildregistrierung dargestellt. Dieser Schritt ist notwendig, um korrelative Aufnahmen, wie sie bereits in Kapitel 5 aufgeführt wurden, für quantitative Auswertungen nutzbar zu machen. Für den späteren Ansatz der Gefügeklassifizierung der zweiten Phase (Kapitel 7) ist ein derartiger Ansatz zur Überlagerung von REM und Lini-Aufnahmen gar zwingend erforderlich.

Eine schematische Darstellung des Ablaufs der Bildregistrierung zur Analyse der zweiten Phase ist in Abbildung 6-1 dargestellt.

6. Bildverarbeitung

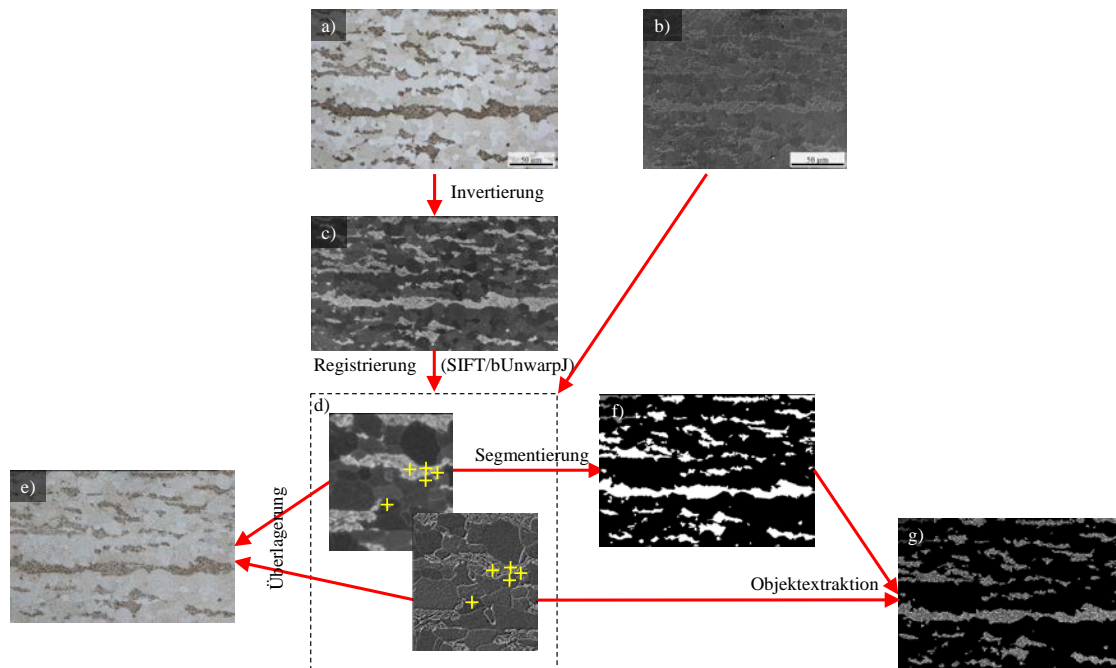


Abbildung 6-1: Schematische Darstellung des Arbeitsablaufs der Bildregistrierung zur Erfassung der Substruktur am Beispiel eines Dualphasen-Gefüges. a) Limi-Bild; b) REM-Bild der nahezu gleichen Position; c) Invertiertes 8-Bit-Limi-Bild; d) Ausschnitt der extrahierten Merkmale (gelbe Kreuze) des bearbeiteten Limi- und REM-Bildes; e) Ergebnis der registrierten Limi- und REM-Bilder mittels bUnwarpJ als Overlay; f) binarisiertes Limi-Bild; g) Maskiertes REM-Bild mit der registrierten Limi-Binarisierung, die nur die zweite Phase mit ihrer Substruktur zeigt.¹¹

Um eine genaue Registrierung von Limi- und REM-Bildern zu gewährleisten (Abbildung 6-1 a) und b)), ist eine Merkmalerkennung erforderlich. In dem vorgestellten Ansatz wird die sog. Scale-Invariant-Feature-Transformation (SIFT) verwendet ([130]), um gleiche (geometrische) Merkmale in beiden Bildern mit der Software Fiji ([126]) zu identifizieren. Dazu muss das Limi-Bild zunächst invertiert und in ein 8-Bit-Graustufenbild umgewandelt werden (Abbildung 6-1 c)), um eine korrekte Zuordnung verschiedener Merkmale zu ermöglichen. Die zweite Phase erscheint schließlich sowohl im Limi als auch im REM hell (Abbildung 6-1 d)).

Die tatsächliche Registrierung wird mit einem Algorithmus namens bUnwarpJ ([131]) durchgeführt. Dieser Algorithmus basiert auf den Arbeiten von Sorzano et al. ([132]), der sog. B-Splines ([133]) zur Berechnung der Deformationen zwischen zwei Bildern nutzt. Die mittels SIFT-Algorithmus extrahierten Merkmale aus dem REM- und invertierten Limi-Bild können

¹¹ Modifiziert nach „Zeitschrift Praktische Metallographie, Vol. 50, Issue 10, Seiten 685-696, D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich © Carl Hanser Verlag GmbH & Co.KG, München“

6. Bildverarbeitung

direkt in diesen Bildregistrierungsalgorithmus übernommen werden. Eine derartige Registrierung mikroskopischer Abbildungen wurde bereits in [134] vorgeschlagen.

Nach der Berechnung der Transformationsmatrix kann diese Transformation gespeichert und auf die verschiedenen Bilder angewendet werden (z. B. Abbildung 6-1 a), Abbildung 6-1 b) oder Abbildung 6-1 c)).

Nach der Registrierung gibt es verschiedene Möglichkeiten, die Bilder weiter zu verarbeiten. Eine einfache Überlagerung von Limi und semitransparentem REM-Bild ist möglich (Abbildung 6-1 e)), um beide Kontraste zur Visualisierung des Gefüges zu kombinieren.

Eine weitere Möglichkeit, die Daten zu nutzen, ist die Schwellwertsegmentierung mit dem Ziel, die Substruktur der zweiten Phase im REM-Bild zu quantifizieren (weitere Ausführungen zur Segmentierung in Kapitel 6.2.1). Die Schwellwertsegmentierung des REM-Bildes kann wegen störender Artefakte oder Korngrenzen der Matrix selbst mit angepassten Ätzungen schwierig bis unmöglich sein (Kapitel 5.4). Notwendige Filter zur Entfernung der Korngrenzen können die ursprüngliche Morphologie dabei stark verfälschen. Aus diesem Grund wird das invertierte Limi-Bild (Abbildung 6-1 c)) als Maske zur Segmentierung der Substruktur in der REM-Aufnahme verwendet.

Dazu wird zunächst das invertierte und registrierte Limi-Bild (Abbildung 6-1 f)) segmentiert. Alternativ kann die Segmentierung auch an der registrierten Original-Aufnahme erfolgen. Durch eine einfache Bildarithmetik (logisches UND), angewendet auf dieses Binärbild sowie die REM-Aufnahme (Abbildung 6-1 d)), wird schließlich ein REM-Bild erzeugt, das nur die zweite Phase (Abbildung 6-1 g)) beinhaltet und hinsichtlich der Quantifizierung der Substruktur weiterverarbeitet werden kann.

Das Bild mit der niedrigeren Auflösung sollte stets auf das Bild mit der höheren Auflösung registriert werden, da es nach der Transformation zu Artefakten und einer reduzierten Auflösung kommen kann.

6.1.3 Konzept zur Merkmalextraktion

Weit interessanter als die allgemeine Angabe von Phasenanteilen ist die Auswertung jedes einzelnen Objektes hinsichtlich Morphologie und Substruktur (Kapitel 4). Für eine Klassifizierung ist es je nach Ansatz ebenfalls notwendig, diese objektbezogenen Informationen

6. Bildverarbeitung

aus der Gefügeabbildung zu extrahieren. Um die Substruktur der einzelnen Objekte separat analysieren zu können wurde ein Programm in Matlab geschrieben, welches jedes Objekt der zweiten Phase automatisch extrahiert.

Limi- und REM-Abbildungen, die wie im obigen Abschnitt 6.1.2 beschrieben, registriert und segmentiert wurden, können somit verarbeitet werden (Abbildung 6-2). Generell kann dieses Verfahren auf jegliche Art von registrierten Bildern angewendet werden.

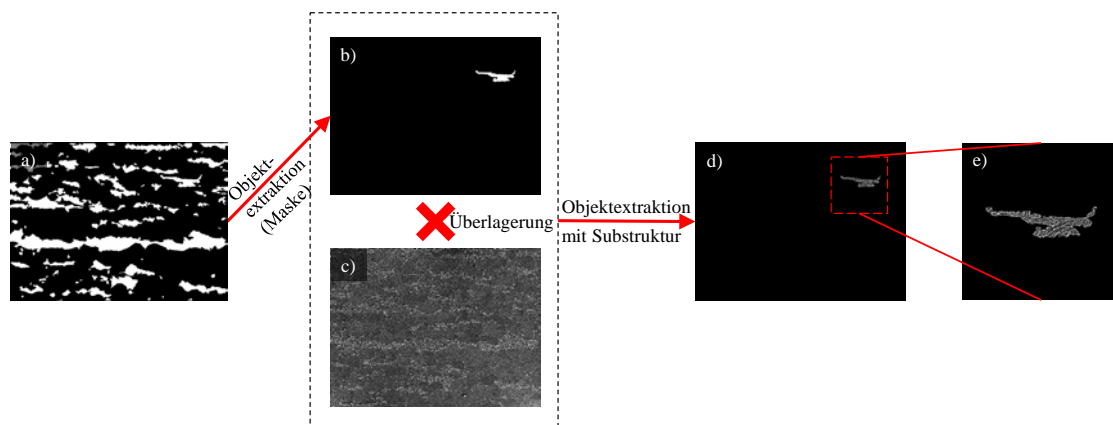


Abbildung 6-2: Darstellung des Ablaufs zur Separierung von Objekten aus einem segmentierten und registrierten Limi-Bild (a): Die Limi-basierte, registrierte binäre Maske eines einzelnen Objekts (b) wird logisch mit dem REM-Bild (c) multipliziert und das resultierende Objekt mit Substruktur (d) zur weiteren Analyse in einen quadratischen schwarzen Rahmen gesetzt (e).¹²

Durch die Detektion und Nachverfolgung der isolierten Objektgrenzen im segmentierten Limi-Bild (vgl. Abbildung 6-1 f)), extrahiert der Algorithmus jedes Objekt und speichert es jeweils als separates Bild (Abbildung 6-2 b)). Objekte, die die Bildgrenzen schneiden, werden von der weiteren Analyse ausgeschlossen, da deren Objektmorphologie für die weitere Klassifizierung nicht genutzt werden kann und die Substruktur nicht vollständig dargestellt wird. Das registrierte REM-Bild (Abbildung 6-2 c)) wird mit dem binären Objektbild (Abbildung 6-2 b)) überlagert. Die kombinierten Limi-REM-Bilder der einzelnen Objekte (Abbildung 6-2 d)) werden schließlich mittig in einen schwarzen und quadratischen Rahmen eingefügt (Abbildung 6-2 e)). Um die Bereiche mit dem Grauwert 0, die sich innerhalb der Substruktur befinden, vom schwarzen Rahmen zu unterscheiden, wurden die Grauwerte jedes Pixels in den ursprünglichen REM-Bildern um eins erhöht. Dazu muss das 8-Bit-Bild erweitert werden, sodass auch Pixel, die einen maximalen Grauwert von 255 haben, erfasst werden können.

¹² Modifiziert nach „Zeitschrift Praktische Metallographie, Vol. 50, Issue 10, Seiten 685-696, D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich © Carl Hanser Verlag GmbH & Co.KG, München“

6. Bildverarbeitung

Anschließend können die Substrukturmorphologie sowie die Graustufentextur (wie bereits in [51] veröffentlicht) jedes Objektes separat analysiert werden. Derartige Informationen können darüber hinaus die Basis für Klassifizierungsansätze, wie sie in Kapitel 7 beschrieben werden, bilden.

6.1.4 Ergebnisse und Diskussion der Bildregistrierung

Der vorgestellte Arbeitsablauf zur Bildregistrierung liefert gemäß Abbildung 6-1 verschiedene Ergebnisse. Zur besseren Visualisierung von Gefügen ist es beispielsweise hilfreich, die korrelativen Gefügeaufnahmen in einem Bild darzustellen. In Abbildung 6-3 wird das registrierte Limi-Bild dem REM-Bild überlagert, welches auf 50 % Transparenz eingestellt ist.

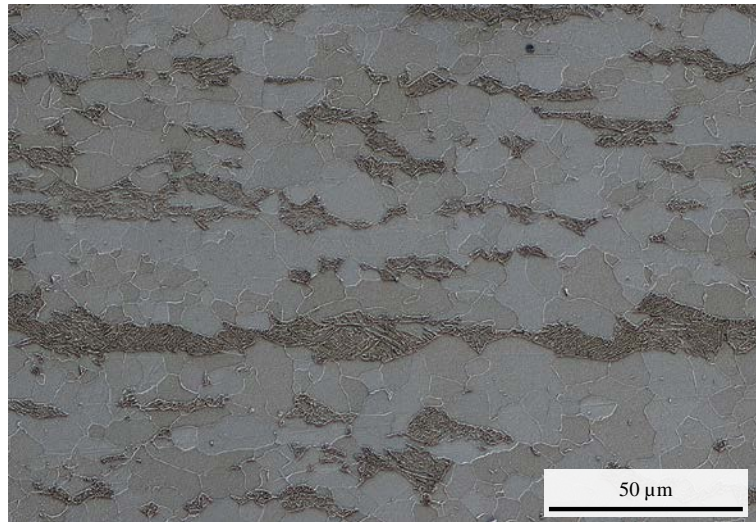


Abbildung 6-3: Ergebnis der registrierten Limi- und REM-Aufnahme eines Beraha-geätzten Dualphasenstahls: Durch eine semitransparente Überlagerung dieser beiden Aufnahmen können die Vorteile beider Kontraste kombiniert werden.¹³

Durch die Überlagerung beider Bilder werden die Substruktur der martensitischen Phase sowie die Korngrenzen mit einer leichten Färbung der ferritischen Matrix, die aufgrund des Orientierungseinflusses des Ferrits auf die Ätzung hervorgerufen wird (Kapitel 5.4.2), sichtbar. Dies kann z. B. zur besseren Identifizierung, Kontrastierung und Visualisierung von Gefügebestandteilen genutzt werden.

¹³ Modifiziert nach „Zeitschrift Praktische Metallographie, Vol. 50, Issue 10, Seiten 685-696, D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich © Carl Hanser Verlag GmbH & Co.KG, München“

6. Bildverarbeitung

Zur weiteren Quantifizierung des Gefüges ist eine Segmentierung der zweiten Phase einschließlich der Substruktur erforderlich. Wie in Abbildung 6-1 beschrieben, wird das REM-Bild mit dem binarisierten Limi-Bild maskiert, um die ferritische Matrix auszublenden (Abbildung 6-4). In einem zweiten Schritt kann das maskierte REM-Bild für die Quantifizierung der Substruktur der zweiten Phase durch Schwellwertsegmentierung binarisiert werden. Somit kann eine quantitative Analyse der Substruktur erfolgen.

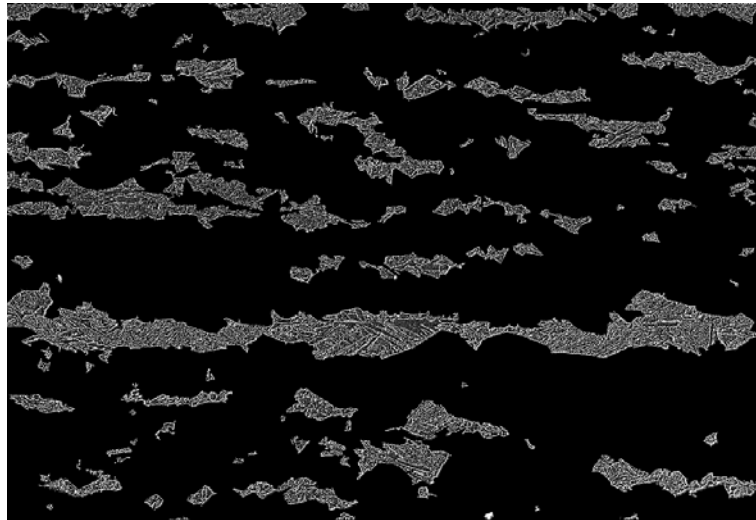


Abbildung 6-4: Ergebnis des maskierten REM-Bildes nach der transformierten und segmentierten Limi-Aufnahme. Eine gezielte Weiterverarbeitung wie Segmentierung und Quantifizierung oder Objektextraktion der zweiten Phase ist nun möglich.¹⁴

Durch den vorgestellten Ansatz wird ein Bild ohne störende Artefakte der Matrix und ohne Korngrenzen erzeugt, wobei alle Informationen über die Substruktur der zweiten Phase erhalten bleiben. Auch Bereiche innerhalb der zweiten Phase, die keine Substrukturen aufweisen, werden mit einbezogen. Es ist zu beachten, dass nur Bereiche, die im Limi sichtbar sind, als Masken verwendet werden können. Eine sorgfältige Überprüfung und ein Vergleich mit Hilfe von Abbildung 6-3 sollte daher stets im Vorfeld erfolgen.

6.1.5 Ergebnisse und Diskussion der Merkmalextraktion

Ein möglicher Ansatz zur objektiven Gefügeklassifizierung ist eine Zuordnung von Gefügebestandteilen auf Grundlage ihrer morphologischen und Substruktur-Merkmalen (Kapitel 7.2). Keines der kommerziell verfügbaren Programme in der Materialwissenschaft

¹⁴ aus der Zeitschrift *Praktische Metallographie*, Vol. 50, Issue 10, Seiten 685-696, D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich © Carl Hanser Verlag GmbH & Co.KG, München

6. Bildverarbeitung

kann diese Substruktur-Daten bisher jedoch zuverlässig liefern. Eine Extraktion jedes einzelnen Objekts mit der Quantifizierung seiner Substruktur ist allerdings von herausragender Bedeutung. In der vorliegenden Arbeit können derartige Daten durch die Verwendung des korrelativen Ansatzes (Kapitel 6.1.2) sowie durch das entwickelte Matlab-Skript (Kapitel 6.1.3) erstellt werden (Abbildung 6-5).

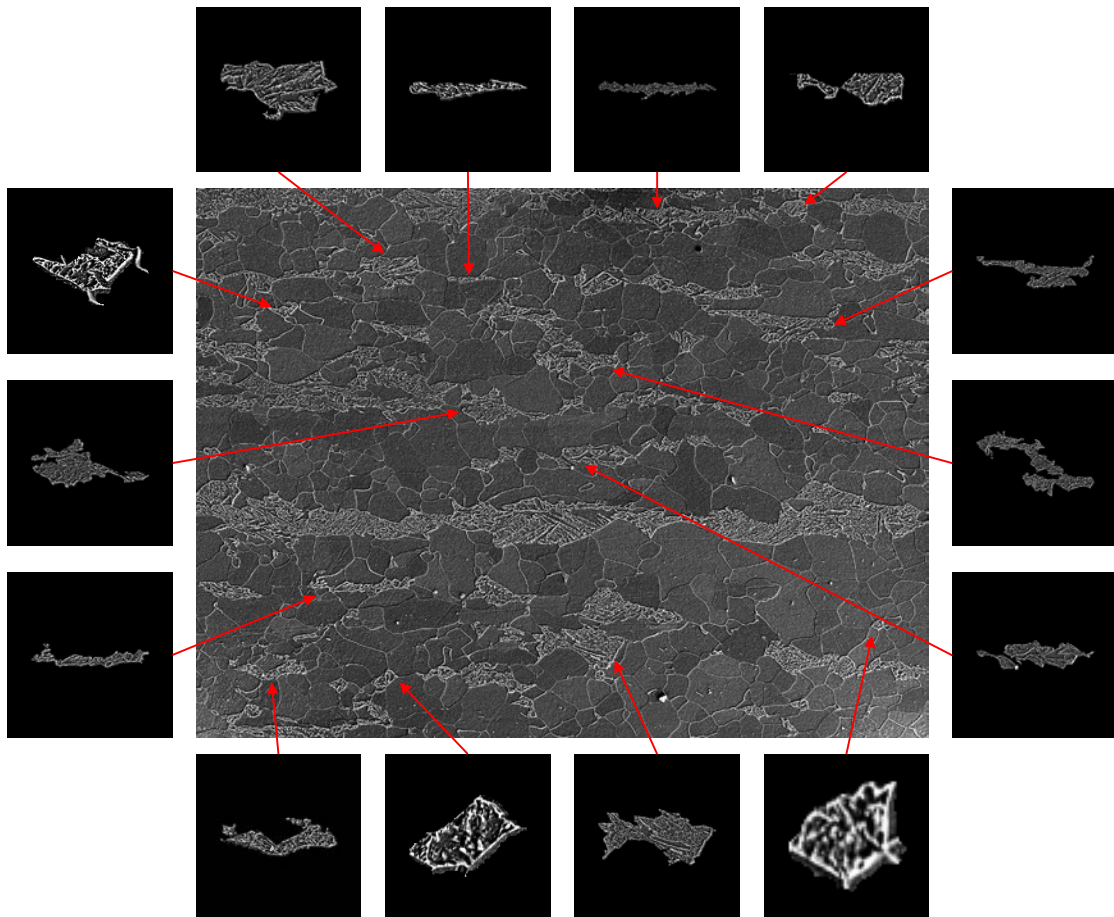


Abbildung 6-5: Auswahl der extrahierten Objekte durch das Matlab©-Skript. Zur besseren Visualisierung in dieser Abbildung werden die extrahierten Objekte neu skaliert und durch einen roten Pfeil ihrem Ursprung zugeordnet.¹⁵

Mit einem derartigen Datensatz ist es möglich, die Substruktur der Objekte hinsichtlich Morphologie, Erscheinung und Textur weiter zu analysieren und für Data-Mining-Prozesse, wie sie im weiteren Verlauf vorgestellt werden (Kapitel 7), zu nutzen.

¹⁵ aus der Zeitschrift Praktische Metallographie, Vol. 50, Issue 10, Seiten 685-696, D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich © Carl Hanser Verlag GmbH & Co.KG, München

6.1.6 Fazit der Bildregistrierung und Merkmalsextraktion

Durch die Kombination des SIFT-Algorithmus und des Bildregistrierungsalgorithmus bUnwarpJ im Rahmen der Open Source Software Fiji ist es möglich, REM- und Lini-Bilder nach angepasster Kontrastierung gemäß Kapitel 5 einfach zu registrieren. Durch diesen korrelativen Mikroskopieansatz werden die Vorteile beider Kontraste in einem Bild verfügbar. Mit Hilfe der Registrierung ist eine Nachbearbeitung der Bilder hinsichtlich Segmentierung, Bildanalyse oder Klassifizierung ohne weiteres möglich. Zudem können die so erzeugten Aufnahmen als Filter für ein adaptives Abtastkonzept im REM verwendet werden, wie in [135] beschrieben, um die Scanzeit zu reduzieren, indem nur die Bereiche mit Substruktur gescannt werden.

Das entwickelte Matlab-Skript ermöglicht darüber hinaus eine objektbezogene, automatische Extraktion und Analyse der Gefügebestandteile. Derartige Daten sind insbesondere für eine spätere Klassifizierung (Kapitel 7) von hoher Relevanz.

Der vorgestellte Ansatz kann ohne weiteres auf andere Aufnahmeverfahren übertragen werden. Lediglich die Auswahl der verwendeten Darstellung (im Fall von EBSD-Aufnahmen eignen sich zur Berechnung der Transformationsmatrix zur Registrierung auf REM-Bilder z. B. die Verwendung von Image Quality- oder Korngrenzen-Karten) und die Bild-Vorverarbeitung müssen gegebenenfalls angepasst werden, um die Merkmalsextraktion zu gewährleisten. Auch das entwickelte Matlab-Skript kann beliebig auf andere Abbildungen angewendet werden.

Die vorgestellten Programme liefern den Ausgangspunkt für alle Klassifizierungsansätze, wie sie in Kapitel 7 vorgestellt werden.

6.2 Neue Möglichkeiten der Gefügesegmentierung

Der erste Schritt einer Gefügeanalyse oder Klassifizierung nach der Kontrastierung und der Bildaufnahme – eine mögliche Überlagerung verschiedener Abbildungen, wie im vorangegangenen Kapitel 6.1 beschrieben, außer Acht gelassen – ist die Separierung von Gefügebestandteilen. Dies wird üblicherweise über eine Segmentierung erreicht. Im Allgemeinen wird unter Segmentierung eine Operation verstanden, die ein Bild in verschiedene Regionen mit spezifischen Eigenschaften unterteilt ([136]). Trotz der enormen Entwicklungen auf dem Gebiet der Bildsegmentierung ist die gängige Praxis in der Materialwissenschaft noch immer eine schwellwertbasierte Trennung der Phasen basierend auf der Grauwertverteilung. Dieser Ansatz stößt zunehmend an seine Grenzen. Selbst eine angepasste Ätzung (siehe Kapitel 5.4 und Kapitel 5.3) liefert nicht immer eine ausreichend gute Ausgangslage zur Phasenseparierung mittels Schwellwertsegmentierung, was wiederum die Grundlage für eine Quantifizierung und – je nach Ansatz – auch für eine Klassifizierung, ist. Korrelative Ansätze (Kapitel 6.1) sind daher sehr vielversprechend, setzen jedoch stets entsprechende Gefügaufnahmen und eine Merkmalerkennung voraus. Aus diesen Gründen werden neue Segmentierungsalgorithmen dringend benötigt.

Mit diesem Ziel wird der Segmentierungsansatz nach Chan und Vese (CV) "Aktive Konturen ohne Kanten" ([137]) für eine genaue, automatisierte und unvoreingenommene Segmentierung von Gefügen angepasst. Besonders inhomogene, verrauschte Gefügaufnahmen können damit ohne zusätzliche Filter, was die weitere Auswertung beeinträchtigen könnte, analysiert werden.

Die im Folgenden dargestellte Implementierung hilft auch Bestandteile und Phasen mit inhomogenen Substrukturen zu segmentieren. Die Vorfaktoren der Integralgleichungen des CV-Algorithmus zeigen dabei einen deutlichen Einfluss auf das Segmentierungsergebnis.

Der in der vorliegenden Arbeit dargestellte Ansatz wird derzeit zur Veröffentlichung vorbereitet ([58]) und entstand in Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl „Mathematical Image Analysis“, UoS, von Prof. Weickert im Rahmen der gemeinsam betreuten Masterthesis von A. Chouikhi ([138]).

6.2.1 Grundlagen der Segmentierung

Eine klassische Schwellwertsegmentierung von Gefügeaufnahmen zur Separierung von Gefügebestandteilen ist nicht immer möglich oder teils mit erheblichem Aufwand verbunden. Jedoch werden ständig neue Segmentierungsansätze veröffentlicht und die Vielzahl der verfügbaren Algorithmen ist nur schwer überschaubar. Bei der Anwendung dieser Ansätze ist die medizinische Segmentierung eine der treibenden Kräfte ([139]). Nischen wie die Materialwissenschaft werden aufgrund des vergleichsweise geringen Marktanteils in der Regel jedoch vernachlässigt und daher werden zumeist alte, etablierte Methoden eingesetzt. In der Gefügeanalyse ist eine Separierung von Gefügebestandteilen jedoch zwingend erforderlich, um Quantifizierungen, Klassifizierungen oder Gefüge-Eigenschaftskorrelationen herstellen zu können.

Grundsätzlich gibt es mehrere Konzepte für die Segmentierung: pixelbasierte, kantenbasierte, modellbasierte und regionsbasierte Methoden ([140]).

Die Schwellwertsegmentierung gehört zu den pixelbasierten Methoden und ist die am weitesten verbreitete Methode in den Materialwissenschaften. Dies ist der einfachste Weg, die Regionen von Interesse (engl. Region of Interest, ROI) vom Hintergrund zu trennen, indem jedes Pixel einzeln überprüft wird. Bezogen auf die Rechenzeit ist dieser Ansatz sehr schnell und liefert für Standardanwendungen zumeist ausreichende Ergebnisse, solange die Aufnahmen ohne oder mit lediglich geringen Überlappungen in den Grauwerten der verschiedenen Bestandteile vorliegen und die Aufnahme homogen ausgeleuchtet ist.

Neben weiteren Ansätzen zur Automatisierung und Optimierung der regulären Schwellwertsegmentierung ([141]), schlug Otsu einen Weg vor, den Schwellwert automatisch und unbeaufsichtigt einzustellen ([142]). Dieses Verfahren beruht auf der Auswertung des Grauwert-Histogramms eines Bildes. Dazu wird einerseits die Streuung der Grauwerte innerhalb der Klasse minimiert und zwischen den Klassen maximiert.

Dennoch benötigen alle pixelbasierten Verfahren sehr homogene Aufnahmen und deutliche Unterschiede in den Grauwerten der verschiedenen Bestandteile. Um aussagekräftige Ergebnisse für die weitere Analyse zu erhalten, sind in den meisten Fällen z. B. morphologische Filter notwendig, die im Nachhinein einen großen Einfluss auf die gemessenen Parameter haben können.

6. Bildverarbeitung

Kantenbasierte Methoden beruhen zumeist auf der Grauwertänderung an Kanten ([143]). Durch die Anwendung bestimmter Tracing-Algorithmen kann der Gradient der Objekte gefunden und segmentiert werden. Die Sobel-Erkennung ([144]) und der Canny-Algorithmus ([145]) sind die bekanntesten Beispiele für kantenbasierte Methoden. Um ein geschlossenes Objekt zu erreichen, kann das Konzept der Wasserscheide ([146]) verwendet werden. Bei diesem Ansatz wird eine virtuelle Topographie des Bildes, die z. B. aus einer euklidischen Distanztransformation gewonnen werden kann, geflutet. Die Schnittpunkte der verschiedenen Becken werden schließlich als Grenzen angenommen. Dieser Ablauf wird insbesondere zur Rekonstruktion von Korngrenzen eingesetzt.

Auch aktive Konturmodelle wie "Snake" können den kantenbasierten Methoden zugeordnet werden. Indem sie das Minimum der Energie zwischen verschiedenen Kräften berechnen, nähern sich die Konturen Objekten auch bei verrauschten Bildern an ([147]).

Weitere Ansätze wie modellbasierte Segmentierungen eignen sich, wenn Objekte eine definierte Geometrie haben, aber unvollständig sind. Ein Beispiel für diese modellbasierte Segmentierung ist die Hough-Transformation ([148]), die gerade Linien sehr genau erkennen kann.

Bei regionsbasierten Methoden wird nicht ein einziges Pixel betrachtet, sondern verknüpfte Regionen ([149]). Ein Beispiel dafür ist der „Region Growing“ Algorithmus, zu Deutsch Regionenwachstum, bei welchem Konturen über das Bild verteilt werden und iterativ bis zu einem Abbruchkriterium (z. B. unterschiedliche Grauwerte) wachsen können.

Zunehmend finden auch sog. „soft computer“ Ansätze ([143], [150]) Einzug in die Segmentierung. Der aktuellste und vielversprechendste Ansatz in diesem Gebiet ist die Segmentierung basierend auf maschinellem Lernen. Deep Learning Algorithmen ([151]–[153]) sind in diesem Bereich der aktuelle Stand der Forschung.

Auch in der Materialwissenschaft finden Methoden des maschinellen Lernens Einzug, um Bilder zu segmentieren oder gar die Segmentierung direkt in die Klassifikation zu integrieren ([56], [154]–[156] – Dieses Thema wird in Kapitel 7.3 tiefergehend behandelt). Derartige Ansätze benötigen jedoch initial eine große Anzahl von Trainingsbildern, sodass es immer noch nicht möglich ist, diese Methoden im Alltag oder für individuelle Fragestellungen einzusetzen, bei denen die Segmentierung einem bestimmten Zweck folgt, wie z. B. der Extraktion

bestimmter morphologischer Parameter. Daher besteht nach wie vor ein Bedarf an neuen Segmentierungsalgorithmen zwischen maschinellen Lernalgorithmen und traditionellen Schwellwert-Segmentierungen.

Neben histogrammbasierten Ansätzen, die auf der Methode von Otsu ([157]) und einigen kommerziellen Tools wie eCognition oder MiceoGOP (weiterführende Beschreibung unter [15]) basieren, zeigen insbesondere Methoden der aktiven Kontursegmentierung sehr gute Ergebnisse ([158]).

6.2.2 Segmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus

Während viele Segmentierungsverfahren auf Intensitäten oder Kantenerkennung beruhen, ignoriert die Methode "Aktive Konturen ohne Kanten" von Chan und Vese ([137]) Kanten¹⁶. Stattdessen passt das Verfahren ausgehend von einer initialen, zweiphasigen Kontur diese iterativ optimal an das gegebene Bild an.

Das Chan-Vese Modell (CV) mit aktiven Konturen ist eine leistungsfähige und flexible Methode, die in der Lage ist, viele Arten von Bildern zu segmentieren, einschließlich einiger, die im Vergleich zu anderen Segmentierungsmethoden – d. h. mit Schwellwert- oder Gradienten-basierten Methoden – recht schwierig zu segmentieren wären. Somit ist sie prädestiniert für Gefügeaufnahmen. Das verwendete Modell basiert auf der sog. Mumford-Shah-Funktion zur Segmentierung ([159]).

Ein Objekt kann generell durch die Eigenschaften seiner Pixel-Grauwerte „Diskontinuität“ (d. h. starke Änderungen des Grauwertes) und „Ähnlichkeit“ (bzw. Homogenität) beschrieben werden. Pixel innerhalb eines Objektes bzw. einer Region haben daher meist eine Ähnlichkeit hinsichtlich ihrer Grauwerte.

Unter dieser Annahme kann gemäß [137], [159] eine Energiefunktion definiert werden, die es hinsichtlich der Kontur C sowie der mittleren Intensitäten c_1 und c_2 zu minimieren gilt:

¹⁶ Trotz des Titels „aktive Konturen ohne Kanten“ wird der Algorithmus zu den kantenbasierten Segmentierungsansätzen gezählt.

$$F(c_1, c_2, C) = \mu \cdot \text{Länge}(C) + \nu \cdot \text{Fläche}(\text{innerhalb}(C)) + \lambda_1 \cdot \int_{\text{innerhalb}(C)} |u_0(x, y) - c_1|^2 dx dy + \lambda_2 \cdot \int_{\text{außerhalb}(C)} |u_0(x, y) - c_2|^2 dx dy \quad (6.1)$$

Die Variablen c_1 und c_2 sind die mittleren Intensitäten innerhalb bzw. außerhalb der Kontur C . Die Intensität des Ausgangsbildes wird mit u_0 angegeben. Die Konstanten μ , ν , λ_1 und λ_2 sollten stets positiv sein und werden vom Nutzer parametrisiert. Als Ausgangspunkt wird empfohlen, $\nu = 0$ und $\lambda_1 = \lambda_2 = 1$ zu setzen.

Der erste Term der Gleichung reguliert die Länge der Kontur, sodass μ als Strafterm für die Konturlänge angesehen werden kann. Je größer μ gewählt wird, umso glatter wird die Kontur angepasst. Über den Parameter ν wird die von der Kontur umschlossene Fläche gewichtet. Je größer ν wird, umso kleiner werden die Objekte. Die beiden Integralterme gleichen schließlich die Grauwerte innerhalb und außerhalb der Kontur mit der initialen Kontur ab. Das erste Integral, das im Folgenden $F_1(C)$ benannt wird, versucht die Kontur stets zu verkleinern, während der zweite Term $F_2(C)$ die Kontur stets auszuweiten versucht. Wird einer der beiden Vorfaktoren der Integrale im Verhältnis zu dem jeweils anderen geändert, wird die wirkende Minimierungskraft zugunsten der von außen oder der von innen wirkenden Kraft geändert.

Die Kräfte werden in der Gleichung so lange angepasst, bis sie im Gleichgewicht liegen, d. h. die Kontur das Objekt umschlossen hat.

Das Energieminimierungsproblem wird schließlich in der sog. Level-Set-Formulierung ausgedrückt ([160]). Bei einer Level-Set-Formulierung wird der Wert einer multivariablen Funktion auf einen konstanten Wert gesetzt, sodass z. B. für eine Funktion mit zwei Variablen x und y eine Kontur entsteht. Im konkreten Fall wird die Funktion $\phi(x, y)$ folgendermaßen gewählt:

$$\phi(x, y) \begin{cases} > 0, \text{ wenn } (x, y) \text{ innerhalb Kontur } C \\ = 0, \text{ wenn } (x, y) \text{ auf der Kontur } C \\ < 0, \text{ wenn } (x, y) \text{ außerhalb Kontur } C \end{cases} \quad (6.2)$$

In der folgenden Abbildung 6-6 wird das Prinzip der Konturanpassung dargestellt. Umfasst die Kontur C (weißer Kreis in Abbildung 6-6) sowohl Hintergrund als auch das Objekt oder nur einen Teil des Objektes, ist einer der beiden Konturterme in Gleichung (6.1) ungleich 0. Nur

6. Bildverarbeitung

wenn die Kontur das zu segmentierende Objekt vollständig umrandet, sind beide Terme der Integralgleichung $F_1(C)$ und $F_2(C)$ gleich 0 (Abbildung 6-6 d)).

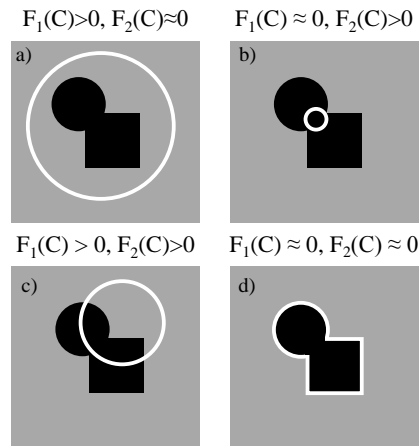


Abbildung 6-6: Prinzip der Segmentierung mittels Chan-Vese. Der weiße Kreis stellt die Kontur da. a) Die Kontur liegt vollständig außerhalb des Objektes, sodass der Term $F_1(C) > 0$ ist, während $F_2(C) \approx 0$. b) Die Kontur liegt vollständig innerhalb des Objektes, sodass $F_1(C) \approx 0$ ist, während $F_2(C) > 0$. c) Die Kontur liegt teilweise innerhalb, teilweise außerhalb der Kontur, sodass beide Terme $F_1(C)$ und $F_2(C) > 0$ sind. Im Fall von d) umschließt die Kontur das Objekt vollständig, sodass $F_1(C) \approx F_2(C) \approx 0$ ist. Abbildung modifiziert nach [137].

Die weitere Formulierung der Gleichung mit der notwendigen numerischen Annäherung kann aus [137] entnommen werden.

Der Ansatz nach Chan und Vese erlaubt somit eine beliebige Initialisierung der Ausgangskontur und ist sehr robust gegenüber Rauschen, inhomogener Beleuchtung oder ungleichmäßigen und unebenen Merkmalen innerhalb eines Bildes. Diese Vorteile sind daher im Zusammenhang mit Gefügeaufnahmen sehr interessant – sowohl im Limi als auch im REM. In einigen Publikationen wurden bereits die Möglichkeiten und das Potenzial des CV-Algorithmus in Bezug auf mikroskopische Bilder aufgezeigt. Im Jahr 2008 haben De Santis et. al. den CV-Ansatz genutzt, um morphologische Parameter von Graphit in Sphäroguss zu extrahieren ([161]). Es zeigte sich eine hohe Robustheit, die eine sehr zuverlässige Quantifizierung der Graphitteilchen ermöglichte. Auch für die Detektion von Korngrenzen in atomar aufgelösten Bildern konnte der CV-Algorithmus erfolgreich eingesetzt werden ([162]). Eine weitere sehr anspruchsvolle Aufgabe war die Quantifizierung der Porosität in FIB-Querschnitten, die mit dem gleichen Ansatz gelöst werden konnte ([163]). Im Folgenden wird daher eine Möglichkeit dargestellt, den Chan-Vese Algorithmus zur Segmentierung von Gefügeaufnahmen anzuwenden.

6.2.3 Konzept zur Gefügesegmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus

Die wesentlichen Aspekte der Segmentierung mittels Chan-Vese für die gegebene Aufgabenstellung der Phasenseparation sind:

- Auswahl eines Grauwertbildes;
- Definition der initialen Level-Set-Funktion (d. h. der Kontur);
- Festlegung der Parameter μ und λ (ν wird gemäß [137] auf 0 gesetzt);
- Berechnung der mittleren Grauwerte innerhalb und außerhalb der gegebenen Kontur;
- Anpassung und erneute Initialisierung der Kontur;
- Wiederholung der vorangegangenen beiden Schritte bis die Lösung stationär ist.

Nach mehreren Voruntersuchungen mit unterschiedlichen initialen Konturen hat sich eine Kontur bestehend aus kleinen Kreisen (Abbildung 6-7) als besonders geeignet erwiesen, da die Anzahl an Iterationen bis zur Erreichung des Abbruch-Kriteriums im Vergleich zu anderen Konturen deutlich geringer ist.

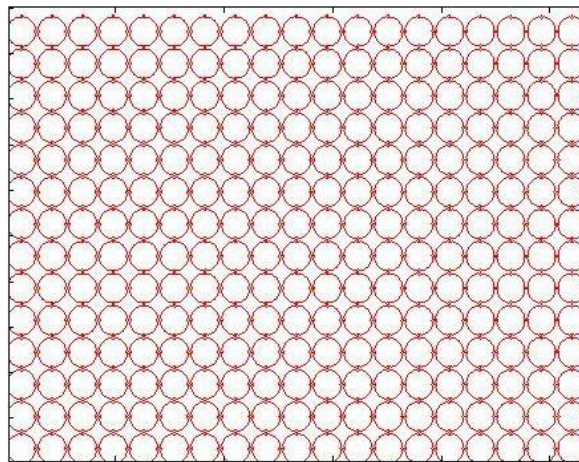


Abbildung 6-7: Darstellung der initialen Kontur als Ausgangspunkt für die Segmentierung mittels Chan-Vese. Das zu segmentierende Bild wird mit Kreisen überlagert und bildet schließlich den Ausgangspunkt für die Berechnung gemäß Gleichung (6.1).

Als Erweiterung wird außerdem basierend auf [164] eine Möglichkeit implementiert, auch Farbbilder zu segmentieren. Danach wird der CV-Algorithmus auf alle drei RGB-Kanäle eines Bildes separat angewendet und am Ende die jeweilige Binarisierung zusammengefügt.

Um auch REM-Aufnahmen mit teils komplexen Substrukturen erfassen zu können, wird darüber hinaus ein Textur-Term ergänzt. Zu diesem Zweck wird basierend auf [165], [166] ein

Ansatz gewählt, bei dem die Varianz mit einfließt. Während der Standard-Ansatz nach CV ausschließlich die Nähe zu einem dynamisch bestimmten Grauwert betrachtet und der Grauwert das Gleichheitsmaß ist, wird in diesem Ansatz darüber hinaus die Kovarianzmatrix ([167]) berücksichtigt. Im Falle eines Grauwertbildes entspricht dies der Varianz. Dazu wird eine zufällige Verteilung der Farb- bzw. Grauwerte modelliert. Durch Berücksichtigung dieses stochastischen Maßes wird eine Segmentierung von texturierten Bildern ermöglicht, sofern sich die Texturen innerhalb der jeweiligen Segmente durch die Varianz beschreiben lassen. Insbesondere wird angenommen, dass eine Gauß-Verteilung der Werte vorliegt.

Die weiteren Details zur Implementierung und technischen Umsetzung sowie die mathematische Umsetzung der notwendigen Approximationen und Definitionen der Abbruchkriterien können [138] entnommen werden.

6.2.4 Ergebnisse der Segmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus

Um zunächst den Parameterraum von μ und λ abschätzen zu können, wird zunächst eine Parameterstudie an einer beispielhaften Gefügebildaufnahme (martensitische Probe (Abbildung 4-3), geätzt nach Beraha (Kapitel 5.4)) durchgeführt. Dazu werden die beiden Parameter jeweils schrittweise variiert, um sinnvolle Wertebereiche definieren zu können. Es wird jedoch nicht gewartet, bis das definierte Abbruchkriterium erreicht wird, sondern die Anzahl an Iterationen auf 2000 Schritte festgelegt. Zur Abbildung von Tendenzen in einem zeitlich sinnvollen Rahmen ist dieser Schritt notwendig.

Der Einfluss der Parameterwahl auf das Segmentierungsergebnis ist in Abbildung 6-8 dargestellt. Da λ als Vorfaktor für die beiden Integralterme agiert, ist es lediglich sinnvoll, das Verhältnis zwischen λ_1 und λ_2 zu ändern. Aus diesem Grund wurde lediglich λ_1 geändert, während $\lambda_2 = 1$ gesetzt wurde.

Eine Erhöhung von μ führt demnach zu einer zunehmend glatten Kontur – die segmentierten Bereiche werden größer und es werden weniger Bereiche innerhalb der zweiten Phase ausgespart, die weniger Substruktur aufweisen. Durch zunehmendes λ_1 kommt dem Inneren der Kontur ein größeres Gewicht zu, was eine deutlichere Abbildung der Substruktur innerhalb der zweiten Phase bewirkt.

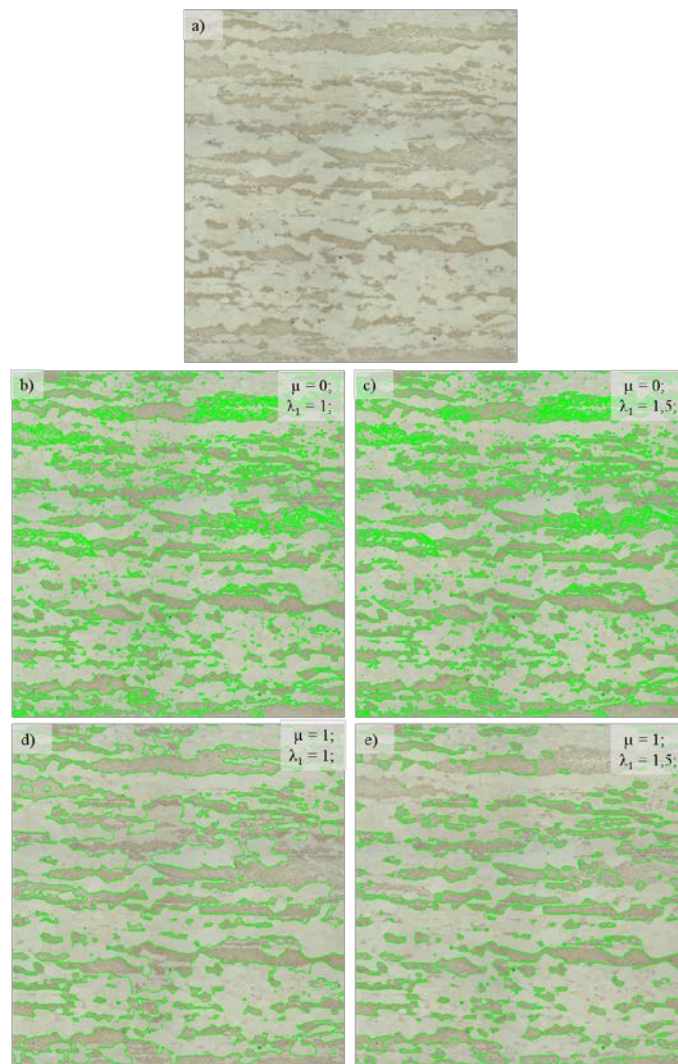


Abbildung 6-8: Ergebnis der Parameterstudie der Chan-Vese-Segmentierung. Ausgehend von einer Limi-Gefügeaufnahme eines martensitischen Stahls (a) wird der Parameterraum von μ und λ variiert. Der Einfluss von λ ist in b) und c) dargestellt. Durch Erhöhung von μ wird die Kontur zunehmend glatter (d) und e)), sodass auch innerhalb der zweiten Phase weniger Substrukturen erfasst werden.

Die Parameterstudie gibt nach Auswertung aller Segmentierungsergebnisse einen sinnvollen Parameterraum vor. Demnach gilt für μ der Wertebereich

$$0,2 \leq \mu \leq 15$$

als praktikabel. Jedoch kann dieser Wertebereich nicht losgelöst von λ betrachtet werden. Wird λ kleiner als 0,7 konnten keinerlei sinnvolle Ergebnisse erzielt werden. Wie bereits in der Originalarbeit angemerkt, wird daher für alle folgenden Ergebnisse $\lambda_1 = \lambda_2 = 1$ gesetzt.

6. Bildverarbeitung

Am Beispiel der folgenden Abbildung 6-9 wird der Ablauf der Segmentierung verdeutlicht. Die unbearbeitete Gefügeaufnahme (Abbildung 6-9 a)) wird mit der initialen Kontur (Abbildung 6-7) überlagert (Abbildung 6-9 b)). Schließlich werden die Konturen bis zum Erreichen des Abbruchkriteriums iterativ angepasst. Bei korrekter Wahl der Parameter (im vorliegenden Fall $\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$) legt sich die Kontur sehr gut um die zweite Phase (Abbildung 6-9 c)).

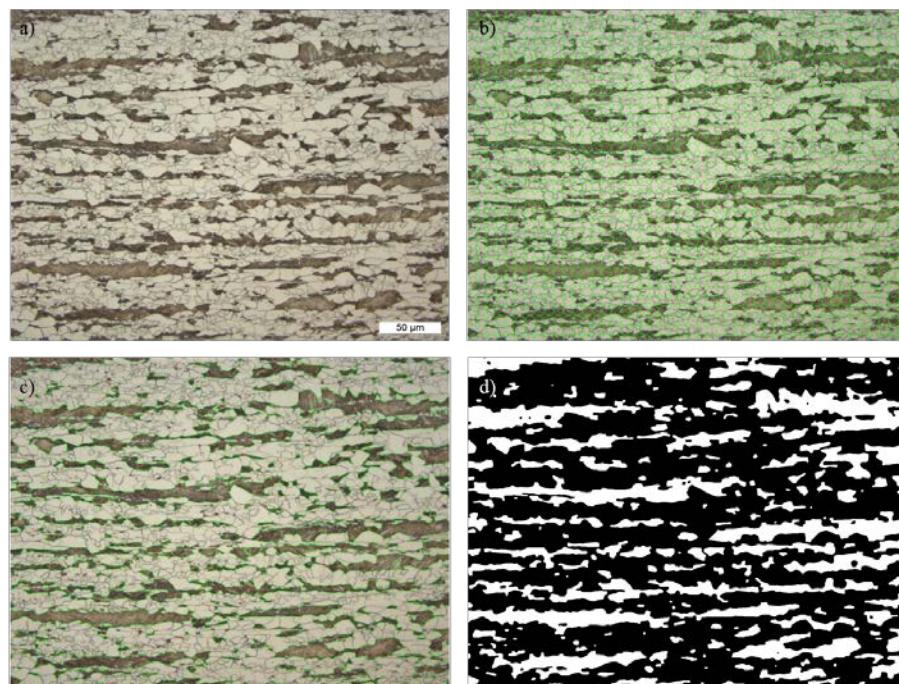


Abbildung 6-9: Segmentierung mittels Chan-Vese. a) Zu segmentierendes Ausgangsbild. b) Überlagerung des Ausgangsbildes mit der initialen Kontur, bestehend aus Kreisen gemäß Abbildung 6-7. c) Visualisierung der angepassten Kontur ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$) an die zweite Phase nach Erreichen des Abbruchkriteriums (keine signifikante Änderungen nach mehreren Iterationen). d) Binärbild als Ausgabe, in dem die zweite Phase (weiß) von der Matrix (schwarz) getrennt ist.

Das Ergebnis der Segmentierung ist ein Binärbild, in dem die zweite Phase weiß und die Matrix schwarz dargestellt wird (Abbildung 6-9 d)). Eine weitere Bearbeitung der Bilder (z. B. im Sinne morphologischer Operationen) ist nicht mehr nötig. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn die zweite Phase nicht kompakt vorliegt bzw. die Korngrenzen kontrastiert sind.

Um die Robustheit des Ansatzes weiter zu erhöhen, wird nicht nur ein Kanal des Bildes (was einer Grauwert-Aufnahme entspricht) verarbeitet, sondern alle drei Farbkanäle (RGB) werden berücksichtigt (siehe Kapitel 6.2.3).

6. Bildverarbeitung

Die Einsatzmöglichkeiten des Ansatzes werden insbesondere bei Farbätzungen deutlich. In Abbildung 6-10 ist eine Lini-Aufnahme eines nach Klemm ([74]) farbgeätzten, martensitischen Gefüges dargestellt. Die zweite Phase (rote Pfeile in Abbildung 6-10) ist farblich nur schwer von der Matrix zu unterscheiden. Durch den gewählten Ansatz ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$) kann jedoch auch im vorliegenden Fall die zweite Phase sehr gut erfasst werden.

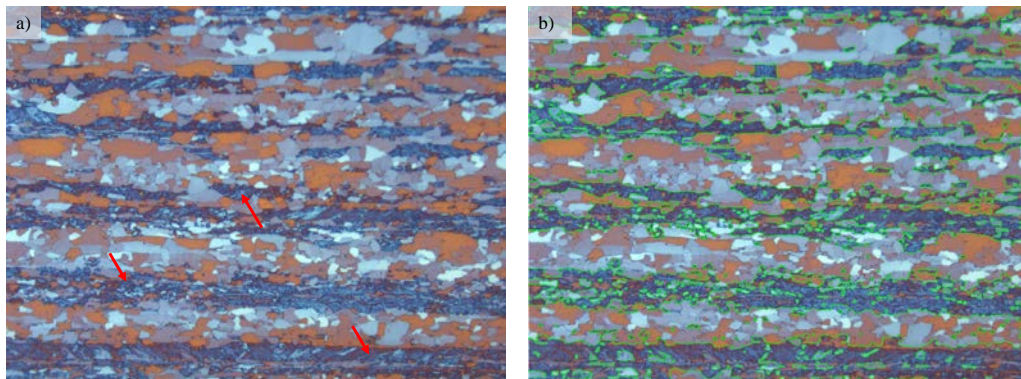


Abbildung 6-10: Segmentierung einer nach Klemm geätzten Gefügeaufnahme. Die zweite Phase ist mit roten Pfeilen in a) hervorgehoben. Eine CV-Segmentierung mit $\mu = 0,9$ führt dennoch zu sehr guten Ergebnissen (b).

Um auch inhomogenere Strukturen zu erfassen, wird in der vorliegenden Arbeit zudem eine einfache Erweiterung nach [165] ergänzt, die die Varianz innerhalb und außerhalb der Kontur berücksichtigt (siehe Kapitel 6.2.3). Dies kann als einfacher Ansatz zur besseren Berücksichtigung von „Texturen“ verstanden werden.

Die Verbesserung, die dadurch erreicht werden kann, ist in der nachfolgenden Abbildung 6-11 dargestellt. Da es sich um eine Probe mit einem bainitischen Gefüge handelt, bei der die zweite Phase nicht kompakt vorliegt, ist es schwer die bainitischen Bereiche als Ganzes zu erfassen. Durch die Textur-Erweiterung kann die bereits gute Segmentierung (Abbildung 6-11 b)) noch einmal verbessert werden (Abbildung 6-11 c)). In beiden Fällen werden bis auf die Varianz-Erweiterung die gleichen Parameter genutzt ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$).

6. Bildverarbeitung

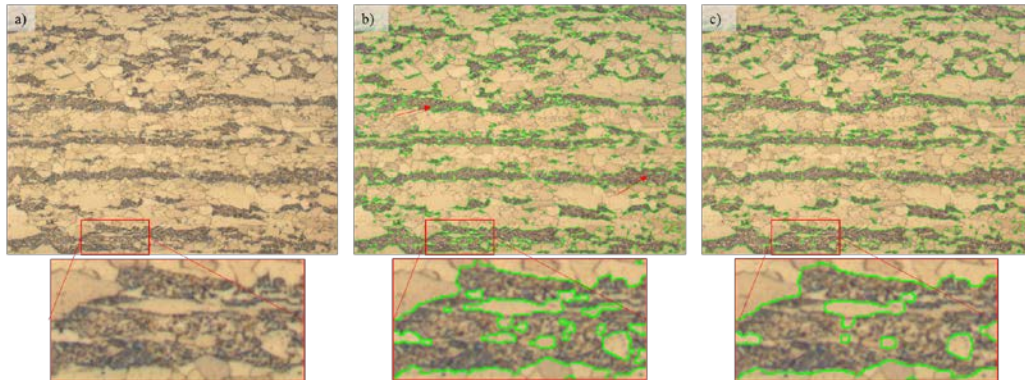


Abbildung 6-11: Darstellung der Verbesserung des Segmentierungsansatzes nach CV durch Erweiterung des Ansatzes um einen Textur-Term. a) Das Gefüge weist eine sehr inhomogene zweite Phase auf. b) Der Standard-Ansatz weist einige Bereiche innerhalb der zweiten Phase auf, die nicht erfasst werden (rote Pfeile und rote Box). c) Durch Hinzunahme der Varianz wird die zweite Phase geschlossener segmentiert.

Sind die Verbesserungen der Segmentierung durch Hinzunahme des Varianzterms für die Limi-Aufnahmen noch überschaubar, wird der eigentliche Mehrwert an REM-Aufnahmen wesentlich deutlicher.

Am Beispiel einer REM-Aufnahme eines ferritisch-martensitischen Gefüges wird der Einfluss der Textur-Erweiterung besonders deutlich (Abbildung 6-12). Abermals wurden für die Gleichung ansonsten dieselben Parameter ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$) gewählt.

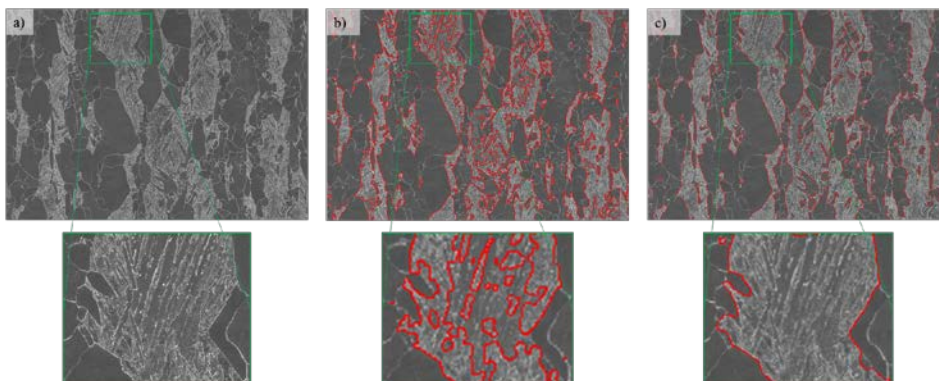


Abbildung 6-12: CV-Segmentierung von REM-Bildern. a) Die zu segmentierende REM-Aufnahme besteht aus einer ferritischen Matrix und einer martensitischen zweiten Phase. b) Ergebnis der CV-Segmentierung mit $\mu = 0,9$. Die martensitischen Bereiche werden nicht vollständig erfasst. c) Durch Hinzunahme des Texturterms werden die martensitischen Bereiche besser segmentiert.

Der Vergleich von Abbildung 6-12 b) und Abbildung 6-12 c) zeigt, dass durch den Textur-Term die martensitischen Bereiche deutlich besser umschlossen werden. Die Grauwerte der Matrix und der martensitischen Bereiche einerseits sowie die Korngrenzen und die martensitische

Substruktur andererseits sind identisch, dennoch ist es über den vorgestellten Ansatz möglich, die martensitischen Bereiche zu segmentieren.

6.2.5 Diskussion der Ergebnisse

Der vorgestellte Algorithmus nach Chan und Vese bietet für die Segmentierung von zweiphasigen Gefügen, im speziellen Fall von Stahlgefügen, eine vielversprechende Alternative zur klassischen Schwellwertsegmentierung, wie sie in der Materialwissenschaft und Werkstofftechnik nach wie vor standardmäßig zum Einsatz kommt. Die Vorteile dieses Ansatzes kommen besonders dann zum Tragen, wenn die Kontrastierung nicht eindeutig ist. Darunter fällt einerseits eine nicht vollständige Kontrastierung der zweiten Phase, wie beispielsweise bei bainitischen Gefügebestandteilen. Andererseits bietet die Segmentierung nach CV enorme Vorteile, wenn unterschiedliche Objekte die gleichen RGB- oder Grauwerte aufweisen (z. B. Körner zweiter Phase und Korngrenzen). In beiden Fällen kann über die Wahl der Parameter der Integralgleichung ein sehr gutes Segmentierungsergebnis erreicht werden, ohne, dass eine aufwendige oder eine das Ergebnisbild manipulierende Bildbearbeitung (z. B. über morphologische Operationen) notwendig ist. Zur Visualisierung dieses Sachverhaltes ist in Abbildung 6-13 das gleiche Bild aus Abbildung 6-9 ohne weitere Bearbeitung über einen Standardschwellwert segmentiert.

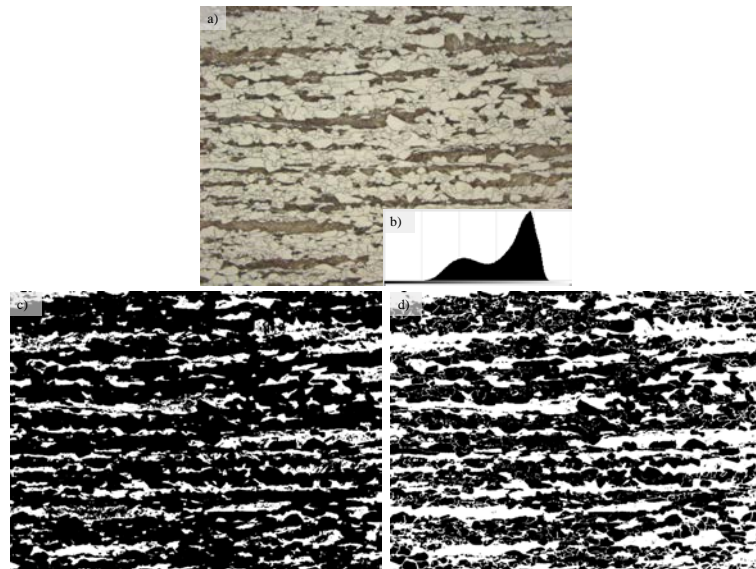


Abbildung 6-13: Schwellwertsegmentierung einer Limi-Gefügeaufnahme. a) Eingangsbild und b) dazugehöriges Histogramm (0-255). Basierend auf diesem Histogramm wird ein Schwellwert gesucht, bei dem die Matrix von der zweiten Phase getrennt werden kann. c) Binärbild, wenn die Schwelle bei 127 gelegt wird. d) Binärbild, wenn die Schwelle bei 167 festgelegt wird.

6. Bildverarbeitung

Während in Abbildung 6-13 c) bei einem Schwellwert von 127 die zweite Phase nicht vollständig erfasst wird, werden in Abbildung 6-13 d) bei einem Schwellwert von 167 auch Korngrenzen mit erfasst. Zudem ist in den Bildecken erkennbar, dass es aufgrund ungleichmäßiger Ausleuchtung (Shading) ebenfalls zu einer deutlichen Überschätzung der zweiten Phase kommt. Um auch für die Binärbilder aus einem Schwellwert-basierten Verfahren quantifizierbare Aufnahmen zu generieren, sind diverse morphologische Operationen (z. B. Öffnen) oder Filter (z. B. Glättung) notwendig. Diese Filter, die in den meisten Fällen auch zu Änderungen der tatsächlichen Struktur führen, sind im CV-Ansatz nicht nötig. Über die passende Auswahl der Parameter in der Integralgleichung können die Korngrenzen vernachlässigt, ungleichmäßige Ausleuchtung ignoriert und die Bereiche zweiter Phase trotz Artefakten oder helleren Positionen kompakt dargestellt werden.

Abschließend sei daher noch einmal die Segmentierung mittels CV der Schwellwertsegmentierung gegenübergestellt (Abbildung 6-14).

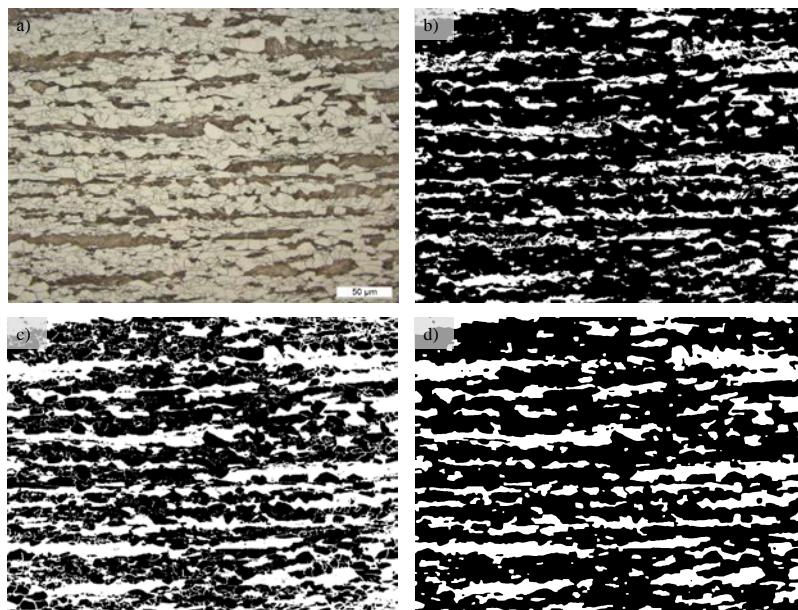


Abbildung 6-14: Gegenüberstellung der Segmentierung eines zweiphasigen Stahlgefüges (a). b) Binärbild, wenn die Schwelle bei 127 gelegt wird. c) Binärbild, wenn die Schwelle bei 167 festgelegt wird. d) Ergebnis nach CV ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$).

Die Binärbilder in Abbildung 6-14 zeigen sehr deutlich den Unterschied der Segmentierungsansätze nach Schwelle (Abbildung 6-14 b) und c)) und nach CV (Abbildung 6-14 d)). Die zweite Phase wird nach der CV-Segmentierung flächig dargestellt und Korngrenzen wurden nicht miterfasst. Bezogen auf das Originalbild (Abbildung 6-14 a))

6. Bildverarbeitung

erscheint die Segmentierung etwas geglättet, was jedoch über den Parameter μ gesteuert werden kann.

Hinsichtlich der ferritischen Matrix ist eine Segmentierung der einzelnen Körner bislang nicht möglich. Ein Ansatz, dies zu erreichen, wäre ein zweistufiges Verfahren: Zunächst müsste die zweite Phase segmentiert und vom Rest des Bildes abgezogen werden. In einem zweiten Schritt könnten schließlich mit einem geänderten Parametersatz (μ als Strafterm für die Konturlänge) die Korngrenzen erfasst werden, sodass die Ferrit-Körner segmentiert werden können.

In der Implementierung des Algorithmus sind generell zwei Abbruchkriterien vorgesehen: Über eine manuelle Eingabe von Iterationen oder über eine zu definierende Schwelle bezogen auf die Flächenänderung zwischen zwei Iterationen. Der erste Fall ist lediglich zu wählen, um eine Vorauswahl der zu wählenden Parameter der Integralgleichung festzulegen. Ein Ergebnis, das vollständig konvergiert, kann mit dem zweiten Abbruchkriterium erreicht werden. Die zu definierende Flächenänderung übt einen großen Einfluss auf das finale Ergebnis einerseits und auf die Rechenzeit andererseits aus. Eine kritische, manuelle Begutachtung des Ergebnisses ist daher unumgänglich. In weiterführenden Arbeiten wird das Abbruch- und Konvergenzkriterium ausführlich betrachtet werden müssen.

Die Initialisierung der Segmentierung ist sowohl für das Segmentierungsergebnis als auch für die Rechenzeit entscheidend. In der vorliegenden Arbeit, die in diesem Fall als Konzeptstudie im Bereich der Segmentierung mittels Chan-Vese Segmentierung zu verstehen ist, spielt die eigentliche Zeit zur Binarisierung, da sie vollständig automatisch läuft, keine Rolle. Für spätere Routineanwendungen hingegen sind die Robustheit und Rechenzeit des Ansatzes jedoch ein wichtiger Faktor zur Nutzung und Akzeptanz des Programms. Aus diesem Grund werden in weiterführenden Arbeiten alternative Initialisierungen geprüft. Einen vielversprechenden Ansatz bietet dazu die Segmentierung nach Otsu ([142]). Die so erzielte Binarisierung kann als Initialisierung für die eigentliche Segmentierung mittels CV genutzt werden. Im Vergleich zu einer hierarchischen Initialisierung, wie sie in Abbildung 6-7 dargestellt ist, liegen die Strukturen bereits im Bereich und in der Größe der zu segmentierenden zweiten Phase vor.

Als Parametersatz für die vorliegenden zweiphasigen Stahlgefüge haben sich folgende Werte als gut herausgestellt: $\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $\nu = 0$, $\mu = 0,9$. Eine jeweilige manuelle Anpassung der Parameter für ein bestmögliches Segmentierungsergebnis ist jedoch unumgänglich. In

zukünftigen Arbeiten wäre eine automatische Auswahl der Parameter basierend auf objektiven Kriterien sehr hilfreich. Mit der Erweiterung des Algorithmus hinsichtlich Farbkanäle und der Varianz zur besseren Erfassung von Objekten mit starker Substruktur ist der Algorithmus auch für Farbätzungen oder aber auch für REM-Aufnahmen sehr interessant. Darüber hinaus ist eine Erweiterung des Ansatzes hin zu mehrphasigen Gefügaufnahmen denkbar. Ein entsprechender Ansatz, in dem allgemein mehr als zwei Klassen in einem Bild zu separieren sind, wurde bereits von [168] vorgestellt.

6.2.6 Fazit der Gefügesegmentierung mittels Chan-Vese-Algorithmus

In der vorliegenden Arbeit konnte basierend auf dem Ansatz von Chan und Vese ([137]) ein vielversprechender Ansatz zur Segmentierung von zweiphasigen Gefügaufnahmen im Rahmen einer Konzeptstudie ausgearbeitet werden.

Dieser Ansatz bietet die Möglichkeit, ohne weitere bildanalytische Filter, wie beispielsweise Shading oder morphologische Operationen wie Öffnen/Schließen, auch bei komplexer Morphologie ein gutes Binärbild zu erzielen. Der Fokus liegt dabei in der vollständigen Erfassung von Bereichen zweiter Phase, ohne die Substruktur zu beachten. Somit ist es u. a. möglich, Phasenanteile objektiv und reproduzierbar abschätzen zu können. Anhand einer Parameterstudie wurde für den in der Materialwissenschaft weitestgehend unbekanntem Ansatz auch der Raum sinnvoller Parameter für die zugrundeliegende Integralgleichung festgelegt.

Durch eine Erweiterung über einen Varianzterm konnten darüber hinaus auch komplexe REM-Aufnahmen segmentiert werden. Um den Algorithmus zukünftig standardmäßig einsetzen zu können, bedarf es im nächsten Schritt einer Optimierung hinsichtlich Abbruchkriterium, Initialisierung und insbesondere Rechenzeit. Neben einer Erweiterung auf mehrphasige Gefüge ist zudem eine explizite Optimierung der Parameter zur Erfassung von Korngrenzen sinnvoll.

6.3 Fazit Bildverarbeitung

Die vorgestellten Arbeitsabläufe und Algorithmen sind die Voraussetzung für eine Merkmalextraktion, die ihrerseits wiederum die Grundlage für eine Gefügeklassifizierung bildet. Die Bildverarbeitung ist dabei stets eng mit der Gefügekontrastierung verknüpft – je besser die Darstellung der jeweiligen Phasen gelingt (Kapitel 5), umso geringer ist der Aufwand zur Bildverarbeitung. Trotz erheblicher Fortschritte ist es jedoch nicht immer möglich, derartige Verbesserungen zu erzielen, dass eine direkte Phasentrennung möglich ist. Darüber hinaus ist stets zu beachten, dass sowohl die zweite Phase in ihrer Gesamtheit (Kapitel 6.1.2), als auch in ihrer Substruktur erfasst werden muss. Mit dem dargestellten Ansatz der Bildregistrierung ist dies sehr gut möglich, da Informationen aus verschiedenen, bildgebenden Verfahren zusammengefasst werden können. Bezogen auf den Begriff „korrelative Mikroskopie“ ist somit eine reibungslose Überlagerung und Weiterverarbeitung von unterschiedlichen mikroskopischen Aufnahmen in Verbindung mit angepassten Kontrastierungsverfahren möglich (Kapitel 6.1.3).

Mit dem vorgestellten Segmentierungsansatz nach Chan-Vese (Kapitel 6.2.2) wird darüber hinaus ein weiteres Werkzeug bereitgestellt, um eine möglichst automatische und objektive Segmentierung von Gefügebildern zu erzielen, selbst wenn die Gefügekontrastierung nicht optimal ist oder sehr inhomogene Gefüge vorliegen. Auch REM-Aufnahmen sind mit diesem Ansatz gut segmentierbar. Die vorgestellten Ergebnisse sind zunächst als Konzeptstudie zu sehen, da der Algorithmus erhebliche Rechenzeiten aufweist und in diesem Zusammenhang auch nur niedrige Bildauflösungen verarbeiten kann. Generell können zweiphasige Gefüge bereits sehr gut segmentiert werden, wobei die ferritische Matrix noch nicht in einzelne Körner unterteilt werden kann. Perspektivisch könnte es jedoch somit möglich sein, auf den Bildregistrierungsprozess, wenn er lediglich als Maske zur Segmentierung der Substruktur dient, gänzlich zu verzichten und damit den Arbeitsaufwand für eine Gefügecharakterisierung weiter zu reduzieren.

Zusammenfassend ist in Abbildung 6-15 ein Flussdiagramm dargestellt, das je nach vorliegender Kontrastierung und gegebenen Daten den passenden Segmentierungsansatz darstellt.

6. Bildverarbeitung

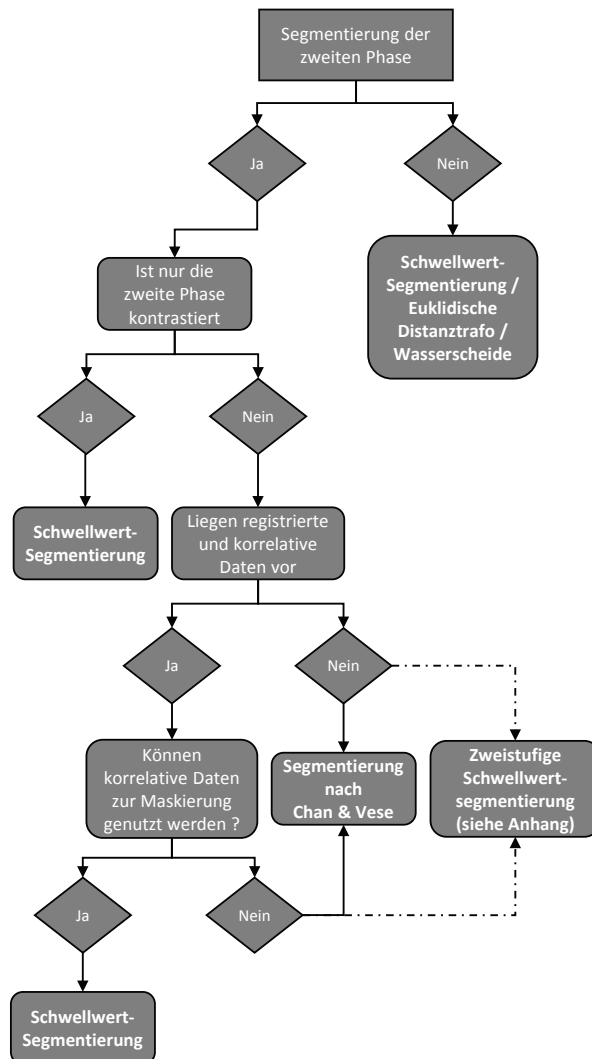


Abbildung 6-15: Flussdiagramm zur Unterstützung der Auswahl der geeigneten Segmentierung in Abhängigkeit der zugrunde liegenden Daten.

Die dargestellten Ansätze und Ergebnisse fließen direkt in das folgende Kapitel 7 (Gefügeanalyse) ein.

7 Gefügeanalyse

Eine ausreichende Kontrastierung und Quantifizierung, wie in den vorangegangenen Kapiteln dargestellt, ist notwendig um einerseits die Qualität von Stählen zu gewährleisten und andererseits bewusst die Entwicklung neuer oder modifizierter Stähle zu ermöglichen. Eine möglichst exakte Klassifizierung der Stahlgefüge ist zu diesem Zweck unabdingbar. Insbesondere die Klassifizierung moderner Stähle mit ihrer großen Variantenvielfalt und den immer komplexeren Gefügen ist dabei von großem Interesse, um den steigenden Anforderungen an enge Toleranzen und hohe Qualitätsstandards gerecht zu werden. In der industriellen Praxis obliegt diese Klassifizierung in der Regel jedoch noch immer ausgebildeten Experten, die meist anhand Nital-geätzter, lichtmikroskopischer Schliffaufnahmen und zunehmend auch mit elektronenmikroskopischen Aufnahmen diese Aufgaben bewältigen. Diese Einschätzungen sind stark fehlerbehaftet und unterliegen einer beachtlichen Streuung, was im Rahmen von diversen Ringversuchen dokumentiert wurde ([169], [170]). In Bezug auf Stahl kommen nicht einheitliche Klassifizierungsschemata ([12], [13], [15], [16]) erschwerend hinzu.

Das maschinelle Lernen (engl. Machine Learning) bzw. Data Mining bietet in diesem Kontext neue und vielversprechende Ansätze, um die Gefügeklassifikationen reproduzierbar und objektiv zu gestalten.

7.1 Gefügeklassifizierung mittels Data Mining

Die Vielzahl an Daten, die im Rahmen der Gefügecharakterisierung gesammelt werden, bringt menschliche Experten zunehmend an ihre Grenzen ([171]). Data-Mining-Konzepte können in diesem Zusammenhang Abhilfe schaffen. Data-Mining bezeichnet einen Prozess zur Suche nach Korrelationen oder Mustern in einer großen, bestehenden Datenmenge, mit dem Ziel, diese derart aufzubereiten, dass relevante Informationen herausgefiltert und bereitgestellt werden können ([172]). Diese Daten werden dann unter anderem mit den Methoden des maschinellen Lernens weiterverarbeitet. Während Machine Learning und Data Mining im Allgemeinen zur Defekterkennung ([173]–[178]) sowie zur Materialentwicklung und Eigenschaftsvorhersage ([179]) bereits vielfach zum Einsatz kommen, ist dieser Ansatz im Kontext der komplexen und anspruchsvollen Gefügebewertung und -klassifizierung bisher nur sehr eingeschränkt

angewendet worden ([154]–[156], [180]–[185]). Im Folgenden werden zwei Ansätze zur Klassifizierung mittels Data Mining bzw. Machine Learning vorgestellt: Eine Klassifizierung mittels Support Vector Machine (Kapitel 7.2) und mittels Deep Learning (Kapitel 7.3).

7.2 Klassifizierung mittels Support Vector Machine

Maschinelles Lernen stellt neben weit verbreiteten Verfahren wie den Entscheidungsbäumen und künstlichen neuronalen Netzen, auch das sogenannte Stützvektorverfahren (engl. Support Vector Machine, SVM) bereit, um basierend auf gegebenen Datenmengen Klassifizierungen durchzuführen ([186]).

Das Prinzip einer SVM beruht auf einer linearen Klassenseparation mit dem Ziel eine Hyperebene zu definieren, die die zu unterscheidenden Klassen bestmöglich voneinander trennt ([187]).

Wie in Abbildung 7-1 dargestellt, wird dazu die optimale Trenn- bzw. Hyperebene (engl. Hyperplane) gemäß einer Minimierungsfunktion bestimmt ([188]). Die Daten, die am nächsten zu dieser Ebene liegen und diese somit auch beschreiben, werden als Stützvektoren bezeichnet.

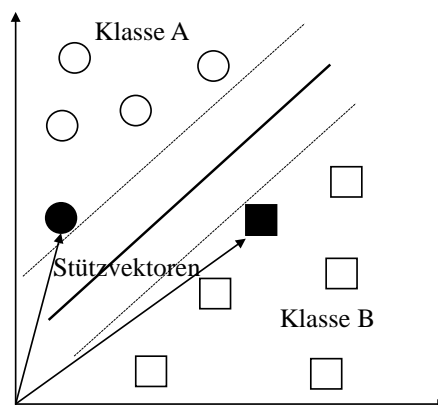


Abbildung 7-1: Schematische Darstellung einer Separation zweier Klassen A und B. Die beiden Klassen werden über eine Hyperebene linear getrennt. Die Ebene wird über sog. Stützvektoren beschrieben.

Ist die Datenmenge nicht linear separierbar, kann eine Transformation der Daten in einen höherdimensionalen Merkmalraum (engl. Feature-Space) mittels unterschiedlicher Kernel-Funktionen über eine sog. Kernel Machine erfolgen (Abbildung 7-2), in dem die Daten anschließend linear trennbar vorliegen ([189]).

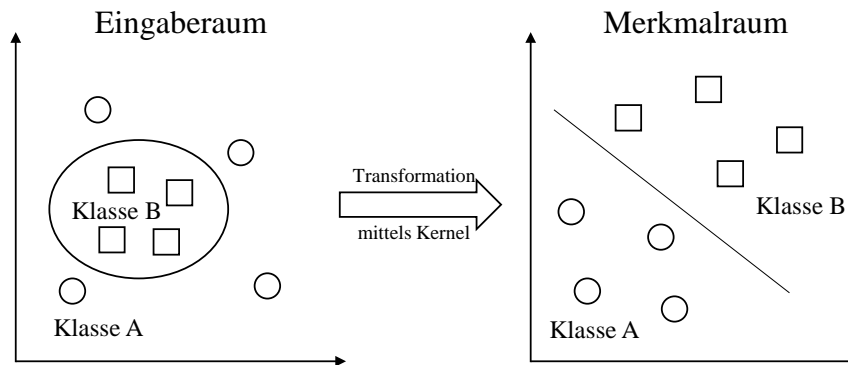


Abbildung 7-2: Schematische Darstellung der Datentransformation. Während die Daten im Eingaberaum nicht linear trennbar sind, können sie nach einer Transformation über eine Kernel-Funktion in einen höherdimensionalen Merkmalraum (engl. Feature-Space) linear separiert werden.

Die Generalisierbarkeit kann über das Prinzip der Maximum Margin Hyperplane realisiert werden ([190]). Die Hyperebene wird dazu mit dem größtmöglichen Abstand zu den jeweiligen Datenpunkten aus den verschiedenen Klassen konstruiert, sodass eine größere Verschiebung der Hyperebene nicht notwendig ist ([191]).

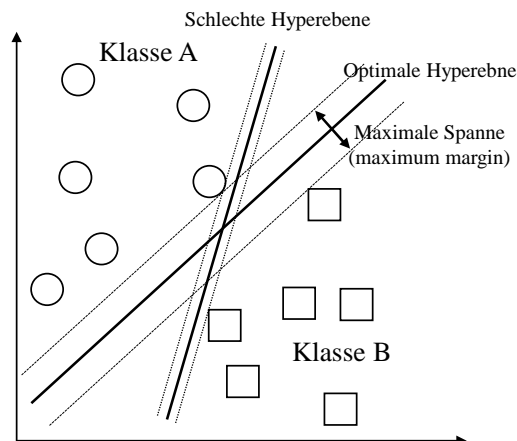


Abbildung 7-3: Prinzip der Maximum Margin Hyperplane. Es wird die Hyperebene ausgewählt, die den maximalen Abstand (margin) zu den Datenpunkten aufweist.

In vielen Fällen wird es jedoch nicht möglich sein, alle Daten durch eine Hyperebene eindeutig zu trennen, wie in Abbildung 7-4 dargestellt. Das Konzept der sog. Soft Margin Hyperebene erlaubt Ausreißer, die über fehlergewichtete Schlupfvariablen ζ beschrieben werden ([192]).

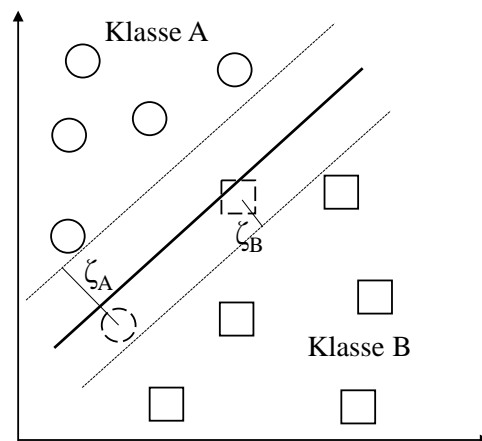


Abbildung 7-4: Darstellung der Soft Margin Hyperplane. Das Konzept erlaubt Datenpunkte, die jenseits der Trennebene liegen. Diese werden über fehlergewichtete Schlupfvariablen ζ berücksichtigt.

Meist sollen Daten jedoch in weit mehr als zwei Klassen unterteilt werden. Neben Ansätzen, mehrere SVMs zu kombinieren (one versus one; one versus all), bietet die sog. LibSVM verschiedene Variationen und Kombinationen daraus für die Multi-Klassen-Klassifikation. Für deren tiefere Beschreibung sei auf die einschlägige Literatur ([193], [194]) verwiesen.

7.2.1 Gegenwärtiger Kenntnisstand

Roberts ([184]) nutzte erstmalig Data-Mining Verfahren zur Gefügeklassifizierung. Mittels Stützvektorverfahren klassifizierte sie die unterschiedlichen Ausprägungen von Lamellengraphit in Gusseisen, indem sie die stereologischen Parameter ([195]) sowie die Texturparameter nach Haralick ([196]) aus den Gefügeaufnahmen extrahierte. Somit konnte nicht nur eine objektive Gefügeklassifizierung mit einer Präzision von über 80 % erreicht werden, sondern auch die Signifikanz einzelner Parameter bestimmt werden. Velichko ([182]) und Richter ([197]) erweiterten den Ansatz von Roberts et. al auf andere Graphit-Morphologien in Gusseisen und erreichten ebenfalls beachtliche Ergebnisse. Sie konnten die Präzision der Klassifizierung durch einen teilchenbasierte Ansatz auf über 90 % verbessern. Lediglich für kleine Objekte waren die extrahierten Merkmale nicht ausreichend, um eine gute Klassifizierung zu erreichen. Das entwickelte Verfahren wurde schließlich in einer Software namens POCA implementiert ([198]). Auch Gajalakshmi et. al nutzten die SVM zur Klassifizierung von Gusseisen ([180]) und erreichten gar eine Genauigkeit von über 90 %.

Darüber hinaus werden SVM häufig als Klassifikatoren für Merkmale verwendet, wie sie mittels Convolutional Neural Networks (CNN) ([155], [156]), sog. „bag of visual features“

7. Gefügeanalyse

([154]), Haralickparametern und Local Binary Patterns (LBP) extrahiert werden ([180]). Im Rahmen des Kapitels 7.3 wird auf die CNN näher eingegangen.

7.2.2 Versuchsgestaltung

Als Ausgangspunkt für eine solide Klassifizierung müssen zunächst eindeutige Gefügaufnahmen verwendet werden. Aus diesem Grund werden die in Kapitel 4 vorgestellten, zweiphasigen Stahlgefüge genutzt. Eine Übersicht über die verwendeten Proben ist in Tabelle 7-1 dargestellt. Nach einer entsprechenden Präparation (Tabelle 4-1) werden die Proben gemäß der unter Kapitel 5.4 beschriebenen, angepassten Beraha-Ätzung kontrastiert.

Tabelle 7-1: Aufstellung der Probenbezeichnung und der vorliegenden zweiten Phasen gemäß Kapitel 4. Diese Proben wurden als Datenbasis für die Gefügeklassifizierung genutzt.

Probenbezeichnung	Zweite Phase
1318	Martensit
1319	
1450	
1452	
A061	
Z21A	
Z518B	Martensit/Angelassener Martensit
01543	Perlit
60510	
C858	Bainit
C863	
Z272	

Um sowohl Limi- als auch REM-Aufnahmen der gleichen Position auswerten zu können, werden die zu untersuchenden Bereiche (Blechviertel und/oder Blechdreiviertel) mit Härteeindrücken (HV1) im Abstand von 300 μm versehen. Anschließend wird jeweils ein, aus mehreren Einzelbildern bestehendes, zusammengesetztes Kachelbild erstellt, wobei die einzelnen Kacheln je nach Strukturgröße mit einem 50-fachen bzw. 100-fachen Objektiv aufgenommen werden und jeweils eine Auflösung von 1388 \times 1040 px besitzen.

Die REM-Aufnahmen innerhalb dieser Limi-Aufnahmen werden mit einer Spannung von 5 kV, einem Strom von 10 nA und einer Einzelaufnahmeauflösung von 4096 \times 3072 px mittels Sekundärelektronen über einen Everhart-Thornley-Detektor (ETD) aufgenommen. Die

7. Gefügeanalyse

Einzelbilder werden schließlich mittels Microsoft Image Composite Editor zu einer Gesamtaufnahme zusammengesetzt.

Nach einer Bildregistrierung und Segmentierung (Kapitel 6.1), die einerseits ein komplettes Korn und andererseits die Substruktur beinhaltet, werden schließlich folgende Parameter (Tabelle 7-2) aus der Quantifizierung mittels AxioVision, a4i und Mavi objektweise extrahiert:

Tabelle 7-2: Extrahierte Gefügeparameter aus AxioVision, a4i und Mavi. Diese Parameter werden als Attribute für die Klassifizierung übernommen.

Durchmesser	Ellipse (große Halbachse)	Ellipse (kleine Halbachse)	Faserlänge	Achsen- verhältnis
Max-Feret	Min-Feret	Feret-Verhältnis	Fläche (Limi)	Fläche gefüllt (Limi)
Fläche konvex (Limi)	Fläche zu Gesamtfläche (Limi)	Formfaktor (AxioVision)	Max. einge- schriebener. Kreis	Radius
Umfang	Mittlerer Feret	Umfang konvex	Max. Grauwert	Min. Grauwert
Normierter Grauwert	Streckung D (Feretverhältnis a4i)	Streckung F (Kreisfläche/MaxFeret ²)	Eulerzahl (REM)	Eulerzahl (Limi)

Daraus abgeleitet wird des Weiteren das Verhältnis aus der mittels Limi und REM ermittelten Fläche. Dieser Wert dient als Anhaltspunkt für die Dichte der Substruktur. Weitere Details zu den in Tabelle 7-2 aufgeführten Parametern können [199], [200] entnommen werden.

Alle Daten werden schließlich in einer Tabelle zusammengefasst. Dabei werden alle Gefügeparameter als sog. Attribute mit einem Label, was der jeweils zugeordneten Phase entspricht, sowie einem Objekt-Identifikator versehen. Generell muss bei allen Angaben auf den korrekten Wertetyp geachtet werden.

Die eigentliche Klassifizierung erfolgt innerhalb des Programms RapidMiner ([201]). Zur Multi-Klassen-Klassifizierung wird eine LibSVM mit einem sog. radial basis function-Kernel (kurz RBF-Kernel) gewählt, wie von Hsu et. al beschrieben ([202]). Das eigentliche Modell wird mittels der beiden Parameter C (Maß für die Morphologie der Klassengrenze) und γ (Einfluss einer einzelnen Messung) definiert und über eine sog. Grid Search festgelegt. Der Prozessablauf zum Trainieren ist in Abbildung 7-5 dargestellt.

7. Gefügeanalyse

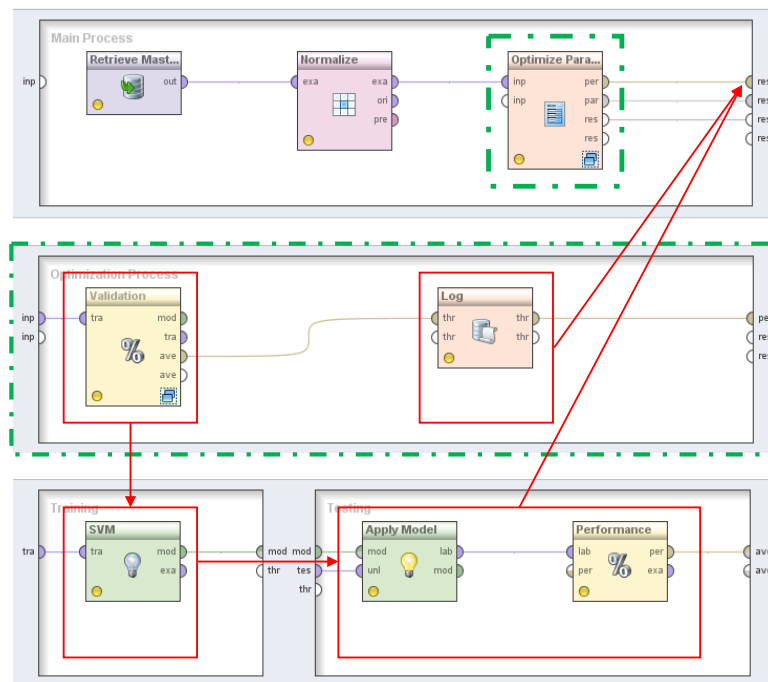


Abbildung 7-5: Darstellung des Ablaufs zum Training einer Klassifizierung mittels SVM. In dem Hauptprozess werden zunächst die Daten aus der Liste, die sämtliche Objekte mit Attributen enthält, eingelesen und normalisiert. Dem schließt sich die Parametersuche für die SVM an. Dazu werden die Trainingsdaten aufgeteilt und mittels Kreuzvalidierung die passenden Parameter bestimmt. Alle Ergebnisse werden mitgeschrieben (Log). Die ermittelten Parameter werden schließlich in einem Sub-Prozess zum Training der SVM genutzt und auf die Trainingsdaten zur Überprüfung der Performance angewendet. Als Ausgabe wird schließlich die Klassifizierung für jedes Objekt mit den mitgeschriebenen Daten zu den Parametern und der Performance übergeben.

Der Trainingsprozess für die Klassifizierung, wie er in Abbildung 7-5 dargestellt ist, hat die folgende Struktur:

- Import und Erstellung des Datensatzes aus der gelabelten Parametertabelle.
- Normalisierung der Wertebereiche der Attribute mittels Operator „range transformation“.
- Grid-Search für die Bestimmung von C und γ innerhalb des Operators „Optimize Parameter“. Dieser Operator beinhaltet weitere Subprozesse:
 - Kreuzvalidierung der in der Grid-Search bestimmten Parameter mittels Operator „Validation (Split/X-Validation)“. Dazu werden die Proben in 80 % Trainings- und 20 % Testdaten aufgeteilt. Die Zusammenstellung dieser Daten wird mittels einer geschichteten Zufallsstichprobe (Operator: „stratified sampling“) derart ausgelegt, dass eine repräsentative Aufteilung gewährleistet ist.

- Mittels Log-Operator werden alle Ergebnisse mitgeschnitten und können schließlich zur Evaluierung und Auswertung genutzt werden.
 - Die finale Modellbildung wird auf Basis der Validierung ausgeführt. Die Trainingsdaten werden schließlich für das Klassifizierungsmodell mittels LibSVM genutzt.
 - Das so trainierte Modell wird schließlich auf die Testdaten mittels Apply Modell Operator angewendet.
 - Die Ergebnisse werden anhand des Operators „Performance“ ausgewertet, sodass Konfusionsmatrizen mit all ihren Kennwerten ausgegeben werden können.

Zur Darstellung der Klassifizierungsergebnisse wird eine sog. Konfusionsmatrix verwendet. In dieser Matrix wird die Referenzklasse, wie sie durch die Experten festgelegt wurde, gegen die vom Klassifikator zugeordnete Klasse aufgetragen. Somit ist nachvollziehbar, ob beispielsweise Objekte der Klasse A auch tatsächlich der Klasse A zugeordnet wurden. Aus dieser Darstellung können diverse Güteparameter einer Klassifizierung abgeleitet werden:

- Treffsicherheit (Accuracy): Beschreibt die Treffsicherheit des gesamten Modells, d. h. wie hoch der Prozentsatz an richtigen Klassifizierungen ist.
- Genauigkeit (Precision): Gibt die Genauigkeit der Klassifizierung und damit wie viele der Objekte richtig klassifiziert wurden, an. Sie wird über den Quotienten aus der Zahl der korrekt als Klasse A klassifizierten Objekte und der Gesamtzahl der als Klasse A klassifizierten Objekte berechnet, unabhängig davon, wie viele Objekte der Klasse A von der SVM fälschlicherweise einer anderen Klasse zugeordnet wurden. Eine niedrige Precision bedeutet, dass viele als Klasse A klassifizierte Objekte in Wahrheit einer anderen Klasse angehören.
- Trefferquote (Recall): Stellt die Trefferquote hinsichtlich Anteil der Objekte einer Klasse, die auch als solche klassifiziert wurden, dar. Sie ergibt sich aus dem Quotienten der Anzahl der korrekt als Klasse A klassifizierten Objekte und der Gesamtzahl der tatsächlich zu Klasse A gehörigen Objekte. Ein niedriger Recall bedeutet, dass viele Objekte der Klasse A einer anderen Klasse zugeordnet wurden.

7.2.3 Ergebnisse der Klassifizierung mittels Support Vector Machine

Die Support Vector Machine wird im Wesentlichen über die beiden Parameter C und γ gesteuert, wie sie im vorangegangenen Kapitel (7.2.2) beschrieben wurden. Um für den gegebenen Datensatz die beste Kombination dieser beiden Parameter zu identifizieren, ist zunächst gemäß Abbildung 7-5 eine sog. Grid-Search notwendig. In Tabelle 7-3 sind die Parameterräume sowie die jeweils besten Kombinationen nach einer vorangegangenen, groben Grid-Search, um den Zielbereich unter Berücksichtigung der Literatur ([202]) etwas einzugrenzen, aufgeführt.

Tabelle 7-3: Darstellung des Parameterraums für den Operator „Optimize Parameter“ zur Identifizierung der beiden, eine SVM beschreibenden, Parametern C und γ . Angeben sind die Wertebereiche sowie die Schrittweite, mit denen die sog. Grid-Search durchgeführt wird. Die Berechnungszeit sowie die jeweils besten Parameterkombinationen mit der entsprechenden Performance sind ebenfalls angegeben.

Einstellungen „Optimize Parameter“										
	Parameter „C“			Parameter „ γ “						
	Min	Max	Schrittweite	Min	Max	Schrittweite	Zeit (min)	Bestes „C“	Bestes „ γ “	Accuracy
1	200.000	300.000	1000	0,02	0,04	0,002	468	230.000	0,04	86,70 %
2	300.000	400.000	1000	0,02	0,04	0,002	785	327.000	0,028	86,64 %
2	800.000	900.000	125	0,02	0,04	0,002	3.267	890.910	0,03	83,13 %

Als Ergebnis dieser Parameteranalyse aus Tabelle 7-3 ist die Kombination aus $C = 230.000$ und $\gamma = 0,04$ mit 86,70 % – wenn auch nur minimal – am besten geeignet. Auch unter anderen Gesichtspunkten ist diese Kombination jedoch zu präferieren. Je niedriger der Parameter C ist, umso weniger stark werden falsche Klassifizierungen bestraft, was gleichzeitig eine bessere Generalisierbarkeit mit dem positiven Nebeneffekt, dass die Rechenzeiten deutlich kürzer sind, bedeutet. Auch unter diesen Gesichtspunkten ist diese Parameterkombination mit dem niedrigsten C zu bevorzugen.

Nach weiteren Voruntersuchungen hinsichtlich des Kernels der LibSVM ergibt sich eine merklich höhere Treffsicherheit (accuracy) des RBF-Kernels im Vergleich zum linearen Kernel von 7 % bei deutlich geringeren Rechenzeiten. Alle weiteren Ergebnisse beziehen sich daher auf eine LibSVM mit einem RBF-Kernel und den beiden Parametern $C = 230.000$ und $\gamma = 0,04$.

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Klassifizierung der Testdaten, die aus 429 Testobjekten der Martensitklasse, 89 Testobjekten der Klasse angelassener Martensit, 113

7. Gefügeanalyse

Testobjekten des Perlits sowie 265 Testobjekten der Bainit-Klasse bestehen, in Form einer Konfusionsmatrix in Tabelle 7-4 dargestellt. Zunächst werden lediglich die Parameter aus der Limi-Quantifizierung (Tabelle 7-2) berücksichtigt.

Tabelle 7-4: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügaufnahmen. Insbesondere der angelassene Martensit konnte nicht korrekt klassifiziert werden. Die Accuracy für alle Daten beträgt 55,25 %.

Referenz \ Klassifizierung	Martensit	Angel. Martensit	Perlit	Bainit	Precision
Martensit	379	74	92	161	54 %
Angel. Martensit	0	0	0	0	0 %
Perlit	0	0	13	1	93 %
Bainit	50	15	8	103	59 %
Recall	88 %	0 %	12 %	39 %	Accuracy 55,25 %

Die korrekten Zuordnungen sind auf der Diagonalen dargestellt und grau eingefärbt. Mit 55,25 % ist die Accuracy sehr niedrig, was insbesondere durch die schlechten Ergebnisse der Objekte aus der angelassenen Martensit-Klasse zu erklären ist. Bei genauerer Betrachtung der zugeordneten Objekte dieser Klasse ist erkennbar, dass der überwiegende Anteil der Objekte (74) dem Martensit zugeordnet wird. Dies ist insofern nachvollziehbar, als dass sich der Martensit und der angelassene Martensit nicht in der Kornmorphologie, welche mittels der Limi-Quantifizierung erfasst werden kann, unterscheiden, sondern lediglich in der Ausscheidung von Zementitpartikeln, die sich im Limi generell und mit den gewählten Parametern im Speziellen nicht erfassen lassen. Unter diesen Gesichtspunkten ist eine Zusammenfassung dieser beiden Klassen für eine Limi-Bewertung sinnvoll. Auch der Perlit liefert mit der bestehenden SVM eine sehr niedrige Trefferquote (Recall), wohingegen die Genauigkeit (Precision) bereits sehr gut ist. Der Bainit wird überwiegend dem Martensit zugeordnet, was aus materialwissenschaftlicher Sicht ebenfalls nachvollziehbar erscheint, da es sich in beiden Fällen um eine diffusionslose Umwandlung handelt ([10]). Zudem kommt die sehr inhomogene Zusammensetzung der Proben innerhalb dieser Klasse erschwerend hinzu. Auf diesen Punkt wird in den Kapiteln 7.2.4 und 7.3.4 näher eingegangen.

7. Gefügeanalyse

In Tabelle 7-5 ist die Konfusionsmatrix für die Klassifizierung der Limi-Gefügekennwerte dargestellt, wobei die Klassen Martensit und angelassener Martensit zusammengefasst werden. Demnach wächst die Martensit-Klasse auf 517 Testobjekte an.

Tabelle 7-5: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügeaufnahmen, wobei die martensitischen und angel. Martensit-Proben zusammengefasst sind. Die Accuracy für alle Daten beträgt 73,85 %.

Referenz \ Klassifizierung	Martensit	Perlit	Bainit	Precision
Martensit	470	57	126	72 %
Perlit	14	54	2	77 %
Bainit	33	2	137	80 %
Recall	91 %	48 %	52 %	Accuracy 73,85 %

Durch die Zusammenfassung des angelassenen Martensits und des Martensits kann eine deutliche Performance-Steigerung erzielt werden. Die Accuracy steigt für die gegebenen Testdaten auf 73,85 %. Während der Martensit einen hohen Recall aufweist, wird jedoch nur die Hälfte sowohl des Perlits als auch des Bainits korrekt erkannt.

Um mit dem bestehenden Klassifizierungsvorhaben höhere Erfolgsraten erzielen zu können, ist die Berücksichtigung der Substruktur von zentraler Bedeutung. Aus diesem Grund werden die im Abschnitt 7.2.2 in Tabelle 7-2 aufgeführten Parameter „Eulerzahl REM“ sowie das Verhältnis aus der mittels Limi und REM ermittelten Objektfläche, was als Maß für die Substrukturdichte angesehen werden kann, zu den Attributen hinzugefügt (Tabelle 7-6).

7. Gefügeanalyse

Tabelle 7-6: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügeaufnahmen mit zusätzlichen Informationen aus dem REM (Eulerzahl und Substrukturichte). Der angelassene Martensit kann trotz REM noch nicht ausreichend gut klassifiziert werden. Die Accuracy für alle Daten beträgt 64,74 %.

Referenz \ Klassifizierung	Referenz				Precision
	Martensit	Angel. Martensit	Perlit	Bainit	
Martensit	373	75	58	103	61 %
Angel. Martensit	4	6	1	2	45 %
Perlit	6	0	52	2	87 %
Bainit	46	8	1	158	74 %
Recall	87 %	7 %	46 %	60 %	Accuracy 64,74 %

Die Hinzunahme dieser beiden Parameter führt zu einer signifikanten Steigerung der Accuracy auf 64,74%. Bei genauer Betrachtung fällt jedoch auf, dass der angelassene Martensit nach wie vor sehr unzureichend klassifiziert werden kann. Werden wiederum die beiden Martensit-Klassen zusammengefasst, ergibt sich ein wesentlich besseres Bild, was der Konfusionsmatrix in Tabelle 7-7 entnommen werden kann.

Tabelle 7-7: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügeaufnahmen unter Einbeziehung der REM-Informationen, wobei die martensitischen und die angel. Martensit-Proben zusammengefasst sind. Die Accuracy für alle Daten beträgt 82,35%.

Referenz \ Klassifizierung	Referenz			Precision
	Martensit	Perlit	Bainit	
Martensit	482	48	70	80 %
Perlit	8	62	2	86 %
Bainit	27	3	193	87 %
Recall	93 %	55 %	73 %	Accuracy 82,35 %

Mit 82,35 % wird eine sehr gute Klassifizierungs-Treffsicherheit erzielt. Sowohl die Martensitklasse als auch die Bainitklasse zeigen zufriedenstellende Recall- und Precision-Werte. Lediglich der Recall des Perlits fällt im Vergleich deutlich ab.

7.2.4 Diskussion der Ergebnisse

Die Ergebnisse aus Kapitel 7.2.3 erfordern eine tiefere Betrachtung und Untersuchung der Klassifizierungsergebnisse. Unter Berücksichtigung des Datensatzes fallen zunächst die teils sehr unterschiedlichen Erscheinungsformen der jeweiligen zweiten Phase der unterschiedlichen Proben auf (Abbildung 7-6). Um diesen Aspekt systematisch untersuchen zu können, wird statt der vorgegebenen Klassen gemäß ihrer zweiten Phase (Tabelle 7-1) eine Klassifizierung mit der bereits trainierten SVM nach Probennummer durchgeführt. Das Ergebnis ist in Tabelle 7-8 als Konfusionsmatrix aufbereitet.

Tabelle 7-8: Konfusionsmatrix der Klassifizierung nach Probe. Zur besseren Übersicht sind die zugeordneten Phasen in Klammern angegeben (M = Martensit, a = angel. Martensit, P = Perlit, B = Bainit).

Referenz \ Klassifizierung	Referenz												Precision (%)
	1318 (M)	1319 (M)	1450 (M)	1452 (M)	A061 (M)	Z21A (M)	Z518B (a)	01543 (P)	60510 (P)	Z272 (B)	C858 (B)	C863 (B)	
1318 (M)	26	5	0	0	0	0	6	0	1	0	3	10	51
1319 (M)	2	26	0	1	0	1	4	1	0	0	0	3	68
1450 (M)	5	0	66	9	1	1	3	1	4	1	0	1	72
1452 (M)	0	3	9	41	16	5	1	4	8	0	0	0	47
A061 (M)	0	6	3	17	50	0	2	4	7	1	0	0	56
Z21A (M)	1	3	5	5	1	36	3	1	0	0	0	7	58
Z518B (a)	7	0	6	4	1	6	57	0	2	0	0	14	59
01543 (P)	1	0	0	0	0	0	0	31	10	0	0	0	66
60510 (P)	23	0	7	4	0	6	13	6	29	1	0	1	57
Z272 (B)	0	0	0	0	0	0	0	1	0	2	0	1	50
C858 (B)	0	2	0	2	2	0	0	0	0	0	56	0	98
C863 (B)	0	3	0	1	10	0	0	3	0	0	0	164	75
Recall (%)	40	54	69	49	62	66	64	60	48	40	95	82	

7. Gefügeanalyse

Während wiederum die korrekten Zuordnungen auf der Hauptdiagonalen dunkelgrau eingefärbt sind, sind auch die Proben, die ursprünglich einer Klasse zugeordnet wurden, jeweils leicht grau hinterlegt. Im vorliegenden Fall bedeuten Einträge im grau eingefärbten Bereich, dass das Modell sehr gut verallgemeinert. Werden lediglich Einträge auf der Hauptdiagonalen erzielt, ist neben der Problematik der ausbaufähigen Objektanzahl grundsätzlich auch die Möglichkeit einer Überanpassung (engl. Overfittings) in Betracht zu ziehen. Demnach sind die Proben mit der Bezeichnung 1318 bis Z21A der Klasse Martensit zuzuordnen, Z518B gehört zur Klasse des angelassenen Martensits, 01543 sowie 60510 entsprechen der Klasse Perlit und die drei Proben Z272, C858 und C863 werden in die Bainit-Klasse eingeordnet. Mit einer Ausnahme bei Probe 1318, bei der fälschlicherweise 23 Testobjekte der Klasse C858 (also Bainit) zugeordnet wurden, sind die Ergebnisse überwiegend innerhalb der Martensitklasse korrekt identifiziert worden. Die Probe mit angelassenem Martensit (Z518B) zeigt wiederum viele Treffer für Martensit sowie einige Treffer bei der bainitischen Probe C863. Auch die perlitischen Proben werden sehr gut erfasst und werden zumeist – mit wenigen Treffern beim Martensit – innerhalb der Perlitklasse zugeordnet. Bei den bainitischen Proben sind die Ergebnisse generell probenweise sehr zufriedenstellend zugeordnet, jedoch zeigen die fehlenden Zuordnungen innerhalb der Bainitklasse (hellgrau unterlegte Einträge), dass die Varianz innerhalb dieser Gruppe sehr groß scheint. Neben der geringen Anzahl an Objekten kommt bei Probe Z272 erschwerend hinzu, dass es sich bei genauer Betrachtung um eine bainitische Probe handelt, die nachträglich normalisiert wurde. Dieser Umstand erschwert die Klassifizierung zusätzlich. Zur besseren Verständlichkeit ist in Abbildung 7-6 jeweils ein Korn aus den drei bainitischen Proben dargestellt.

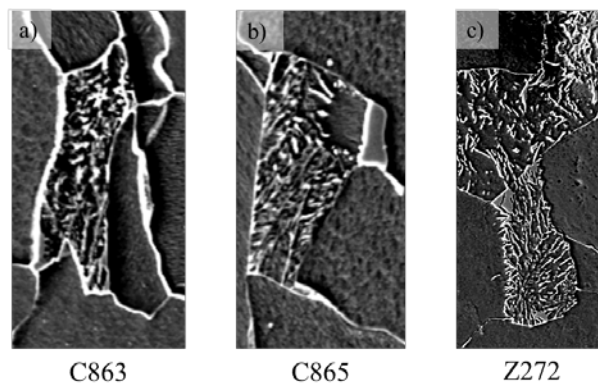


Abbildung 7-6: Ausschnitte aus den Bildern des bainitischen Probensatzes. a) C863, b) C865 und c) Z272. Insbesondere der Unterschied von Probe Z272 ist herauszustellen und liegt in der nachträglichen Normalisierung dieser Probe.

Bedingt durch die gewählte Kontrastierung (Beraha-Ätzung) erscheint die Substruktur der Probe C863 durchaus ähnlich zu einer martensitischen Probe. Probe C865 weist darüber hinaus viele MAs (homogene, glatte graue Bereiche in Abbildung 7-6 b)) auf. Die größten Unterschiede sind jedoch in Probe Z272 zu erkennen, da es sich um eine normalisierte Probe handelt. Die Notwendigkeit, insbesondere die Bainit-Klasse mit all ihren Unterklassen gemäß [12], [13], [15] tiefergehender zu beleuchten, wurde erkannt und wird in einer anschließenden Promotion mit dem Titel „Quantifizierung und Klassifizierung von bainitischen Gefügestrukturen“ weiterverfolgt. Auf die Möglichkeiten der Erweiterung der Datensätze wird im Kapitel 7.3.2 unter dem Begriff „Data Augmentation“ näher eingegangen.

Im direkten Vergleich mit der erfolgreichen Klassifizierung von Gusseisen ([182], [184]) bleibt festzuhalten, dass im Fall des Stahls ein deutlich höherer Aufwand zu betreiben ist, da die wesentlichen Unterschiede der Klassen bzw. Phasen in der Substruktur und nicht ausschließlich in der Kornmorphologie zu suchen sind. Da es sich im vorliegenden Fall um einen sog. supervised learning-Ansatz handelt, bei dem die Klassen manuell vorgegeben werden müssen, kommt den initialen Bewertungen menschlicher Experten eine empfindliche Rolle zu. Da in diesem Bereich bereits bei der Klassendefinition noch erheblicher Forschungsbedarf besteht ([203]), was zudem Inhalt vorwettbewerblicher Arbeitskreise (z. B. VDEh – Fachausschuss Metallographie, Gefüge- und Werkstoffmikroanalytik – Arbeitskreis Erweiterung der Gefügeanalyse mit dem Rasterelektronenmikroskop) ist, stellt dieser Punkt die Schwachstelle des gesamten Systems dar. Möglichkeiten des unsupervised learning ([186]) sollten daher in Zukunft ebenfalls betrachtet werden.

Eine allgemeine kritische Diskussion des Verfahrens ist ebenfalls notwendig. Zunächst sei dazu generell neben der vergleichsweise geringen Objektanzahl und den teils inhomogenen und unausgewogenen Klassen die Datenerfassung mittels REM aufzuführen. REM-Aufnahmen sind sowohl hinsichtlich der Datengröße, -verarbeitung und Zeit als Nadelöhr der gesamten Klassifizierung anzusehen. Ein höherer Automatisierungsgrad, wie er von einigen Mikroskopherstellern angeboten wird oder intelligente Scanalgorithmen ([135]) wäre dahingehend in der Zukunft ein Ansatzpunkt und ist Bestandteil eines eingereichten DFG-Antrages („An Automated and Adaptive Image Acquisition Pipeline for the Classification of Microstructures“).

Als entscheidender Punkt im gesamten Prozess ist die Auswahl der Trainingsdaten zu sehen. In der vorliegenden Arbeit wurde der komplette Datensatz zur eigentlichen Modellbildung verwendet. Demnach wurden auch alle Objekte innerhalb der Klassifizierung einer Normalisierung und vollständig einer Kreuzvalidierung unterzogen. Dies birgt die Gefahr eines sog. Overfittings in sich, sodass das Modell überangepasst ist und die Klassifizierung, statt einer Verallgemeinerung, innerhalb der Klassengrenzen auswendig lernt. Ebenso kritisch ist die Validierung zu sehen. Auch für diesen Zweck wurde der gleiche Datensatz wie zum Trainieren verwendet und lediglich mit einer einfachen Split-Validierung, die die Trainings- zu Testdaten im Verhältnis 80:20 aufteilt, versehen. Da die Testdaten jedoch bereits zur Bestimmung der beiden Parameter C und γ herangezogen und normalisiert wurden, sind bereits Vorinformationen in die finale Entscheidung mit eingeflossen. Dieser Punkt wird unter dem Stichwort Datenaufteilung auch im folgenden Kapitel 7.3 genauer adressiert. Generell bedarf die Datenvorverarbeitung weiterer systematischer Überlegungen.

Im vorgestellten Ansatz werden bisweilen viele morphologische Parameter ohne weitere Gewichtung und tiefergehende Betrachtung zur Klassifizierung herangezogen. Neben einer Reduzierung und dem Löschen einzelner bzw. redundanter Parameter (Tabelle 7-2) sollten mittels Signifikanzanalyse die wichtigsten morphologischen Parameter identifiziert werden, um das Modell effizienter und schneller zu gestalten. Darüber hinaus birgt die Substrukturfassung – insbesondere im vorliegenden Fall der Stahlklassifizierung – enormes Potential. Neben klassischen Parametern, die in der Gefügeanalyse bereits bekannt sind, sind abstrakte, pixelbasierte Parameter wie die LBP-Features, die eine Pixelnachbarschaft auswerten ([204]), oder auch Methoden des Deep Learnings ([205]), die im Kapitel 7.3 näher beschrieben werden, zu diesem Zweck denkbar.

Kleine Objekte stellen die Schwachstelle bei jeder Klassifizierung dar. Für derartige Fälle scheint daher entweder die Angabe einer Mindestobjektgröße oder die Einbindung von Kontextinformationen (z. B. sog. Max-Voting-Ansätze [171]) sinnvoll.

Auf die Informationen einer REM-Untersuchung zur Klassifizierung kann unter Berücksichtigung aller genannten Aspekte nicht verzichtet werden.

7.2.5 Fazit der Klassifizierung mittels Support Vector Machine

Es konnte erfolgreich ein Konzept zur Klassifizierung mittels SVM anhand morphologischer Parameter etabliert werden. Die LibSVM mit einem RBF-Kernel lieferten dabei die besten Ergebnisse und mit den gefunden Parametern $C = 230.000$ und $\gamma = 0,04$ konnten bereits mit dem gegebenen Datensatz, besonders für den Martensit, sehr gute Ergebnisse erzielt werden. Die deutliche Verbesserung der Klassifizierung durch die sehr rudimentären Substrukturinformationen über die registrierten REM-Aufnahmen zeigen, dass ein zukünftiger Schwerpunkt bei der gezielten Erfassung der Substruktur (z. B. Haralick [51], [196]) liegen muss. Insbesondere die bainitische Klasse bedarf jedoch noch tiefergehender Untersuchung. Auch Informationen, die über weitere korrelative Verfahren erfasst werden, können zur Verbesserung der Klassifizierung herangezogen werden. EBSD-Daten sind dabei besonders hervorzuheben, da sie beispielsweise durch Informationen über die Missorientierungen einen enormen Mehrwert liefern können (siehe Kapitel 7.4). Eine Erweiterung der Klassifizierung auf 3D-Gefügeinformationen ist ebenfalls denkbar.

Die Ergebnisse untermauern das Potential des vorgestellten Ansatzes. Die genaue Betrachtung der Klassifizierung zeigt, dass jedoch umfängliche, weitere Arbeiten auf dem Weg zu einer verlässlichen, automatischen Klassifizierung von Stahlgefügen notwendig sind. Aus diesem Grund wird basierend auf den vorgestellten Ergebnissen in einer weiteren Promotion mit dem Thema „Verfahren zur objektiven Gefügeklassifizierung“ der Ansatz weiterverfolgt. Erste Ergebnisse wurden ebenfalls bereits gemeinsam veröffentlicht ([52]). Die Klasse des Bainits stellt sich darüber hinaus als größte Herausforderung dar. Eine weitere Promotion, die sich mit der Klassifizierung des Bainits mittels SVM widmet, wird daher im Anschluss an die vorliegende Arbeit durchgeführt.

Basierend auf den Erkenntnissen aus dem Klassifizierungsansatz über morphologische Parameter mittels SVM wird im Folgenden ein alternativer Ansatz vorgestellt, der gezielt auf die Substrukturen der zweiten Phase abzielt, die Problematik der Größe des Datensatzes aufgreift und die Segmentierung und Klassifizierung intelligent zusammenführt.

7.3 Klassifizierung mittels Deep Learning

Neben den diskutierten Ansätzen der Klassifizierung mittels SVM sind die Erfolge von Deep Learning Methoden ([206]) allgegenwärtig. Neben den rasanten Fortschritten im Bereich der Objekt- und Gesichtserkennung war es der Sieg eines Deep Learning Algorithmus (AlphaGo) im höchst komplexen Brettspiel „Go“ gegen den gegenwärtig besten menschlichen Spieler im Jahr 2016, der diesen Ansatz in die breite Öffentlichkeit brachte ([207]).

Das Prinzip von Deep Learning beruht auf künstlichen neuronalen Netzen ([208]), einer Nachempfindung biologischer Neuronen. Dabei werden Eingangssignale mit einer entsprechenden Gewichtung zu einem Ausgangssignal verarbeitet und sind dabei untereinander vernetzt ([205]). Eine schematische Darstellung eines neuronalen Netzes¹⁷ ist in Abbildung 7-7 aufgeführt.

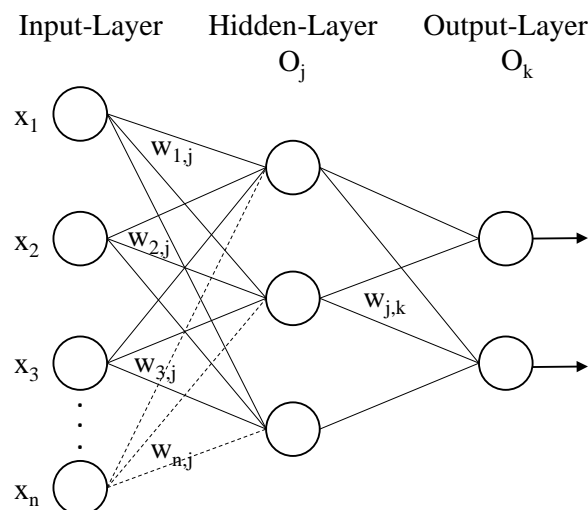


Abbildung 7-7: Darstellung eines einfachen neuronalen Netzes bestehend aus drei Ebenen (Layers): Dem Input-, Hidden- und Output-Layer. Jedes Eingangssignal wird von allen Neuronen im Input-Layer aufgenommen und verarbeitet. Jeder Output eines Neurons (dargestellt als Kreis) wird anschließend gewichtet ($w_{n,j}$) an den nächsten Layer, der wiederum aus vollständig vernetzten Neuronen besteht, übergeben. In der letzten Ebene (Output-Layer) wird schließlich das Ausgangssignal (zum Beispiel eine Klassifizierung) erzeugt.

Die Anwendung traditioneller neuronaler Netze mit vollständig verbundenen Neuronen im Bereich der Bildverarbeitung würde allerdings zu einer Vielzahl trainierbarer Parameter führen. Außerdem sind die klassischen neuronalen Netze nicht in der Lage, die natürlichen Strukturen

¹⁷ Eine weiterführende und grundlegende Beschreibung zu neuronalen Netzen kann [186] entnommen werden.

7. Gefügeanalyse

in Bildern, wie beispielsweise die Korrelation zwischen benachbarten Pixeln, zu berücksichtigen.

Eine Weiterentwicklung der klassischen neuronalen Netze sind die sog. Convolutional Neural Networks (CNNs), ([209]). Das Grundkonzept der CNNs wurde bereits in den 1980er Jahren vorgestellt ([210]), mit der Zunahme von Rechenressourcen, verfügbaren Datenbanken und besseren Lernalgorithmen haben sie in jüngerer Vergangenheit jedoch ein neues Qualitätsniveau in einer Reihe von Domänen erreicht. Daher sind CNNs die modernsten Ansätze in vielen Bildverarbeitungsanwendungen. Typische CNNs bestehen aus mehreren, sich wiederholenden Komponenten, die in Schichten (engl. Layer) angeordnet sind. Die wesentlichen Bestandteile dabei sind: Faltung (engl. Convolution), Bündeln (engl. Pooling) und vollständig verbundene Klassifizierungsschichten (engl. fully connected layers).

Die primäre Aufgabe der Convolution Layer ist die Extraktion von Merkmalen. Dazu werden die Eingangsdaten mit einem linearen Faltungsfilter bearbeitet. Das Ergebnis sind sog. Feature Maps. Die „Tiefe“ des Layers wird durch die Anzahl an angewendeten Filtern bestimmt. Jeder Filter erzeugt eine Feature Map. Da es sich bei den Filtern um lineare Operationen handelt, die meisten Klassifizierungsprobleme jedoch nicht-linear sind, werden sog. Rectified Linear Units (kurz: ReLu)-Funktionen verwendet. Dabei werden alle negativen Werte der Feature Map auf null gesetzt ([206]).

Um die Dimensionalität der einzelnen Feature Maps zu reduzieren (x und y stellen die Pixelauflösung des Bildes bzw. der Feature-Map dar, z wird über die Tiefe des Layers, d. h. die Anzahl der angewendeten Filter, bestimmt), wird das Pooling eingesetzt. Im Fall des sog. Max-Pooling wird dazu lediglich der größte Wert innerhalb einer zu definierenden Pixelnachbarschaft verwendet ([211]). Dementsprechend reduziert sich die Dimension in x und y , d. h. es werden lediglich die relevanten Signale weitergegeben. Auch die Gefahr der Überanpassung wird gemindert und das gesamte System wird weniger anfällig für kleine Abweichungen. Gleichzeitig kann die Rechenzeit schrittweise minimiert werden. Mit diesem Schritt werden die Merkmale auch größen- und positionsinvariant, unabhängig davon, wie groß das zu klassifizierende Objekt ist oder wo es im Bild liegt.

Diese beiden Schritte werden üblicherweise mehrfach hintereinander ausgeführt. Daran schließen sich die fully connected layer an, die wie klassische künstliche neuronale Netze ([186])

angeordnet sind und mehrere Layer beinhalten, die jeweils vollständig miteinander verknüpft sind. Dieser Schritt ist für die Klassifizierung notwendig. In diesem Layer werden die extrahierten Merkmale für die Klassifikation unterteilt und auch mit verschiedensten Gewichtungen kombiniert. In der letzten Ebene des fully connected layers erfolgt schließlich die eigentliche Klassifizierung, die die extrahierten Merkmale bzw. Features über verschiedene Ansätze wie die SVM (siehe Kapitel 7.2) oder die sog. Softmax-Funktion – eine Normalisierungsfunktion, die aus den jeweils aktivierten Neuronen Klassenwahrscheinlichkeiten berechnet ([212]) – verarbeitet und darauf basierend eine Klassifizierung vornimmt.

Das eigentliche Trainieren wird über eine sog. Rückprojektion (engl. Backpropagation) realisiert ([213]). Zu Beginn werden alle Filter, Parameter und Gewichtungen zufällig festgelegt. Mit Trainingsdaten wird schließlich das Netz durchlaufen und mit der bekannten Referenz (ground truth) verglichen. Die Abweichung wird schließlich berechnet und zurück in das Netzwerk zu sämtlichen Filtern, Parametern und Gewichtungen über einen Gradienten eingepflegt. Dieser Schritt wird solange wiederholt, bis die Trainingsdaten korrekt klassifiziert sind. Anschließend wird die Leistung anhand von Testdaten bewertet.

Damit das System nicht auswendig lernt (engl. overfitting) wird zusätzlich ein sog. Dropout Layer in das Netz eingefügt. Dieser Ansatz erhöht merklich die Generalisierbarkeit, in dem es zufällig einzelne Neuronen während des Trainingsprozesses ausblendet. [214]

Die folgenden Ergebnisse wurden in Nature Scientific Reports veröffentlicht ([56]) und entstanden in Zusammenarbeit mit dem Max Planck Institut für Informatik in der Gruppe von Dr. Mario Fritz im Rahmen der gemeinsam betreuten Masterthesis von Seyed Majid Azimi.

7.3.1 Gegenwärtiger Kenntnisstand

Generell werden Deep-Learning-Methoden bei der Objektklassifikation und der semantischen Segmentierung von Bildern für verschiedene Anwendungen bereits seit geraumer Zeit eingesetzt. AlexNet, ein CNN mit sieben Layern, das von Alex Krizhevsky et al. ([215]) vorgeschlagen wurde, war der Gewinner der „ImageNet Large Scale Visual Recognition Challenge“ (ILSVRC) im Jahr 2012, die eine der bekanntesten Aufgaben der Objektklassifikation in der Computer Vision Community ist ([216]). Dies ist der Hauptgrund dafür, dass die Deep-Learning-Methoden in der Wissenschaft viel Aufmerksamkeit erregt

haben. AlexNet verbesserte die Genauigkeit bei der ILSVRC 2012 um zehn Prozent. Durch VGGNet, eine von Simonyan et al. ([217]) vorgeschlagene CNN-Architektur, die eine weitere Zunahme an Layern beinhaltet, konnte die Klassifizierungsgenauigkeit noch einmal gesteigert werden. Die Fully Convolutional Neural Networks (FCNNs) Architektur, vorgeschlagen von Long et al. ([218]), ist eine der ersten und bekanntesten Arbeiten zur Anpassung der Objektklassifikations-CNNs an semantische Segmentierungsaufgaben. FCNNs und ihre Erweiterungen des Ansatzes sind derzeit Stand der Technik in der semantischen Segmentierung.

Im Bereich der Gefügeklassifizierung erscheinen die Deep-Learning-Methoden ebenfalls sehr vielversprechend, da sie in der Lage sind, abstrakte Merkmale (sog. High-Level-Features) aus Rohdaten zu extrahieren. Diese CNNs können für Erkennungs- und semantische, pixelweise Segmentierungsaufgaben trainiert werden. Im Gegensatz zu traditionellen Methoden, wie sie bereits in Kapitel 7.2 beschrieben wurden, bei denen Merkmalextraktion bzw. Quantifizierung und Klassifikation getrennt voneinander erlernt werden und auf pixel- und kontextbasierten Bildanalyseschritten beruhen, werden bei Deep Learning Methoden diese Teile gemeinsam erlernt.

Masci et al. nutzen beispielsweise CNNs, um Defekte in Stahl zu detektieren ([178]). Erste Klassifizierungsaufgaben für verschiedene Materialien ([154]), einzelne Gefügebestandteile wie Dendriten ([155]) oder auch für ultrahochfeste Stähle ([156]) wurden ebenfalls mittels Deep Learning Algorithmen erfolgreich bearbeitet.

Im Folgenden werden Deep Learning Ansätze verwendet, um einen segmentationsbasierten Ansatz auf Basis von Fully Convolutional Neural Networks gemäß ([218]) sowie eine Erweiterung von CNNs, die auf einem sog. Max-Voting-Schema beruhen, zur Klassifizierung von Stahlgefügen am Beispiel des gegebenen Datensatzes aus Tabelle 7-1 anzuwenden.

7.3.2 Versuchsgestaltung

Als Datenbasis dienen die Aufnahmen von zweiphasigen Stahlgefügen (Kapitel 4), wie sie bereits für die Klassifizierung mittels SVM (Tabelle 7-1) verwendet wurden. Im Vergleich zu Kapitel 7.2 werden jedoch nicht nur die Blechviertel-Positionen verwendet, sondern für die Proben 1318, 1319, 1450, 1452, 1543, A061, Z518B, 60510 und C863 auch die Position bei dreiviertel der Blechdicke, die als äquivalent anzusehen ist. Demnach ergeben sich 21 zusammengesetzte Aufnahmen die sich in martensitische (elf Aufnahmen), angelassene martensitische (zwei Aufnahmen), perlitische (vier Aufnahmen) und bainitische (vier Aufnahmen) Proben unterteilen. Die Datenaufteilung (engl. data split) ist bildbasiert mit elf Trainingsbildern und zehn Testbildern, was zu insgesamt 2831 Trainings- und 2262 Testobjekten führt. Auch an dieser Stelle sei noch einmal auf die Besonderheit bei Probe Z272 hingewiesen, die nachträglich normalisiert wurde und daher ein unterschiedliches Erscheinungsbild zu den anderen bainitischen Proben aufweist, obwohl sie zur selben Klasse zugeteilt wurde und damit stellvertretend für die Vielfalt innerhalb des Bainits im Allgemeinen steht ([10]).

Da insbesondere die Anzahl an annotierten REM-Bildern limitiert ist, und es somit wahrscheinlich zu einer Überanpassung (overfitting) des Modells kommen kann, werden Netzwerke, die bereits mit großen Trainingsdatensätzen wie ImageNet ([215]) trainiert wurden, auf dem neuen Datensatz trainiert. Dieser Ansatz wird als "Feintuning" bezeichnet. Mit dieser Technik können die Gewichte der Neuronen effektiver initialisiert werden. Es kann daher davon ausgegangen werden, dass das Netzwerk bereits in der Nähe eines guten lokalen Minimums liegt und weitaus weniger Trainingsdaten zur Konvergenz benötigt. Von vorab trainierten CNNs können Merkmale auch ohne Feintuning extrahiert werden. Stattdessen wird die Ausgabe der fully connected Layer vor der Klassifizierungsebene als Merkmalsvektor betrachtet. Diese Merkmale, die als DeCAF ([219]) bekannt sind, können z. B. mit SVMs klassifiziert werden. Der einzig verfügbare Datensatz, der in der Literatur aufgeführt ist ([220]), ist insofern für die vorliegende Arbeit unbrauchbar, als dass er keine annotierten Daten enthält und durch den hohen Kohlenstoffgehalt der verwendeten Stähle gänzlich andere Gefüge beinhaltet.

Eine weitere Option bei kleinen Datensätzen, wie sie in der vorliegenden Arbeit vorhanden sind, ist die künstliche Vergrößerung des Trainingsatzes, z. B. durch Drehen oder Spiegeln unter

7. Gefügeanalyse

Beibehaltung der Klassenbezeichnungen. Dies wird als Datenvervielfältigung (engl. Data Augmentation) bezeichnet ([221]).

Die in der vorliegenden Arbeit verwendeten CNN-Architekturen sind:

- CIFARNet: CNN mit drei Convolution- und Max-Pooling-Layern und zwei fully connected Layern. Es handelt sich um eine modifizierte Version des LetNet mit einem ReLU-Aktivierungs-Layer und einem Dropout-Layer ([209]).
- AlexNet: CNN mit 60 Millionen Parametern ([215]). Im Vergleich zu CIFARNet besteht es aus acht Layern, darunter fünf Convolution Layer, drei Max-Pooling-Layer und drei fully connected Layer.
- VGGnet: CNN mit 13 Convolution-, fünf Pooling- und drei fully connected Layern, bekannt als VGG16 mit insgesamt 138 Millionen Parametern. Eine Erweiterung dieser CNN Version ist VGG19 mit insgesamt 19 Layern, was mit deutlich weniger Parametern bei gleicher Leistung auskommt und somit deutlich effizienter ist als CIFARNet und AlexNet. [217]

Zwei Ansätze werden für die Klassifizierung mittels Deep Learning verfolgt. Zunächst erfolgt, basierend auf den in Kapitel 7.2.2 beschriebenen, um die Matrix gemäß Kapitel 6.1 bereinigten REM-Aufnahmen, eine objektbasierte Gefügeklassifizierung der zweiten Phase mittels CNNs. Da CNNs eine feste Bildgröße benötigen, müssen die Bilder zunächst normalisiert und anschließend objektweise getrennt werden, bevor sie schließlich auf die notwendige Größe für das Netzwerk (im vorliegenden Fall für VGG16) transformiert werden.

In der folgenden Abbildung 7-8 ist der schematische Ablauf der Klassifizierung dargestellt.

7. Gefügeanalyse

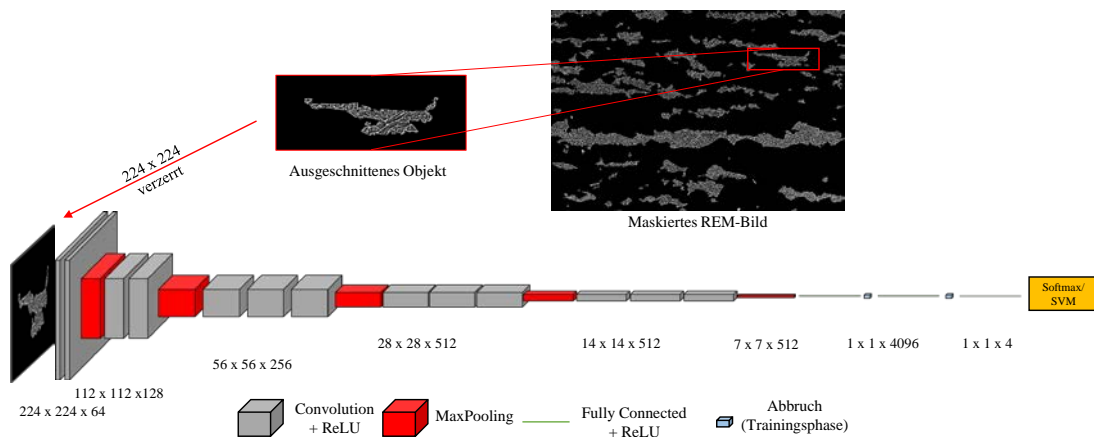


Abbildung 7-8: Darstellung der objektbasierten Klassifizierung. Als Eingangsbild dient ein ausgeschnittenes Objekt aus der maskierten REM-Aufnahme, welches auf eine fixe Größe von 224 x 224 px transformiert wird. Das Netzwerk zur Klassifizierung besteht aus mehreren Convolution- und ReLu-Layern, jeweils mit Max-Pooling-Layern. Die jeweilige Größe des Layers wird stetig reduziert, während die Tiefe des Layers stetig zunimmt. Die Merkmale werden schließlich an vollständig vernetzte (fully connected) Layer mit ReLu-Layern übergeben, an deren Ende die Klassifizierung mit Softmax bzw. mittels SVM steht.

Ausgehend von den um die Matrix bereinigten REM-Aufnahmen wird jedes Objekt der zweiten Phase extrahiert (Ablauf siehe 6.1.3) und automatisch an das Netzwerk übergeben. Anschließend wird das Objekt auf eine Größe von 224×224 px verzerrt (engl. Warping). Dieser Ausschnitt dient schließlich als Eingangssignal für das CNN. Sämtliche erzeugten Objekte werden schließlich zufällig in Training- und Testdaten aufgeteilt, sodass sie als identisch, unabhängig verteilt angesehen werden können. Die Klassifizierung mittels CNN erfolgt anschließend basierend auf drei unterschiedlichen Ansätzen:

- Vollständig trainiertes CNN und Klassifizierung mittels Softmax-Layer (zufällig initiierte Netzwerk-Parameter)
- Feintuning eines bestehenden CNNs und Klassifizierung mittels Softmax-Layer
- Bestimmung von DeCAF-Merkmalen aus einem vortrainierten VGG16 Netzwerk und Klassifizierung mittels einer Multi-Klassen SVM mit RBF-Kernel.

Das Netzwerk besteht im Detail aus mehreren Layern (Convolution + ReLu, Max-Pooling, fully connected + ReLu, drop out (bzw. Abbruch-Layer), Softmax bzw. SVM), wie sie in Abschnitt 7.3 beschrieben wurden.

Dieses Verfahren ist demnach vergleichbar zu der Klassifizierung, wie sie in Kapitel 7.2 beschrieben worden ist, jedoch mit unterschiedlichen Parametern, die der Klassifizierung zu Grunde liegen.

7. Gefügeanalyse

Der zweite Ansatz erfolgt pixelbasiert und bedarf daher im Vergleich zur objektbasierten Klassifizierung keiner Verzerrung der zu klassifizierenden Objekte. Dazu wird ein FCNN in Kombination mit einem Max-Voting-Schema verwendet, sodass jedes Objekt einheitlich klassifiziert wird. In Abbildung 7-9 ist der max-voted FCNN (kurz MVFCNN) Prozess schematisch dargestellt.

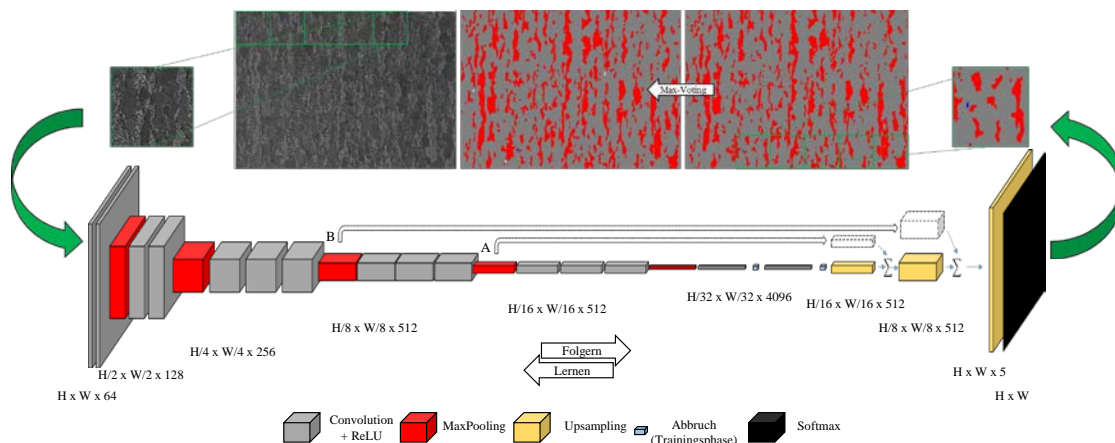


Abbildung 7-9: Darstellung des Prozessablaufes zur pixelbasierten Klassifizierung. Über die sog. Schiebefenster-technik werden jeweils REM-Ausschnitte an das Netzwerk übergeben. Anschließend erfolgt eine Reihe von Convolution- mit ReLU-Layern, jeweils mit einer Max-Pooling-Schicht. Am Ende schließen sich Upsampling Layer an, die als Ergebnis eine pixelweise Klassifizierung mittels Softmax beinhaltet. Objektweise erfolgt schließlich ein Max-Voting, nachdem die einzelnen Fenster wieder zu einem Gesamtbild zusammengesetzt wurden. Um die Generalisierbarkeit zu erhöhen sind sog. Skip-Layer (A und B) eingebaut, die zufällig einzelne Neuronen entfernen.

Mit dieser Methode können sowohl die REM- als auch die Limi-Aufnahmen pixelweise klassifiziert werden. Der generelle Aufbau entspricht dem von Long et. al ([218]) und basiert auf VGG16, allerdings wird statt eines fully connected layers ein convolutional layer verwendet und es werden darüber hinaus ein Upsampling- sowie sog. Skip-Layer (A und B in Abbildung 7-9) eingefügt. Die Skip-Layer dienen der Verbesserung der Klassifizierung durch die Verschmelzung von groben und feinen Informationen. Darüber hinaus werden die bereits beschriebenen Layer Convolution + ReLu, Max-Pooling, drop out und Softmax verwendet.

Da die zusammengesetzten REM- und Limi-Aufnahmen, wie sie im Abschnitt 7.2.2 beschrieben wurden, nicht als Gesamtaufnahme verarbeitet werden können, wird die sog. Schiebefenster-Technik ([222]) eingesetzt. Die tatsächliche Bildgröße, die verarbeitet werden kann, hängt im Wesentlichen vom Grafikkarten-Speicher ab. Der jeweilige Ausschnitt wird schließlich an das FCNN übergeben. Das Ergebnis besteht aus einer Matrix, in der jeder Pixel die Wahrscheinlichkeit für die Klassen beinhaltet. Die Klasse mit der höchsten

7. Gefügeanalyse

Wahrscheinlichkeit wird übernommen. Um innerhalb eines Objektes nicht unterschiedliche Phasen vorliegen zu haben, kommt das sog. Max-Voting zum Einsatz, das einem Objekt die Klasse zuordnet, die den meisten Pixeln zugeordnet wurde. Wurden alle Ausschnitte segmentiert und klassifiziert, werden sie wieder zu einem Gesamt-Ergebnisbild zusammengefügt.

Weitere Informationen zur Implementierung beider Ansätze können der entsprechenden Veröffentlichung ([56]) entnommen werden.

7.3.3 Ergebnisse der Klassifizierung mittels Deep Learning

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Klassifizierung mit den beiden beschriebenen Ansätzen aufgeführt. Eine Zusammenfassung aller Klassifizierungsergebnisse ist in Tabelle 7-9 dargestellt. Neben der verwendeten Klassifizierung und den Eingangsdaten ist sowohl die Trainingsstrategie als auch die finale Treffsicherheit (Accuracy) angegeben.

Tabelle 7-9: Zusammenfassung aller verwendeten Klassifizierungen mit unterschiedlichen Eingangsdaten (REM und Limi-Aufnahmen), Trainingsstrategie und der finalen Accuracy.

Klassifizierung	Art der Klassifizierung	Mikroskop	Training	Accuracy
CIFAR-Net	Objektbasiert	Limi	Von Grund auf	51,27 %
CIFAR-Net	Objektbasiert	REM	Von Grund auf	57,03 %
vortrainiertesVGG19 mit SVM	Objektbasiert	Limi	-	56,56 %
vortrainiertesVGG19 mit SVM	Objektbasiert	REM	-	64,84 %
VGG16-Net	Objektbasiert	Limi	Feintuning	60,02 %
VGG16-Net	Objektbasiert	REM	Feintuning	66,50 %
MVFCNN	Pixel-basiert	Limi	Feintuning	70,14 %
MVFCNN	Pixel-basiert	REM	Feintuning	93,94 %

Wie der Tabelle 7-9 entnommen werden kann, kann selbst für die Limi-Aufnahmen über den pixelbasierten Ansatz mit einem Feintuning eine Treffsicherheit von bis zu 70,14 % erreicht werden. Jedoch ist, wie bereits im vorangegangenen Kapitel 7.2 gezeigt, deutlich zu erkennen, dass die REM-Daten eine signifikante Verbesserung der Klassifizierung für sämtliche Ansätze liefern. Die objektbasierten Ansätze liefern generell eine schlechtere Leistung als der pixelbasierte Ansatz. Besonders kritisch im objektbasierten Ansatz ist die Tatsache zu bewerten, dass die Objekte durch die Vorgabe des verwendeten Netzwerkes stets mitunter stark transformiert werden und somit viele Informationen der Substruktur und Morphologie verloren

7. Gefügeanalyse

gehen. Die finale Klassifizierung mittels SVM schneidet insgesamt besser ab als die Klassifizierung mittels Softmax-Funktion im CIFAR-Net, jedoch etwas schlechter im Vergleich zum VGG16-Net.

Tabelle 7-10 zeigt die Konfusionsmatrix des MVFCNN-Ansatzes (Feintuning mit ausgeglichenen und erweiterten REM-Trainingsdaten) als besten Klassifizierungsansatz für die zweite Phase. In dieser Darstellung werden fehlende Objekte aus dem Segmentierungsschritt nicht berücksichtigt (insgesamt 48 Objekte werden über den kombinierten Segmentierungsschritt nicht erkannt). Aus diesem Grund liegt die Treffsicherheit bei 95,23 % und damit etwas höher als die beste Klassifikationsgenauigkeit von 93,94 %, die in Tabelle 7-9 für diesen Ansatz angegeben wird.

Tabelle 7-10: Konfusionsmatrix für den pixelbasierten Klassifizierungsansatz nach Feintuning unter Verwendung der REM-Daten. Die Accuracy liegt bei 95% für den gegebenen Datensatz.

Referenz \ Klassifizierung	Martensit	Angel. Martensit	Perlit	Bainit	Precision
Martensit	1190	0	0	11	99 %
Angel. Martensit	24	268	0	0	92 %
Perlit	0	0	317	9	97 %
Bainit	39	6	16	325	84 %
Recall	95 %	98 %	95 %	94 %	Accuracy 95 %

Die Konfusionsmatrix zeigt, dass das Netzwerk 1190 Martensitobjekte korrekt klassifizieren kann, was 94,97 % der gesamten martensitischen Objekte entspricht. 24 bzw. 39 Objekte werden fälschlicherweise als angelassener Martensit bzw. Bainit klassifiziert. Auch bei den drei anderen Klassen angelassener Martensit, Perlit und Bainit sind die Ergebnisse mit wenigen Ausnahmen ausgezeichnet.

Wie im Abschnitt 7.3.2 erläutert, dient eine unbearbeitete REM- bzw. Limi-Aufnahme als Input des Netzwerks, sodass eine gleichzeitige Segmentierung und Klassifizierung innerhalb des

7. Gefügeanalyse

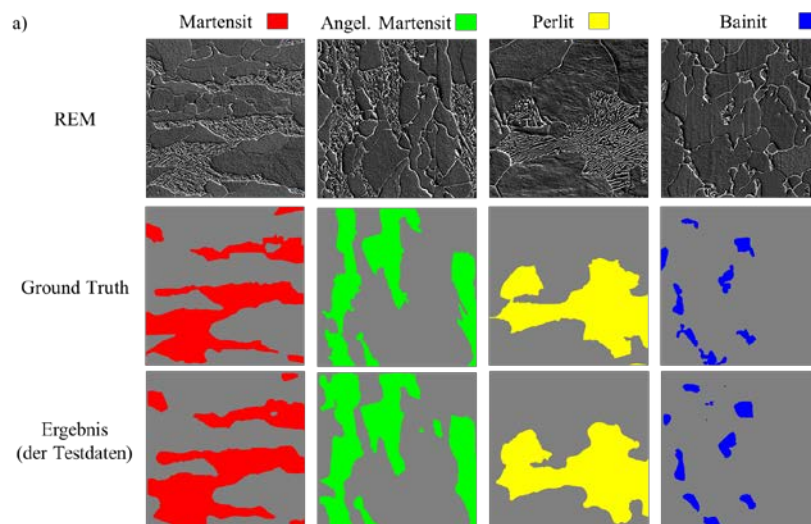
Netzwerks erfolgt. In Tabelle 7-11 sind die Ergebnisse der Segmentierung je Phase des pixelbasierten Ansatzes für die einzelnen Bereiche gemäß Abbildung 7-9 mit ausgeglichenen und vervielfältigten Daten, sowohl für die Limi- als auch für die REM-Aufnahmen, dargestellt.

Tabelle 7-11: Performance des pixelbasierten Ansatzes in Bezug auf die Segmentierung unter Verwendung der FCNN mit ausgewogenen und vervielfältigten Daten nach Feintuning für jede Gefügeklasse. Die Matrix hat die höchste und Bainit die niedrigste Genauigkeit.

Mikroskop	Matrix	Martensit	Angel. Martensit	Perlit	Bainit
Limi	94,11 %	50,11 %	58,36 %	19,35 %	5,21 %
REM	94,22 %	79,85 %	72,62 %	70,46 %	37,32 %

Die Matrix hat die höchste Pixelgenauigkeit von 94 % sowohl für die Limi- als auch die REM-Aufnahmen. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass die Trainingsbasis für den Ferrit am umfangreichsten ist, da er in allen untersuchten Proben vorliegt und nicht weiter unterteilt wird. Bainit stellt mit einer Pixelgenauigkeit von 5 % im Limi bzw. 37 % im REM die Phase dar, die am schlechtesten erkannt wird. Ein Grund dafür kann in der geringen Probenanzahl sowie in den im Kapitel 7.2.4 bereits diskutierten Herausforderungen der bainitischen Phase liegen.

In Abbildung 7-10 sind einige Beispiele der REM-Segmentierung, wie sie in Tabelle 7-11 für die REM-Bilder dargestellt wurden, aufgeführt.



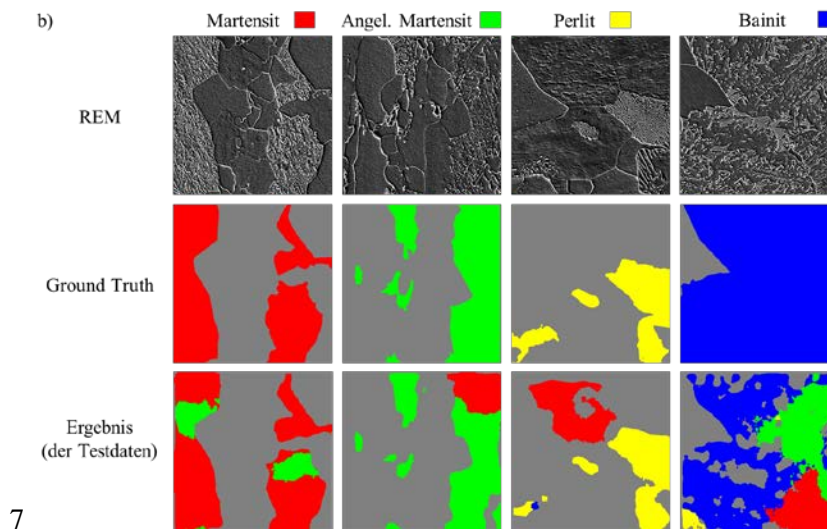


Abbildung 7-10: Beispiele der Segmentierung von REM-Bildern mit gleichzeitiger Klassifizierung. a) Erfolgreiche Segmentierung und Klassifizierung in Bezug auf die manuelle Segmentierung, die als Referenz („Ground Truth“) angesehen wird. b) Objekte, bei denen die Segmentierung und Klassifizierung keine gute Übereinstimmung mit der Referenz zeigt. Besonders die bainitische Probe Z272 verursacht durch die großen Bereiche von Zementit-Agglomerationen erhebliche Probleme.¹⁸

In den weniger erfolgreichen Fällen (Abbildung 7-10 b)) wird deutlich, dass es zwei Fehlerquellen gibt. Vereinzelt werden Matrixkörner, die aufgrund ihrer Orientierung einen leichten Ätzangriff aufweisen (vergleiche dazu Kapitel 5.4), fälschlicherweise als Objekte zweiter Phase zugeordnet. Die größten Probleme verursachen jedoch die Objekte aus Probe Z272 (normalisierte Probe) durch die Anordnung von Zementit-Agglomerationen.

Die finalen Ergebnisse der Gefügeklassifikation, die durch Stitching und Anwendung eines Max-Voting-Schemas gemäß Abbildung 7-9 noch einmal erheblich verbessert werden, sind in Abbildung 7-11 dargestellt.

¹⁸ Modifiziert nach [56].

7. Gefügeanalyse

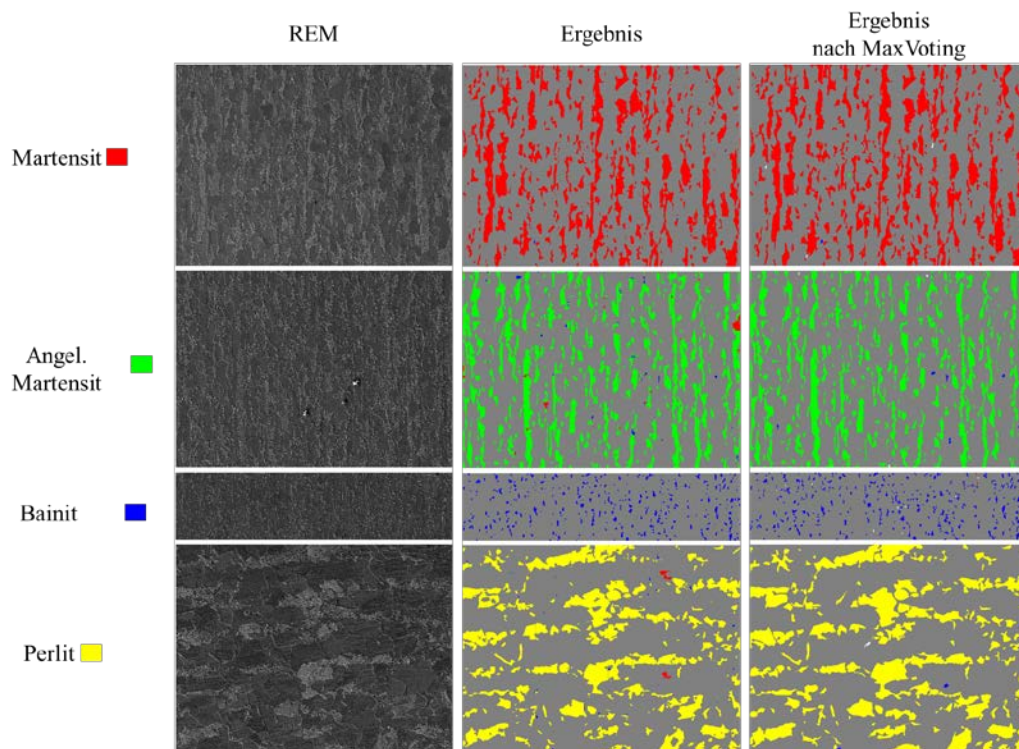


Abbildung 7-11: Ergebnis der kombinierten Segmentierung und Klassifizierung nach Stitching und vor bzw. nach Max-Voting der Testdaten. Die einheitliche Farbgebung zeigt die herausragende Übereinstimmung mit dem Ausgangsbild.¹⁹

Die Ergebnisse in Abbildung 7-11 zeigen, dass die meisten Objekte in der jeweiligen Gefügeaufnahme korrekt klassifiziert werden. Dies gilt in gleicher Weise und Qualität für die weiteren sechs Testbilder.

Bei Gegenüberstellung der Segmentierung der Limi- und REM-Bilder an der gleichen Position (Abbildung 7-12) ist deutlich erkennbar, dass die Segmentierung der zweiten Phase in beiden Fällen nahezu perfekt ist.

¹⁹ Modifiziert nach [56].

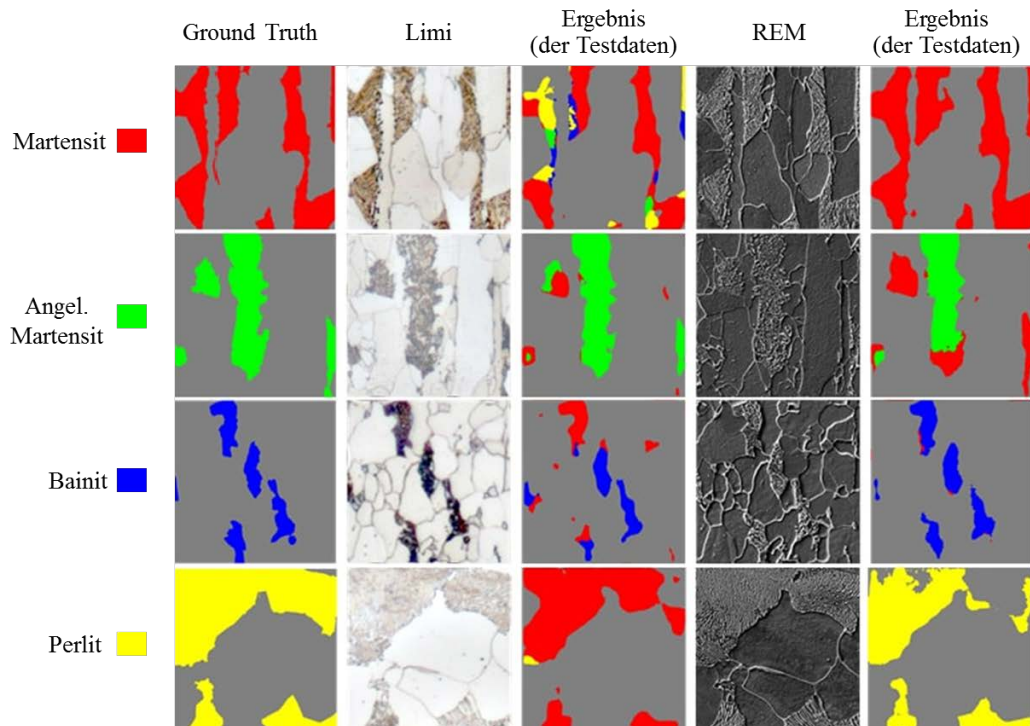


Abbildung 7-12: Vergleich der kombinierten Segmentierung und Klassifizierung zwischen Limi- und REM-Aufnahmen. Auch wenn die Segmentierung in beiden Fällen sehr zufriedenstellend ist, werden die Nachteile der Limi-Klassifizierung anhand der Farbvielfalt in den Ergebnisbildern sehr deutlich. Das Ergebnis wird noch einmal deutlich besser, nachdem ein Max-Voting erfolgt (nicht gezeigt).²⁰

Lediglich die Klassifizierung der Limi-Aufnahme im Vergleich zum REM ist deutlich schlechter. Das Max-Voting, welches im Netzwerk implementiert ist, wird im vorliegenden Fall (Abbildung 7-12) noch nicht angewendet, um die Leistungsfähigkeit des Ansatzes besser nachvollziehen zu können.

7.3.4 Diskussion der Ergebnisse

Die bisherigen Ergebnisse, die als Konzeptstudie zu verstehen sind und die Möglichkeiten dieses sehr aktuellen und stark interdisziplinären Ansatzes aufzeigen, bedürfen dennoch einer tiefergehenden Diskussion. Während der erste, objektbasierte CNN-Ansatz vergleichbar zu der Idee ist, wie sie in Kapitel 7.2 vorgestellt und diskutiert wurde, konnte mit dem pixelbasierten Ansatz (MVFCNN) ein in der Materialwissenschaft gänzlich neuer Ansatz etabliert werden.

²⁰ Modifiziert nach [56].

7. Gefügeanalyse

Zunächst kann festgestellt werden, dass alle vorgestellten Deep Learning Methoden auf dem gegebenen Datensatz hervorragende Ergebnisse lieferten (Tabelle 7-9) und im direkten Vergleich zu den Ergebnissen aus Abschnitt 7.2.3, Tabelle 7-4 und Tabelle 7-6, zumeist besser abschneiden. Insofern können auch die in den CNNs extrahierten High-Level-Features zur Klassifizierung von Gefügen herangezogen werden. Dennoch bleibt festzuhalten, dass diese High-Level-Features im Vergleich zu den morphologischen Parametern, wie sie in Tabelle 7-2 aufgeführt sind und gemäß Abschnitt 7.2.5 zukünftig erweitert werden sollen, sehr abstrakt sind und somit auch nicht ohne weiteres für gezielte Korrelationen herangezogen werden können. Auch direkte physikalische Zusammenhänge zwischen der Phasenbildung und -kinetik sowie der Morphologie sind in diesem Ansatz nicht ableitbar. Die Entscheidungen, die das finale Klassifizierungsergebnis liefern, können bei derart komplexen und tiefen Netzwerken nicht mehr nachvollzogen und daher auch nicht validiert werden. Die herausragenden Ergebnisse, die Deep Learning liefert sind andererseits Grund genug, sich auf diese neuen Ansätze auch innerhalb der Materialwissenschaft einzulassen.

Die Ergebnisse der objektbasierten Klassifizierung deuten darauf hin, dass tiefere Netzwerke bessere Ergebnisse zeigen als flachere. Selbst mit Merkmalen, die aus dem vortrainierten VGG19 extrahiert und mit einer SVM klassifiziert wurden, können vergleichbare Leistungen mit den Ergebnissen von trainiertem CIFARNET und VGG16 erzielt werden (Tabelle 7-9). Der kritischste Schritt, der sich letztendlich auch in den schlechteren Klassifizierungsergebnissen widerspiegelt, liegt wohl in der Bildgrößenanpassung, die das Netzwerk vorgibt. Dadurch wird die Substruktur derart verzerrt, dass es, je nach Objektgröße, zu empfindlichen Datenverlusten und -verfälschungen kommen kann.

Dieser Schritt ist bei dem pixelbasierten Ansatz (MVFCNN) nicht mehr erforderlich und kann daher auch als entscheidender Grund für die deutlich bessere Performance angesehen werden.

Die Konfusionsmatrix in Tabelle 7-10 zeigt, dass das Netzwerk immer noch eine gewisse Fehlklassifizierung von Martensit-Objekten liefert. Auch wenn die Substrukturen des Martensits, des angelassenen Martensits und teilweise auch des Bainits im vorliegenden Datensatz sehr ähnlich sind, können diese sehr gut getrennt werden, was abermals das Potential dieser Methode unter Beweis stellt. Bei Erweiterung des Datensatzes ist davon auszugehen, dass auch die bisherigen Fehlklassifikationen auf ein Minimum reduziert werden können und nur noch kleinste Objekte kritisch sind. Die Generalisierbarkeit des Ansatzes wird unter anderem dadurch

7. Gefügeanalyse

erkennbar, dass selbst die normalisierte, bainitische Probe im Training gut zugeordnet wurde. Dies deutet darauf hin, dass die Berücksichtigung jedes einzelnen Pixels und die Berücksichtigung der Pixelnachbarschaft eine entscheidende Rolle bei der korrekten Klassifizierung von Objekten spielen. Nichtsdestotrotz ist eine Erweiterung besonders für die Klasse Bainit zwingend notwendig, auch im Hinblick auf die weitere Unterteilung in Unterklassen. Ein mögliches Vorgehen zur Erfassung der bainitischen Gefüge wird in Kapitel 7.4 andiskutiert.

Der Einfluss der Datenerweiterung und des Feintunings für den MVFCNN-Ansatz ist in Tabelle 7-12 aufgezeigt.

Tabelle 7-12: Darstellung der Auswirkungen des Feintunings und der Datenvervielfältigung mit Hilfe des MVFCNN-Ansatzes. Während das Feintuning einen signifikanten Einfluss hat, ist der Effekt der Datenvervielfältigung gering.

Eingangsdaten	Training	Accuracy
Original-REM-Daten	Von Grund auf	55,50 %
Original-REM-Daten	Feintuning	87,98 %
Angepasste REM-Daten	Feintuning	90,97 %
Angepasste und vervielfältigte REM-Daten	Feintuning	93,94 %

Das Feintuning innerhalb des MVFCNN-Ansatzes zeigt mit Abstand den größten Einfluss auf die Treffsicherheit im Vergleich zu MVFCNNs mit unausgewogenen Daten, die von Grund auf neu trainiert wurden. Eine mögliche Ursache für diesen Sachverhalt ist, dass verschiedene Rotationen von Texturen innerhalb von Objekten bereits vor der Datenerweiterung im Datensatz vorhanden sind, die das Netzwerk bereits gesehen und gelernt hat.

Für die Limi-Klassifizierung ist, wie bereits im Kapitel 7.2 gezeigt, erkennbar, dass die Auflösung für die gegebenen Stahlgefüge nicht ausreicht, um die Objekte ausreichend gut in die gegebenen Klassen einzuordnen. Perspektivisch könnte jedoch auch dies durch wesentlich größere Datenmengen in Kombination mit angepassten Ätzungen oder korrelativen Informationen verbessert werden. Um falsche Klassifizierungen möglichst auszuschließen, sollte jedoch nach Möglichkeit immer auf REM-Daten zurückgegriffen werden.

7. Gefügeanalyse

Die Artefakte durch das Stitching der Bilder sowie die unterschiedlichen Ausleuchtung und Präparationsrückstände sowie Kratzer in den Aufnahmen verschlechtern die Klassifikationsgenauigkeit, wenngleich das Netzwerk in einigen Fällen die Artefakte bereits erfolgreich ausblendet. Einige Beispiele sind in Abbildung 7-13 dargestellt.

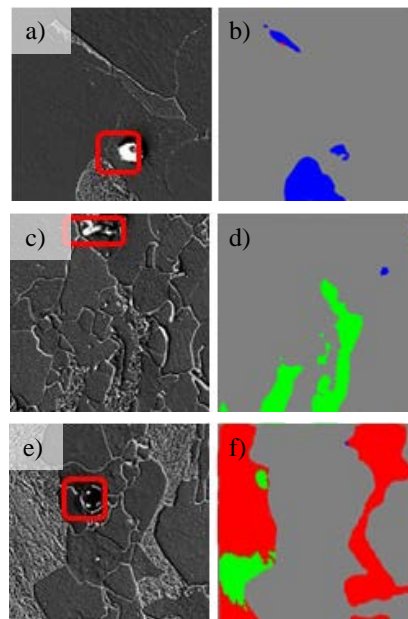


Abbildung 7-13: Beispiele von Artefakten (rotes Kästchen) im REM (a,c,d)). Nicht alle Artefakte werden als solche erkannt (b)), in vielen Fällen werden sie jedoch bereits aus der Klassifizierung ausgeschlossen.²¹

Auch dieses Beispiel zeigt die gute Generalisierbarkeit des Ansatzes und stellt darüber hinaus auch für reine Segmentierungsaufgaben enormes Potential dar.

Im vorliegenden Fall wird der Ferrit als Matrix nicht weiter unterteilt. Bei entsprechendem Labeling des Ferrits (bzw. der Korngrenzen) sollte das System jedoch in der Lage sein, den Ferrit auch objekt- bzw. kornweise zu klassifizieren und auszuwerten.

Im Vergleich zu den Arbeiten von DeCost et al. ([154], [156]) werden im vorliegenden Fall nicht nur Gefügaufnahmen als Ganzes nach Phase oder Material eingeordnet, sondern eine objektweise Klassifizierung in Kombination mit einer Segmentierung erreicht.

²¹ Modifiziert nach [56].

7.3.5 Fazit der Klassifizierung mittels Deep Learning

In der vorliegenden Arbeit konnte erfolgreich die Machbarkeit einer effektiven Klassifikation von Stahlgefügen mit Deep Learning Methoden ohne separate Segmentierung und Merkmalextraktion gezeigt werden. Durch eine Segmentierung in Kombination mit einer Klassifizierung durch ein trainiertes FCNN-Netzwerk mit einem abschließenden Max-Voting-Schema konnte der vorliegende Datensatz mit hoher Genauigkeit in die jeweiligen Phasen eingeteilt werden.

Eine Verbesserung des Ansatzes kann in erster Linie durch die Erweiterung der Trainingsdaten (insbesondere für die Klasse Bainit und perspektivisch auch für sämtliche Unterklassen) erreicht werden. Um die Subjektivität bei der Erstellung der Referenz- bzw. Trainingsdaten weiter zu reduzieren, scheint eine gezielte Probenherstellung in Kombination mit dilatometrischer Auswertung sinnvoll.

Um den Ansatz noch universeller zu gestalten, ist es notwendig, gezielt unterschiedliche Präparationsroutinen sowie unterschiedliche Kontrastierungen an den gleichen Proben durchzuführen und somit eine möglichst robuste Klassifizierung erhalten zu können.

Der vorgestellte Ansatz ist bei vorhandenen, gelabelten Gefügebildern auf sämtliche Materialklassen erweiterbar und nicht nur für die Gefügeklassifizierung sowie Segmentierung, sondern auch für die Detektion von Fehlern, wie es von Masci et al. ([178]) publiziert wurde, einsetzbar.

7.4 Ausblick Gefügeanalyse

Wie bereits im Kapitel 7 ausgeführt, wird weiterhin aktiv an der Weiterführung der objektiven Gefügeklassifizierung gearbeitet. Neben den in Kapitel 7.3.5 erwähnten Aspekten stellt die Einbeziehung von weiteren Gefügeinformationen, wie sie beispielsweise über EBSD gewonnen werden können, eine vielversprechende Option dar.

Der notwendige nächste Schritt liegt jedoch zunächst in der weiteren Unterteilung des Bainits. Mit seiner Vielzahl an Unterklassen ([15]) stellt sowohl die Probenauswahl als auch die Kontrastierung eine Herausforderung dar. Nicht zuletzt, weil die Übergänge zwischen den Subklassen des Bainits fließend sind und bislang lediglich unter Berücksichtigung verschiedener Größenskalen überhaupt erfassbar sind.

Eine gezielte Probenherstellung ist daher unumgänglich – in Kombination mit Möglichkeiten, die auftretenden Phasen auch validieren zu können. Dilatometrischen Untersuchungen und Temperatur-Keilversuchen ([223], [224]) kommen daher eine zentrale Rolle zu. Ein möglicher Ansatz zur Erfassung bainitischer Strukturen wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit grundsätzlich erarbeitet und unter [54] veröffentlicht. Dazu wurden mit Hilfe von Temperaturkeilversuchen Proben hergestellt, die sich nur durch ihre Endkühltemperatur unterscheiden. Mit Hilfe dieser Proben ist es möglich, Referenzkennwerte zu bestimmen und in einem korrelativen Ansatz das Gefüge vollumfänglich zu beschreiben (Abbildung 7-14).

7. Gefügeanalyse

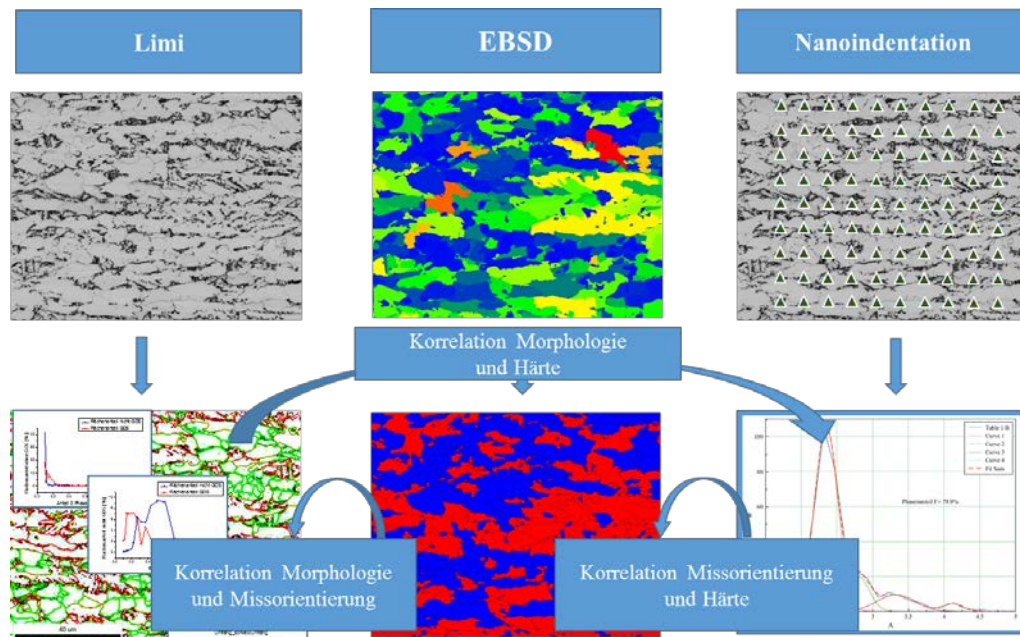


Abbildung 7-14: Korrelative Gefügeanalyse zur Phasencharakterisierung. Durch die Kombination aus Limi, EBSD und statistischer Nanoindentation können Morphologie, Missorientierung und lokale Härte derart kombiniert werden, dass selbst komplexe Gefügebestandteile identifiziert und quantifiziert werden können.

Auch die rasante Weiterentwicklung auf dem Feld des maschinellen Lernens und stetige Veröffentlichung neuer Ansätze sollte stets im Blick behalten werden.

Weiterhin scheint die Erweiterung der pixelbasierten Segmentierung und Klassifizierung gemäß Abbildung 7-9 sinnvoll. So könnte beispielsweise das Ergebnisbild aus dem pixelbasierten Ansatz mit manuell segmentierten Limi-Bildern abgeglichen werden. Anschließend könnte die Abweichung beispielsweise über eine Autokorrelationsfunktion quantitativ erfasst und als Konfidenzmaß angegeben werden. Auch ein manuelles Eingreifen basierend auf diesem Abgleich wäre denkbar.

Perspektivisch könnten zu Trainingszwecken auch die 3D-Daten, wie sie anhand der im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten Methodik erfasst werden können und unter [59], [60] veröffentlicht wurden, herangezogen werden. Somit könnte die Zuverlässigkeit im Training der Klassifizierungsalgorithmen weiter gesteigert werden.

Die beschriebene Aufgabenstellung ist höchst interdisziplinär. Nur durch eine enge Zusammenarbeit mit Experten der Informatik können derartige Entwicklungen vorangetrieben werden.

7.5 Fazit Gefügeanalyse

Im vorliegenden Kapitel Gefügeanalyse wurden Methoden vorgestellt und entwickelt, um Gefüge zu klassifizieren. Basierend auf einem SVM- sowie einem Deep Learning-Ansatz konnten Klassifizierungsgenauigkeiten von bis zu 95 % erzielt werden.

Die Ergebnisse zeigen das Potential der Methode, was auch der Grund für die direkt an die vorliegende Arbeit anschließenden bzw. darauf aufbauenden Promotionen ist. Neben den in den Kapiteln 7.2.5 und 7.3.5 aufgeführten Punkten zu weiteren Arbeiten sollte ein Schwerpunkt in der weiteren Reduzierung der Subjektivität liegen. Um diese, die im vorliegenden Fall durch die Referenz- bzw. Trainings- und Testdaten noch immer nicht vollständig ausgeschlossen werden kann, weiter zu mindern, sollten zukünftig auch Ansätze des unsupervised learnings ([185]) wie sie von DeCost et al. ([156]) für Gefügaufnahmen evaluiert wurden, getestet werden.

Das Thema des maschinellen Lernens wird weit über die vorgestellte Klassifizierung für die Materialwissenschaft von Bedeutung sein ([179]). Durch Datenbanken, wie sie innerhalb der Materials Genome Initiative ([225]) gesammelt und bereitgestellt werden, können Deep Learning Methoden den gesamten Fachbereich, von der Untersuchung von Gefüge-Eigenschaftskorrelationen bis hin zu Materialentwicklung, revolutionieren.

8 Fazit

In der vorliegenden Arbeit wurden neuartige Ansätze und Lösungsvorschläge zur Gefügeanalyse von niedriglegierten Stählen erarbeitet. Im Rahmen der **Gefügekontrastierung** (Kapitel 5) wurde eine **in situ Durchflusszelle** entwickelt, um den Verlauf von Ätzungen nachvollziehen und somit zielgenau steuern zu können. Durch einen **Aufbau zur systematischen Durchführung von Ätzungen** konnte darüber hinaus eine Möglichkeit erarbeitet werden, die für eine Ätzung relevanten Parameter wie Temperatur, Zusammensetzung und Umgebungsbedingungen weitestgehend konstant zu halten. Somit konnte insbesondere die bis dato fehlende Reproduzierbarkeit von Farbätzungen gewährleistet werden. Mit den **Parameterstudien zu den Ätzungen nach LePera** (Kapitel 5.3) und **Beraha** (Kapitel 5.4) wurden mit diesen Neuentwicklungen konkret zwei Kontrastierungsverfahren detailliert untersucht und bei komplexen Gefügen mit sehr kleinen Gefügebestandteilen erfolgreich eingesetzt.

Die in der vorliegenden Arbeit entwickelten Methoden und gewonnenen Erkenntnisse eröffnen völlig **neue Möglichkeiten in der klassischen Metallographie** hinsichtlich Parameteridentifikation und Anwendung anspruchsvollster Ätzungen. Diese Ergebnisse liefern darüber hinaus das Fundament für alle weiteren Schritte zur Gefügecharakterisierung.

Um die Informationen aus der Gefügekontrastierung für weitere Untersuchungen nutzbar zu machen, sind auch Weiterentwicklungen im Bereich der **Bildverarbeitung** (Kapitel 6) notwendig. Insbesondere die korrelative Nutzung von Gefügeinformationen aus Licht- und Rasterelektronenmikroskopie ist ein wichtiger Schritt auf dem Weg zur möglichst vollständigen Gefügebeschreibung (Kapitel 6.1). Zu diesem Zweck wurde ein Ablauf entwickelt, um Gefügeaufnahmen aus verschiedenen Bildquellen zu überlagern. Diese **Bildregistrierung** ermöglicht es auch, die Informationen der Substruktur, die nach angepasster Ätzung aus den REM-Aufnahmen gewonnen werden können, zu extrahieren und somit objektbezogen auswerten zu können. Eine solche **Merkmalextraktion** ist sowohl für eine Quantifizierung als auch für eine Klassifizierung absolut notwendig.

In Zusammenarbeit mit der Informatik konnte in der vorliegenden Arbeit außerdem eine Segmentierung implementiert werden, die die in der Praxis vorherrschende Schwellwertsegmentierung ersetzen könnte. Dieser **neuartige Ansatz zur Gefügesegmentierung** (Kapitel 6.2)

8. Fazit

basiert auf den Arbeiten von Chan und Vese, und ermöglicht die Trennung von Gefügebestandteilen durch lokale Ähnlichkeiten – entweder über die Grau- bzw. RGB-Werte oder über ihre Substruktur. Dieser Ansatz bietet ein enormes Potential und sollte in zukünftigen Arbeiten unbedingt weiterentwickelt werden.

Mit den erzielten Ergebnissen ist es schließlich möglich, eine objektive und automatische **Gefügeanalyse** (Kapitel 7) zu realisieren. Mittels Methoden des maschinellen Lernens konnten in der vorliegenden Arbeit enorme Fortschritte im Bereich der Klassifizierung von Stahlgefügen erzielt werden. Zunächst wurden dazu die erfassten morphologischen Parameter aus der Gefügequantifizierung genutzt, um eine **Support Vector Machine** zu trainieren (Kapitel 7.2). Dieser vielversprechende Ansatz wird im Rahmen weiterer Promotionen und unter Hinzunahme von Substrukturparametern auch weiterverfolgt. Den Abschluss der vorliegenden Arbeit bildet schließlich eine **Klassifizierung mittels Deep Learning** (Kapitel 7.3). In Kooperation mit dem Max-Planck-Institut für Informatik konnte ein Ansatz entwickelt werden, der nach einem notwendigen Trainingsschritt Gefügebildaufnahmen automatisch und ohne jegliche Vorarbeiten gleichzeitig segmentieren und klassifizieren kann.

Die vorliegende Arbeit zeigt, dass nur ein ganzheitlicher Ansatz zur Gefügeanalyse unter Berücksichtigung der drei Bereiche Gefügekontrastierung, Bildverarbeitung und Klassifizierung zum Erfolg führen kann (Abbildung 8-1).



Abbildung 8-1: Darstellung der engen Vernetzung zwischen den drei relevanten Themenbereichen zur erfolgreichen Gefügeanalyse.²²

²² modifiziert nach Fotolia_68520485_S

8. Fazit

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnten somit zu allen relevanten Themen der Gefügecharakterisierung neue methodische Ansätze, Impulse und Lösungsvorschläge erarbeitet und erfolgreich an niedriglegierten Stählen angewendet werden.

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Das Gefüge als Multiskalenspeicher und Schlüssel zur Verknüpfung von der Herstellung hin zu den finalen Materialeigenschaften.....	1
Abbildung 2-1: a) Metastabiles Eisen-Kohlenstoff-Phasendiagramm mit dem Eckpunkt Zementit (Fe_3C) bei 6,67 % C. Der Bereich des Kohlenstoffgehaltes unterhalb 2,06 % wird als Stahl, oberhalb als Gusseisen bezeichnet. Das auftretende Eutektikum wird durch den Punkt C bei 1147°C beschrieben. Die eutektoiden Umwandlung erfolgt bei 723°C im Punkt S. Die auftretenden Phasen bzw. Gefügebestandteile sind in b) aufgeführt. (Modifiziert nach [1].).....	3
Abbildung 2-2: Darstellung eines kontinuierlichen ZTU-Diagramms (41Cr4). Je nach Abkühlgeschwindigkeit werden verschiedene Phasenbereiche durchlaufen: Bei langsamer Abkühlung startet die Umwandlung zunächst zum Ferrit (F) und anschließend zum Perlit (P). Bei schnelleren Abkühlungen wird die sog. Bainit-Nase (B) durchlaufen. Wird die Abkühlgeschwindigkeit weiter erhöht, liegt ein martensitisches Gefüge vor. Die angegebenen Zahlen geben die jeweiligen Phasenanteile an. Jede Abkühlkurve beinhaltet zudem die zu erwartende Rockwell-Härte (umkreiste Zahlen). (nach [3]).....	4
Abbildung 4-1: Repräsentativer Gefügausschnitt der normalisierten Probe mit einer bainitischen Substruktur. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.....	10
Abbildung 4-2: Repräsentativer Gefügausschnitt einer ferritisch-bainitischen Probe. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM. Neben bainitischen Körnern mit Zementit-Agglomerationen sind auch MAs vorhanden.	11
Abbildung 4-3: Repräsentativer Gefügausschnitt einer Dualphasen-Probe mit einer ferritischen Matrix und martensitischer, zweiter Phase. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.	11
Abbildung 4-4: Repräsentativer Gefügausschnitt einer angelassenen Dualphasen-Probe mit einer ferritischen Matrix und martensitischer, zweiter Phase, die durch das Anlassen Zementit-Ausscheidungen aufweist. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM.	12

Abbildung 4-5: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer zweiphasigen-Probe mit einer ferritischen Matrix und bainitischer, zweiter Phase bestehend aus Zementit-Agglomerationen. a) Limi-Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM..... 12

Abbildung 4-6: Repräsentativer Gefügeausschnitt einer ferritisch-perlitischen Probe. a) Lichtmikroskopische Aufnahme nach Beraha-Ätzung; b) Vergrößerter Ausschnitt der Substruktur im REM..... 13

Abbildung 5-1: Schematische Darstellung einer Korngrenzenätzung: a) Betrachtung der geätzten Schlieffläche. Die Korngrenzen werden dargestellt. b) Höhenprofil entlang der roten Linie. Durch das unterschiedliche Potential zwischen den Körnern und Korngrenzen werden die Kornflächen abgetragen, während die Korngrenzen stehen bleiben. Darüber hinaus sind unterschiedlich starke Abtragsniveaus zwischen den Körnern ersichtlich, die auf Orientierungsunterschiede, die ebenfalls das Potential beeinflussen, zurückzuführen sind..... 17

Abbildung 5-2: Prinzip der Interferenz durch die während der Niederschlagsätzung gebildete Deckschicht. Ein Teil des Lichtes wird an der Schicht, ein Teil an der Metalloberfläche reflektiert. Beim Austritt des Lichtes kommt es zur Interferenz. (Modifiziert nach [71].) 18

Abbildung 5-3: Strukturformel der Pikrinsäure. An dem Benzolring sind drei Nitrogruppen sowie eine Hydroxygruppe gebunden..... 20

Abbildung 5-4: Versuchsaufbau zur systematischen Untersuchung von Ätzungen. Die Hauptkomponenten sind ein Umlaufkühler, ein Kühl-/Heizbad, ein geschlossenes System mit Argonanschluss sowie eine Gaswaschflasche für den Ätzstopp. Nach der Entgasung mittels Argon werden die Tropftrichter mit den Ätzlösungen, die im Temperierbad auf Temperatur gebracht werden, auf den Dreihalskolben gebracht. Anschließend wird die Probe, die ebenfalls temperiert wird, in den Dreihalskolben überführt, sodass der Ätzprozess starten kann. Um die Ätzung zu stoppen, wird die Probe aus dem Kolben entnommen und in ein Behältnis mit Ethanol (ebenfalls mit Argon gespült) gegeben; a) Schematische Darstellung des Aufbaus; b) Darstellung des tatsächlichen Aufbaus im Labor. 27

Abbildung 5-5: Anfänglicher In situ Aufbau: a) Gesamtanlage bestehend aus Digitalmikroskop mit Monitor, Durchflusszelle für die Ätzung und Spritzenpumpe für den kontrollierten

Durchfluss der Lösung; b) Nähere Betrachtung der Durchflusszelle, die an die zu kontrastierende Probe aufgeklebt wurde.....	29
Abbildung 5-6: Finale Version des in situ Ätzaufbaus. Neben den Komponenten aus Abbildung 5-4 sind die Durchflusszelle (flow cell), das Digitalmikroskop sowie der Zu- und Rücklauf von besonderer Bedeutung. a) Schematische Darstellung des Aufbaus, b) und c) Darstellung des tatsächlichen Aufbaus im Labor; b) Flow cell, c) Ätzaufbau zur systematischen Ätzung.	30
Abbildung 5-7: a) Technische Zeichnung der Durchflusszelle. Zur Ätzung wird die Probe in den unteren Teil eingebaut und mit dem oberen Teil mit Sichtfenster verschraubt. b) Querschnitt des Aufbaus. Um ein gleichmäßiges, möglichst blasenfreies Befüllen zu gewährleisten erfolgt die Zuführung des Mediums von unten.	31
Abbildung 5-8: Darstellung des Brechungsindex in Abhängigkeit von unterschiedlich konzentrierten Pikrinsäure-Ethanol-Lösungen, gemessen bei $T=20^{\circ}\text{C}$ und $\lambda=589,3\text{ nm}$. Der Brechungsindex (BI) steigt linear mit der Konzentration an.	35
Abbildung 5-9: a) Zeitaufgelöste LePera-Ätzung an der normalisierten Stahlprobe. Bereits nach 20 Sekunden sind eine deutliche Kontrastierung der zweiten Phase sowie unterschiedliche Schattierungen der ferritischen Matrix erkennbar. Für die korrelative Mikroskopie wurden Härteeindrücke (schwarze Raute) angefertigt. Das Experiment wurde nach 740 s abgebrochen. Nach Entfernen der Durchflusszelle, Spülen und Trocknen ist im Lini (b) eine deutliche Färbung der ferritischen Matrix erkennbar. c) EBSD-Darstellung der Orientierung (Inverse Polfigur überlagert mit Image Quality) zur direkten Zuordnung der Körner, wobei die Messung vor der Ätzung erfolgte.....	36
Abbildung 5-10: Auftragung der Leitfähigkeit und der Temperatur während der in situ LePera-Ätzung. Während die Leitfähigkeit nur leicht schwankt, ist ein kontinuierlicher Abfall der Temperatur zu verzeichnen. Die Temperatur des Kühlbades ist als blaue gestrichelte Linie bei 20°C eingezeichnet.....	37
Abbildung 5-11: STEM-Untersuchung der Interferenzschicht der LePera-Ätzung: a) Position der FIB-Zielpräparation (rote gestrichelte Linie) an einer Stelle, an der nahezu die drei Ebenen (100), (101) und (111) nebeneinander liegen (EBSD); b) gleiche Stelle im Lini. Die drei unterschiedlichen Farben lassen unterschiedliche Schichtdicken vermuten; c) REM-Aufnahme der FIB-Zielpräparation; d) Vergrößerte Darstellung der präparierten TEM-Lamelle (e), STEM-Hellfeldaufnahme). Der Zementit wurde nicht angegriffen,	

lediglich der dazwischenliegende Ferrit wurde abgetragen und bildet ebenfalls eine Schicht aus. f) Hochaufgelöste Darstellung der Interferenzschicht auf einem Ferrit-Korn. Eine kompakte Schicht ist erkennbar.....	38
Abbildung 5-12: STEM-EDX Untersuchung der Interferenzschicht. a) STEM-Hellfeldbild: Die oberste Schicht aus Platin schützt das System vor Oberflächenveränderungen während der Zielpräparation. Anschließend folgt eine dichte Interferenzschicht, welche direkt an das Stahlsubstrat angebunden ist. Die Position des EDX-Linienscans und die Richtung des Scans wird durch einen roten Pfeil angezeigt; b) EDX-Linienscan der angegebenen Position: die verschiedenen Bereiche können den verschiedenen Bereichen in a) zugeordnet werden.....	39
Abbildung 5-13: Darstellung des Einflusses der Temperatur auf die LePera-Ätzung für eine Ätzzeit von 135 s an Gefügaufnahmen nach Ätzungen bei a) 5°C; b) 20°C; c) 30°C und d) 40°C. ([57], © ASTM International)	40
Abbildung 5-14: Beispielhafte und repräsentative Darstellung der MAs im LSM bei zwei verschiedenen Vergrößerungen (a, b)), geätzt bei 0°C und für 135 s. Die MAs erscheinen strahlend weiß. ([57], © ASTM International)	41
Abbildung 5-15: Gefügaufnahmen nach der LePera-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei 5°C. Proben geätzt für a) 40 s; b) 180 s; c) 240 s und d) 420 s. ([57], © ASTM International).....	42
Abbildung 5-16: Gefügaufnahme der LePera-geätzten Probe bei 5°C für 120 Sekunden (a) sowie das zugehörige Binärbild nach Schwellwertsegmentierung (b). ([57], © ASTM International).....	43
Abbildung 5-17: Gefügaufnahmen nach der LePera-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei einer Temperatur von 40°C. Proben geätzt für a) 20 s; b) 40 s; c) 60 s und d) 100 s. ([57], © ASTM International).....	44
Abbildung 5-18: Details eines FIB-Querschnitts, angefertigt an einer bei 50°C für 135 s geätzten Probe. a) 52° geneigte REM-Aufnahme der genauen Probenposition des FIB-Querschnitts. Die Korngrenzen sind deutlich sichtbar. Der interessierende Bereich ist mit einer Schutzschicht aus Pt versehen. b) Übersicht über den Querschnitt. Es gibt eine ausgeprägte Topographie, die durch den Ätzangriff entstanden ist. Der Höhenunterschied zwischen den MAs bzw. bainitischen Bereichen und dem Ferrit ist deutlich sichtbar. Die Interferenzschicht ist an der dünnen dunklen Schicht (rot markiert) zu erkennen. c)	

Detailansicht der Interferenzschicht (rot markiert) auf dem Stahlsubstrat. Bei dieser Temperatur ist bereits eine Schicht auf der zweiten Phase sichtbar. Um die Leitfähigkeit der Probe zu gewährleisten und eine Abgrenzung zwischen der Pt-Schutzschicht und der Interferenzschicht zu erzielen, wurden die Proben mit einer sehr dünnen Schicht aus Gold (helle Linie über der Interferenzschicht) besputtert. Zur relativen Abtragsbestimmung der ferritischen Matrix wird die Höhe zwischen der erhabenen zweiten Phase und dem Ferrit gemessen (gelber Pfeil).....	45
Abbildung 5-19: Vergleich von Ätzabtrag und Schichtdickenmessung für die durchgeführten Messreihen. a) Ätzabtrag und Schichtdickenmessung für die erste Serie nach 135 s, (Temperaturänderung). b) Ätzabtrag und Schichtdickenmessungen für die zweite und dritte Messreihe (Zeitänderung bei 5°C und 40°C).	46
Abbildung 5-20: Gegenüberstellung der Orientierungsverteilung und des Ätzergebnisses. a) Darstellung der Orientierungsmessung mittels EBSD (Inverse Polfigur Darstellung, überlagert mit der Image Quality). b) Ergebnis nach der Farbätzung im Limi. Gleiche Orientierungen zeigen dabei die gleiche Färbung (im dargestellten Fall sind einige (100)-orientierte Körner rot umrandet).	47
Abbildung 5-21: Darstellung der Verbesserung des Ätzergebnisses durch den entwickelten Versuchsaufbau. a) Makroaufnahme des gewöhnlich geätzten Schliffes mit deutlicher Inhomogenität; b) Makroaufnahme des im entwickelten Versuchsaufbau geätzten Schliffes ohne nennenswerte Inhomogenitäten.	49
Abbildung 5-22: Vergleich einer Probe nach der LePera-Ätzung (a) und der gleichen Probe nach zusätzlichem Besputtern mit einer dünnen Goldschicht (b). Der Orientierungskontrast nimmt ab, während die MAs (weiß) hervorgehoben werden.	52
Abbildung 5-23: REM-Aufnahme von zwei FIB-Querschnitten einer Interferenzschicht nach der LePera-Ätzung. a) Poröse Schicht mit einer kleinen dichten Schicht (rote Pfeile) nach dem Ätzen bei 5°C für 300 s; b) Sehr dichte Interferenzschicht nach dem Ätzen bei 5°C für 420 s. ([57], © ASTM International)	54
Abbildung 5-24: Darstellung des Einflusses des Anteils an Natriummetabisulfit. a) LePera-Ätzung bei RT für 90 s mit 1 %iger Natriummetabisulfitlösung b) LePera-Ätzung mit 1,1 %iger Natriummetabisulfitlösung bei RT für 90s. Bereits bei dieser geringen Konzentrationsänderung ist eine Färbung der ferritischen Matrix in verschiedenen Blau-Nuancen erkennbar.	55

- Abbildung 5-25: Vergleich zwischen Nital- und LePera-Ätzung. a) Ergebnis einer parameteroptimierten Nital-Ätzung (zwei Prozentig, 35 s Ätzzeit). Die bainitischen Bereiche sind braun dargestellt, MAs sind nicht detektierbar. Durch ähnliche Färbung von Korngrenzen und zweiter Phase ist eine Segmentierung und Quantifizierung allerdings nur sehr schwierig möglich. b) LePera-Ätzung (5°C, 180 s) verbesserter Kontrast durch die Einfärbung deutlich. Auch die bainitischen Bereiche sind in einem sehr dunklen Farbton deutlich von der Matrix und den Korngrenzen trennbar. c) Um die MAs deutlicher darstellen zu können, ist eine Anpassung der Parameter der LePera-Ätzung notwendig (40°C, 40 s). 57
- Abbildung 5-26: Zeitaufgelöste Beraha-Ätzung der normalisierten Stahlprobe. Das Gefüge wird Schritt für Schritt herausgestellt: Kontrastierung der zweiten Phase und anschließende Einfärbung der Matrix. Für die korrelative Mikroskopie wurden Härteeindrücke (schwarze Raute) angefertigt. Nach 2.400 s erscheinen helle Linien (rote Pfeile). Das Experiment wurde nach zwei Stunden abgebrochen. Das Bild nach 12.000 s (*) wurde aufgenommen, während die Ätzlösung noch in der Zelle war, während das Bild nach 12.000 s (**) nach Entfernen der Durchflusszelle, Spülen und Trocknen aufgenommen wurde. ([53], © ASTM International)..... 61
- Abbildung 5-27: Zeitaufgelöste Beraha-Ätzung der normalisierten Stahlprobe. Das Gefüge wird Schritt für Schritt herausgearbeitet: Kontrastierung der zweiten Phase und anschließende Einfärbung der Matrix. Ein Härteeindruck (rote Raute in der rechten Ecke) dient als Referenzmarke für die korrelative Mikroskopie. Nach 960 s wurde die Ätzung gestoppt und das Gefüge anschließend nach der Trocknung unter dem Limi begutachtet (960 s*). 62
- Abbildung 5-28: Schichtentwicklung auf einem bestimmten Korn zu definierten Zeiten des in situ Films. a) Die Farbe wechselt von Interferenz erster Ordnung (leicht gelb (60 s) zu leicht rot (105 s), leicht violett (120 s) und leicht blau (240 s)) zu Interferenz zweiter Ordnung (von gelb (330 s) zu rot (500 s), blau (620 s) und grün (720 s)) und endet mit Interferenz dritter Ordnung (gelb (770 s) und rot (825 s)) mit dem Ätzstopp. Das lichtmikroskopische Bild nach dem Ätzen ist in b) dargestellt. 63
- Abbildung 5-29: Untersuchung des Zusammenhangs zwischen Orientierung und Schichtbildung durch Beraha-Ätzung (rote Rechtecke): a) Korrelativer EBSD-Scan (Inverse Polfigur Darstellung überlagert mit Image Quality) vor dem Ätzen; b) Limi-

	Aufnahme nach dem Ätzen; c) Repräsentativer FIB-Querschnitt zur Bestimmung der Interferenz-Schichtdicke; d) Darstellung der farbcodierten Schichtdicken in einem Orientierungsdreieck mit einer Interpolation zwischen den nach FIB-Schnitten in den entsprechenden Ferrit-Körnern gemessenen Schichtdicken.	63
Abbildung 5-30:	STEM-Untersuchung der Interferenzschicht: a) Position der FIB-Zielpräparation (rote gestrichelte Linie) an einer Stelle, an der nahezu die drei Hauptebenen nebeneinander liegen (EBSD); b) gleiche Stelle im Lini. Die drei unterschiedlichen Farben lassen unterschiedliche Schichtdicken vermuten; c) REM-Aufnahme der FIB-Zielpräparation; d) Vergrößerte Darstellung der präparierten TEM-Lamelle (e, STEM-Hellfeldaufnahme). Die Korngrenze wurde weniger stark angegriffen und zeigt keine Schichtbildung. f) Hochaufgelöste Darstellung der Interferenzschicht auf einem Ferrit-Korn: drei verschiedene Schichten können unterschieden werden.....	64
Abbildung 5-31:	STEM-EDX Untersuchung der Interferenzschicht. a) STEM-Hellfeldbild: Auf der Stahlprobe sind die drei verschiedenen Schichten zu sehen. Um eine Referenzlinie zu erhalten, wurde nach dem Ätzprozess eine Goldschicht aufgesputtert; die oberste Schicht aus Platin schützt das System vor Oberflächenveränderungen während der Zielpräparation. Die Position des EDX-Linienscans und die Richtung des Scans wird durch einen roten Pfeil angezeigt; b) EDX-Linienscan der angegebenen Position (Intensität auf jeweils maximale Intensität normalisiert): die verschiedenen Bereiche können den Bereichen in a) zugeordnet werden.	65
Abbildung 5-32:	Darstellung des Einflusses der Temperatur auf die Beraha-Ätzung für eine Ätzzeit von 60 s an Gefügeaufnahmen nach Ätzungen bei a) 5°C; b) 20°C; c) 40°C und d) 60°C.....	66
Abbildung 5-33:	REM-Aufnahme bei 5 kV und 300 pA mit SE-Detektor (ETD). a) Das Gefüge ist sehr detailliert dargestellt, wobei die Korngrenzen nur sehr schwach erkennbar sind. b) Bei genauer Betrachtung sind die Zementitnadeln gut erkennbar. MAs erscheinen als glatte Flächen.....	67
Abbildung 5-34:	Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung unter Variation der Ätzzeit bei 5°C. Proben geätzt für a) 60 s; b) 240 s; c) 480 s und d) 600 s.....	68
Abbildung 5-35:	Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung mit einem zusätzlichen Anteil von 0,5 % Amidosulfonsäure unter Variation der Ätzzeit bei 5°C bzw. 20°C. Proben geätzt für a) 60 s und b) 600 s bei 5°C; c) 60 s und d) 600 s bei 20°C.	69

Abbildung 5-36: Gefügeaufnahmen nach der Beraha-Ätzung mit einem zusätzlichen Anteil von 1 % Amidosulfonsäure unter Variation der Ätzzeit bei 5°C bzw. 20°C. Proben geätzt für a) 60 s und b) 600 s bei 5°C; c) 60 s und d) 600 s bei 20°C. 70

Abbildung 5-37: Aufnahmen ausgewählter Körner gemäß Abbildung 5-26 zur Darstellung der Entwicklung der Interferenzschicht; in der ersten Spalte werden die von EBSD (IQ überlagert mit IPF) ermittelten Orientierungen ausgewählter Körner gezeigt: jede Zeile zeigt ein Korn mit einer der drei Hauptorientierungen; in den Spalten rechts neben den EBSD-Karten wird die Zeit und eine Aufnahme dieser Körner mit der zugehörigen Interferenzordnung aufgezeigt. 73

Abbildung 5-38: a) Limi-Aufnahme der normalisierten Probe nach einer sechsfachen Farbätzung nach Beraha (jeweils unterbrochen und getrocknet), b) Nach einer FIB-Zielpräparation zeigt die STEM-Hellfeld-Abbildung sechs verschiedene Schichten, die den sechs verschiedenen Ätzschritten zugeordnet werden können. 76

Abbildung 5-39: Segmentierung einer Limi-Aufnahme der bainitischen Probe nach einer 60-sekündigen Beraha-Ätzung (a). b) Ergebnis der Schwellwertsegmentierung (schwarz: Bereiche zweiter Phase, weiß: ferritische Matrix). 77

Abbildung 5-40: Korrelative Darstellung der Beraha Ätzung bei 20°C (Ätzzeit 60 s). a) EBSD-Darstellungen (aufgenommen vor der Ätzung) der Orientungsverteilung (IPF) überlagert mit der Image Quality. Die Bereiche der zweiten Phase können nicht aufgelöst werden und sind als dunkle Bereiche erkennbar. b) Limi-Aufnahme nach der Ätzung. Die Bereiche zweiter Phase sind dunkel dargestellt. Vereinzelt sind auch kleine, sehr helle Bereiche erkennbar, die auf Restaustenit hindeuten. c) REM-Aufnahme der gleichen Position (bei 20 kV, 10 nA, SE-Kontrast). Die Substruktur ist deutlich erkennbar. Insbesondere die MAs erscheinen deutlich erhaben und strahlend weiß. 78

Abbildung 5-41: Kombination aus Beraha und Nital-Ätzung. a) Limi-Aufnahme nach der Beraha-Ätzung. Die Bereiche zweiter Phase sind deutlich erkennbar. b) Limi-Aufnahme der gleichen Stelle nach einer zusätzlichen Nital-Ätzung (35 s). Die Korngrenzen sind deutlich erkennbar, die zweite Phase erscheint dunkel aber deutlich gröber als nach der Beraha-Ätzung. c) Ergebnis der Schwellwertsegmentierung zur Rekonstruktion der Korngrenzen. 79

Abbildung 5-42: a) Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Temperatur während der Ätzung. b) Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Zusammensetzung während der Ätzung. 81

Abbildung 5-43: Flussdiagramm zur Auswahl der passenden Ätzung für niedriglegierte Stähle in Abhängigkeit von der gewählten Charakterisierung und dem Ziel der Kontrastierung.	85
Abbildung 5-44: Gegenüberstellung der untersuchten Ätzungen: a) LePera-Ätzung (5°C, 180 s) zur Gefügedarstellung im Limi. Die Matrix zeigt eine orientierungsabhängige Färbung. Gleichzeitig sind die bainitischen Bereiche in einem sehr dunklen Farbton deutlich von der Matrix und den Korngrenzen trennbar. b) Um die MAs deutlicher darstellen zu können, ist eine Anpassung der Parameter der LePera-Ätzung notwendig (40°C, 40 s). c) Durch eine Beraha Ätzung nach kurzen Zeiten (20°C, 60 s) ist eine ausschließliche Kontrastierung der Bereiche zweiter Phase möglich. Diese Kontrastierung ist zudem bestens für eine Gefügecharakterisierung im REM geeignet.....	86
Abbildung 6-1: Schematische Darstellung des Arbeitsablaufs der Bildregistrierung zur Erfassung der Substruktur am Beispiel eines Dualphasen-Gefüges. a) Limi-Bild; b) REM-Bild der nahezu gleichen Position; c) Invertiertes 8-Bit-Limi-Bild; d) Ausschnitt der extrahierten Merkmale (gelbe Kreuze) des bearbeiteten Limi- und REM-Bildes; e) Ergebnis der registrierten Limi- und REM-Bilder mittels bUnwarpJ als Overlay; f) binarisiertes Limi-Bild; g) Maskiertes REM-Bild mit der registrierten Limi-Binarisierung, die nur die zweite Phase mit ihrer Substruktur zeigt.....	90
Abbildung 6-2: Darstellung des Ablaufs zur Separierung von Objekten aus einem segmentierten und registrierten Limi-Bild (a): Die Limi-basierte, registrierte binäre Maske eines einzelnen Objekts (b) wird logisch mit dem REM-Bild (c) multipliziert und das resultierende Objekt mit Substruktur (d) zur weiteren Analyse in einen quadratischen schwarzen Rahmen gesetzt (e).....	92
Abbildung 6-3: Ergebnis der registrierten Limi- und REM-Aufnahme eines Beraha-geätzten Dualphasenstahls: Durch eine semitransparente Überlagerung dieser beiden Aufnahmen können die Vorteile beider Kontraste kombiniert werden.	93
Abbildung 6-4: Ergebnis des maskierten REM-Bildes nach der transformierten und segmentierten Limi-Aufnahme. Eine gezielte Weiterverarbeitung wie Segmentierung und Quantifizierung oder Objektextraktion der zweiten Phase ist nun möglich.	94
Abbildung 6-5: Auswahl der extrahierten Objekte durch das Matlab©-Skript. Zur besseren Visualisierung in dieser Abbildung werden die extrahierten Objekte neu skaliert und durch einen roten Pfeil ihrem Ursprung zugeordnet.....	95

- Abbildung 6-6: Prinzip der Segmentierung mittels Chan-Vese. Der weiße Kreis stellt die Kontur da. a) Die Kontur liegt vollständig außerhalb des Objektes, sodass der Term $F_1(C) > 0$ ist, während $F_2(C) \approx 0$. b) Die Kontur liegt vollständig innerhalb des Objektes, sodass $F_1(C) \approx 0$ ist, während $F_2(C) > 0$. c) Die Kontur liegt teilweise innerhalb, teilweise außerhalb der Kontur, sodass beide Terme $F_1(C)$ und $F_2(C) > 0$ sind. Im Fall von d) umschließt die Kontur das Objekt vollständig, sodass $F_1(C) \approx F_2(C) \approx 0$ ist. Abbildung modifiziert nach [137]. 102
- Abbildung 6-7: Darstellung der initialen Kontur als Ausgangspunkt für die Segmentierung mittels Chan-Vese. Das zu segmentierende Bild wird mit Kreisen überlagert und bildet schließlich den Ausgangspunkt für die Berechnung gemäß Gleichung (6.1). 103
- Abbildung 6-8: Ergebnis der Parameterstudie der Chan-Vese-Segmentierung. Ausgehend von einer Limi-Gefügaufnahme eines martensitischen Stahls (a) wird der Parameterraum von μ und λ variiert. Der Einfluss von λ ist in b) und c) dargestellt. Durch Erhöhung von μ wird die Kontur zunehmend glatter (d) und e)), sodass auch innerhalb der zweiten Phase weniger Substrukturen erfasst werden. 105
- Abbildung 6-9: Segmentierung mittels Chan-Vese. a) Zu segmentierendes Ausgangsbild. b) Überlagerung des Ausgangsbildes mit der initialen Kontur, bestehend aus Kreisen gemäß Abbildung 6-7. c) Visualisierung der angepassten Kontur ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$) an die zweite Phase nach Erreichen des Abbruchkriteriums (keine signifikante Änderungen nach mehreren Iterationen). d) Binärbild als Ausgabe, in dem die zweite Phase (weiß) von der Matrix (schwarz) getrennt ist. 106
- Abbildung 6-10: Segmentierung einer nach Klemm geätzten Gefügaufnahme. Die zweite Phase ist mit roten Pfeilen in a) hervorgehoben. Eine CV-Segmentierung mit $\mu = 0,9$ führt dennoch zu sehr guten Ergebnissen (b). 107
- Abbildung 6-11: Darstellung der Verbesserung des Segmentierungsansatzes nach CV durch Erweiterung des Ansatzes um einen Textur-Term. a) Das Gefüge weist eine sehr inhomogene zweite Phase auf. b) Der Standard-Ansatz weißt einige Bereiche innerhalb der zweiten Phase auf, die nicht erfasst werden (rote Pfeile und rote Box). c) Durch Hinzunahme der Varianz wird die zweite Phase geschlossener segmentiert. 108
- Abbildung 6-12: CV-Segmentierung von REM-Bildern. a) Die zu segmentierende REM-Aufnahme besteht aus einer ferritischen Matrix und einer martensitischen zweiten Phase. b) Ergebnis der CV-Segmentierung mit $\mu = 0,9$. Die martensitischen Bereiche werden

nicht vollständig erfasst. c) Durch Hinzunahme des Texturterms werden die martensitischen Bereiche besser segmentiert.....	108
Abbildung 6-13: Schwellwertsegmentierung einer Limi-Gefügaufnahme. a) Eingangsbild und b) dazugehöriges Histogramm (0-255). Basierend auf diesem Histogramm wird ein Schwellwert gesucht, bei dem die Matrix von der zweiten Phase getrennt werden kann. c) Binärbild, wenn die Schwelle bei 127 gelegt wird. d) Binärbild, wenn die Schwelle bei 167 festgelegt wird.....	109
Abbildung 6-14: Gegenüberstellung der Segmentierung eines zweiphasigen Stahlgefüges (a). b) Binärbild, wenn die Schwelle bei 127 gelegt wird. c) Binärbild, wenn die Schwelle bei 167 festgelegt wird. d) Ergebnis nach CV ($\lambda_1 = \lambda_2 = 1$, $v = 0$, $\mu = 0,9$).....	110
Abbildung 6-15: Flussdiagramm zur Unterstützung der Auswahl der geeigneten Segmentierung in Abhängigkeit der zugrunde liegenden Daten.....	114
Abbildung 7-1: Schematische Darstellung einer Separation zweier Klassen A und B. Die beiden Klassen werden über eine Hyperebene linear getrennt. Die Ebene wird über sog. Stützvektoren beschrieben.	116
Abbildung 7-2: Schematische Darstellung der Datentransformation. Während die Daten im Eingaberaum nicht linear trennbar sind, können sie nach einer Transformation über eine Kernel-Funktion in einen höherdimensionalen Merkmalraum (engl. Feature-Space) linear separiert werden.....	117
Abbildung 7-3: Prinzip der Maximum Margin Hyperplane. Es wird die Hyperebene ausgewählt, die den maximalen Abstand (margin) zu den Datenpunkten aufweist.	117
Abbildung 7-4: Darstellung der Soft Margin Hyperplane. Das Konzept erlaubt Datenpunkte, die jenseits der Trennebene liegen. Diese werden über fehlergewichtete Schlupfvariablen ζ berücksichtigt.	118
Abbildung 7-5: Darstellung des Ablaufs zum Training einer Klassifizierung mittels SVM. In dem Hauptprozess werden zunächst die Daten aus der Liste, die sämtliche Objekte mit Attributen enthält, eingelesen und normalisiert. Dem schließt sich die Parametersuche für die SVM an. Dazu werden die Trainingsdaten aufgeteilt und mittels Kreuzvalidierung die passenden Parameter bestimmt. Alle Ergebnisse werden mitgeschrieben (Log). Die ermittelten Parameter werden schließlich in einem Sub-Prozess zum Training der SVM genutzt und auf die Trainingsdaten zur Überprüfung der Performance angewendet. Als	

Ausgabe wird schließlich die Klassifizierung für jedes Objekt mit den mitgeschriebenen Daten zu den Parametern und der Performance übergeben. 121

Abbildung 7-6: Ausschnitte aus den Bildern des bainitischen Probensatzes. a) C863, b) C865 und c) Z272. Insbesondere der Unterschied von Probe Z272 ist herauszustellen und liegt in der nachträglichen Normalisierung dieser Probe. 128

Abbildung 7-7: Darstellung eines einfachen neuronalen Netzes bestehend aus drei Ebenen (Layern): Dem Input-, Hidden- und Output-Layer. Jedes Eingabesignal wird von allen Neuronen im Input-Layer aufgenommen und verarbeitet. Jeder Output eines Neurons (dargestellt als Kreis) wird anschließend gewichtet ($w_{n,j}$) an den nächsten Layer, der wiederum aus vollständig vernetzten Neuronen besteht, übergeben. In der letzten Ebene (Output-Layer) wird schließlich das Ausgangssignal (zum Beispiel eine Klassifizierung) erzeugt. 132

Abbildung 7-8: Darstellung der objektbasierten Klassifizierung. Als Eingangsbild dient ein ausgeschnittenes Objekt aus der maskierten REM-Aufnahme, welches auf eine fixe Größe von 224 x 224 px transformiert wird. Das Netzwerk zur Klassifizierung besteht aus mehreren Convolution- und ReLu-Layern, jeweils mit Max-Pooling-Layern. Die jeweilige Größe des Layers wird stetig reduziert, während die Tiefe des Layers stetig zunimmt. Die Merkmale werden schließlich an vollständig vernetzte (fully connected) Layer mit ReLu-Layern übergeben, an deren Ende die Klassifizierung mit Softmax bzw. mittels SVM steht. 138

Abbildung 7-9: Darstellung des Prozessablaufes zur pixelbasierten Klassifizierung. Über die sog. Schiebefenster-technik werden jeweils REM-Ausschnitte an das Netzwerk übergeben. Anschließend erfolgt eine Reihe von Convolution- mit ReLu-Layern, jeweils mit einer Max-Pooling-Schicht. Am Ende schließen sich Upsampling Layer an, die als Ergebnis eine pixelweise Klassifizierung mittels Softmax beinhaltet. Objektweise erfolgt schließlich ein Max-Voting, nachdem die einzelnen Fenster wieder zu einem Gesamtbild zusammengesetzt wurden. Um die Generalisierbarkeit zu erhöhen sind sog. Skip-Layer (A und B) eingebaut, die zufällig einzelne Neuronen entfernen. 139

Abbildung 7-10: Beispiele der Segmentierung von REM-Bildern mit gleichzeitiger Klassifizierung. a) Erfolgreiche Segmentierung und Klassifizierung in Bezug auf die manuelle Segmentierung, die als Referenz („Ground Truth“) angesehen wird. b) Objekte, bei denen die Segmentierung und Klassifizierung keine gute Übereinstimmung mit der

Referenz zeigt. Besonders die bainitische Probe Z272 verursacht durch die großen Bereiche von Zementit-Agglomerationen erhebliche Probleme.....	143
Abbildung 7-11: Ergebnis der kombinierten Segmentierung und Klassifizierung nach Stitching und vor bzw. nach Max-Voting der Testdaten. Die einheitliche Farbgebung zeigt die herausragende Übereinstimmung mit dem Ausgangsbild.	144
Abbildung 7-12: Vergleich der kombinierten Segmentierung und Klassifizierung zwischen Limi- und REM-Aufnahmen. Auch wenn die Segmentierung in beiden Fällen sehr zufriedenstellend ist, werden die Nachteile der Limi-Klassifizierung anhand der Farbvielfalt in den Ergebnisbildern sehr deutlich. Das Ergebnis wird noch einmal deutlich besser, nachdem ein Max-Voting erfolgt (nicht gezeigt).....	145
Abbildung 7-13: Beispiele von Artefakten (rotes Kästchen) im REM (a),c,d)). Nicht alle Artefakte werden als solche erkannt (b)), in vielen Fällen werden sie jedoch bereits aus der Klassifizierung ausgeschlossen.....	148
Abbildung 7-14: Korrelative Gefügeanalyse zur Phasencharakterisierung. Durch die Kombination aus Limi, EBSD und statistischer Nanoindentation können Morphologie, Missorientierung und lokale Härte derart kombiniert werden, dass selbst komplexe Gefügebestandteile identifiziert und quantifiziert werden können.	151
Abbildung 8-1: Darstellung der engen Vernetzung zwischen den drei relevanten Themenbereichen zur erfolgreichen Gefügeanalyse.....	154

Tabellenverzeichnis

Tabelle 4-1: Detaillierte Darstellung der Präparationsschritte für weitergehende Untersuchungen. Angegeben sind die verwendeten Schleif- und Polierunterlagen, Suspension/Lubrikant (alle von Fa. Struers), aufgebrauchte Kraft über die Poliermaschine (Struers TegraPol 21), Relativbewegung der Schleif-/Polierscheibe zum Probenhalter (e = Gegenlauf, g = Gleichlauf) sowie die Präparationszeit des jeweiligen Schrittes. ..	13
Tabelle 5-1: Auftragung des pH-Wertes vor und nach der Ätzung bei definierten Temperaturen. Ein Anstieg mit der Temperatur ist gut erkennbar. Generell liegt der pH-Wert nach der Ätzung auch stets höher in Bezug auf den Startpunkt.	80
Tabelle 5-2: Auftragung des pH-Wertes vor und nach der Ätzung bei unterschiedlichen Zusammensetzungen der Ätzlösung. Demnach erniedrigt die Zugabe von Amidosulfonsäure den pH-Wert deutlich.	81
Tabelle 7-1: Aufstellung der Probenbezeichnung und der vorliegenden zweiten Phasen gemäß Kapitel 4. Diese Proben wurden als Datenbasis für die Gefügeklassifizierung genutzt.	119
Tabelle 7-2: Extrahierte Gefügeparameter aus AxioVision, a4i und Mavi. Diese Parameter werden als Attribute für die Klassifizierung übernommen.	120
Tabelle 7-3: Darstellung des Parameterraums für den Operator „Optimize Parameter“ zur Identifizierung der beiden, eine SVM beschreibenden, Parametern C und γ . Angeben sind die Wertebereiche sowie die Schrittweite, mit denen die sog. Grid-Search durchgeführt wird. Die Berechnungszeit sowie die jeweils besten Parameterkombinationen mit der entsprechenden Performance sind ebenfalls angegeben.	123
Tabelle 7-4: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügaufnahmen. Insbesondere der angelassene Martensit konnte nicht korrekt klassifiziert werden. Die Accuracy für alle Daten beträgt 55,25 %.....	124
Tabelle 7-5: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügaufnahmen, wobei die martensitischen und angel. Martensit-Proben zusammengefasst sind. Die Accuracy für alle Daten beträgt 73,85 %.....	125
Tabelle 7-6: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gefügaufnahmen mit zusätzlichen Informationen aus dem REM (Eulerzahl und Substrukturdichte). Der	

angelaessene Martensit kann trotz REM noch nicht ausreichend gut klassifiziert werden. Die Accuracy f#r alle Daten betr#gt 64,74 %.....	126
Tabelle 7-7: Konfusionsmatrix der Klassifizierung der Limi-Gef#geaufnahmen unter Einbeziehung der REM-Informationen, wobei die martensitischen und die angel. Martensit-Proben zusammengefasst sind. Die Accuracy f#r alle Daten betr#gt 82,35%.	126
Tabelle 7-8: Konfusionsmatrix der Klassifizierung nach Probe. Zur besseren #bersicht sind die zugeordneten Phasen in Klammern angegeben (M = Martensit, a = angel. Martensit, P = Perlit, B = Bainit).	127
Tabelle 7-9: Zusammenfassung aller verwendeten Klassifizierungen mit unterschiedlichen Eingangsdaten (REM und Limi-Aufnahmen), Trainingsstrategie und der finalen Accuracy.	140
Tabelle 7-10: Konfusionsmatrix f#r den pixelbasierten Klassifizierungsansatz nach Feintuning unter Verwendung der REM-Daten. Die Accuracy liegt bei 95% f#r den gegebenen Datensatz.....	141
Tabelle 7-11: Performance des pixelbasierten Ansatzes in Bezug auf die Segmentierung unter Verwendung der FCNN mit ausgewogenen und vervielf#ltigten Daten nach Feintuning f#r jede Gef#geklasse. Die Matrix hat die h#chste und Bainit die niedrigste Genauigkeit.	142
Tabelle 7-12: Darstellung der Auswirkungen des Feintunings und der Datenvervielf#ltigung mit Hilfe des MVFCNN-Ansatzes. W#hrend das Feintuning einen signifikanten Einfluss hat, ist der Effekt der Datenvervielf#ltigung gering.	147

Anhang

Übersicht Ätzrezepte

Name des Rezepts	Art der Ätzung	Bestandteile	Zusammensetzung	Anmerkung
Nital	Strukturätzung	(A) Salpetersäure (B) Ethanol (C) Vollentsalztes Wasser	2 ml (A), 97 ml (B), 1 ml (C)	Über Salpetersäure und Wasser kann die Reaktivität gesteuert werden
Elektrolytisch	Strukturätzung	Elektrolyt A2 (Struers)		Ätzen in LectroPol-5 (Struers) mit 1 V für 6s (Flussrate 17)
Pikral	Strukturätzung	(A) Pikrinsäure (B) Ethanol	4,6 g (A) in 100 ml (B)	Stellt Korngrenzen sehr gut dar
Marshall	Strukturätzung	(A) Schwefelsäure (B) Oxalsäure (C) Vollentsalztes Wasser (D) Wasserstoffperoxid	5 ml (A) und 8 g (B) in 100 ml (C) und gleiche Menge (D)	Beide Lösungen müssen direkt auf der Probe zusammengeführt werden, andernfalls keine Reaktion
mod. Beraha	Struktur-/Farbätzung	(A) Kaliummetabisulfit (B) Vollentsalztes Wasser (C) Amidosulfonsäure	1) 3 g (A), 100 ml (B) 2) 3 g (A), 100 ml (B), 0,5 g (C)	Nach kurzen Zeiten bei 1) wird lediglich die zweite Phase dargestellt; Um die Färbung der Matrix zu verstärken, kann (C) hinzugegeben werden (Zusammensetzung 2)
LePera	Farbätzung	(A) Pikrinsäure (B) Ethanol (C) Natriummetabisulfit (D) Vollentsalztes Wasser	4,6 g (A) in 100 ml (B) und 1 g (C) in 100 ml (D)	Höchste Reaktivität nach unmittelbarem Mischen der beiden Lösungen
Klemm	Farbätzung	(A) Kaliummetabisulfit (B) Stammlösung	2 g (A) in 100 ml (B)	Die Stammlösung besteht aus einer gesättigten wässrigen Lösung mit Natriumthiosulfat-Pentahydrat

Möglicher Verfahrensablauf zur Gefügerekonstruktion

1. Segmentierung der Korngrenzen und zweiten Phase
Shading-Korrektur
Gegebenenfalls Farbmodell konvertieren (HLR)
Helligkeit/Kontrast/Gamma optimieren
Schwellwerte interaktiv setzen
Regionen entfernen (zur Entfernung von Artefakten – nicht größer als n-Pixel)
2. Segmentierung der Ferrit-Körner
Schwellwerte interaktiv setzen (an Ausgangsbild nach Shading-Korrektur)
Löcher füllen
Erosion
Dilatation
3. Subtraktion Ergebnis 2) von 1)
Schwellwerte interaktiv setzen
Euklidische Distanztransformation
Wasserscheide zur Korngrenzen-Rekonstruktion
4. Segmentieren der zweiten Phase
Helligkeit/Kontrast/Gamma einstellen (an Ausgangsbild nach Shading-Korrektur)
Schwellwerte interaktiv setzen
Löcher füllen
Regionen entfernen (zur Entfernung von Artefakten – nicht größer als n-Pixel)
5. Addition von Ergebnis 3 und 4

Literaturverzeichnis

- [1] J. Ruge and H. Wohlfahrt, *Technologie der Werkstoffe*, 8th ed. Wiesbaden: Vieweg, 2007.
- [2] H. Berns and W. Theisen, *Eisenwerkstoffe - Stahl und Gusseisen*, 3rd ed. Berlin Heidelberg New York: Springer, 2008.
- [3] E. Macherauch and H.-W. Zoch, *Praktikum in Werkstoffkunde*, 11th ed. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2011.
- [4] M. C. Zhao, K. Yang, F. R. Xiao, and Y. Y. Shan, "Continuous cooling transformation of undeformed and deformed low carbon pipeline steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 355, no. 1–2, pp. 126–136, 2003.
- [5] Hans-Jürgen Bargel and G. Schulze, *Werkstoffkunde*, 12th ed. Berlin: Springer Vieweg, 2018.
- [6] T. K. Roy, B. Bhattacharya, C. Ghosh, and S. K. Ajamani, *Advanced High Strength Steel - Processing and Applications*. Singapore: Springer, 2018.
- [7] H. Bhadeshia and R. Honeycombe, *Steels: Microstructure and Properties*, 4th ed. Oxford, Cambridge: Butterworth-Heinemann, 2017.
- [8] B. L. Bramfitt and A. O. Bensecoter, *Metallographer's Guide Practise and Procedures for Iron and Steels*. Materials Park, OH: ASM International, 2002.
- [9] Y. F. Shen, L. N. Qiu, X. Sun, L. Zuo, P. K. Liaw, and D. Raabe, "Effects of retained austenite volume fraction, morphology, and carbon content on strength and ductility of nanostructured TRIP-assisted steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 636, pp. 551–564, 2015.
- [10] H. K. D. H. . Bhadeshia, *Bainite in steels - Transformations, Microstructures and Properties*, 2nd ed. London: IOM Communications Ltd, 2001.
- [11] G. Krauss and S. Thompson, "Ferritic microstructures in continuously cooled low-and ultralow-carbon steels," *ISIJ Int.*, vol. 35, no. 8, pp. 937–945, 1995.

- [12] S. Zajac, V. Schwinn, and K. H. Tacke, "Characterisation and Quantification of Complex Bainitic Microstructures in High and Ultra-High Strength Linepipe Steels," *Mater. Sci. Forum*, vol. 500–501, pp. 387–394, 2005.
- [13] F. Gerdemann, "Bainite in medium carbon steels," Dissertation, Shaker Verlag GmbH, Aachen, 2010.
- [14] B. L. Bramfitt and J. G. Speer, "A Perspective on the Morphology of Bainite," *Metall. Trans. A*, vol. 21A, no. April, pp. 817–829, 1990.
- [15] M. P. Aarnts, R. A. Rijkenberg, and F. A. Twisk, "Microstructural quantification of multi-phase steels (Micro-quant)," Brussel, 2011.
- [16] G. Thewlis, "Classification and quantification of microstructures in steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 20, no. 2, pp. 143–160, Feb. 2004.
- [17] M. D. Fischer, "Quantitative Analyse feinkörniger , komplexer und mehrphasiger Mikrostrukturen .," Dissertation, RWTH Aachen, 2015.
- [18] G. Petzow, *Metallographisches, Keramographisches, Plastographisches Ätzen - Eisen Stahl und Gusseisen*, 6th ed. Berlin - Stuttgart: Gebrüder Borntraeger, 1994.
- [19] G. F. Vander Voort, "Color Metallography," *Micros. Today*, vol. 13, no. 6, pp. 22–27, 2005.
- [20] H. Schumann and H. Oettel, *Metallografie, 15. Auflage*. Weinheim: WILEY-VCH Verlag, 2011.
- [21] E. Füreder, "Metallkundliche Charakterisierung von modernen niedriglegierten , bainitischen Stählen," Dissertation, Universität Wien, 2010.
- [22] J. Angeli, A. C. Kneissl, and E. Füreder, "Ätztechniken für die Phasencharakterisierung von niedriglegierten, hochfesten Mehrphasenstählen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 43, no. 10, pp. 489–504, 2006.

- [23] E. Füreder, C. Voit, J. Puhlinger, and M. Pohl, “Klassische Ätztechniken und ihre Anwendungen für die quantitative Phasenbestimmung an einem modernen, höherfesten Stahl,” *Prakt. Metallogr.*, vol. 47, no. 7, pp. 374–387, 2010.
- [24] E. Miyama, C. Voit, and M. Pohl, “Zementitnachweis zur Unterscheidung von Bainitstufen in modernen , niedriglegierten Mehrphasenstählen The Identification of Cementite for Differentiating Between the Various Types of Bainite in Modern Low-Alloyed Multi-Phase Steels,” *Prakt. Metallogr.*, vol. 5, no. 48, pp. 261–272, 2011.
- [25] C. Thomser, M. Unger, Z. Zhang, J. R. Ohm, and W. Bleck, “Analysis of Merged LOM and SEM Pictures using Innovative Image Processing Methods Analyse von kombinierten LM- und REM-Bildern mit innovativen Bildbearbeitungsmethoden,” *Prakt. Metallogr.*, vol. 44, no. 12, pp. 579–590, 2007.
- [26] Z. Zhang, “Analyse von lichtoptischen und elektronenmikroskopischen Bildern zur Quantifizierung von Mehrphasenstählen,” Masterthesis, RWTH Aachen, 2006.
- [27] A. A. Gazder, F. Al-Harbi, H. T. Spanke, D. R. G. Mitchell, and E. V. Pereloma, “A correlative approach to segmenting phases and ferrite morphologies in transformation-induced plasticity steel using electron back-scattering diffraction and energy dispersive X-ray spectroscopy,” *Ultramicroscopy*, vol. 147, pp. 114–132, 2014.
- [28] J.-Y. Kang, D. H. Kim, S.-I. Baik, T.-H. Ahn, Y.-W. Kim, H. N. Han, K. H. Oh, H.-C. Lee, and S. H. Han, “Phase Analysis of Steels by Grain-averaged EBSD Functions,” *ISIJ Int.*, vol. 51, no. 1, pp. 130–136, 2011.
- [29] O. Man, L. Pantělejev, and Z. Pešina, “EBSD analysis of phase compositions of trip steel on various strain levels,” *Mater. Eng.*, vol. 16, no. 2, pp. 15–21, 2009.
- [30] T. Liu, D. Raabe, and S. Zaefferer, “A 3D tomographic EBSD analysis of a CVD diamond thin film,” *Sci. Technol. Adv. Mater.*, vol. 9, no. 3, p. 035013, Sep. 2008.
- [31] R. Zhu, S. Li, I. Karaman, R. Arroyave, T. Niendorf, and H. J. Maier, “Multi-phase microstructure design of a low-alloy TRIP-assisted steel through a combined computational and experimental methodology,” *Acta Mater.*, vol. 60, no. 6–7, pp. 3022–3033, Apr. 2012.

- [32] C. Herrera, D. Ponge, and D. Raabe, "Design of a novel Mn-based 1 GPa duplex stainless TRIP steel with 60% ductility by a reduction of austenite stability," *Acta Mater.*, vol. 59, no. 11, pp. 4653–4664, 2011.
- [33] L. Ryde, "Application of EBSD to analysis of microstructures in commercial steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 22, no. 11, pp. 1297–1306, Nov. 2006.
- [34] S. L. Shrestha, A. J. Breen, P. Trimby, G. Proust, S. P. Ringer, and J. M. Cairney, "An automated method of quantifying ferrite microstructures using electron backscatter diffraction (EBSD) data.," *Ultramicroscopy*, vol. 137, pp. 40–7, Feb. 2014.
- [35] E. Emadoddin, "Effect of cold rolling on annealing behaviour and retained austenite characteristics of multiphase CMnSi steel," *ISIJ Int.*, vol. 53, no. 2, pp. 330–336, 2013.
- [36] A. Wasilkowska, R. Petrov, L. Kestens, E. a. Werner, C. Krempaszky, S. Traint, and a. Pichler, "Microstructure and Texture Changes in a Low-alloyed TRIP-aided Steel Induced by Small Plastic Deformation," *ISIJ Int.*, vol. 46, no. 2, pp. 302–309, 2006.
- [37] A. W. Wilson, J. D. Madison, and G. Spanos, "Determining phase volume fraction in steels by electron backscattered diffraction," *Scr. Mater.*, vol. 45, no. 12, pp. 1335–1340, 2001.
- [38] M. de Meyer, L. Kestens, and B. C. de Cooman, "Texture development in cold rolled and annealed C-Mn-Si and C-Mn-Al-Si TRIP steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 17, no. 11, pp. 1353–1359, 2001.
- [39] R. Petrov, L. Kestens, A. Wasilkowska, and Y. Houbaert, "Microstructure and texture of a lightly deformed TRIP-assisted steel characterized by means of the EBSD technique," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 447, pp. 285–297, 2007.
- [40] B. Jeong, R. Gauvin, and S. Yue, "EBSD Study of Martensite in a Dual Phase Steel," in *Microscopy and Microanalysis*, 2002, vol. 8, no. 2, pp. 700–701.
- [41] S. I. Wright and M. M. Nowell, "EBSD image quality mapping," *Microsc. Microanal.*, vol. 12, no. 1, pp. 72–84, 2006.
- [42] EDAX, "OIM Analysis Help." 2013.

- [43] S. I. Wright, M. M. Nowell, and D. P. Field, “A Review of Strain Analysis Using Electron Backscatter Diffraction,” *Microsc. Microanal.*, vol. 17, no. 3, pp. 316–329, 2011.
- [44] I. Brough, P. S. Bate, and F. J. Humphreys, “Optimising the angular resolution of EBSD,” *Mater. Sci. Technol.*, vol. 22, no. 11, pp. 1279–1286, 2006.
- [45] V. Randle, “Electron backscatter diffraction: Strategies for reliable data acquisition and processing,” *Mater. Charact.*, vol. 60, no. 9, pp. 913–922, 2009.
- [46] L. N. Brewer and J. R. Michael, “Risks of ‘Cleaning’ Electron Backscatter Diffraction Data,” *Microsc. Today*, vol. 18, no. 02, p. 10, 2010.
- [47] S. Dzaszyk, “Gefügecharakterisierung von niedriglegierten Mehrphasenstählen mittels Orientierungsmikroskopie und Nanoindentierung,” Dissertation, Ruhr-Universität Bochum, 2010.
- [48] S. Dzaszyk, E. J. Payton, F. Friedel, V. Marx, and G. Eggeler, “On the characterization of recrystallized fraction using electron backscatter diffraction: A direct comparison to local hardness in an IF steel using nanoindentation,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 527, no. 29–30, pp. 7854–7864, 2010.
- [49] D. Britz, A. Hegetschweiler, and F. Mücklich, “Opening the door to fundamental understanding of structure and color metallography - A correlative microscopy study on steel,” *Microsc. Microanal.*, vol. 20, no. 3, pp. 834–835, 2014.
- [50] S. Weyand, D. Britz, D. Rupp, and F. Mücklich, “Investigation of Austenite Evolution in Low-Carbon Steel by Combining Thermo-Mechanical Simulation and EBSD Data,” *Mater. Perform. Charact.*, vol. 4, no. 3, p. MPC20150010, 2015.
- [51] J. Webel, J. Gola, D. Britz, and F. Mücklich, “A new analysis approach based on Haralick texture features for the characterization of microstructure on the example of low-alloy steels,” *Mater. Charact.*, vol. 144, no. May, pp. 584–596, 2018.
- [52] J. Gola, D. Britz, T. Staudt, M. Winter, A. S. Schneider, M. Ludovici, and F. Mücklich, “Advanced microstructure classification by data mining methods,” *Comput. Mater. Sci.*, vol. 148, no. 1 June, pp. 324–335, 2018.

- [53] D. Britz, A. Hegetschweiler, M. Roberts, and F. Mücklich, “Reproducible Surface Contrasting and Orientation Correlation of Low-Carbon Steels by Time-Resolved Beraha Color Etching,” *Mater. Perform. Charact.*, vol. 5, no. 5, pp. 553–563, 2016.
- [54] D. Britz, J. Webel, A. S. Schneider, and F. Mücklich, “Identifying and quantifying microstructures in low-alloyed steels: a correlative approach,” *La Metall. Ital.*, no. 3, pp. 5–10, 2017.
- [55] D. Britz, J. Webel, J. Gola, and F. Mücklich, “A Correlative Approach to Capture and Quantify Substructures by Means of Image Registration,” *Pract. Metallogr.*, vol. 54, no. 10, pp. 685–696, 2017.
- [56] S. M. Azimi, D. Britz, M. Engstler, M. Fritz, and F. Mücklich, “Advanced Steel Microstructural Classification by Deep Learning Methods,” *Sci. Rep.*, vol. 8, no. 1, p. 2128, 2018.
- [57] D. Britz, Y. Steimer, and F. Mücklich, “New Ways in Metallography: Through Controlled Conditions to Objective Microstructure Analysis of Low-Carbon Steels by LePera-Etching,” in *100 Years of E04 Development of Metallography Standards, ASTM STP1607*, G. Vander Voort, Ed. West Conshohocken, PA: ASTM International, 2019.
- [58] D. Britz, M. Engstler, J. Weickert, and F. Mücklich, “Unbiased Microstructure Segmentation Using Chan- Vese Algorithm in Combination with Otsu-Thresholding Initialization,” *to be Submitt.*
- [59] F. Mücklich, M. Engstler, D. Britz, J. Barrirero, and P. Rossi, “Why We Need All Dimensions to Solve Both Very Old and Very New Questions in Materials at the Micro-, Nano- and Atomic Scales,” *Pract. Metallogr.*, vol. 52, no. 9, pp. 507–524, 2015.
- [60] F. Mücklich, M. Engstler, D. Britz, and J. Gola, “Serial Sectioning Techniques – a Versatile Method for Three-Dimensional Microstructural Imaging,” *Pract. Metallogr.*, vol. 55, no. 8, pp. 569–578, 2018.
- [61] G. F. Vander Voort, *Metallography, Principles and Practice*. Materials Park, OH: ASM International, 1984.

- [62] D. Tomus and H. P. Ng, "In situ lift-out dedicated techniques using FIB-SEM system for TEM specimen preparation," *Micron*, vol. 44, no. 1, pp. 115–119, 2013.
- [63] F. S. LePera, "Improved etching technique to emphasize martensite and bainite in high-strength dual-phase steel," *J. Met.*, vol. 3, pp. 38–39, 1980.
- [64] E. Beraha, "New metallographic reagents for stainless steel and heat-resisting alloys," *J. Iron Steel Inst.*, vol. 204, pp. 248–251, 1966.
- [65] J. Kilpatrick, A. Benscoter, and A. Marder, "Tint Etching Improves Resolution and Contrast of Microstructures," *Met. Prog.*, vol. 100, no. 6, pp. 79–81, 1971.
- [66] J. Goldstein, D. E. Newbury, D. Joy, C. Lyman, P. Echlin, E. Lifshin, L. Sawyer, and J. Michael, *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis: Thrid Edition*, 3rd ed. New York: Kluver Academic/Plenum Publishers, 2003.
- [67] E. Hecht, *Optics 4th edition*, 4th ed. Essex: Pearson Education Limited, 2003.
- [68] N. A. North and I. D. MacLeod, "Corrosion of metals," in *Corrosion of Marine Archaeological Objects*, 1987, pp. 68–98.
- [69] P. W. Atkins and J. De Paula, *Physikalische Chemie*, 5th ed. Weinheim: WILEY-VCH Verlag, 2013.
- [70] H. Gahm and F. Jeglitsch, "Gahm, Jeglitsch - Color Methods and Their Application in Metallography - 1981.pdf," *Met. Prog.*, vol. 120, no. 3, pp. 48–53, 1981.
- [71] H. Gahm, F. Jeglitsch, and E. M. Hörl, "Untersuchungen zum Aufbau der Deckschichten bei Niederschlagsätzen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 19, pp. 369–390, 1982.
- [72] G. Salbert, *Metallographie - Grundlagen und Anwendung*. Stuttgart: Gebrüder Borntraeger, 2010.
- [73] E. Beraha and B. Shpigler, *Color Metallography*. Metals Park, OH: American Society for Metals, 1977.
- [74] H. Klemm, "Anwendung des Natriumthiosulfat-Verfahrens (KLEMM'sche Ätzung)," *Prakt. Metallogr.*, vol. 5, no. 4, pp. 163–177, 1968.

- [75] E. Beraha, "Ätzmittel zur Sichtbarmachung chemischer und physikalischer Inhomogenitäten in Stahlgefügen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 4, no. 8, pp. 419–420, 1967.
- [76] E. Beraha, "Farbätzung für Gußeisen, Stähle, Werkzeugstähle, Manganstähle und ferritische und martensitische rostfreie Stähle," *Prakt. Metallogr.*, vol. 8, no. 9, pp. 547–550, 1971.
- [77] E. Beraha, "Farbätzung für die Erkennung von Phosphiden, Karbiden und Nitriden in Eisen, Stahl, Werkzeugstahl, rostfreiem Stahl und hitzebeständigen Legierungen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 5, no. 9, pp. 501–508, 1968.
- [78] E. Beraha, "Ätzmittel auf Sulfidfilm-Basis," *Prakt. Metallogr.*, vol. 7, no. 5, pp. 242–248, 1970.
- [79] F. S. LePera, "Improved etching technique for the determination of percent martensite in high-strength dual-phase steels," *Metallography*, vol. 12, pp. 263–268, 1979.
- [80] C. K. Shui, W. T. Reynolds, G. J. Shiflet, and H. I. Aaronson, "A comparison of etchants for quantitative metallography of bainite and martensite microstructures in Fe-C-Mo alloys," *Metallography*, vol. 21, no. 1, pp. 91–102, 1988.
- [81] A. R. Marder and A. O. Benschoter, "Quantitative microanalysis of dual-phase steels," *Metallography*, vol. 15, no. 1, pp. 73–85, Feb. 1982.
- [82] A. Pokorny, "Einfluß des Oberflächenzustandes auf den Ätzeffekt," *Prakt. Metallogr.*, vol. 17, no. 1, pp. 23–28, 1980.
- [83] A. Ray and S. K. Dhua, "Microstructural manifestations in color: Some applications for steels," *Mater. Charact.*, vol. 37, no. 1, pp. 1–8, Jul. 1996.
- [84] S. Bandoh, O. Matsumura, and Y. Sakuma, "An Improved Tint with Etching Mixed Method for High Strength Microstructures," *Trans. ISIJ*, vol. 28, pp. 569–574, 1988.
- [85] E. Girault, P. Jacques, and P. Harlet, "Metallographic methods for revealing the multiphase microstructure of TRIP-assisted steels," *Mater. Charact.*, vol. 40, pp. 111–118, 1998.

- [86] H. Zakerinia, A. Kermanpur, and A. Najafizadeh, "Color metallography; a suitable method for characterization of martensite and bainite in multiphase steels," *Int. J. ISSI*, vol. 6, no. 1, pp. 14–18, 2009.
- [87] F. Hairer and A. Karelova, "Etching techniques for the microstructural characterization of complex phase steels by light microscopy," *Int. Doctoral Seminar*, pp. 50–54, 2008.
- [88] P. J. Szabo and I. Kardos, "Correlation between grain orientation and the shade of color etching," *Mater. Charact.*, vol. 61, no. 8, pp. 814–817, Aug. 2010.
- [89] A. Bonyár and P. J. Szabó, "A method for the determination of ferrite grains with a surface normal close to the (111) orientation in cold rolled steel samples with color etching and optical microscopy," *Mater. Sci. Forum*, vol. 812, pp. 297–302, 2015.
- [90] S. Reisinger, G. Ressel, S. Eck, and S. Marsoner, "Differentiation of grain orientation with corrosive and colour etching on a granular bainitic steel," *Micron*, vol. 99, no. March, pp. 67–73, 2017.
- [91] K. Joeris, J. G. Frerichs, K. Konstantinov, and T. Scheper, "In-situ microscopy: Online process monitoring of mammalian cell cultures," *Cytotechnology*, vol. 38, no. 1–3, pp. 129–134, 2002.
- [92] J. Sullivan, S. Mehraban, and J. Elvins, "In situ monitoring of the microstructural corrosion mechanisms of zinc-magnesium-aluminium alloys using time lapse microscopy," *Corros. Sci.*, vol. 53, no. 6, pp. 2208–2215, 2011.
- [93] Y. Steimer, D. Britz, and F. Mücklich, "Konstruktion einer FlowCell zur Beobachtung von Reaktionen an Metallen durch Lösungen (eingereicht)," 2017.
- [94] Europäische Kommission, "Verordnung (EG) 1272/2008 des Europäischen Parlaments und des Rates," *Amtsblatt der Eur. Union*, vol. 51, no. L353, p. 1355, 2008.
- [95] H. Moenke and L. Moenke-Blankenburg, *Optische Bestimmungsverfahren und Geräte für Mineralogen und Chemiker: Goniometrie, Refraktometrie, Mikroskopie, Kolorimetrie, Photometrie, Spektrometrie u. Polarimetrie*. Leipzig: Verlagsgesellschaft Geest & Portig, 1965.

- [96] W. Walcher, *Praktikum der Physik*, 5th ed. Stuttgart: B.G. Teubner, 2013.
- [97] W. Kaplonek and K. Nadolny, “Advanced 3D Laser Microscopy for Measurements and Analysis of Vitrified Bonded Abrasive Tools,” *J. Eng. Sci. Technol.*, vol. 7, no. 6, pp. 661–678, 2012.
- [98] A. M. Elwazri, P. Wanjara, and S. Yue, “Measurement of pearlite interlamellar spacing in hypereutectoid steels,” *Mater. Charact.*, vol. 54, no. 4–5, pp. 473–478, May 2005.
- [99] G. Abbate, U. Bernini, E. Ragozzino, and F. Somma, “The temperature dependence of the refractive index of water,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 11, no. 8, pp. 1167–1172, 1978.
- [100] M. Lonergan, “Freeze-Pump-Thaw Degassing of Liquids,” Washington, 2003.
- [101] I. Kardos, Z. Gácsi, and P. J. Szabó, “Color Etching for Characterization the Grain Orientation in Spheroidal Graphite Cast Iron,” *Mater. Sci. Forum*, vol. 537–538, pp. 389–396, 2007.
- [102] P. R. Krahe and M. Desnoues, “Revealing the former austenite grain boundaries of high-purity iron-carbon alloys,” *Metallography*, vol. 4, no. 2, pp. 171–175, Apr. 1971.
- [103] D. R. Barraclough, “Etching of prior austenite grain boundaries in martensite,” *Metallography*, vol. 6, no. 6, pp. 465–472, Dec. 1973.
- [104] A. Brownrigg, P. Curcio, and R. Boelen, “Etching of prior austenite grain boundaries in martensite,” *Metallography*, vol. 8, pp. 529–533, 1975.
- [105] V. L. Viswanathan, “A new etchant to reveal prior austenite grain boundaries in martensitic stainless steels,” *Metallography*, vol. 10, pp. 291–297, 1977.
- [106] J. Wiedermann, J. Wojtas, and J. Stepieen, “Etchant for Revealing Prior Austenite Grain in Alloy Steel,” *Prakt. Met.*, vol. 25, pp. 448–455, 1988.
- [107] A. W. Brewer, K. A. Erven, and G. Krauss, “Etching and image analysis of prior austenite grain boundaries in hardened steels,” *Mater. Charact.*, vol. 27, no. 1, pp. 53–56, Jul. 1991.

- [108] D. San Martin, P. E. J. Rivera Diaz del Castillo, E. Peekstok, and S. van der Zwaag, "A new etching route for revealing the austenite grain boundaries in an 11.4% Cr precipitation hardening semi-austenitic stainless steel," *Mater. Charact.*, vol. 58, no. 5, pp. 455–460, May 2007.
- [109] K. S. Cho, H. S. Sim, J. H. Kim, J. H. Choi, K. B. Lee, H. R. Yang, and H. Kwon, "A novel etchant for revealing the prior austenite grain boundaries and matrix information in high alloy steels," *Mater. Charact.*, vol. 59, no. 6, pp. 786–793, Jun. 2008.
- [110] E. Beraha, "Two New Metallographic Reagents," *Met. Prog.*, vol. 90, pp. 135–140, 1966.
- [111] E. Beraha, "Ätzmittel zur Identifizierung von Sulfideinschlüssen in Eisen und Stahl und zur Unterscheidung von Phosphid und Zementit in Gußeisen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 6, no. 9, pp. 565–568, 1969.
- [112] E. Beraha, "Farbätzung für rostfreien Stahl, korrosions- und hitzebeständige Legierungen," *Prakt. Metallogr.*, vol. 5, no. 8, pp. 443–451, 1968.
- [113] E. Beraha, "Ätzmittel auf Molybdat-Basis," *Prakt. Metallogr.*, vol. 11, pp. 271–275, 1974.
- [114] P. Lichtenegger and R. Blösch, "Beitrag zur Farbätzung hochlegierter Stähle," *Prakt. Metallogr.*, vol. 12, pp. 567–573, 1975.
- [115] T. Hemmingsen, H. Vangdal, and T. Våland, "Formation of Ferrous Sulfide Film from Sulfite on Steel Under Anaerobic Conditions - 1992.pdf," *Corrosion*, vol. 48, no. 6, pp. 475–481, 1992.
- [116] U. R. Evans, "Die Interferenzfarben dünner Filme von Oxyden, Sulfiden oder Jodiden auf Metallen," *Kolloid-Zeitschrift*, vol. 69, no. 2, p. 9, 1934.
- [117] M. Femenia, C. Canalias, J. Pan, and C. Leygraf, "Scanning Kelvin Probe Force Microscopy and Magnetic Force Microscopy for Characterization of Duplex Stainless Steels," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 150, no. 6, pp. B274–B281, 2003.

- [118] L. Q. Guo, M. C. Lin, L. J. Qiao, and A. A. Volinsky, "Ferrite and austenite phase identification in duplex stainless steel using SPM techniques," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 287, pp. 499–501, 2013.
- [119] P. J. Szabó and A. Bonyár, "Effect of grain orientation on chemical etching.," *Micron*, vol. 43, no. 2–3, pp. 349–51, Feb. 2012.
- [120] A. Bonyár and P. J. Szabó, "Correlation between the Grain Orientation Dependence of Color Etching and Chemical Etching," *Microsc. Microanal.*, vol. 18, no. 6, pp. 1389–1392, 2012.
- [121] T. Hemmingsen and T. Vland, "The reaction of the sulphite/bisulphite couple on SMO steel under anaerobic conditions," *Electrochim. Acta*, vol. 36, no. 8, pp. 1367–1375, 1991.
- [122] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, 14th ed. München: Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, 2006.
- [123] R. E. Dickerson, H. B. Gray, and M. Darenbourg, *Prinzipien der Chemie*, Second. Berlin, New York: De Gruyter, 1988.
- [124] J. J. Friel, J. C. Grande, D. Hetzner, K. Kurzydłowski, and D. Laferty, *Practical guide to image analysis*. Materials Park (OH) : ASM International, 2000.
- [125] B. Zitová and J. Flusser, "Image registration methods: A survey," *Image Vis. Comput.*, vol. 21, no. 11, pp. 977–1000, 2003.
- [126] J. Schindelin, I. Arganda-Carreras, E. Frise, V. Kaynig, M. Longair, T. Pietzsch, S. Preibisch, C. Rueden, S. Saalfeld, B. Schmid, J.-Y. Tinevez, D. J. White, V. Hartenstein, K. Eliceiri, P. Tomancak, and A. Cardona, "Fiji: an open-source platform for biological-image analysis.," *Nat. Methods*, vol. 9, no. 7, pp. 676–82, 2012.
- [127] J. Caplan, M. Niethammer, R. M. Taylor, and K. J. Czymmek, "The power of correlative microscopy: Multi-modal, multi-scale, multi-dimensional," *Curr. Opin. Struct. Biol.*, vol. 21, no. 5, pp. 686–693, 2011.

- [128] C. T. Rueden, J. Schindelin, M. C. Hiner, B. E. DeZonia, A. E. Walter, E. T. Arena, and K. W. Eliceiri, “ImageJ2: ImageJ for the next generation of scientific image data,” *BMC Bioinformatics*, vol. 18, no. 1, pp. 1–26, 2017.
- [129] T. Cao, C. Zach, S. Modla, D. Powell, K. Czymmek, and M. Niethammer, “Multi-modal registration for correlative microscopy using image analogies,” *Med. Image Anal.*, vol. 18, no. 6, pp. 914–926, 2014.
- [130] D. G. Lowe, “Distinctive Image Features from Scale-Invariant Keypoints,” *Int. J. Comput. Vis.*, vol. 60, no. 2, pp. 91–110, 2004.
- [131] I. Arganda-Carreras, “bUnwarpJ: Consistent and Elastic Registration in ImageJ .,” in *Second ImageJ User & Developer Conference*, 2008, no. July, p. 6.
- [132] C. Ó. S. Sorzano, P. Thévenaz, and M. Unser, “Elastic registration of biological images using vector-spline regularization,” *IEEE Trans. Biomed. Eng.*, vol. 52, no. 4, pp. 652–663, 2005.
- [133] C. De Boor, “B(asic)-Spline Basics,” Madison, 1986.
- [134] O. da F. M. Gomes, “Multimodal microscopy: automatic registration of images from optical microscopy and SEM using Fiji / ImageJ,” in *X STEREMAT 2016*, 2016, pp. 60–63.
- [135] T. Dahmen, M. Engstler, C. Pauly, P. Trampert, N. de Jonge, F. Mücklich, and P. Slusallek, “Feature Adaptive Sampling for Scanning Electron Microscopy,” *Sci. Rep.*, vol. 6, no. 1, p. 25350, 2016.
- [136] P. Soille, *Morphological Image Analysis: Principles and Applications*, 2nd ed. Springer Berlin Heidelberg, 2003.
- [137] T. F. Chan and L. a Vese, “Active contours without edges.,” *IEEE Trans. Image Process.*, vol. 10, no. 2, pp. 266–77, Jan. 2001.
- [138] A. Chouikhi, “Segmentation of Steel Microstructure Images using an adapted Chan & Vese approach,” Masterthesis, Saarland University, 2014.

- [139] K. D. Toennies, *Guide to Medical Image Analysis Methods and Algorithms*, 2nd ed. London: Springer, 2017.
- [140] B. Jähne, *Digital image processing.*, 5th ed. Berlin Heidelberg: Springer, 2002.
- [141] P. K. Sahoo, S. Soltani, A. K. C. Wong, and Y. C. Chen, “A survey of thresholding techniques,” *Comput. Vision, Graph. Image Process.*, vol. 41, no. 2, pp. 233–260, 1988.
- [142] N. Otsu, “A threshold selection method from gray-level histograms,” *IEEE Trans. Syst. Man. Cybern.*, vol. 9, no. 1, pp. 62–66, 1979.
- [143] N. Senthilkumaran and R. Rajesh, “Image segmentation - A survey of soft computing approaches,” *ARTCom 2009 - Int. Conf. Adv. Recent Technol. Commun. Comput.*, vol. 1, no. 2, pp. 844–846, 2009.
- [144] W. Gao, L. Yang, X. Zhang, and H. Liu, “An improved Sobel edge detection,” *Proc. - 2010 3rd IEEE Int. Conf. Comput. Sci. Inf. Technol. ICCSIT 2010*, vol. 5, pp. 67–71, 2010.
- [145] J. Canny, “A Computational Approach to Edge Detection,” *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, vol. PAMI-8, no. 6, pp. 679–698, 1986.
- [146] L. Vincent and P. Soille, “Watershed in Digital Spaces: An Efficient Algorithm Based on Immersion Simulation,” *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, vol. 13, no. 6, pp. 583–598, 1991.
- [147] M. Kass, a. Witkin, and D. Terzopoulos, “Snakes: Active contour models,” *Int. J. Comput. Vis.*, vol. 1, no. 4, pp. 321–331, 1988.
- [148] J. Illingworth and J. Kittler, “A survey of the hough transform,” *Comput. Vision, Graph. Image Process.*, vol. 44, no. 1, pp. 87–116, 1988.
- [149] A. K. Jain, *Fundamentals of digital image processing*, vol. 46, no. 3. Englewood Cliffs: Pearson Education Prentice Hall, 1989.
- [150] N. M. Zaitoun and M. J. Aqel, “Survey on Image Segmentation Techniques,” *Procedia Comput. Sci.*, vol. 65, no. Iccmit, pp. 797–806, 2015.

- [151] G. Litjens, T. Kooi, B. E. Bejnordi, A. A. A. Setio, F. Ciompi, M. Ghafoorian, J. A. W. M. van der Laak, B. van Ginneken, and C. I. Sánchez, “A Survey on Deep Learning in Medical Image Analysis,” *Med. Image Anal.*, vol. 45, pp. 60–88, 2017.
- [152] E. Gibson, W. Li, C. Sudre, L. Fidon, D. I. Shakir, G. Wang, Z. Eaton-Rosen, R. Gray, T. Doel, Y. Hu, T. Whyntie, P. Nachev, M. Modat, D. C. Barratt, S. Ourselin, M. J. Cardoso, and T. Vercauteren, “NiftyNet: a deep-learning platform for medical imaging,” *Comput. Methods Programs Biomed.*, vol. 158, pp. 113–122, 2018.
- [153] D. Shen, G. Wu, H. Suk, and C. Engineering, “Deep learning in medical image analysis,” *Annu. Rev. Biomed. Eng.*, vol. 19, pp. 221–248, 2017.
- [154] B. L. DeCost and E. A. Holm, “A computer vision approach for automated analysis and classification of microstructural image data,” *Comput. Mater. Sci.*, vol. 110, pp. 126–133, 2015.
- [155] A. Chowdhury, E. Kautz, B. Yener, and D. Lewis, “Image driven machine learning methods for microstructure recognition,” *Comput. Mater. Sci.*, vol. 123, pp. 176–187, 2016.
- [156] B. L. DeCost, T. Francis, and E. A. Holm, “Exploring the microstructure manifold: Image texture representations applied to ultrahigh carbon steel microstructures,” *Acta Mater.*, vol. 133, pp. 30–40, 2017.
- [157] T. Dutta, S. Banerjee, and S. K. Saha, “Noise Removal and Image Segmentation in Micrographs of Ferrite-Martensite Dual-Phase Steel,” in *Asia-Pacific Engineering and Technology Conference (APETC 2017)*, 2017, pp. 638–646.
- [158] P. Prakash, V. D. Mytri, and P. S. Hiremath, “Active contour multigrid model for segmentation and automatic quantification of material phases of cast iron,” *IJCA - Int. J. Comput. Appl.*, vol. 9, no. 4, pp. 32–37, 2010.
- [159] D. Mumford and J. Shah, “Optimal approximations by piecewise smooth functions and associated variational problems,” *Comm. Pure Appl. Math.*, vol. 42, no. 5, pp. 577–685, 1989.

- [160] S. Osher and J. A. Sethian, "Fronts propagating with curvature-dependent speed: Algorithms based on Hamilton-Jacobi formulations," *J. Comput. Phys.*, vol. 79, no. 1, pp. 12–49, 1988.
- [161] A. De Santis, O. Di Bartolomeo, D. Iacoviello, and F. Iacoviello, "Quantitative shape evaluation of graphite particles in ductile iron," *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 196, no. 1–3, pp. 292–302, 2008.
- [162] B. Berkels, A. Rätz, M. Rumpf, and A. Voigt, "Extracting grain boundaries and macroscopic deformations from images on atomic scale," *J. Sci. Comput.*, vol. 35, no. 1, pp. 1–23, 2008.
- [163] M. A. Atwater, K. A. Darling, and M. A. Tschopp, "Synthesis, characterization and quantitative analysis of porous metal microstructures: Application to microporous copper produced by solid state foaming," *AIMS Mater. Sci.*, vol. 3, no. 2, pp. 573–590, 2016.
- [164] T. F. Chan, B. Yezriev Sandberg, and L. A. Vese, "Active contours without edges for vector-valued images," *J. Vis. Commun. Image Represent.*, vol. 11, no. 2, pp. 130–141, 2000.
- [165] M. Rousson and R. Deriche, "A variational framework for active and adaptive segmentation of vector valued images," *Proc. - Work. Motion Video Comput. MOTION 2002*, pp. 56–61, 2002.
- [166] T. Brox, J. Weickert, B. Burgeth, and P. Mrázek, "Nonlinear structure tensors," *Image Vis. Comput.*, vol. 24, no. 1, pp. 41–55, 2006.
- [167] L. Fahrmeir, R. Künstler, I. Pigeot, and G. Tutz, *Statistik Der Weg zur Datenanalyse*, 5th ed. Berlin Heidelberg: Springer, 2007.
- [168] L. He and S. Osher, "Solving the Chan-Vese Model by a Multiphase Level Set Algorithm Based on the Topological Derivative," *Scale Sp. Var. Methods Comput. Vis.*, pp. 777–788, 2007.

- [169] J. Ohser, K. Sandau, W. Stets, and W. Gerber, “Image Analytical Characterization of Graphite in Grey Cast Iron and Classification of Lamellar Arrangement.,” *Pract. Metallogr.*, vol. 40, no. 9, pp. 454–473, 2003.
- [170] P. Rossi, M. Engstler, and F. Muecklich, “Quantitative Classification and Assessment of Sr Modification in Hypoeutectic Al-Si and Al-Si-Mg Alloys,” *Pract. Metallogr.*, vol. 52, no. 10, pp. 571–589, 2015.
- [171] I. H. Witten, E. Frank, and M. Hall, *Data Mining: Practical Machine Learning Tools and Techniques*, 4th ed. Cambridge: Elsevier, 2016.
- [172] J. Han, M. Kamber, and J. Pei, *Data mining: concepts and techniques*, 3rd ed. Waltham: Elsevier Inc., 1992.
- [173] K. Xu, Y. H. Ai, and X. Y. Wu, “Application of multi-scale feature extraction to surface defect classification of hot-rolled steels,” *Int. J. Miner. Metall. Mater.*, vol. 20, no. 1, pp. 37–41, 2013.
- [174] P. Caleb and M. Steuer, “Classification of surface defects on hot rolled steel using adaptive learning methods,” *KES’2000. Fourth Int. Conf. Knowledge-Based Intell. Eng. Syst. Allied Technol. Proc. (Cat. No.00TH8516)*, vol. 1, 2000.
- [175] D. Brzakovic and N. Vujovic, “Designing a defect classification system: A case study,” *Pattern Recognit.*, vol. 29, no. 8, pp. 1401–1419, 1996.
- [176] T. Piironen, O. Silven, T. Laitinen, M. Pietikainen, and E. Strommer, “Automated Visual Inspection of Rolled Metal Surfaces,” *Mach. Vis. Appl.*, vol. 3, pp. 247–254, 1990.
- [177] S. Zhou, Y. Chen, D. Zhang, J. Xie, and Y. Zhou, “Classification of surface defects on steel sheet using convolutional neural networks,” *Mater. Tehnol.*, vol. 51, no. 1, pp. 123–131, 2017.
- [178] J. Masci, U. Meier, D. Ciresan, J. Schmidhuber, and G. Fricout, “Steel defect classification with Max-Pooling Convolutional Neural Networks,” *Proc. Int. Jt. Conf. Neural Networks*, pp. 1–6, 2012.

- [179] Y. Liu, T. Zhao, W. Ju, S. Shi, S. Shi, and S. Shi, “Materials discovery and design using machine learning,” *J. Mater.*, vol. 3, no. 3, pp. 159–177, 2017.
- [180] K. Gajalakshmi, S. Palanivel, N. J. Nalini, and S. Saravanan, “Automatic classification of cast iron grades using support vector machine,” *Opt. - Int. J. Light Electron Opt.*, vol. 157, pp. 724–732, 2018.
- [181] F. Iacoviello, D. Iacoviello, V. Di Cocco, A. De Santis, and L. D’Agostino, “Classification of ductile cast iron specimens based on image analysis and support vector machine,” *Procedia Struct. Integr.*, vol. 3, pp. 283–290, 2017.
- [182] A. Velichko, “Quantitative 3D Characterization of Graphite Morphologies in Cast Iron using FIB Microstructure Tomography,” Dissertation, Saarland University, 2008.
- [183] A. Velichko and F. Mücklich, “Bildanalytische Formanalyse und Klassifizierung der irregulären Graphitmorphologie in Gusseisen,” *Prakt. Metallogr. Metallogr.*, vol. 43, no. 4, pp. 192–207, 2006.
- [184] K. Roberts, G. Weikum, and F. Mücklich, “Examinations on the Automatic Classification of Lamellar Graphite Using the Support Vector Machine,” *Pract. Metallogr.*, vol. 42, no. 8, pp. 396–410, 2003.
- [185] N. Lubbers, T. Lookman, and K. Barros, “Inferring low-dimensional microstructure representations using convolutional neural networks,” *Phys. Rev. E*, vol. 96, no. 5, pp. 1–12, 2017.
- [186] S. Haykin, *Neural Networks and Learning Machines*, 3rd ed. New Jersey: Pearson Education Prentice Hall, 2009.
- [187] B. E. Boser, I. M. Guyon, and V. N. Vapnik, “A training algorithm for optimal margin classifiers,” *Proc. fifth Annu. Work. Comput. Learn. theory - COLT ’92*, pp. 144–152, 1992.
- [188] S. Abe, *Support Vector Machines for Pattern Classification*, 2., vol. 224, no. 4. London Dordrecht Heidelberg New York: Springer-Verlag London Limited, 2010.

- [189] T. Runkler, *Data Mining: Methoden und Algorithmen intelligenter Datenanalyse*, 1st ed. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2010.
- [190] C. C. Aggarwal, *Data Classification: Algorithms and Applications*. New York: Chapman & Hall/CRC Data, 2014.
- [191] C. Cortes and V. Vapnik, "Support Vector Networks," *Mach. Learn.*, vol. 20, no. 3, pp. 273–297, 1995.
- [192] B. Schölkopf and A. J. Smola, *Learning with Kernels - Support Vector Machines, Regularization, Optimization and Beyond*. Cambridge: MIT Press, 2002.
- [193] C. Hsu and C. Lin, "A comparison of methods for multiclass support vector machines," *Neural Networks, IEEE Trans.*, vol. 13, no. 2, pp. 415–425, 2002.
- [194] C.-C. Chang and C.-J. Lin, "LIBSVM: A Library for Support Vector Machines," *ACM Trans. Intell. Syst. Technol.*, vol. 2, no. 3, pp. 1–27, 2011.
- [195] J. Ohser and F. Mücklich, *Statistical Analysis of Microstructures in Materials Science*. Chichester: Wiley, 2000.
- [196] R. M. Haralick, K. Shanmugam, and I. Dinstein, "Textural features for image classification," *IEEE Trans. Syst. Man Cybern.*, vol. SMC-3, no. 6, pp. 610–621, 1973.
- [197] C. Richter, "Klassifikation von Werkstoffgefügebildern aufgrund teilchenbasierter Kenngrößen," Masterthesis, Universität des Saarlandes, 2005.
- [198] A. Velichko and F. Mücklich, "Neue Möglichkeiten der Objektiven Graphitklassifizierung in Gusseisen durch Nano-Tomographie und Internetbasierte Online-Verfahren," *VDI Berichte*, no. 1949, pp. 21–36, 2007.
- [199] Zeiss, "AxioVision User's Guide Release 4.9.1 SE64." Carl Zeiss Microscopy GmbH, Jena, p. 1106, 2013.
- [200] Aquinto, "a4i Benutzerhandbuch Erweiterte Bildanalyse." Aquinto AG, Berlin, 2003.
- [201] S. Land and S. Fischer, "RapidMiner in academic use." Rapid-I, Boston, p. 54, 2012.

- [202] C.-W. Hsu, C.-C. Chang, and C.-J. Lin, “A Practical Guide to Support Vector Classification,” *BJU Int.*, vol. 101, no. 1, pp. 1396–400, 2008.
- [203] R. A. Rijkenberg, M. P. Aarnts, F. a. Twisk, M. J. Zuijderwijk, M. Knieps, and H. Pfaff, “Linking Crystallographic, Chemical and Nano-Mechanical Properties of Phase Constituents in DP and TRIP Steels,” *Mater. Sci. Forum*, vol. 638–642, pp. 3465–3472, Jan. 2010.
- [204] L. Nanni, A. Lumini, and S. Brahnam, “Survey on LBP based texture descriptors for image classification,” *Expert Syst. Appl.*, vol. 39, no. 3, pp. 3634–3641, 2012.
- [205] J. Schmidhuber, “Deep Learning in neural networks: An overview,” *Neural Networks*, vol. 61, pp. 85–117, 2015.
- [206] Y. Lecun, Y. Bengio, and G. Hinton, “Deep learning,” *Nature*, vol. 521, no. 7553, pp. 436–444, 2015.
- [207] D. Silver, A. Huang, C. J. Maddison, A. Guez, L. Sifre, G. Van Den Driessche, J. Schrittwieser, I. Antonoglou, V. Panneershelvam, M. Lanctot, S. Dieleman, D. Grewe, J. Nham, N. Kalchbrenner, I. Sutskever, T. Lillicrap, M. Leach, K. Kavukcuoglu, T. Graepel, and D. Hassabis, “Mastering the game of Go with deep neural networks and tree search,” *Nature*, vol. 529, no. 7587, pp. 484–489, 2016.
- [208] W. S. McCulloch and W. Pitts, “A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity,” *Bull. Math. Biophys.*, vol. 5, no. 4, pp. 115–133, 1943.
- [209] Y. LeCun, L. Bottou, Y. Bengio, and P. Haffner, “Gradient-based learning applied to document recognition,” *Proc. IEEE*, vol. 86, no. 11, pp. 2278–2324, 1998.
- [210] K. Fukushima, “Neocognitron: A self-organizing neural network model for a mechanism of pattern recognition unaffected by shift in position,” *Biol. Cybern.*, vol. 36, no. 4, pp. 193–202, 1980.
- [211] Y. Guo, Y. Liu, A. Oerlemans, S. Lao, S. Wu, and M. S. Lew, “Deep learning for visual understanding: A review,” *Neurocomputing*, vol. 187, pp. 27–48, 2016.
- [212] C. M. Bishop, *Pattern Recognition and Machine Learning*. New York: Springer, 2006.

- [213] D. E. Rumelhart, G. E. Hinton, and R. J. Williams, “Learning representations by back-propagating errors,” *Nature*, vol. 323, no. 6088, pp. 533–536, 1986.
- [214] R. K. Srivastava, K. Greff, and J. Schmidhuber, “Training Very Deep Networks,” *Adv. Neural Inf. Process. Syst.*, pp. 1–9, 2015.
- [215] A. Krizhevsky, I. Sutskever, and G. E. Hinton, “ImageNet Classification with Deep Convolutional Neural Networks,” *Adv. Neural Inf. Process. Syst.*, pp. 1–9, 2012.
- [216] Jia Deng, Wei Dong, R. Socher, Li-Jia Li, Kai Li, and Li Fei-Fei, “ImageNet: A large-scale hierarchical image database,” *IEEE Conf. Comput. Vis. Pattern Recognit.*, pp. 248–255, 2009.
- [217] K. Simonyan and A. Zisserman, “Very Deep Convolutional Networks for Large-Scale Image Recognition,” *Int. Conf. Learn. Represent.*, 2015.
- [218] J. Long, E. Shelhamer, and T. Darrell, “Fully Convolutional Networks for Semantic Segmentation,” *Proc. IEEE Conf. Comput. Vis. Pattern Recognit.*, pp. 3431–3440, 2015.
- [219] J. Donahue, Y. Jia, O. Vinyals, J. Hoffman, N. Zhang, E. Tzeng, and T. Darrell, “DeCAF: A Deep Convolutional Activation Feature for Generic Visual Recognition,” *Proc. 31st Int. Conf. Mach. Learn. PMLR*, vol. 32, no. 1, pp. 647–655, 2014.
- [220] B. L. DeCost, M. D. Hecht, T. Francis, B. A. Webler, Y. N. Picard, and W. E. A. Holm, “UHCSDB : UltraHigh Carbon Steel Micrograph DataBase - Tools for Exploring Large Heterogeneous Microstructure Datasets,” *Integr. Mater. Manuf. Innov.*, vol. 6, no. 2, pp. 197–205, 2017.
- [221] D. A. van Dyk and X.-L. Meng, “The Art of Data Augmentation,” *J. Comput. Graph. Stat.*, vol. 10, no. 1, pp. 1–50, 2001.
- [222] N. Dalal, B. Triggs, N. Dalal, B. Triggs, O. Gradients, and D. Cordelia, “Histograms of Oriented Gradients for Human Detection,” *Int. Conf. Comput. Vis. Pattern Recognit. (CVPR '05)*, vol. Jun, pp. 886–893, 2005.

- [223] H.-J. Kirsch, P. Fließ, W. Schütz, and A. Streißelberger, “Neue Eigenschaftskombinationen an Grobblech durch den beschleunigten Kühlprozeß,” *Stahl und Eisen*, vol. 119, no. 3, pp. 57–65, 1999.
- [224] A. Streißelberger, H.-J. Kirsch, and V. Schwinn, “Process developments in TMCP to produce heavy plates in high strength steels grades,” in *2nd International Conference on Thermomechanical Processing of Steels*, 2004.
- [225] A. Jain, S. P. Ong, G. Hautier, W. Chen, W. D. Richards, S. Dacek, S. Cholia, D. Gunter, D. Skinner, G. Ceder, and K. A. Persson, “Commentary: The materials project: A materials genome approach to accelerating materials innovation,” *APL Mater.*, vol. 1, no. 1, 2013.