

Das Anwendungspotential der Röntgen-Topographie vom Mikroriss bis zur Gepäckprüfung

Manfred P. HENTSCHEL, Andreas KUPSCH, Axel LANGE, Bernd R. MÜLLER,
Jörg SCHORS, Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung (BAM), Berlin

Kurzfassung. Röntgen-Topographische Verfahren sind dadurch gekennzeichnet, dass die Streueigenschaften eines Probekörpers ortskorreliert erfasst werden. Somit vereinigen sie die Vorzüge der bildgebenden Eigenschaft der Radiographie mit der analytischen Struktur-Selektivität der Röntgenstreuung. Die strukturelle Auflösung der Verfahren überdeckt die sechs Größenordnungen von 10^{-2} bis 10^{-8} cm. Durch Abtastung der Probekörper wird eine Ortsauflösung bis zu $10\ \mu\text{m}$ erreicht, sodass auch relevanten Einzeldefekte im Sinne der traditionellen ZfP-Aufgaben erfasst werden. Die Weitwinkel-Topographie ermöglicht u.a. die selektive Abbildung der Komponenten in Verbunden (Phasen) und der Textur, und darüber hinaus die Kleinwinkel-Streuung durch Beugung und -Refraktion die Darstellung der spezifischen (inneren) Oberfläche und der Rissdichte. Die Verfahren der Röntgen-Topographie und ihre Anwendungen für nichtmetallische Werkstoffe werden dargestellt, insbesondere bezüglich Luftfahrt-Komposite (CFK), Keramik und Ermüdungsrisse in Kunststoffen.

1. Streuung und Topographie

Röntgentopographische Verfahren bilden die Streueigenschaften eines Probekörpers ortskorreliert ab, wie in Abb.1 prinzipiell dargestellt. Traditionell wurden sie zur Darstellung von atomaren Versetzungsstrukturen in Einkristallen eingesetzt [1] und waren lange nicht auf polykristalline und nichtkristalline Stoffe anwendbar. Durch die Entwicklung der abtastenden Topographie-Verfahren wurde diese Schwierigkeit überwunden.

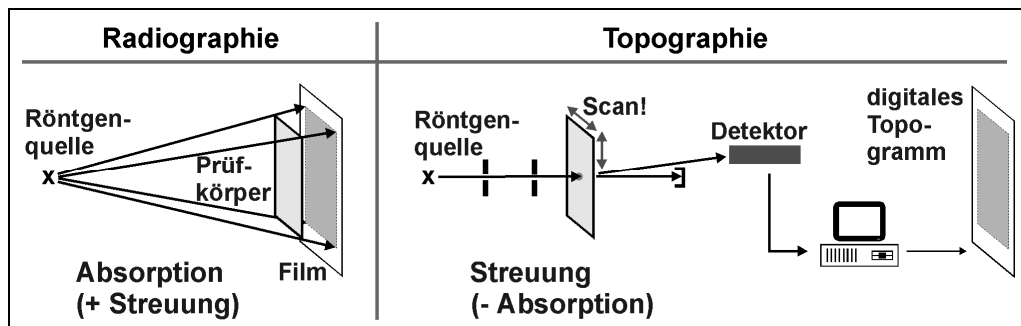


Abb.1: Prinzipieller Vergleich von Röntgen-Radiographie und -(Streu-)Topographie

Die Aufgaben der zerstörungsfreien Materialcharakterisierung liegen in der Aufklärung und Nutzung der Korrelationen zwischen der Atomar-, Meso- und Mikrostruktur ei-

nerseits und den makroskopischen Eigenschaften von Werkstoffen und Komponenten andererseits. Aufgrund der unterschiedlichen Streueffekte überdeckt die Strukturselektivität der Röntgen-Topographie die sechs Größenordnungen von einigen Mikrometern bis zu Picometern. Durch Probenabtastung werden Ortsauflösung von 5 μm erreicht, so dass auch relevante Einzeldefekte im Sinne der traditionellen ZfP-Aufgaben erfasst werden. Für die aus der Kristallographie bekannte Röntgenweit- und Kleinwinkelstreuung dienen kommerzielle Röntgen-Feinstruktur-Anlagen, mit denen monochromatische Strahlung hoher Brillanz und der Wellenlängen um 0,1 nm (bis 20 keV) erzeugt wird.

Die Weitwinkelstreuung (-beugung) bildet die atomare und molekulare kristalline Struktur unterhalb der Nanometer-Dimension durch elastische Beugung ab [2]. Beugungsmuster von Kohlenstofffasern und von vielen Polymeren sind anisotrop, was für die Bestimmung der Materialorientierung genutzt werden kann. Da sich alle stofflich verschiedenen Festkörper durch ihr charakteristisches Streuspektrum unterscheiden, ergibt sich eine Messsonde für die Materialidentifizierung und deren Ortsverteilung.

Die Röntgen-Kleinwinkel-Streuung dagegen ist ein klassisches Untersuchungsinstrument der Kolloidchemie und der Polymerphysik. Die Röntgen-Beugung an Partikeln bis etwa 50 nm Durchmesser kann mittels der Guinier- und der Porod-Analyse [3] interpretiert werden. Oberhalb dieser Größenordnung dominieren jedoch die röntgenoptischen Effekte der Brechung [4, 5] (Refraktion) und der Totalreflektion.

Die anisotropen Beugungsmuster einiger für polymere Verbundwerkstoffe typischen Verstärkungsfasern, C-Fasern, Glasfasern und Aramidfasern sind in Abb. 2 dargestellt. Die Faserrichtungen verlaufen vertikal. Um derartige kristallographische Informationen ortsabhängig oder orientierungsselektiv abzubilden, ist es erforderlich, die Streuintensität eines vorgewählten Winkel-Bereichs mit einer Blende zu isolieren, hinter der ein Röntgendetektor die Intensität aufnimmt. Den hier dargestellten Topographie-Verfahren ist gemeinsam, dass die Streugometrie vorgewählt wird und anschließend der Probekörper zweidimensional - einschließlich Rotation - verfahren wird. Die Abtastung mittels Mikromanipulator sowie das Auslesen der Detektor-Zählraten an jeder Position wird von einem PC gesteuert.

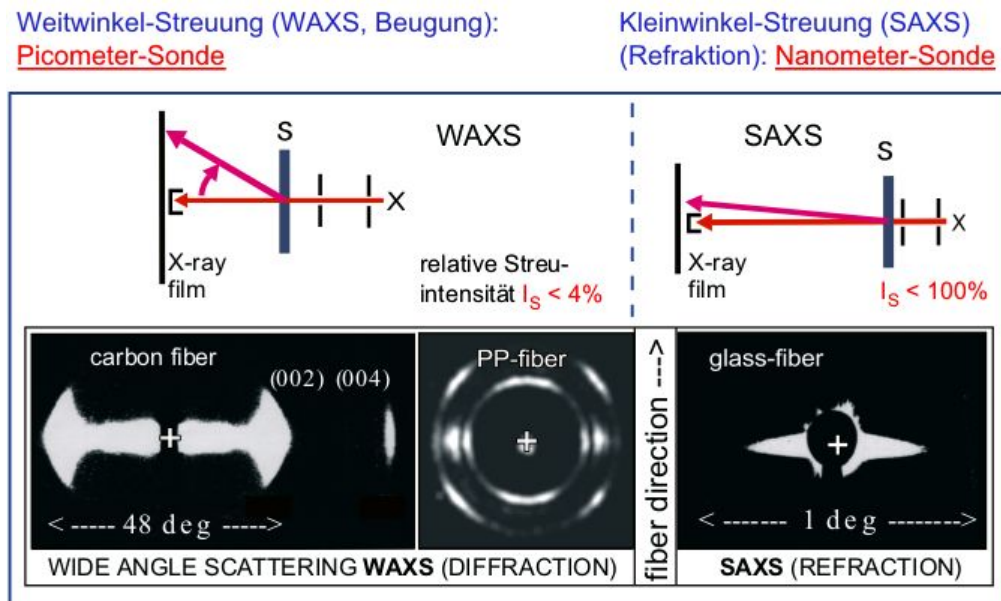


Abb. 2: Orientierte Röntgenstreuung typischer Fasern in Kompositen, C-Fasern, PP-, Glasfasern; Röntgen-Weit- (WAXS) und -Kleinwinkel-Streuung (SAXS) als Abtastsonden

2. Topographie-Verfahren mittels Weitwinkelstreuung

Die „Röntgenbeugungs-Topographie“ nutzt die stoffspezifische Weitwinkelstreuung (Beugung) in definierte Streuwinkelbereiche [6, 7]. Im Falle anisotroper Werkstoffe kann darüber hinaus die Orientierung der Streuintensität genutzt werden, um die molekulare Orientierung oder die Orientierung einer Phase, z. B. von Carbonfasern abzubilden. Diese hat zumeist erhebliche Auswirkungen auf die makroskopischen mechanischen Eigenschaften.

Für die Orientierungsdarstellung mittels „Röntgen-Rotations-Topographie“ wird entsprechend der Anordnung nach Abb. 3 zwischen Probe und Detektionsebene eine um die Primärstrahlachse drehbare Spaltblende installiert. Die Detektionsebene wird durch einen großflächigen Szintillationsdetektor (mit Photomultiplier) gebildet. An jeder Position der Probe wird die Spaltblende um 360° gedreht, so dass die vollständige Orientierungsinformation als Rotationsprofil (redundant) aufgenommen wird. Abb. 3 betrifft den Einsatz für ein CFK-Sandwich mit Honeycomb-Core für den optischen 3,5 m-Reflektor eines ESA-Satelliten. Die Rotationsprofile wurden für die Histogrammdarstellung der Faserrichtungs-Abweichungen einer ausgewählten Lage der Deckschicht-Laminare verwendet (Abb. 3, unten rechts). Hier war eine Messgenauigkeit von $0,1^\circ$ erforderlich, was im Inneren eines CFK-Laminats bisher mit keinem anderen bekannten Verfahren erreichbar ist. Des Weiteren wurden die Refraktionsprofile für die 2-D-Abbildung der Faserfehlorientierung und der Bündelung verwendet (Abb. 3, unten links).

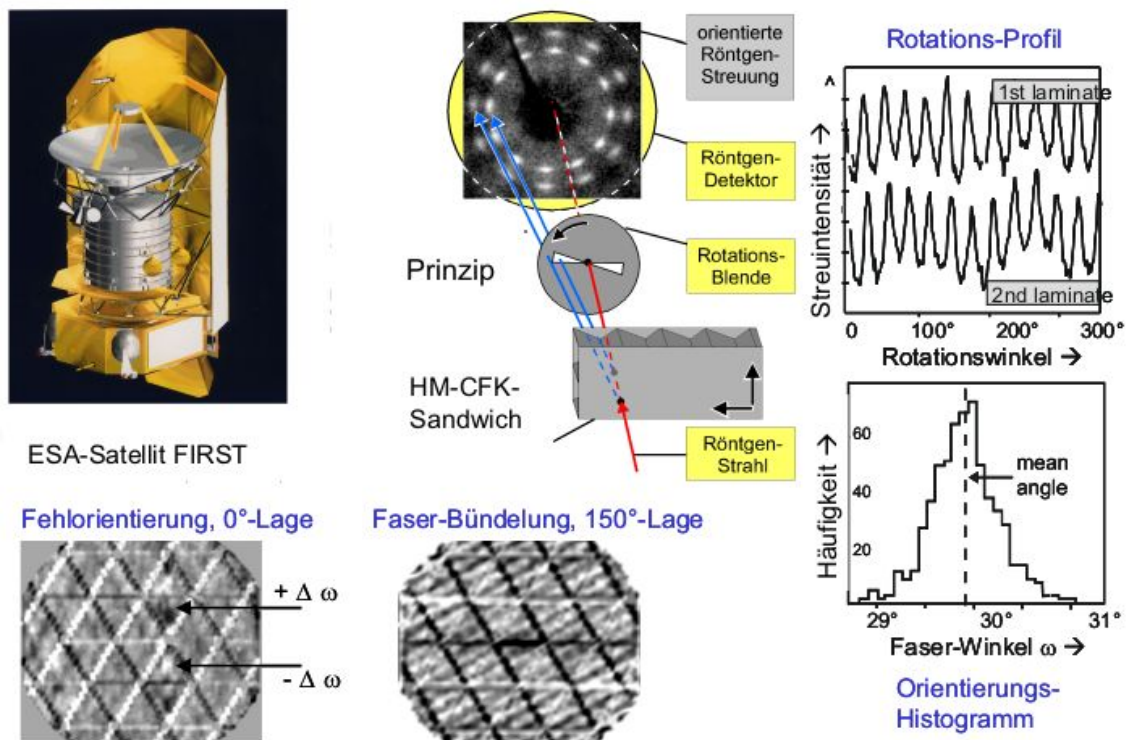


Abb. 3: Prinzip und Anwendung der Röntgen-Rotations-Topographie; präzise Bestimmung der Carbonfaser-Orientierung und –Massenverteilung in den Laminat-Deckschichten einer CFK-Honeycomb-Sandwich-Platte

Das Verfahren der Rotations-Topographie ergibt projizierte Mittelwerte der Röntgenbeugung und damit auch Überlagerungen. Eine zusätzliche Ortsauflösung über der Probendicke wird erreicht, wenn sowohl die in die Probe einfallende als auch die gestreute Strahlung als schmales Strahlenbündel eingesetzt wird. Das Schnittvolumen beider Strahlen bildet sodann das Streuvolumen, mit dem die Probe auch in der Tiefe abgetastet wird, wie in Abb.

4 dargestellt. Dieses Verfahren der „Röntgenbeugungs-Mikroskopie“ [8, 9] ermöglicht die Darstellung des (transversalen) Schnittbild durch ein CFK-Laminat, mit hell kontrastierten Fasern eines $(0_4/90_4)_S$ -Lagenaufbaus in der Darstellungsebene. Die unregelmäßige Massenverteilung (dem wesentlichen Qualitätskriterium für laterale Druckbelastungen) entspricht etwa dem mikroskopischen Anschnitt (Abb. 4, oben links).

Das Ortsauflösungsvermögen in Durchstrahlungsrichtung liegt hier mit Synchrotronstrahlung bei etwa $40\ \mu\text{m}$ lateral bei $10\ \mu\text{m}$ [9]. Mit Röntgenröhren ist die Ortsauflösung nur etwa ein Fünftel dessen. Neben der kristallographischen Strukturinformation liegt der Vorteil des Verfahrens darin, dass das Inspektionsvolumen direkt positioniert werden kann. Eine Rekonstruktion des Gesamtvolumens oder die Rotation der Probekörper, wie für die Computer-Tomographie, entfällt.

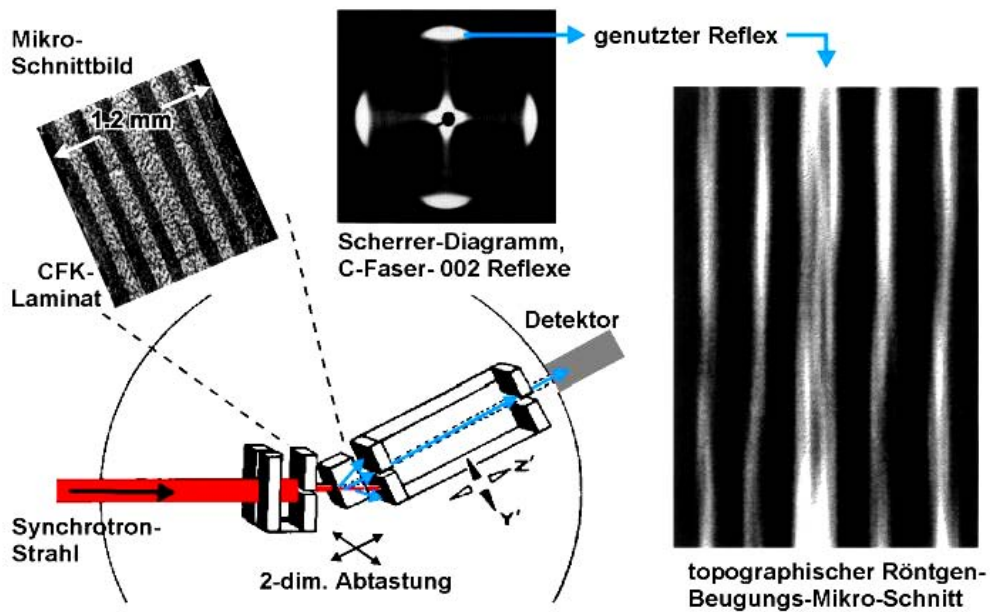


Abb. 4: Röntgenbeugungs-Mikroskopie mit Tiefenauflösung durch einen auf $10\ \mu\text{m}$ kollimierten Primärstrahl (rot) und Diffraktionsstrahl (blau); Abbildung der Homogenität der Carbonfaser-Lagen eines CFK-Laminats mit 8 keV Synchrotron-Strahlung (HASYLAB)

Ein besonders hoher Herausforderung stellt das Problem der kristallographischen Identifizierung von Substanzen in großvolumigen Probekörpern dar, wie bei der Detektion von Sprengstoffen in Fluggepäck. Dazu ist härtere Röntgenstrahlung für die Durchdringung größerer Materialdicken erforderlich und die dreidimensionale Lokalisierung der Streusubstanz.

Im Gegensatz zu bereits bestehenden Anlagen, die mit kontinuierlicher Bremsstrahlung die Streuspektren kritischer Substanzen energieselektiv detektieren, gelingt dies auch winkelselektiv gemäß der in Abb. 5 dargestellten Anordnung, wenn monochromatische Wo-Strahlung von 60 keV eingesetzt wird. Als Monochromator hat sich dafür ein Wo/C-Multilayer mit 5 nm Periodizität bewährt.

Dabei werden ortsaufauflösende Flachendetektoren eingesetzt, die aus einem Spaltsystem Orts/Winkel-korrelierte Intensitäten registrieren. Diese werden so rekonstruiert, dass zu jedem Ortsintervall ein Streudiagramm entsteht, das die Substanz eindeutig identifiziert (hier Al und „?“). Die Hochrechnung auf leistungsfähige Röntgenröhren ergibt mögliche Gepäckgeschwindigkeiten weit oberhalb von 1 m/s.

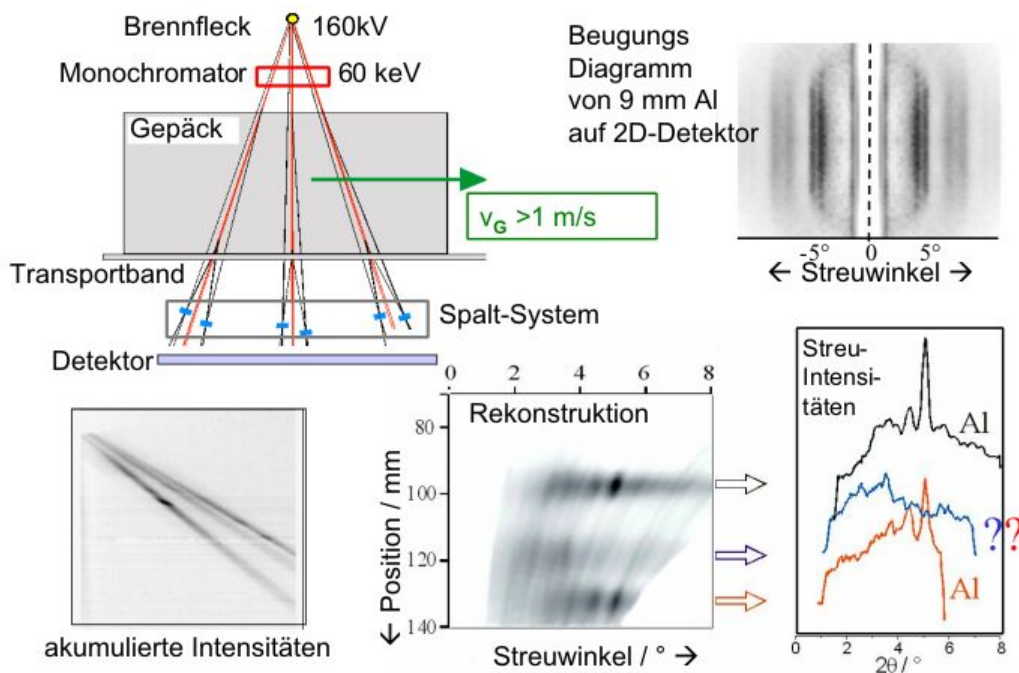


Abb. 5: Prinzip der kontinuierlichen 3-D-Sprengstoff-Detektion in Fluggepäck mit winkelselektiver Detektion der Streuspektren

Über die oben dargestellten Durchstrahlungs-Verfahren hinaus, können auch topographische Rückstreuerverfahren eingesetzt werden, sowohl mittels kohärenter Weitwinkelstreuung (hier am Beispiel der orientierungselektiven Faserbelegung im CFK-Laminat) als auch mittels Compton-Streuung (Beispiel Briefbomben-Attrappe, Abb. 6). Letztere lässt allerdings keine kristallographische Materialidentifizierung zu, wohl aber die gleichzeitige kontrastreiche Abbildung von Kunststoffen und Metallen, was mit der (absorptiven) Weichstrahl-Radiographie nur unzulänglich gelingt (Abb. 6, unten rechts).

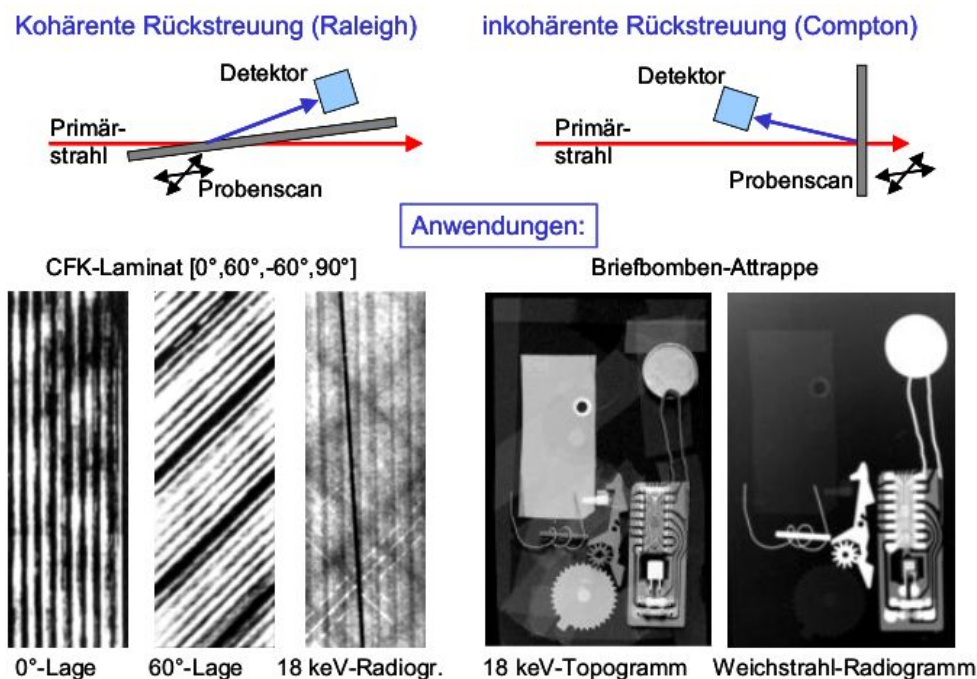


Abb. 6: Rückstreuerverfahren mit kohärenter Weitwinkelstreuung (Beispiel: orientierungselektiven Faserbelegung im CFK-Laminat) und mit der inkohärenten Compton-Streuung (Beispiel: Briefbomben-Attrappe)

3. Topographie mittels Kleinwinkelstreuung

Zur Demonstration der hier eingesetzten „röntgenoptischen“ Effekte der Kleinwinkelstreuung, der (äußeren) Totalreflektion und vor allem der Refraktion (Brechung) an Grenzflächen, wird im parallelen Synchrotronstrahl, dessen Ablenkung an einer planen Glasplatte dargestellt. In Abb. 7 wird links die Streuanordnung gezeigt und zwei Orientierungen der Glasplatte, jeweils mit der refraktiven Strahlableitung als Prisma und der Totalreflektion als „Spiegel“. Rechts sind in einem „Rotations-Topogram“ horizontal die vom Detektor erfassten Intensitäten über dem Kippwinkel der Glasplatte aufgetragen. Der helle Streifen der Totalreflektion nahe des Kippwinkels Null reicht bis zum „kritischen Winkel“ θ_{crit} von 10,5 Bogenminuten.

Der refraktive Streueffekt (helle Linie entlang des „Schattens“ der Glasplatte) liegt dagegen bei kleineren Streuwinkeln, und reicht weit über den Kippwinkelbereich von $\pm 1^\circ$ hinaus. Die refraktive Streuung erreicht etwa die 20-fache integrale Intensität der Totalreflektion. Die Gültigkeit des Brechungsgesetzes nach Snellius (1621) ist sofort nachvollziehbar und der von Compton angegebene Realteil ε des Brechungsindex n bestätigt sich (Abb. 7, unten). Die Brillanz der Streustrahlung (Intensität/Fläche) ist vergleichbar mit der des Primärstrahls und liegt damit um mehrere Größenordnungen höher als die Effekte anderer Streuphänomene.

Angesichts der zumeist isotropen Winkelverteilung von Grenzflächen in Werkstoffen kann davon ausgegangen werden, dass der Streuteil der Totalreflektion bei hoher Winkelaufösung im Allgemeinen nur einen geringfügigen Anteil ausmacht.

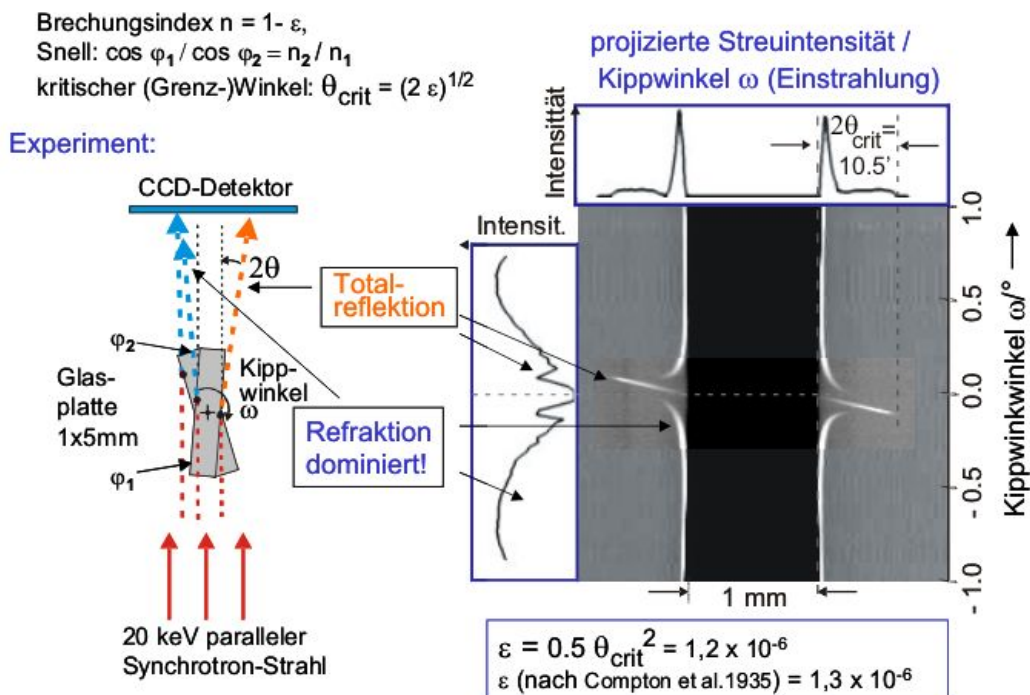


Abb. 7: Totalreflektion und Refraktion (Brechung) an planer Glasplatte im parallelen Synchrotronstrahl; links: Streuanordnung, Brechungsgesetz, Realteil ε des Brechungsindex; rechts: Intensitätsverlauf über Kippwinkel der Platte (Einstrahlrichtung) und Projektionen der Intensität über Ort und Winkel, Absorptionsbereich (dunkel) in der Mitte und helle, zusätzliche Intensitätsstreifen nahe der Grenzfläche

Für die ortsaufgelöste Untersuchung der Grenzflächeneigenschaften von Werkstoffen mit Röntgenröhren – als „Refraktions-Topographie“ bezeichnet – wird vornehmlich das Prinzip der Kleinwinkelstreuammer mit Spaltkollimation nach Kratky eingesetzt, die besonders für kleine Streuwinkel bis 1 Bogenminute geeignet ist. Dazu wird zusätzlich ein Absorpti-

onsdetektor installiert, der die absorbierte Primärintensität über eine Streufole misst. Der Streuwinkelbereich von etwa 1 bis 10 Bogenminuten wird fest vorgewählt und der Probekörper mit einem Mikromanipulator PC-gesteuert zweidimensional abgetastet (Abb. 8, links). Eine kommerzielle Ausführung dieses Refraktions-scanners als Tischgerät ist in Abb. 8, rechts dargestellt.

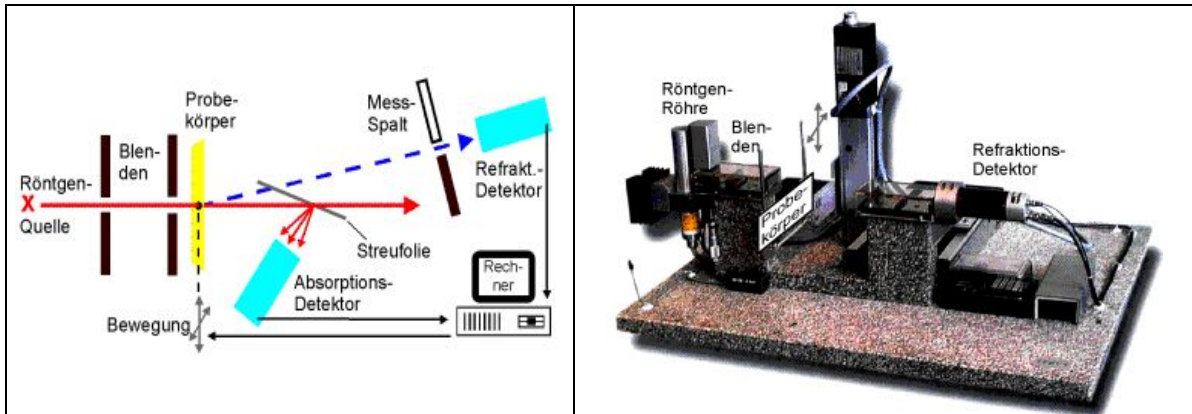


Abb. 8: Methode der Röntgen-Refraktions-Topographie; links: Prinzip und Streugeometrie; rechts: kommerzieller Refraktions-Scanner (SPECS GmbH, Berlin)

Eine Anwendungsmöglichkeit liegt in der Darstellung der Rissdichte, zum Beispiel nach Schädigung durch Schlag. Abb. 9 zeigt die orts aufgelöste Rissdichteverteilung in Polypropylen unter verschiedenen Orientierungen. Das Transmissions-Radiogramm zeigt dagegen völlige Homogenität, da es sich um Risse im Mikrometerbereich handelt, die wegen ihrer geringen Rissöffnung keine messbare Porosität verursachen. Naturgemäß sind die Streusignale proportional zur (volumenbezogenen) spezifischen Oberfläche des Werkstoffs. Weitere interessante Anwendungen betreffen die Faser/Matrixhaftung von Luftfahrt-Kompositen nach Impact, Ermüdung und Alterung [10].

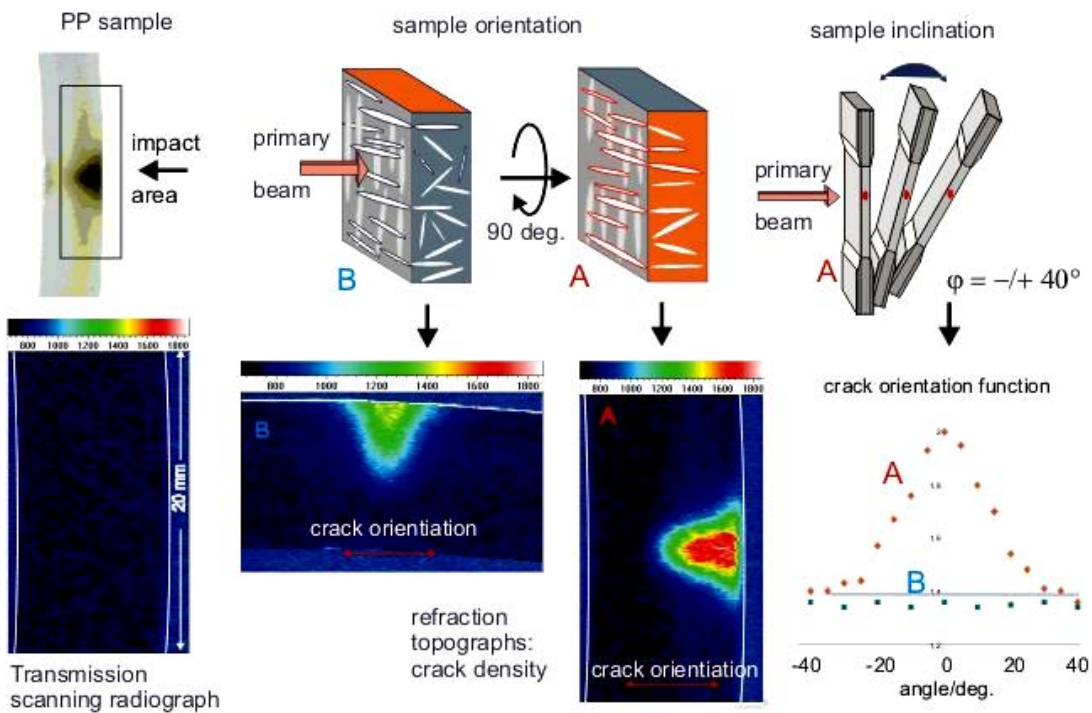


Abb. 9: Refraktions- und Transmissions-Topogramme der orts aufgelösten Rissdichteverteilung in Polypropylen (PP) nach lokaler Schlagbeanspruchung

In gleicher Weise kann auch die von Mikroporen aller Art gebildete spezifische Oberfläche abgebildet werden, vorausgesetzt dass die Wandstärke der Proben die Durchstrahlung zulässt. Für die hier verwendete 18 keV-Strahlung sind für Kunststoffe einige cm akzeptabel, für Keramiken mittlerer Ordnungszahlen etw ein Millimeter.

Abb. 10, oben stellt die aus den Absorptionssignalen ermittelte um nur 1 % variierende Porosität einer SiC-Keramik dar. Dagegen zeigt die aus den Refraktionsintensitäten errechnete spezifische Oberfläche eine wesentlich andere Ortsverteilung mit einer Varianz von 18 %. Über die Relevanz der neuartigen Materialkenngröße für die makroskopischen Eigenschaften darf noch spekuliert werden.

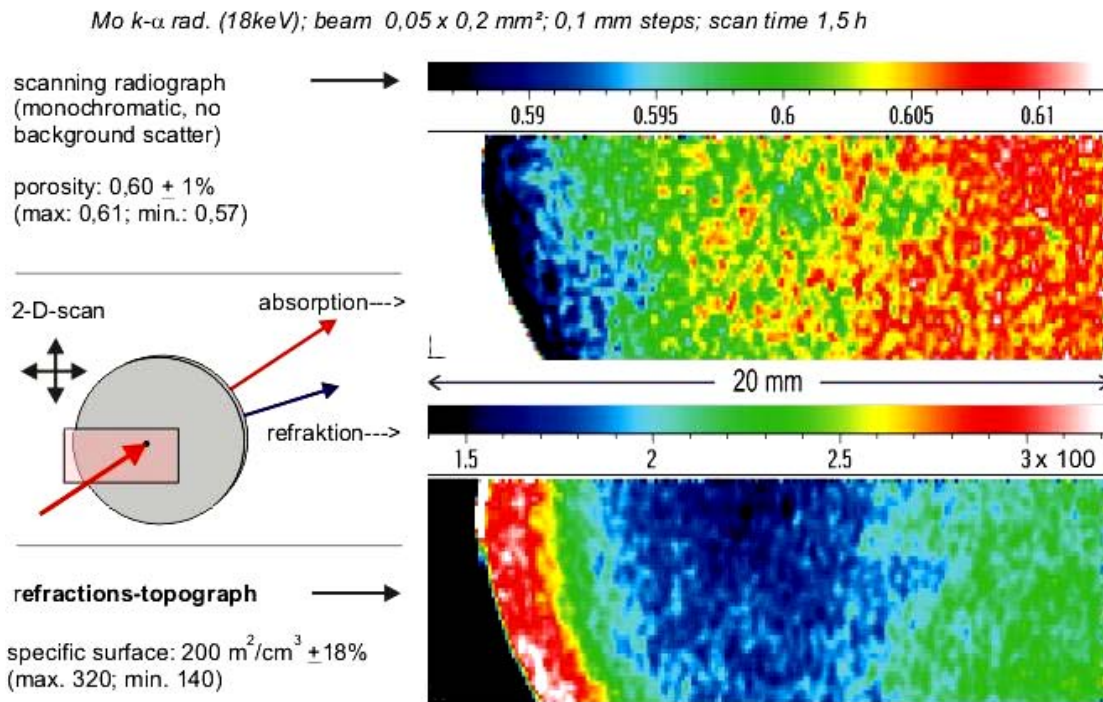


Abb. 10: Ortsaufgelöste Porositäts- und Oberflächen-Verteilung einer SiC-Keramik aus Messdaten der Refraktions-Topographie

Obwohl die Röntgen-Refraktions-Topographie über einen Grenzflächen-Kontrast für Nanometer-Dimensionen verfügt, werden Details als Projektion überlagert. Das Verfahren kann jedoch nach Abb. 11, Mitte, zur „Röntgen-Refraktions-Computer-Tomographie“ erweitert werden. Aus den Linearprofilen eines Zeilendetektors werden unter verschiedenen Projektionswinkeln des Probekörpers transversale Schnittbilder der Dichte- und der Spezifischen Oberflächenverteilung rekonstruiert, wenn sowohl die Primärstrahl (Streuwinkel = Null) als auch die Refraktionsstrahlung verwendet werden.

Am Beispiel eines 3 x 3 mm² CFK-Laminates (Abb. 11, oben links, Anschliff) wird der Unterschied deutlich. Die gefilterte Rückprojektion der Absorptionssignale ergibt eine sehr homogenen Materialdichte (Abb. 11, oben rechts). Die Rekonstruktion der Streusignale (unter etwa zwei Bogenminuten) ergibt ein computertomographisches Refraktions-Tomogramm mit dem völlig andersartigen Grenzflächen-Kontrast. Wird der Absorptionskontrast herausgerechnet ergibt sich ein Interface-Kontrast, der - unabhängig von der Dichte - durch inneren Oberflächen (Faserverhaftung, Risse, Poren) und Faser/Matrix-Grenzflächen verursacht wird (Abb. 11, unten rechts). Die Feinstruktur des Laminats wird erkennbar. Das Interface-Computer-Tomogramm hat etwa 30 μ m Ortsauflösung [11]. Die erforderliche Messzeit von derzeit etwa 10 Stunden erscheint angesichts der neuartigen zerstörungsfreien Grenzflächen-Information akzeptabel.

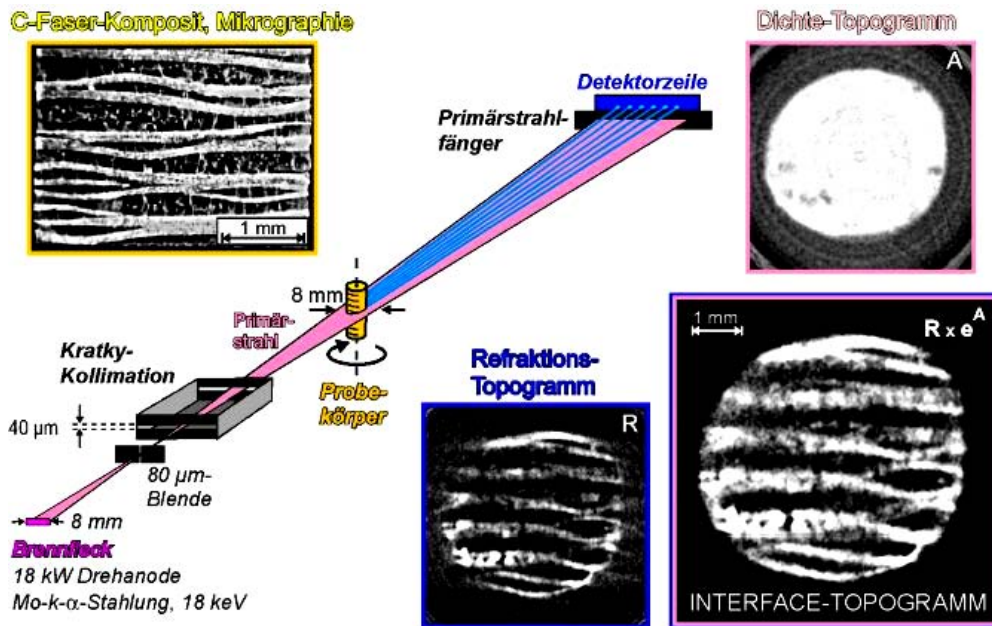


Abb. 11: Röntgen-Refraktions-Computer-Tomographie eines CFK-Laminats

4. Ausblick

Die dargestellten Röntgen-Topographie-Verfahren sind naturgemäß zur Charakterisierung von Mikro- und Nanostrukturen vieler Werkstoffe und Bauteile, vorzugsweise für dünnwandige Leichtbauwerkstoffe besonders geeignet. Der zukünftige Bedarf über den bereits erprobten Bereich der Kunststoffe, Verbundwerkstoffen, Keramiken und Schäume hinaus ist noch entwicklungsfähig. Der Einsatz von Synchrotron-Strahlung bis 50 keV ermöglicht bereits die 3-D-Ortsauflösung unterhalb eines Mikrometers.

Referenzen

- 1 Lang, A. R.: Topography, X-ray diffraction, in: G.L. Clark (Ed): The Encyclopedia of X-rays and Gamma Rays, Reinhold Publishing Corporation, New York 1963, S. 1053
- 2 Glocker, R: Materialprüfung mit Röntgenstrahlen, Springer-Verlag, Berlin, Göttingen. Heidelberg, 1949
- 3 Porod, G.: Die Röntgenkleinwinkelstreuung von dichtgepackten kolloidalen Systemen, I.Teil, Kolloid.-Z. 124 (1951) S. 83-114
- 4 Hentschel, M.P.; Hosemann, R.; Lange, A.; Uther, B.; Brückner, R.: Röntgen-Kleinwinkel-Brechung an Metalldrähten, Glasfäden und hartelastischem Polypropylen. Acta Cryst. A 43 (1987) S. 506-513
- 5 Hentschel, M.P.; Harbich, K.-W.; Lange, A.: Nondestructive evaluation of single fibre debonding by X-ray refraction. NDT & E international 27 (1994) 5, S. 275-280
- 6 Hentschel, M.P.; Kempf, G.; Lange, A.: Röntgen-Rückstreu-Topometrie. Materialprüfung 32 (1990) S. 267-269
- 7 Hentschel, M.P.; Lange, A.; Harbich, K.-W.; Ekenhorst, D.; Schors, J.: Röntgentopographie der Faser und Polymerorientierung. Materialprüfung 39 (1997) S. 121-123
- 8 Harbich, K.-W.; Hentschel, M.P.; Lange, A.: Making Carbon Fibres in Composites Visible: Kunststoffe/German Plastics 83 (1993) 9, S. 22-23
- 9 Stephenson, J.D.; Hentschel, M.P.; Lange, A.: Synchrotron radiation (hard) X-ray diffraction microscopy of carbon fibre reinforced plastic (CFRP). Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. B 88, (1994) S. 287-292
- 10 Ekenhorst, D., Lange, A., Hentschel, M.P.: Röntgen-Refraktion: Bestimmung von Alterungsschäden in CFK, Materialprüfung 39 (1997) 5, S. 175 – 179
- 11 Hentschel, M.P., Lange, A., Müller, B.R., Schors, J. und Harbich, K.-W.: Röntgen- Refraktions-Computer-Tomographie. Materialprüfung 42 (2000) 6, S. 217-221