

Röntgenrefraktionsverfahren für die
zerstörungsfreie Charakterisierung
nichtmetallischer Werkstoffe
-Möglichkeiten und Grenzen-

Von der Fakultät Maschinenbau der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines Doktor-Ingenieurs (Dr.-Ing.)
genehmigte Abhandlung

vorgelegt von
Dipl.-Phys. Oliver Bullinger
geboren in Kaiserslautern

Hauptberichter: Prof. Dr. rer. nat. habil. G. Busse
Mitberichter: Prof. Dr. rer. nat. M. Hentschel
Tag der mündlichen Prüfung: 22.04.2005

Institut für Kunststoffprüfung und Kunststoffkunde
der Universität Stuttgart
2005

Diese Arbeit ist meiner Frau Kerstin gewidmet.
Ohne ihre Liebe und Unterstützung wäre dieses Werk nie vollendet
worden.

Was wir tun, tun wir blind,
Vieles tun wir, ohne zu wissen, was wir tun.
Und vieles andere erkennen wir nicht eher,
bis es vorbei ist-
zumindest in seiner ganzen Tragweite.

Hermann Melville, 1846

Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kunststoffprüfung und Kunststoffkunde (IKP) der Universität Stuttgart im Rahmen des von der Deutschen Forschungsgemeinde geförderten Sonderforschungsbereiches SFB 381 „Charakterisierung des Schädigungsverlaufes in Faserverbundwerkstoffen mittels zerstörungsfreier Prüfung“.

In besonderer Weise gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. G. Busse für die Anregung zu dieser Arbeit und die Möglichkeit, sie bei Ihm durchzuführen. Mit den gewährten Freiheiten und der Unterstützung in jeder Lebenslage wurden manche Dinge einfacher.

Gleichfalls möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. rer. nat. M. Hentschel für die Einführung in die nicht einfache Thematik und die Übernahme des Mitberichtes bedanken. Die Möglichkeit zum Besuch seiner Labore verbunden mit den vielen hilfreichen Diskussionen und Anregungen waren unverzichtbar für das Gelingen der Arbeit.

Eine Arbeit dieser Größe ist mit vielen Entbehrungen auch im Privatleben verbunden. Ohne die stetige Motivation und Unterstützung meiner Familie und das Verständnis für meine Arbeit wäre diese nicht vollendet worden. Danke!

Neben dem familiären Umfeld ist die Arbeitsumgebung wichtig. Ohne funktionierende Strukturen sowie hilfsbereite und aufgeschlossene Kolleginnen und Kollegen ist kein Fortschritt möglich. Mein Dank gilt daher dem gesamten Institut für Kunststoffprüfung und Kunststoffkunde, allen voran Herrn Andreas Pfitzenmaier, der die komplette Ansteuerung der Apparatur professionell programmiert hat, sowie Herrn Hans Klink für die Einführung in die Geheimnisse der Zugprüfung.

Meine Heimat an diesem Institut war die Abteilung „Zerstörungsfreie Prüfung“. Die gemeinsamen Erlebnisse auf Konferenzen, Abteilungsausflügen und im Institutsalltag sowie das aufgeschlossene Klima werden nicht in Vergessenheit geraten. Sabine Predak, Henry Gerhard, Yao Dehao und Wilfried Rippel danke ich für die Unterstützung bei meinen Umbauten, Messungen, Auswertungen und letztendlich bei der Korrektur dieser Arbeit. Viele der dort realisierten Ideen entwickelten sich aus unseren Diskussionen. Auf der administrativen Seite hat mich Frau Friedrich tatkräftig unterstützt.

Ohne Wissen um die Vergangenheit kann die Gegenwart oft nicht verstanden werden.

Hier haben mir besonders die „Ehemaligen“ Dr. Rainer Steegmüller, Dr. Christoph A. Döttinger, Dr. Steffen Ritter, Dr. Lorentz Diener und Dr. Steffen Lütze geholfen. Motivieren ist das eine, aber verstehen, warum manche Dinge so sind wie sie sind, ist etwas anderes. Herrn Dr. Rainer Steegmüller nochmals Danke für die gewährten Rückzugsmöglichkeiten bei der Fertigstellung der Arbeit und der Prüfungsvorbereitung!

Bei den Kolleginnen und Kollegen, die im Rahmen des Sonderforschungsbereiches 381 an verwandten Themen arbeiteten und noch arbeiten, bedanke ich mich für die Herstellung der Proben sowie für die vielfältigen Diskussionen über Faserverbundwerkstoffe.

Warmbronn, im Juli 2005

Oliver Bullinger

Inhaltsverzeichnis

Verzeichnis der Abkürzungen	9
Verzeichnis der Formelzeichen	11
Zusammenfassung	13
Abstract	17
1 Einleitung	19
1.1 Klassische Röntgenverfahren	19
1.1.1 Weitwinkelstreuung	20
1.1.2 Kleinwinkelstreuung	20
1.2 Röntgenrefraktion	21
1.3 Röntgenrefraktionsverfahren in der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung	22
2 Ziel dieser Arbeit	25
3 Beschreibung der Röntgenbrechung	27
3.1 Brechungsindex für EUV und weiche Röntgenstrahlung	27
3.2 Real- und Imaginärteil des Brechungsindex und die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen	30
3.3 Bestimmung des komplexen Brechungsindex mit der Kramers-Kronig-Beziehung	31
3.4 Brechung von Röntgenstrahlung an Fasern und Poren	32
4 Aufbau der Röntgenrefraktometrie-Apparatur	35
4.1 Komponenten der Anlage	35
4.1.1 Röntgenapparat	35
4.1.2 Kratky-Kamera	37
4.1.3 Detektor	38
4.1.4 Streufolie zur simultanen Erfassung von Refraktions- und Absorptionssignal	41

4.1.5	Streuwinkelverstellung	42
4.1.6	Auswertesoftware	43
4.2	Externe Einflussgrößen	43
4.2.1	Röntgenapparat	44
4.2.2	Temperatur und Feuchte	45
4.2.3	Verbesserungspotential der Anlage	45
5	Ablauf einer Messung	49
5.1	Mögliche Detektororte für Refraktionsmessungen	49
5.1.1	Messung auf einem Streuwinkel	49
5.1.2	Messung auf dem Primärstrahl	52
5.1.3	Vergleich beider Messverfahren	54
5.2	Messmöglichkeiten mit der Refraktions-Apparatur	55
5.2.1	Simultanes oder sequentielles Messen	55
5.2.2	Informationsgehalt des Verfahrens bedingt durch die Probenorien- tierung	57
5.2.3	Einfluss der Detektorspalthöhe	59
5.2.4	Streuwinkelbereiche	60
5.2.5	Referenzproben	62
6	Untersuchungsbeispiele	67
6.1	Charakterisierung von Proben mit zylindrischen Streukörpern	67
6.1.1	Charakterisierung impactgeschädigter CFK-Proben	67
6.1.2	Untersuchungen an faserverstärktem Polypropylen	78
6.1.3	Orientierungsmessungen mit Röntgenrefraktionsverfahren	89
6.2	Charakterisierung von Werkstoffen mit sphärischen Streukörpern	101
6.2.1	Charakterisierung von Aluminiumoxid-Keramiken	101
7	Diskussion und Ausblick	107
8	Anhang	111
8.1	Betrachtungen zum Bereich des Refraktionswertes	111
8.2	Zum Vergleich benutzte zerstörungsfreie Prüfverfahren	112
8.2.1	Ultraschallverfahren	112
8.2.2	Laservibrometrie	112
8.2.3	Thermografieverfahren	113
8.3	Intensitätsverlauf über dem Drehwinkel bei Untersuchungen eines Rovings	116
	Literaturverzeichnis	118

Verzeichnis der Abkürzungen

EUV	E xtrême U ltra V iolet
WAXS	W ide A ngle X -ray S cattering
SAXS	S mall A ngle X -ray S cattering
ZfP	Z erstörungsfreie P rüfung
PET	P olyethylenterephtalat
S/N	Signal/Rausch-Verhältnis
CFK	K ohlenstoffaserverstärkter K unststoff
PP	P olypropylen
IKP-ZfP	I nstitut für K unststoffprüfung und K unststoffkunde, Abteilung für Z erstörungsfreie P rüfung
ULT	U ltraschallangeregte L ockin- T hermografie
OLT	O ptisch angeregte L ockin- T hermografie

Verzeichnis der Formelzeichen

\vec{E}	Elektrisches Feld	$\frac{V}{m}$
\vec{B}	Magnetisches Feld für ein Elektron	$\frac{V}{s \cdot m^2}$
Θ	Streuwinkel (Einstrahlwinkel auf die Faser: $\frac{\Theta}{2}$)	Grad
$\Theta_C = \sqrt{2\delta}$	Grenzwinkel der Totalreflexion („kritischer Winkel“)	Grad
I_0	Primärstrahlintensität	
R	Faserradius	m
Z	Anzahl der Elektronen eines Atoms (Ordnungszahl)	
$n = 1 - \delta + i\beta$	komplexer Brechungsindex	
\vec{x}_i	Auslenkung der Elektronen	m
δ	Brechungsindexdekrement	
β	Imaginärteil des komplexen Brechungsindex n	
\vec{x}_0	Maximale Auslenkung der Elektronen	m
γ	Dämpfungsterm	Hz
ω	Kreisfrequenz	Hz
ω_0	Eigenfrequenz des Elektrons im Einelektronensystem	Hz
ω_{0s}	Eigenfrequenz eines Elektrons im Mehrelektronensystem	Hz
\vec{k}	Wellenvektor	$\frac{1}{m}$
\vec{v}	Elektronengeschwindigkeit (vektoriell)	$\frac{m}{s}$
c	Geschwindigkeitsbetrag der elektromagnetischen Welle im Vakuum	$\frac{m}{s}$
v	Betrag der Phasengeschwindigkeit der elektromagnetischen Welle	$\frac{m}{s}$
ϵ_0	Elektrische Feldkonstante	$\frac{A \cdot s}{V \cdot m}$
ϵ	Dielektrizitätszahl	
μ_0	Magnetische Feldkonstante	$\frac{V \cdot s}{A \cdot m}$
μ	Permeabilität	
\vec{P}	Polarisation (=Dichte der Dipolmomente)	$\frac{A \cdot s}{m^2}$
N_e	Elektronendichte	
m_e	Elektronenmasse	kg
e	Ladung eines Elektrons	C

g_s	Oszillatorstärke	
ψ	stationärer Zustand eines Atoms	
$f^0(\omega)$	atomarer Streufaktor in Vorwärtsrichtung	
$f_1^0(\omega)$	Realteil des atomaren Streufaktors	
$f_2^0(\omega)$	Imaginärteil des atomaren Streufaktors	
u	Frequenz (Integrationsvariable)	Hz
r_e	klassischer Elektronenradius	m
\bar{N}	Mittelwert einer Zählrate	CPS
λ	Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung	m
ν	Frequenz der elektromagnetischen Strahlung	Hz
μ_L	linearer Absorptionskoeffizient	$\frac{1}{m}$
A	Atomgewicht in Gramm	g
m_u	atomare Masseneinheit ($m(^{12}C/12)$)	
C	Refraktionswert	$\frac{1}{mm}$
C_R	Refraktionswert einer Referenzprobe	$\frac{1}{mm}$
ξ	Innere Oberflächendichte	$\frac{cm^2}{mm^3}$
ξ_R	Innere Oberflächendichte einer Referenzprobe	$\frac{cm^2}{mm^3}$
Π	Packungsdichte (Raumerfüllungsgrad)	
O	Oberfläche eines Körpers	m^2
V	Volumen eines Körpers	m^3
$\mu_{L,FK}$	linearer Absorptionskoeffizient des Festkörpers	$\frac{1}{m}$
C_{ok}	Refraktionswert für ein ideales Faser-Matrix-Komposit (Faser komplett von der Matrix umgeben)	$\frac{1}{mm}$
C_{Rov}	Refraktionswert eines Rovings	$\frac{1}{mm}$
C_k	Refraktionswert eines Komposits	$\frac{1}{mm}$
α_k	Faservolumengehalt des Komposits	
α_{Rov}	Packungsdichte des Rovings	
R	Porenradius	m
R_C	Porenradius der Kalibrierprobe	m
φ	Anteil freier Fasern eines Faser-Matrix-Komposites	
\mathfrak{M}	Modulationsgrad einer Funktion	

Zusammenfassung

Röntgenstrahlen sind insbesondere aufgrund ihrer medizinischen Anwendungen sehr populär. Die als Bilder dargestellten Untersuchungsergebnisse beruhen auf Absorption, die bei Röntgenstrahlung stark von der Ordnungszahl des Prüfobjektes abhängt. Hingegen spielt die Reflexion von Röntgenstrahlen bei Materialuntersuchungen praktisch keine Rolle, weil der Brechungsindex in diesem Wellenlängenbereich etwa 1 ist. Darum sind auch Brechungseffekte kaum ausgeprägt.

Die Kleinheit solcher Brechungseffekte ist andererseits eine Herausforderung zum Ausloten, wie gut sich daraus abgeleitete Methoden zur Charakterisierung von Werkstoffen und ihren Fehlern eignen, und wo die Möglichkeiten und Einschränkungen liegen.

Dieser Herausforderung hat sich schon vor einem Jahrzehnt die Arbeitsgruppe von Hentschel an der BAM Berlin gestellt, die Brechungseffekte von Röntgenstrahlen an verschiedenen Werkstoffen untersucht hat. In guter Zusammenarbeit mit dieser Arbeitsgruppe wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit eine solche Apparatur aufgebaut. Anschließend wurde die Leistungsfähigkeit dieser am IKP-ZFP neuen Messmöglichkeit an Fragestellungen aus dem Bereich der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung erprobt. In diesem Bereich lag das Ziel der vorliegenden Arbeit.

Beim Aufbau einer Anlage für „Röntgenrefraktometrie“ liegt die grundlegende Schwierigkeit darin, dass sich der Brechungsindex von Werkstoffen typischerweise nur um 10^{-5} von dem der Luft unterscheidet. Die brechungsbedingte Strahlablenkung liegt somit in der Größenordnung nur weniger Bogenminuten, also im Winkelbereich der Kleinwinkelstreuung. Um solche Effekte überhaupt untersuchen zu können, erfolgt die Messung in der Nähe des Hauptstrahls, dessen Ausblendung also erforderlich ist. Trotzdem sind die Zählraten klein und die Messdauer entsprechend groß, so dass die Langzeitstabilität der Anlage eine wichtige Voraussetzung ist. Erst eine sehr stabile Klimatisierung des Röntgenraumes minimiert die thermischen Längenänderungen von Röhrenhaube und Kamera, deren Relativbewegung sonst eine inhomogene Ausleuchtung des Eintrittspaltes verursachen würde.

Durch Brechung an Grenzflächen wird Intensität vom Hauptstrahl auf Winkel ausserhalb des Primärstrahles abgelenkt. Dieser Brechungseffekt kann daher direkt im Primärstrahl als fehlende Intensität oder auf einem Streuwinkel als Zusatzintensität gemessen werden.

Die Untersuchungen zeigten, dass das Signal-zu-Rauschverhältnis auf dem Streuwinkel trotz der geringeren Intensität besser ist. Es wird auch mit zunehmender Detektorspalthöhe günstiger, so dass die im Anschluss vorgestellten Materialcharakterisierungen mit offenem Detektorspalt durchgeführt wurden.

Die Erprobung der Röntgenrefraktometrie erfolgte an Keramik, glasfaserverstärktem Kunststoff („GFK“) und kohlenstofffaserverstärktem Kunststoff („CFK“).

Letzterer ist aus dem modernen Automobil- und Flugzeugbau nicht mehr wegzudenken. Von Interesse ist hierbei die noch unzulänglich bekannte Schadensevolution im Werkstoff. Darum wurde die Aussagefähigkeit der Röntgenrefraktometrie an CFK untersucht. Am Beispiel mehrerer mit zunehmender Energie geschädigter CFK-Lamine erfolgte eine vergleichende Charakterisierung mit Röntgenrefraktometrie, dynamischer Thermografie und Luftultraschall. Die beiden letzteren sprechen auf Grenzflächen (z.B. Delaminationen oder Faser/Matrix) an, wobei die verschiedenen Faserorientierungen integral erfasst werden. Mit der Röntgenrefraktometrie ist der Impactschaden hingegen für die beiden Faserorientierungen völlig getrennt bestimmbar. Diese Möglichkeit bietet kein anderes zerstörungsfreies Prüfverfahren. In Bezug auf die Resultate ergänzt die Refraktion die Aussagen der anderen Methoden.

Bei der Charakterisierung von glasfaserverstärktem Polypropylen war diese neue Möglichkeit, unterschiedliche Orientierungen im Werkstoff zu trennen, für das Versagensverständnis entscheidend: Es zeigten sich nämlich verschieden starke Schädigungen entlang der Faserrichtung und quer dazu. Von den für Vergleichsmessungen eingesetzten ZfP-Verfahren konnte nur wassergekoppelter Ultraschall die Schädigung der Zugstäbe erkennen.

Die beiden erwähnten Materialcharakterisierungen nutzen dieses Potential der Röntgenrefraktometrie zur Trennung zweier Faserorientierungen im Werkstoff nur rudimentär aus. Genauere Untersuchungen an Faserrovings zeigten, dass das Refraktionssignal in Abhängigkeit von der Probendrehung um den Primärstrahl als Drehachse einen \cos^2 -Verlauf hat. Das Refraktionssignal zweier sich überlagernder Faserorientierungen ist zwar wieder \cos^2 -förmig, mit Hilfe des Modulationsgrades lässt sich aber zwischen Proben mit nur einer oder zwei Orientierungen unterscheiden. Sogar die Bestimmung des Winkels zwischen den beiden Faserrichtungen ist auf diese Weise möglich.

Bei Keramiken erlaubt die Röntgenrefraktometrie die Bestimmung absoluter Größen wie Porenradien und Innere Oberflächendichte. Während die theoretische Herleitung zeigt, dass diese Bestimmung auf jedem Streuwinkel durchgeführt werden kann, gelang dies experimentell erst ab einem Streuwinkel von ca. 3 Bogenminuten. Als Ursache wird die Strahlverschmierung durch den offenen Detektorspalt diskutiert.

Die im Folgenden vorgestellten Ergebnisse sollen das Potential der Röntgenrefraktometrie verdeutlichen. Manche Ergebnisse, wie z.B. die orientierungsaufgelösten Schädigungsstellen, werden im Detail dargestellt.

gungscharakterisierungen an impactgeschädigtem CFK oder an fasergefülltem Polypropylen, sind nur mit dieser Methode zu erzielen. Trotz der hohen apparativen Anforderungen liefert sie Ergebnisse, die einen neuen Blick auf Werkstoffeigenschaften ermöglichen und somit ganz erheblich z.B. zum Verständnis von Schädigungsevolutionen beitragen können.

Abstract

Their use in medical applications makes X-rays very popular. The findings displayed as images are based on absorption, which, with X-rays, depends heavily on the atomic number of the test object. However, the reflection of X-rays is virtually negligible in materials testing since the refractive index in this spectral range is practically 1. Therefore, refraction effects are very small.

On the other hand, the insignificance of these refraction effects is a challenge: to find out how well methods derived from these facts are suitable for characterizing materials and their flaws, and what their possibilities and restrictions are.

A decade ago, a team led by Hentschel at the Federal Institute for Materials Research and Testing (BAM), Berlin, faced this challenge studying the refraction effects of X-rays on various materials. In good co-operation with this team, such a piece of equipment was set up in the scope of this work. Subsequently, the performance of this new way of measuring was investigated at the IKP-ZFP on problems from the area of non-destructive material testing. This area is targeted by this thesis.

The fundamental difficulty when constructing a setup for „analysis by X-ray refraction“ is based on the fact that typically the refractive indexes of materials differ only by 10^{-5} from that of air. The beam deflection due to refraction is thus in the order of magnitude of a few angular minutes, which is in the angle range of the small-angle scattering. To be able to study such effects at all, the measurement is performed close to the main beam that must therefore be masked. Nevertheless, counting rates are low and the measurement duration is accordingly long, making the long-term stability of the equipment a crucial requirement. Only a very stable air-condition in the X-ray room minimizes the thermal expansion of the tube head and camera whose relative motion would otherwise cause inhomogeneous illumination of the entrance slit.

Because of the refraction at interfaces, intensity from the main beam is deflected to angles outside the primary beam. This refractive effect can therefore be measured directly in the primary beam as missing intensity or on a scattering angle as additional intensity. The tests show that the signal-to-noise ratio on the scattering angle is much better despite the lower intensity. It also improves with increasing height of the detector slit;

therefore, the material characterizations presented in the following were done with an open detector slit.

Analysis by X-ray refraction was performed on ceramics, glass fiber reinforced plastic („GFRP“), and carbon fiber reinforced plastic („CFRP“).

The latter is essential for modern automobile and aircraft construction. Of special interest here is the yet inadequately known damage evolution in the material. Therefore, the significance of analyzing CFRP by X-ray refraction was studied. Using samples of CFRP laminates damaged at increasing levels of energy, comparative characterization with X-ray refraction, dynamic thermal imaging, and aircoupled ultrasound was performed. The latter two respond to interfaces (e.g. delaminations or fiber/matrix) registering the various fiber orientations in an integral way. However, using the X-ray refraction analysis, the impact damage can be determined separately for both fiber orientations. No other non-destructive material testing method can offer this. Regarding the results, refraction complements the findings of the other methods.

When characterizing glass fiber reinforced polypropylene, this new method of separating various orientations within the material was decisive in understanding the failure behavior. Damages of different severity could be observed along the fibers and perpendicular to them. From the other non-destructive methods used for comparative measurements, only water-coupled ultrasound was able to detect the damage to the tension rods.

The two above mentioned material characterization methods use this potential of X-ray refraction to separate two fiber orientations in the material only in a basic way. Closer examination of fiber rovings shows that the refraction signal with respect to the sample orientation around the primary beam as the rotation axis follows a \cos^2 -characteristic. Although the refraction signal of two overlying fiber orientations is again \cos^2 -shaped, using the modulation depth, samples with only one or two orientations can be distinguished. This way, even the angle between the two fiber orientations can be determined.

With ceramics, analysis with X-ray refraction allows for the determination of absolute values such as pore radii and inner surface density. While theoretical derivation shows that the determination can be done on any scattering angle, such experiments were possible only at a scattering angle above approximately 3 angular minutes. A reason for this could be the intensity-smearing according to the opening of the detectorslit.

The results discussed in the following demonstrate the potential of X-ray refraction analysis. Some results such as the orientation-sensitive damage characterizations on impact-damaged CFRP or fiber-filled polypropylene can only be obtained using this method. Despite the high requirements on the equipment, this method provides results that allow a new insight into material properties and thus contribute to the understanding of damage evolutions.

1 Einleitung

Am 08. November 1895 entdeckte Wilhelm Conrad Röntgen bei Experimenten mit einer Gasentladungsröhre eine bis dahin unbekannte Strahlung [1]. Wie wir heute wissen, handelt es sich um elektromagnetische Strahlung in einem Wellenlängenbereich von 5 bis 0,001 nm (0,25 bis 1250 keV Energie). Auch wenn Röntgen nicht der Erste war, der diese Strahlung nachwies¹, so war er doch der Erste, der die zufällig gemachten Beobachtungen in Zusammenhang mit Gasentladungsröhren richtig deuten konnte. Die wissenschaftlich korrekte Untersuchung und Darstellung der neu entdeckten Strahlung brachte ihm 1901 den ersten Nobelpreis für Physik ein und führte dazu, dass die Strahlung nach ihm benannt wurde. Röntgen selbst erkannte damals bereits das grosse Potential dieser Strahlung und nannte selbst die bis heute wichtigsten Anwendungsgebiete: Medizin und Materialcharakterisierung im weitesten Sinne.

1.1 Klassische Röntgenverfahren

Röntgen- oder X-Strahlen sind elektromagnetische Wellen und unterliegen somit auch deren Ausbreitungsgesetzen. Ihre Welleneigenschaften wie Absorption, Beugung, Interferenz, Polarisierbarkeit, Reflexion und Brechung beim Durchlaufen verschiedener Medien können zur Charakterisierung der durchquerten Materialien verwendet werden. Das wohl bekannteste Merkmal von Röntgenstrahlung ist ihre Fähigkeit, undurchsichtige Festkörper zu durchdringen: Ein hinter dem durchstrahlten Objekt platzierter Röntgenfilm liefert ein Bild, das die Projektion der im Körper verborgenen Strukturen zeigt (Radiographie). Wird die Probe zusätzlich unter mehreren Winkeln zum Röntgenstrahl durchleuchtet und werden die gewonnenen Informationen ort- und winkelkorreliert ausgewertet, so spricht man von einer (Computer-)Tomographie. Mit Hilfe dieses Verfahrens lassen sich dreidimensionale Ansichten des untersuchten Probekörpers gewinnen. Eine räumliche Lokalisierung der Strukturen ist möglich. Darüber hinaus kann die vom durchstrahlten Objekt gestreute Intensität zur spezifischeren Untersuchung genutzt werden. Je nach Grösse des Ablenkwinkels handelt es sich um Klein- oder Weitwinkelstreuung.

¹Unwissentlich fertigte A.W. Goodspeed 1890 erste Durchstrahlungsaufnahmen bei der Vorführung einer Crookeschen Röhre an [2].

1.1.1 Weitwinkelstreuung

Trifft elektromagnetische Strahlung auf Hindernisse, deren laterale Ausdehnung in der Größenordnung der Wellenlänge der Strahlung liegt, kommt es zu Beugung der Strahlung an diesen Strukturen. Diesen Zusammenhang hat Max von Laue 1912 ausgenutzt, als er in Zusammenarbeit mit Walter Friedrich und Paul Knipping beweisen konnte, dass Röntgenstrahlung Welleneigenschaften (Beugung) besitzt und dass Kristalle eine regelmässige dreidimensionale Struktur aufweisen (Gitter mit periodischen Abständen) [2]. Die Ablenkung der Strahlung erfolgt nur, wenn für die einfallende Welle die Bragg'sche Reflexionsbedingung erfüllt ist. Die Ablenkwinkel liegen im Bereich mehrerer Grad (siehe Abbildung 1.1, Bereich III: Atomstreuung), daher auch der Name Weitwinkelstreuung (engl. **Wide Angle X-ray Scattering**). Die Röntgenstrukturanalyse war damit begründet. Ausgewertet werden Lage, Schärfe und Intensität der erhaltenen Reflexe [3]. Man unterscheidet zwischen monochromatischen (Debye-Scherrer) und Laue-Verfahren (polychromatisch).

Mit Hilfe von Einkristallen ist die Bestimmung der Lage der Atome in der Elementarzelle möglich (Röntgenstrukturanalyse). Polychromatische Strahlung fällt auf den Kristall, wird gebeugt und belichtet einen Röntgenfilm (Transmissionsanordnung). Mit Hilfe eines Vierkreisdiffraktometers, Zählrohren und monochromatischer Strahlung ist dieselbe Information in kürzerer Zeit erfassbar.

Pulveraufnahmeverfahren werden zur Identifizierung von Substanzen und Substanzgemischen, für die Bestimmung des Gittertypus sowie für Aussagen über den Kristallisierungszustand verwendet. Ziel der Auswertung ist es, den gemessenen Strahlungsmaxima die entsprechenden Millerschen Indizes zuzuordnen, eine unbekannte Substanz zu identifizieren oder eine quantitative Phasenanalyse von mehrphasigen Systemen zu realisieren.

1.1.2 Kleinwinkelstreuung

Auch die Kleinwinkelstreuung (engl. **Small Angle X-ray Scattering**) nutzt die kohärente Streuung von Röntgenstrahlung in der Probe. Der ausgewertete Winkelbereich erstreckt sich von etwa $0,05^\circ$ bis 3° (siehe Bereich II in Abbildung 1.1). Die Methode spricht auf örtliche Verschiedenheiten in der Elektronendichte [3] an. Sie ist daher auf kristalline und nichtkristalline feste Stoffe anwendbar, auf Suspensionen von hochmolekularen und Metallschmelzen. Die Strukturgrößen bewegen sich zwischen 1 nm und $10 \mu\text{m}$. Je nachdem, ob das zu untersuchende System mono- oder polydispers ist, unterscheidet sich der Gang der Auswertung und die errechneten Größen. Für den ersten Fall erhält man nach geeigneter Auftragung aus dem Verlauf der Streukurve Informationen über Grösse und Form der streuenden Teilchen (Guinier-Auswertung). Bei polydispersen Systemen läßt sich die Häufigkeitsverteilung der unterschiedlichen Teilchen ermitteln. Eine

Bestimmung der spezifischen (freien) Oberfläche der streuenden Teilchen ist möglich (Porod-Auswertung).

Als problematisch erweist sich bei diesem Verfahren die Messung der gestreuten Intensität in unmittelbarer Nähe des Hauptstrahles. Hier hat sich die Kratky-Kamera als Messanordnung bewährt. Mit ihrem Blockkollimationssystem wird eine Unterdrückung von Blendenstreustrahlung in einem Halbraum bis auf einen Streuwinkel von ca. $\theta < 0,01^\circ$ [4] möglich. Da die Kleinwinkelstreuung keine hohen Intensitäten liefert, muss hier mit dem strichförmigen Strahl der Feinstrukturrohre gearbeitet werden. Die Verschmierung durch die Strahlform wird anschliessend rechnerisch korrigiert. Für präzise Messungen ist eine hohe Konstanz der Zählrate erforderlich. Hierzu muss der Aufbau stabilisiert sein [3], [4].

1.2 Röntgenrefraktion

W. C. Röntgen hat die Brechung von Röntgenstrahlen vermutet, sie aber als so klein eingeschätzt,

„dass der Brechungsexponent der X-Strahlen in den genannten Substanzen höchstens 1,05 sein könnte.“[1]

Erste Untersuchungen der Brechung von Röntgenstrahlen führten Davis und Terril [5] 1922 durch. Sie nutzten die Totalreflexion an einem Kristall zur Bestimmung des Brechungsindex von Kalzit für Molybdänstrahlung aus. Es ergab sich ein Wert von $n=0,9999983$. Robert von Nardorf untersuchte 1926 die Brechung von Röntgenstrahlen an kleinen Partikeln [6]. Es verbarg sich dahinter die Hoffnung, aus der Strahlaufweitung nach Durchlaufen der Partikel auf deren Grösse rückschliessen zu können. Auch Compton erforschte das Phänomen und stellte alle damals bekannten Ergebnisse in seinem Werk [7] zusammen.

Wellenlängen in der Grössenordnung weniger Nanometer legen den Bau eines Röntgenmikroskopes nahe, um den Gewinn an Auflösung im Vergleich zum sichtbaren Licht auszunutzen. Nachdem bekannt war, dass der Brechungsindex für Röntgenstrahlen in Materie nahezu 1 ist und sich der Bau von Linsen für diesen Wellenlängenbereich als schwierig herausstellte, musste man eine röntgenoptische Abbildung auf anderem Wege erreichen². Somit verschwand die Brechung von Röntgenstrahlung aus der aktuellen Forschung. Sie floss als Korrektur in die Weitwinkelmessungen [9] ein und geriet ansonsten in Vergessenheit. Erst die Entdeckung geeigneter Materialien und Herstellungsverfahren für fokussierende Baugruppen machten das Arbeiten mit Röntgenlicht, insbesondere

²Zum einen nutzte man die hohe Reflexion an einer Goldschicht aus, eine Entdeckung, die auf Compton zurückgeht. Oder es wurden Fresnel-Linsen eingesetzt [8], um eine Richtungsänderung durch Beugung herbeizuführen.

für die Mikroskopie, wieder interessant. Um eine ausreichende Strahlablenkung zu erreichen, werden mehrere Einzellinsen hintereinander angeordnet. Da für Röntgenstrahlen der Brechungsindex generell kleiner 1 ist, muß eine fokussierende Linse konkav geformt sein. Zu diesem Zweck wurden mehrere Löcher mit $250\ \mu\text{m}$ Radius in Materialien mit kleiner Elektronenanzahl (z.B. Beryllium, Polycarbonat, Aluminium, etc.) gebohrt [10]. Mit Hilfe einer speziellen Presstechnik konnten sogar Linsen mit rotationssymmetrischem, sphärischen Profil aus Aluminium hergestellt werden. Dies war die Basis für ein Mikroskop an einem Synchrotron (ESRF), welches im Bereich von 2 keV bis 50 keV eine 50-fache Vergrößerung erzielt [11]. Mittlerweile sind Fokusgrößen von 380 nm für harte Röntgenstrahlung (25 keV) möglich³ [12], wodurch auch höhere Vergrößerungen erzielbar sind.

1.3 Röntgenrefraktionsverfahren in der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung

Hentschel et al. erkannten 1986, dass an zylindrischen Strukturen (Fasern), zusätzlich zu einer durch Partikelinterferenzen verursachten Kleinwinkelstreuung, eine erhebliche Streuung von Röntgenstrahlen senkrecht zur Faserachse auftritt [13]. Sie konnten zeigen, dass das Streuphänomen unabhängig vom Werkstoff immer die gleiche (auf θ_C normierte) Intensitätsverteilung aufweist. Da die Streuung nur von der Geometrie des verwendeten Streukörpers abhängt, kommt zur Erklärung dieses Phänomens nur die Brechung von Röntgenstrahlung in Frage. Die Autoren erkannten das Potential der Brechung in diesem Wellenlängenbereich: Grenzflächen in Materialien zerstörungsfrei zu untersuchen. Darüber hinaus müßte es möglich sein, innere Oberflächen zu bestimmen. Es wurde ein Mess- und Auswerteverfahren entwickelt, um aus den gemessenen Intensitäten Rückschlüsse auf Grenzflächen und deren Eigenschaften ziehen zu können [14]. Eine Umrechnung der Meßergebnisse auf reale Größen gelingt durch den Einsatz von Referenzkörpern, deren innere Oberflächen mit unabhängigen anderen Verfahren ermittelt wurden. Das Spektrum charakterisierbarer Materialien reicht von Faserverbundwerkstoffen mit Glas- oder Kohlenstofffasern ([15], [16], [17]) über verschiedene Keramiken ([18], [19], [20]) bis hin zu faserverstärkten Polymeren ([21], [22]) und Papier [23]. Im Gegensatz zu etablierten Verfahren wie Ultraschall liefert die neue Methode nicht nur ein Bild zur Schadenslokalisierung, sondern auch Information über die Integrität des Werkstoffverbundes [14]. Somit ist auch eine Quantifizierung des Schadens möglich. Das Verfahren ergänzt also in idealer Weise die etablierten Verfahren der **Zerstörungsfreien Prüfung** (ZfP).

Die Kleinwinkelstreuung nutzt die kohärente Streuung in der Probe, um Grösse und

³Die Linsen wurden in Silizium geätzt. Die genannte Fokusgröße erzielte man in 42 m Entfernung von der Quelle.

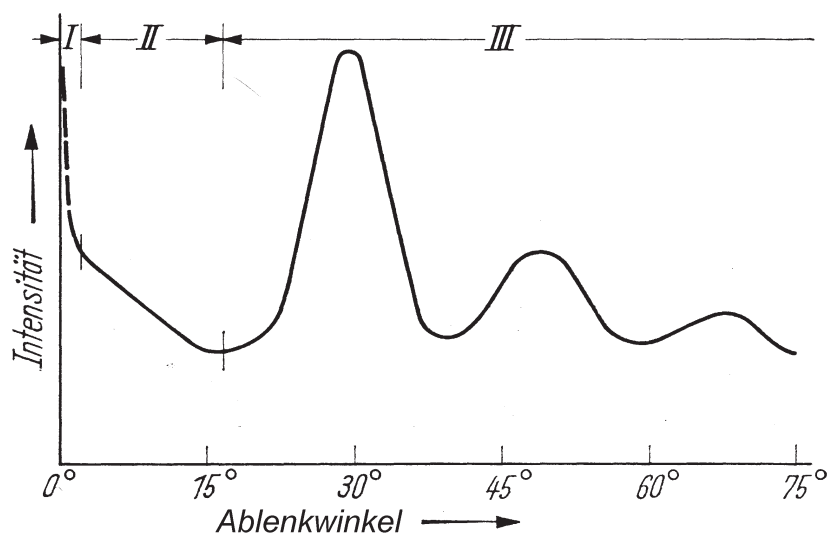


Abbildung 1.1: Schematischer Verlauf der an einer Probe gestreuten Intensität. Bereich I rührt von der Probenbegrenzung her, massgebend ist hier die Grösse des bestrahlten Volumens (Volumenstreuung). Die Intensität in Bereich II wird durch Teilchen im Probekörper hervorgerufen (Teilchenstreuung). Information über feinere Strukturen finden sich aufgrund der Beugungstheorie bei grösseren Winkeln, weil der Phasenunterschied am Objekt maßgeblich ist. Die Atomanordnung innerhalb eines Teilchens bedingt also über Gitterreflexe und Formfaktoren den Verlauf der Streuung in Bereich III (Atomstreuung) [3, S. 499].

Form der streuenden Teilchen über Streuwinkelkurven zu ermitteln. Hingegen wird bei den Röntgenrefraktionsverfahren über Brechung an Grenzflächen die Charakterisierung von Oberflächen im Material durchgeführt. Hier wird die Messung auf einem festen Streuwinkel durchgeführt. Beide Verfahren nutzen Strahlung, die unter sehr kleinen Winkeln von der Probe abgestrahlt wird. Der physikalische Effekt der Streustrahlung ist aber unterschiedlich (refraktive Beugung statt Rayleigh-Streuung) und deswegen auch die daraus abgeleiteten Aussagen, abgesehen von der Bestimmung einer inneren Oberfläche mit Hilfe der Kleinwinkelstreuung über die Porod-Analyse. Des weiteren werden hier die Effekte der Kleinwinkelstreuung durch die Refraktionseffekte nach den Regeln der geometrischen Optik approximiert.

2 Ziel dieser Arbeit

Im vorigen Kapitel wurden Röntgenverfahren zur Materialcharakterisierung vorgestellt. Mit der Darstellung der Absorptionsunterschiede im durchstrahlten Körper ermöglicht die Radiographie Aussagen über die Lage innerer Strukturen. Die Computertomographie kann aus mehreren Radiographien, die das Bauteil unter verschiedenen Drehwinkeln zeigen, sogar die exakte dreidimensionale Position dieser Strukturen bestimmen. Weitwinkelstremethoden ermöglichen Analytik auf der Nanometerskala. Die Beugung von Röntgenstrahlen am Kristallgitter liefert primär Lage und Intensität von Strahlungsmaxima und daraus die Geometrie des bestrahlten Gitters. Weist die untersuchte Probe größere Strukturen auf, wie beispielsweise Molekülketten, so wandert die abgebeugte Intensität zu immer kleineren Winkeln hin (Kleinwinkelstreuung).

Die Brechung von Röntgenstrahlen führt ebenfalls zur Strahlablenkung um kleine Winkel. Wie im vorangehenden Kapitel bereits dargelegt, ist die Richtungsabhängigkeit der Strahlung in Abhängigkeit von Grenzflächenlage und Brechungsindexdifferenz nutzbar, um Schädigungen in faserverstärkten Werkstoffen zu detektieren und zu charakterisieren. Die Messung von Streustrahlung unter Winkeln im Bogenminutenbereich erfordert mechanisch stabile und genau einstellbare Apparaturen. In dieser Arbeit werden daher zuerst die apparativen Anforderungen an die Methode untersucht. Da sich nicht alle Einflüsse vollständig kompensiert lassen, muß eine Messmethodik erarbeitet werden, die den Vergleich von Messungen am selben Material über einen längeren Zeitraum hinweg erlaubt. Dies ist wichtig, da ein rasterndes Verfahren längere Messzeiten benötigt. Um das Potential der Röntgenrefraktionsverfahren für die Materialcharakterisierung zu erforschen, werden zwei besonders praxisrelevante Gebiete herausgegriffen: Die Schädigung langfaserverstärkter Kunststoffe durch Impact und die Schädigung kurzglasfaserverstärkter Kunststoffe durch Zug. Bei der Auswahl der Beispiele wurde zusätzlich noch das Ziel verfolgt, den Schädigungsverlauf in Faserverbundwerkstoffen besser zu verstehen, wie es generell das Ziel des SFB 381¹ ist. Für beide Beispiele werden vergleichende Untersuchungen mit bekannten zerstörungsfreien Prüfverfahren durchgeführt, um den Informationsgewinn durch den Einsatz der Röntgenrefraktions-Topographie² herauszuarbeiten. Das Brechungsmuster einer Zylinderlinse (z.B. Glasfaser) ist senkrecht zur Längsachse

¹Sonderforschungsbereich 381: Charakterisierung des Schädigungsverlaufes in Faserverbundwerkstoffen mittels zerstörungsfreier Prüfung.

²Röntgenrefraktionsverfahren mit Ortsauflösung.

des Zylinders orientiert. Diese Vorzugsrichtung ermöglicht es, Röntgenrefraktionsverfahren ähnlich wie Mikrowellen und Ultraschall zur Bestimmung von Faserorientierungen einzusetzen. Der Einfluss der Strahlverschmierung, der sich durch die Verwendung der Kratky-Kamera ergibt, wird hier genauer untersucht.

Eine weitere Anwendung ist die Messung innerer Oberflächendichten. Um auch die Eignung für andere Materialien als Kunststoffe zu zeigen, wurden zum Abschluss Keramiken untersucht. Unter Annahme sphärischer Poren kann hier der Porendurchmesser errechnet werden.

3 Beschreibung der Röntgenbrechung

Lange Zeit ging man davon aus, dass Röntgenstrahlen einen Brechungsindex von $n=1$ aufweisen und somit beim Passieren einer Grenzfläche zwischen zwei Medien keine Ablenkung erfahren. Im Jahre 1922 machten Davis und Terril die erstaunliche Entdeckung, dass der Brechungsindex, wenn auch nur sehr gering, unterhalb von $n=1$ liegt [5].

Nach einer kurzen Herleitung des Brechungsindex unter Berücksichtigung der Absorption wird seine rechnerische wie experimentelle Bestimmung erläutert. Anschließend erfolgt eine kurze Betrachtung des Brechungsphänomens an Einzelfasern und am Faserkomposit mit Hilfe der geometrischen Optik. Die Ergebnisse fließen in Kapitel 5 zur messtechnischen Erfassung der Inneren Oberfläche ein.

3.1 Brechungsindex für EUV und weiche Röntgenstrahlung

Absorption und Refraktion spielen auch bei Röntgenstrahlung eine wesentliche Rolle. Im Gegensatz zur allgemein bekannten Absorption ist die Refraktion von Röntgenstrahlung eher unbekannt. Röntgen vermutete ihre Existenz, konnte sie aber nie nachweisen [1]. Erst in der Veröffentlichung von Compton und Allison [7] wurde die Lorentz-Theorie auf den Wellenlängenbereich der Röntgenstrahlung erweitert und mit ersten Experimenten verglichen.

Die folgende Darstellung für den EUV¹-Wellenlängenbereich und weiche Röntgenstrahlung² orientiert sich am Lorentz-Modell [24], [25]. Für das Atom gelten semiklassische Annahmen, d.h. der Kern wird als massiv mit einer Ladung $Z \cdot e$ angenommen. Er ist von Z Elektronen mit diskreten Bindungsenergien umgeben. Der Atomkern reagiert nicht auf ein hochfrequentes, anregendes \vec{E} -Feld. Aber die den Kern umgebenden Elektronen werden gezwungen, mit der Frequenz ω des anregenden \vec{E} -Feldes zu schwingen. Bedingt durch die verschieden großen Bindungsenergien der Elektronen reagieren die Ladungs-

¹Extreme Ultra Violet: Wellenlängen von 5 - 40 nm, entsprechend Energien 0,03 - 0,25 keV

²Wellenlängen von 0,06 - 5 nm, entsprechend Energien 0,25 - 20 keV

träger unterschiedlich auf die treibende Kraft des \vec{E} -Feldes. Die Lorentz-Theorie für Dispersion wird durch einen Dämpfungsterm ergänzt, um die Absorption nicht zu vernachlässigen.

Die Bewegungsgleichung für ein einzelnes, gebundenes Elektron bei einem anregenden \vec{E} -Feld der Form

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \quad (3.1)$$

lautet in harmonischer Näherung

$$m_e \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + m_e \gamma \frac{d\vec{x}}{dt} + m_e \omega_0^2 \vec{x} = -e(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}). \quad (3.2)$$

Es fließen hier die Annahmen ein, dass die Auslenkung \vec{x} des Elektrons linear erfolgt (Hookesches Gesetz für die Rückstellkraft) und dass die Dämpfung γ proportional der Geschwindigkeit des Elementarteilchens ist. Es wird weiterhin angenommen, dass $\gamma/\omega \ll 1$ gilt. Unter der Annahme nichtrelativistischer Elektronengeschwindigkeiten \vec{v} reduziert sich die Lorentz-Kraft auf den Term $-e\vec{E}$. Die stationäre Lösung der linearen Gleichung 3.2 hat die Form $\vec{x} = \vec{x}_0 e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})}$. Für die maximale Auslenkung \vec{x}_0 der Elektronen ergibt sich dann eine direkte Proportionalität zum anregenden \vec{E} -Feld:

$$\vec{x}_0 = \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 + i\gamma\omega} \cdot \frac{e}{m_e} \cdot \vec{E}_0. \quad (3.3)$$

Der Brechungsindex eines Mediums ist allgemein definiert als Verhältnis der Lichtgeschwindigkeit c der elektromagnetischen Welle im Vakuum zur Phasengeschwindigkeit v der Welle im Medium

$$n \equiv \frac{c}{v} = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}} / \frac{1}{\sqrt{\epsilon \mu}} = \sqrt{\frac{\epsilon \mu}{\epsilon_0 \mu_0}}. \quad (3.4)$$

Unter der Annahme nicht-magnetischer Materialien reduziert sich die Darstellung auf

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon}{\epsilon_0}}. \quad (3.5)$$

Diese Formulierung gilt also nur für Dielektrika, nicht für Metalle und große \vec{E} bzw. \vec{B} -Felder.

Das anregende \vec{E} -Feld erzeugt durch das Auslenken der Elektronen relativ zum Kern ein Dipolmoment des Atoms, d.h. die Ladungstrennung bewirkt ein zusätzliches Feld, die Polarisation³

$$\vec{P} = -e N_e \vec{x} = (\epsilon - \epsilon_0) \vec{E}. \quad (3.6)$$

Hieraus ergibt sich die Dielektrizitätskonstante ϵ unter Verwendung von Gleichung (3.3) zu

$$\epsilon = \epsilon_0 - \frac{e^2 N_e / m_e}{\omega^2 - \omega_0^2 + i\gamma\omega}. \quad (3.7)$$

³Dichte der Dipolmomente

Für den Brechungsindex dieses Eielektronensystems folgt dann mit Hilfe von Gleichung (3.5)

$$n = \left[1 - \frac{e^2 N_e}{m_e \varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 + i\gamma\omega} \right]^{1/2} \cong 1 - \frac{1}{2} \cdot \frac{e^2 N_e}{m_e \varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 + i\gamma\omega}. \quad (3.8)$$

Bei dieser Näherung wurde ausgenutzt, dass für Strahlung im EUV-Bereich $\omega^2 \ll \frac{e^2 N_e}{m_e \varepsilon_0}$ gilt und die Wurzel durch $\sqrt{1-x} \cong 1 - \frac{1}{2}x$ für $|x| \ll 1$ angenähert werden kann⁴. Bei sichtbarem Licht ist diese Näherung nicht zulässig. Mit den Oszillatorstärken g_s läßt sich der Brechungsindex eines Mehrelektronensystems berechnen. Diese Größen erfassen die Wahrscheinlichkeit von Energieübergängen zu anderen Niveaus. In der hier benutzten semi-klassischen Theorie gibt es keine Berechnungsgrundlage für g_s . Erst die Quantenmechanik deutet die Oszillatorstärken als Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen stationären Zuständen Ψ_k und Ψ_n des Atoms. Bei der Verwendung der Oszillatorstärken ist die Thomas-Reiche-Kuhn Summenregel $\sum_{s=1}^Z g_s = Z$ zu beachten. Dann ergibt sich für den Brechungsindex

$$n(\omega) = 1 - \frac{1}{2} \cdot \frac{e^2 N_e}{m_e \varepsilon_0} \sum_{s=1}^z \frac{g_s}{\omega^2 - \omega_{0s}^2 + i\gamma\omega}, \quad (3.9)$$

wobei ω_0 durch die Eigenfrequenzen ω_{0s} eines Elektrons des Mehrelektronensystems ersetzt wird. Eine weitere Vereinfachung, auch im Hinblick auf numerische Bestimmungen von Absorption und Brechung des Materials, bringt die Einführung des atomaren Streufaktors in Vorwärtsrichtung (gekennzeichnet durch den oberen Index 0)

$$f^0(\omega) = \sum_{s=1}^Z \frac{g_s \omega^2}{\omega^2 - \omega_{0s}^2 + i\gamma\omega} = f_1^0(\omega) - i f_2^0(\omega) \quad (3.10)$$

mit

$$f_1^0(\omega) = \sum_s \frac{g_s \omega^2 (\omega^2 - \omega_{0s}^2)}{(\omega^2 - \omega_{0s}^2)^2 + (\gamma\omega)^2} \quad (3.11)$$

$$f_2^0(\omega) = \sum_s \frac{g_s \gamma \omega^3}{(\omega^2 - \omega_{0s}^2)^2 + (\gamma\omega)^2} \quad (3.12)$$

Mit dem klassischen Elektronenradius $r_e = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0 m_e c^2}$ folgt für den Brechungsindex $n(\omega)$

$$n(\omega) = 1 - \frac{N_e r_e \lambda^2}{2\pi} f^0(\omega). \quad (3.13)$$

⁴Die Resonanzfrequenzen liegen typischerweise im ultravioletten Spektralbereich [26], so dass der Realteil des Brechungsindex für EUV-Strahlung kleiner 1 ist.

Für den EUV-Wellenlängenbereich kann der komplexe Brechungsindex in folgender Form dargestellt werden:

$$n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega) \quad (3.14)$$

mit

$$\delta(\omega) = \frac{N_e r_e \lambda^2}{2\pi} f_1^0(\omega) \quad (3.15)$$

und

$$\beta(\omega) = \frac{N_e r_e \lambda^2}{2\pi} f_2^0(\omega) \quad (3.16)$$

Beispiele für δ und β sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt.

Material	δ in 10^{-6}	β in 10^{-8}	μ_L in 1/mm	Θ_C in Bogenminuten
Wellenlänge	Cu-K $_{\alpha}$	Cu-K $_{\alpha}$	Cu-K $_{\alpha}$	Cu-K $_{\alpha}$
Glas (SiO_2)	7,1	9,2	7,6	13
Kohlenstoff (C)	5,5	0,9	0,7	11,4
Polypropylen (C_3H_6)	3,3	0,4	0,3	8,8
Keramik (Al_2O_3)	12,6	14,6	16,8	17,3
Wellenlänge	Mo-K $_{\alpha}$	Mo-K $_{\alpha}$	Mo-K $_{\alpha}$	Mo-K $_{\alpha}$
Glas (SiO_2)	1,5	0,4	0,8	6
Kohlenstoff (C)	1,2	0,03	0,08	5,3
Polypropylen (C_3H_6)	0,7	0,01	0,04	4,1
Keramik (Al_2O_3)	2,7	0,6	2,6	8

Tabelle 3.1: Optische Eigenschaften bestimmter Materialien für Röntgenstrahlung der Wellenlänge 0,154 nm (Cu-K $_{\alpha}$) und 0,07 nm (Mo-K $_{\alpha}$) [27].

3.2 Real- und Imaginärteil des Brechungsindex und die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen

Zu diesem Zweck betrachtet man die Ausbreitung einer ebenen Welle

$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})}$ im Material. Im Wellenvektor \vec{k} steckt die Dispersion und somit der Brechungsindex $n(\omega)$:

$$\frac{\omega}{k} = \frac{2\pi\nu}{2\pi \cdot n/\lambda} = \frac{\lambda\nu}{n} = \frac{c}{n} = \frac{c}{1 - \delta + i\beta} \quad (3.17)$$

Für die ebene Welle erhält man nach Einsetzen von Gleichung (3.17)

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{-i[\omega t - \frac{\omega}{c}(1-\delta+i\beta)|\vec{r}|]} = \vec{E}_0 e^{-i\omega(t - \frac{|\vec{r}|}{c})} e^{-i(2\pi\frac{\delta}{\lambda})|\vec{r}|} e^{-(2\pi\frac{\beta}{\lambda})|\vec{r}|} \quad (3.18)$$

Der erste Term gibt die Zeit an, welche die Welle ohne Medium zum Erreichen des Ortes \vec{r} benötigt: $t = \frac{|\vec{r}|}{c}$. Die Phasenverschiebung der resultierenden ebenen Welle durch das Medium (bedingt durch die Überlagerung von einfallender und von den Elektronen emittierter Welle) spiegelt sich im zweiten Faktor der Gleichung (3.18) wieder. Hier taucht die Größe δ auf, also die Abweichung des Realteiles des Brechungsindex von 1. Die Brechung beruht also auf der Phasenverschiebung zwischen einfallender (anregender) und emittierter Welle. Die Abnahme der Wellenamplitude durch das Medium zeigt sich im dritten Faktor der Gleichung (3.18). Die Dämpfung ist auf der atomaren Ebene mit der Größe β verknüpft.

3.3 Bestimmung des komplexen Brechungsindex mit der Kramers-Kronig-Beziehung

Prinzipiell sind δ und β mittels Messung bestimmbar. Für β genügt eine einfache Absorptionsmessung. Bei festen Medien ist δ über Totalreflexion an einem Prisma bestimmbar. Hier werden hohe Anforderungen an die Stabilität des Aufbaus und die Messgenauigkeit des Winkels gestellt, der in der Größenordnung von einigen Bogenminuten liegt. Darüber hinaus bieten sich für harte Röntgenstrahlung interferometrische Methoden an [28]. Die verwendeten Spiegel und Strahlenteiler müssen allerdings auf den Bruchteil einer Wellenlänge eben sein, um die Wellenfronten nicht zu stören. Leider sind Interferometer für weiche Strahlung nicht geeignet, da hier die Absorption des Materials zu hoch ist.

Die rechnerische Bestimmung von δ und β erfolgt über die Kramers-Kronig-Beziehungen. Für eine breite Klasse physikalischer Probleme verbinden diese Relationen Real- und Imaginärteil der physikalischen Antwort mit der Anregung in linearen, stabilen, kausalen Systemen [24]. Für den konkreten Fall der Brechung gilt:

$$f_1^0(\omega) = Z - \frac{2}{\pi} PV \int_0^{\infty} \frac{u f_2^o(u)}{u^2 - \omega^2} du \quad (3.19)$$

$$f_2^0(\omega) = \frac{2\omega}{\pi} PV \int_0^{\infty} \frac{f_1^o(u) - Z}{u^2 - \omega^2} du \quad (3.20)$$

wobei PV der Cauchy'sche Hauptwert des Integrals ist [24].

Mit Kenntnis dieser Zusammenhänge und den Gleichungen (3.15) und (3.16), welche δ und β mit $f_1^o(\omega)$ und $f_2^o(\omega)$ verknüpfen, geht man zur Bestimmung des Brechungsindex so vor, dass zuerst $f_2^o(\omega)$ mittels Absorptionsmessung an Gasen oder dünnen Folien

interessierender Elemente bestimmt wird. Dies geschieht mittels durchstimmbarer Synchrotronstrahlung für viele Frequenzen ω . Hieraus lässt sich der Massenabsorptionskoeffizient μ bestimmen, welcher gemäß

$$f_2^0(\omega) = \frac{Am_U}{2r_e\lambda} \mu(\omega) \quad (3.21)$$

mit $f_2^0(\omega)$ verknüpft ist. Die Grössen $f_1^0(\omega)$ und auch δ werden über die Kramers-Kronig-Beziehung Gleichung (3.19) errechnet. Dies wurde von Henke et al. für alle Elemente von Wasserstoff ($Z=1$) bis Uran ($Z=92$) für Energien von 50 eV bis 30 keV durchgeführt [27].

3.4 Brechung von Röntgenstrahlung an Fasern und Poren

Die vorangehenden Abschnitte haben gezeigt, dass der Realteil des Brechungsindex für Röntgenstrahlung sehr nahe bei 1 liegt. Die daraus resultierenden Ablenkungswinkel beim Übergang von Luft ($n_{real} = 1$) in ein Medium liegen dementsprechend bei wenigen Bogenminuten. Mit der geometrischen Optik sind die Intensitätsverteilungen über dem Streuwinkel für zylindrische (Fasern) und kugelförmige Streukörper (Poren) herleitbar. Hentschel hat die Verhältnisse der Brechung von Röntgenstrahlung an zylindersymmetrischen Objekten untersucht [13]. Für die durch eine Faser abgelenkte Intensität ergibt sich unter Vernachlässigung der Absorption für $|\frac{\Theta}{2}| \leq \Theta_C$:

$$I_{\text{gebrochen}}^{\text{Zylinder}}(\Theta) = I_0 \cdot R \cdot \frac{\sin^3(\arctan(\delta/(\Theta/2)))}{\delta} \propto \frac{8 \cdot \delta^2}{\Theta^3} \quad (3.22)$$

$$I_{\text{reflektiert}}^{\text{Zylinder}}(\Theta) = I_0 \cdot 2R \cdot \left| \sin\left(\frac{\Theta}{2}\right) \right| \quad (3.23)$$

Der Teilbereich des Faserquerschnitts, welcher zur Totalreflexion beiträgt, kann zu $D \cong \Theta_C^2 R$ abgeschätzt werden [13]. Wegen der geringen Größe von Θ_C (siehe Tabelle 3.1) ist die reflektierte Intensität $I_{\text{reflektiert}}^{\text{Zylinder}}$ für die Intensität des gesamten Phänomens nicht von Bedeutung. Für einen Faseroving mit N Fasern ergibt sich für die Refraktion bei kleinen Winkeln:

$$I^{\text{Roving}}(\Theta) = I_0 \cdot N \cdot R \cdot \frac{8\delta^2}{\Theta^3} \quad (3.24)$$

Dabei ist der Zylinderdurchmesser ein Maß für den Streuquerschnitt. Bei spärlichen Streuobjekten, also kugelförmigen Teilchen oder Poren, ist die über alle Orientierungswinkel verteilte Intensität durch den Lorentz-Faktor⁵ $1/\Theta$ zu korrigieren sowie der Streuquerschnitt für eine Kugel (πR^2) einzusetzen [30]:

$$I^{\text{Poren}}(\Theta) = I_0 \cdot N \cdot \pi \cdot R^2 \cdot \frac{16 \cdot \delta^2}{\Theta^4} \quad (3.25)$$

⁵Faktor, der die Geometrie der streuenden Körper berücksichtigt [29].

Um auch die Absorption durch die Probe zu berücksichtigen, muß die Intensität des Hauptstrahls (I_0) durch die Intensität mit Probe im Strahlengang (I_A) ersetzt werden. Prinzipiell lässt sich die Form der streuenden Körper über den Verlauf der Streuintensität in Abhängigkeit vom Streuwinkel unterscheiden (Abbildung 3.1).

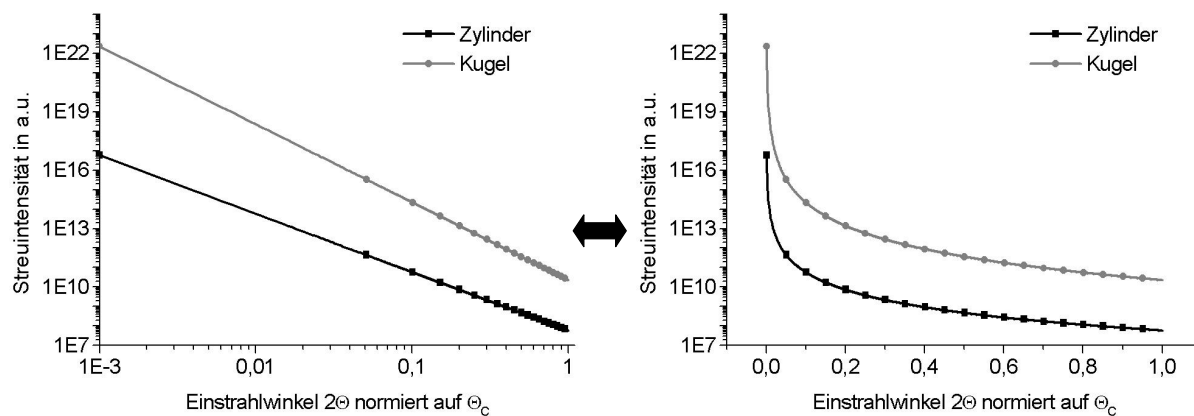


Abbildung 3.1: Streufunktion für Zylinder (Gl. 3.22) und Kugel (Gl. 3.25). Beide Graphen zeigen den selben Kurvenverlauf. Die doppeltlogarithmische Darstellung links zeigt die Potenzfunktionen als Geraden, so dass an Hand der Steigung auf den Exponenten geschlossen werden kann.

4 Aufbau der Röntgenrefraktometrie-Apparatur

Die im vorangehenden Kapitel vorgestellten Zusammenhänge zeigen, dass die brechungsbedingte Ablenkung von Röntgenstrahlung unter nur wenigen Bogenminuten erfolgt. Um diese Brechung messtechnisch zu erfassen, muss daher in unmittelbarer Nähe des Hauptstrahles gemessen werden. Der erste Teil dieses Kapitels erläutert den zur Messung genutzten Versuchsaufbau und erklärt die Funktion der einzelnen Komponenten. Die Diskussion möglicher Beeinflussungen einer Messung durch die Umgebung folgt im zweiten Teil. Eine Vorstellung von Verbesserungsmaßnahmen beendet dieses apparativ orientierte Kapitel.

4.1 Komponenten der Anlage

Der Messaufbau für die hier vorgestellten Versuche besteht im wesentlichen aus einer Röntgenquelle und einer modifizierten Kratky-Kamera mit einer ansteuerbaren Streuwinkelverstellung (s. Abb. 4.1). Verschiebetische positionieren die Proben jeweils am Messort im Strahl. Zwei Szintillationszähler registrieren die von der Probe transmittierte und gestreute Strahlung, und der Steuerrechner speichert die Werte ortskorreliert in einer Datei. Um die mechanische Stabilität der gesamten Apparatur zu erhöhen, sind die Komponenten auf einem optischen Tisch montiert. Je nach Versuchsaufbau werden nur Verschiebetische oder eine Kombination aus Verschiebetisch und Drehteller benutzt. Im folgenden werden die einzelnen Komponenten der Apparatur näher erläutert.

4.1.1 Röntgenapparat

Zur Erzeugung von Röntgenstrahlung wird die von der Firma Seiffert vertriebene Anlage Iso Debyelex 3003 mit dem Wasser-Kühlaggregat KMW 3000 und einer konventionellen Feinfokusröhre (Coolidge-Type) in stehender Anordnung verwendet. Der Generator erzeugt Hochspannung bis 60 kV und Stromstärken bis 80mA bei einer elektrischen Maximalleistung von 3,5 kW [31]. Strom und Spannung sind getrennt voneinander regelbar. Ein Metallfilter vor dem Strahlaustritt der Röhrenhaube ermöglicht die Unterdrückung der K_{β} -Linie um 86%. Von der K_{α} -Linie gelangen noch 66% durch den Filter [3, Tabelle

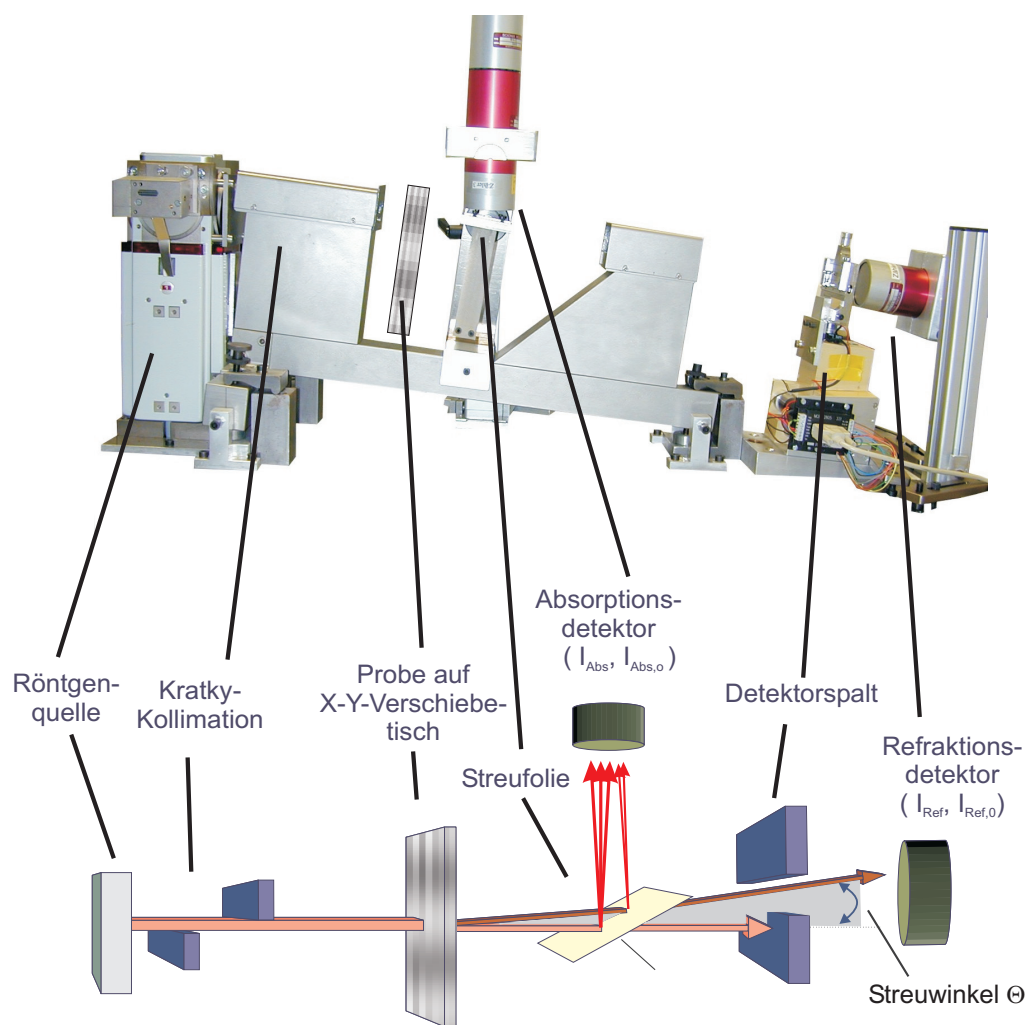


Abbildung 4.1: Aufbau der Röntgenrefraktometrie - Apparatur. Die einzelnen Komponenten werden im folgenden beschrieben.

S. 10]). Das Experiment fordert monochromatische Strahlung sowie hohe Strahlungsintensität bei zeitlicher und örtlicher Langzeitstabilität des Fokus. Ein diesbezüglich unkritischer Betrieb der Anlage ist mit der Strom-Spannungskombination 40 kV und 20 mA möglich. Um die Strahlungsintensität der hier verwendeten K_{α} -Linie zu steigern, lassen sich sowohl Röhrenstrom als auch Röhrenspannung variieren. Durch eine Erhöhung des Röhrenstromes nimmt die thermische Belastung des Röhrenfokus zu, und die Apparatur wird empfindlicher gegenüber Schwankungen im Kühlsystem der Anlage. Zudem erhöht sich die Intensität des gesamten Spektrums, das Experiment benötigt aber monochromatische Strahlung. Allerdings ist bei konstanter Stromstärke allein durch Anheben der Hochspannung eine Leistungssteigerung für die charakteristische Strahlung erzielbar. Empirisch gilt folgender Zusammenhang zwischen Intensität I und Hochspannung U [32, S. 49]

$$I \propto (U - V_0)^{1,7} \quad (4.1)$$

Mit einem Anregungspotential von $V_0=20$ kV für Molybdän folgt eine Leistungssteigerung der charakteristischen Strahlung um den Faktor 3,25 allein durch die Anhebung der Spannung von 40 kV auf 60 kV. Wie sich bei der Realisierung zeigte, kommt es bei einer Hochspannung von 60 kV häufiger zu Überschlägen, und die Anlage schaltet ab. Daher wird die Hochspannung auf 50 kV begrenzt und die Stromstärke von 20 mA auf 30 mA angehoben. Die gesamte Leistungssteigerung gegenüber dem Betrieb mit 40 kV bei 20 mA beläuft sich somit auf den Faktor $2 \cdot 1,5 = 3$ für die charakteristische Strahlung. Bei der Wahl der Röntgenröhre ist zu berücksichtigen, dass weiche Strahlung (z.B. Kupfer) generell eine bessere Auflösung des Streuwinkels ermöglicht [4], denn sie wird unter einem größeren Winkel abgelenkt (siehe Tabelle 3.1). Allerdings schränkt die geringe Durchdringungsfähigkeit den Bereich der messbaren Proben ein. Die einsetzende Aufhärtung führt zu einer Fehlweisung der Apparatur. Bei stark absorbierenden Proben, z.B. Keramik oder Faserverbundwerkstoffen mit Dicken im Bereich mehrerer Millimeter, empfiehlt sich Molybdänstrahlung auf Grund der geringeren Absorption. Der die Messung erschwerende kleinere Streuwinkel wird durch die Möglichkeit, dickere Proben zu messen, kompensiert. Bei der Charakterisierung von Proben mit Dicken größer als zwei Halbwertsdicken¹ ist generell Vorsicht geboten. Die Interpretation muss eine mögliche Fehlweisung des Detektors durch Strahlaufhärtung berücksichtigen.

4.1.2 Kratky-Kamera

Ähnlich wie bei Kleinwinkelstreuexperimenten steht man bei Röntgenrefraktionsverfahren vor dem Problem, in unmittelbarer Umgebung des Primärstrahles messen zu müssen. Hierzu muss der Hauptstrahl äußerst scharf ausgeblendet werden, wobei die von

¹Bei dieser Probendicke wird die Intensität durch die Probe auf die Hälfte der Intensität ohne Probe abgesenkt.

den Blendenrändern emittierte störende Sekundärstrahlung durch weitere Blenden möglichst abzuhalten ist. Für SAXS-Experimente hat sich die Kratky-Kamera als geeignete Lösung etabliert, da ihr Blendensystem eine Untersuchung von Streuung bereits ab $0,1^\circ$ [4] erlaubt (Abbildung 4.2). Sie bietet allerdings nur die Möglichkeit, kleine Proben volumina zu charakterisieren. Daher wird ein Eigenbau der Firma Ekenhorst Röntgen-Systemtechnik verwendet, der mittels eines Einschnittes von 15 cm Tiefe die Untersuchung größerer Proben erlaubt (Abbildung 4.2). Im Vergleich zur konventionellen Kamera läßt sich dieses Gerät nur auf fest eingestellten Streuwinkeln betreiben (Einstellung des Streuwinkels erfolgt durch Montage eines Metallblocks). Die Höhe des geschliffenen Eintrittspaltes ist mit 0,05 mm fest vorgegeben.

Um hohe Intensitäten zu erreichen, wird die Kratky-Kamera üblicherweise mit dem Strichfokus (Höhe: 0,04 mm, Breite: 8,0 mm, Röhre stehend) der verwendeten Röhre betrieben. Um sicherzustellen, dass der Streuwinkel bei einer Messserie unverändert bleibt, müssen der Fokus und die Position des Hauptstrahles langzeitstabil sein. Diese Eigenschaft erfüllt besser der Punktfokus (Höhe: 0,8 mm, Breite: 0,4 mm; Röhre stehend), da der Eintrittsspalt mit Überlappung ausgeleuchtet wird. Temperaturbedingte Höhenänderungen der Röhrenhaube zeigen sich bei dieser Anordnung weniger stark als bei der Verwendung des Strichfokus, da dieser den Eintrittsspalt sehr knapp beleuchtet. Der Punktfokus hat allerdings den Nachteil, dass bei stehender Röhre nur 6,25% der Intensität des Strichfokus zur Verfügung stehen². Eine Vergrößerung der ausgeleuchteten Spaltfläche ist durch Legen der Röhrenhaube möglich. Hier werden dann $0,8 \text{ mm} * 0,05 \text{ mm} = 0,04 \text{ mm}^2$ beleuchtet, was eine Verdoppelung der Fläche gegenüber dem stehenden Punktfokus bedeutet. Nachteilig ist hier die vom Hersteller mitgelieferte Halterung, welche die Röhrenhaube nur einseitig abstützt. Das freie Ende kann somit schwingen und muss geeignet gelagert werden.

4.1.3 Detektor

Als Detektoren werden zwei baugleiche Szintillationszähler der Firma SCIONIX verwendet. Vorverstärker, Hochspannungsversorgung für den Fotomultiplier und spektraler Analysator sind in einem externen Gerät der Firma AMC (Analytik und Messtechnik Chemnitz) untergebracht. Die Kommunikation mit dem Rechner erfolgt über die serielle Schnittstelle. Die mitgelieferte Software erlaubt die Bestimmung des Arbeitspunktes sowie die Einstellung der zur Messung benötigten Parameter wie Hochspannung, Vorverstärkung und Fensterbreite des jeweiligen Kanals. An beiden Szintillationszählern liegt dieselbe Hochspannung an, bedingt durch den Aufbau des AMC-Moduls. Vorverstärkung und Fensterbreiten sind für jeden Zähler getrennt einstellbar.

²Beleuchtete Fläche Punktfokus: $0,4 \text{ mm} * 0,05 \text{ mm} = 0,02 \text{ mm}^2$; beleuchtete Fläche Strichfokus: $8,0 \text{ mm} * 0,04 \text{ mm} = 0,32 \text{ mm}^2$

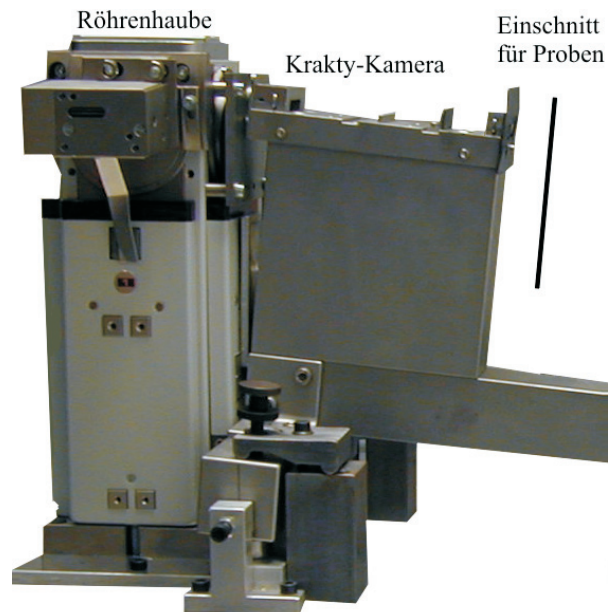
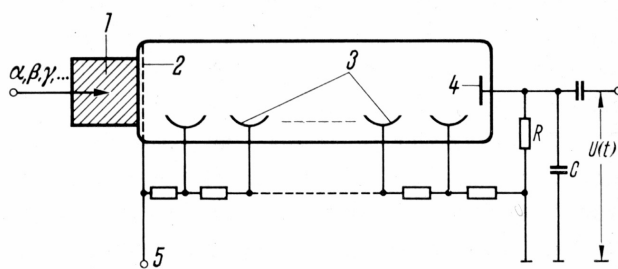


Abbildung 4.2: Kratky-Kamera der Firma Ekenhorst: Der tiefe Einschnitt ermöglicht die Untersuchung grösserer Proben.



- 1 Szintillationskristall
- 2 Photokathode
- 3 Dynoden
- 4 Anode
- 5 Hochspannung

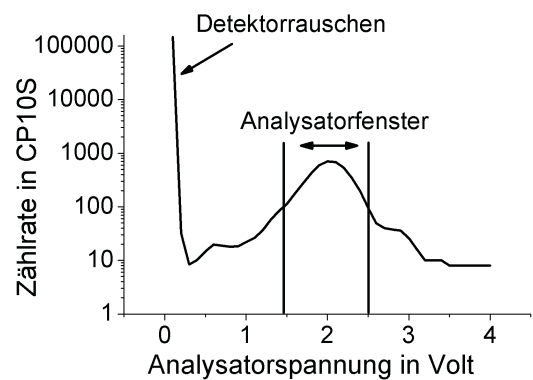


Abbildung 4.3: Links: Schematischer Aufbau eines Szintillationszählers. Rechts: Analysatorspektrum des Zählers. Nur das Analysatorfenster wird ausgewertet.

Da die Stärke der Brechung von der verwendeten Wellenlänge abhängt, wird mit monochromatischer Strahlung gearbeitet. Ein Großteil der Monochromatisierung erfolgt bereits durch den passend gewählten Filter in der Röhrenhaube (siehe Kapitel 4.1.1). Die wesentliche Festlegung auf K_α -Strahlung erfolgt durch den elektronischen Single Channel Analyser des AMC-Moduls. Hier ist darauf zu achten, dass bei simultaner Messung von Refraktion und Absorption die Analysatoreinstellungen so gewählt sind, dass die Absorptionseigenschaft eines rein absorbierenden Materials in beiden Kanälen gleichzeitig gemessen wird. Dazu muss der lineare Absorptionskoeffizient für ein Metall bestimmt werden, der über mehrere Halbwertsdicken des Materials konstant sein sollte.

Um die Genauigkeit einer Messung und somit die Genauigkeit des Verfahrens einschätzen zu können, müssen der Fehler des verwendeten Messgerätes und das Signal-Rauschverhältnis bekannt sein. Die vom Szintillationszähler angegebenen Zählraten entstehen durch eine Umsetzung der Röntgenstrahlung in sichtbares Licht im Szintillationskristall des Gerätes ((siehe Abb. 4.3, links)). Diese Lichtblitze im sichtbaren Wellenlängenbereich treffen auf die Photokathode eines Photomultipliers, welcher mittels Sekundärelektronenvervielfacher (Dynoden) einen der Strahlungsenergie proportionalen Stromimpuls ausgibt (Quanteneffizienz des gesamten Zählers: ca. 40%, [33]). Die an der Photokathode ausgelösten Photoelektronen sind in erster Näherung poissonverteilt, da die Auslösewahrscheinlichkeit für ein einzelnes Photoelektron sehr gering ist [34]. Somit ist der mittlere Fehler der Einzelmessung, die Standardabweichung, gegeben durch die Wurzel aus dem Mittelwert der gemessenen Werte [35, S. 394]. Bezogen auf den Mittelwert \bar{N} ist die prozentuale Standardabweichung proportional zu $1/\sqrt{\bar{N}}$. Der relative Fehler einer Messung ist um so kleiner, je grösser der Mittelwert ist. Das Rauschen des Zählers hat folgende Ursachen [34, S. 184]:

- Thermisches Rauschen von Kathode und Dynoden
- Kriechströme
- Radioaktive Kontamination im Szintillationskristall oder im Photomultipliergehäuse
- Ionisierungsphänomene
- Eindringendes Streulicht

Den Hauptbeitrag liefert thermisches Rauschen, wobei die geringe Höhe des Dunkelstromes zu kleinen Spannungen im Analysator führt. Durch die mittige Lage der charakteristischen Strahlung im Analysator wird das Rauschen weitgehend ausgeblendet (siehe Abb. 4.3, rechts).

4.1.4 Streufolie zur simultanen Erfassung von Refraktions- und Absorptionssignal

Zur korrekten Interpretation des Refraktionssignals muss die Absorptionsfähigkeit der Probe bekannt sein (siehe Kapitel 5). Wegen des kleinen Streuwinkels (einige Bogenminuten) können beide Eigenschaften simultan nur mit Hilfe einer Streufolie erfasst werden. Verglichen mit der sequentiellen Messung beider Größen ist die Gesamtmesszeit entsprechend kürzer. Bei der Auswahl der Streufolie sind folgende Punkte zu beachten:

1. Die Absorption der Folie für die genutzte Wellenlänge muss vernachlässigbar sein. Je nach Lage im Strahl kann die durchstrahlte Dicke mehrere Millimeter betragen und somit beide Signale schwächen.
2. Die Absorptionsverhältnisse eines rein absorbierenden Metallkeiles müssen im Refraktionskanal und im Absorptionskanal genau gleich wiedergegeben werden, da sich ansonsten die Formel zur Berechnung des Refraktionswertes (siehe Kapitel 5) nicht anwenden lässt.

Dünne Metallfolien sind bedingt durch ihre hohe Absorption ungeeignet. Unbeschichtete Polymerfolie aus PET (Polyethylenterephthalat) hat sich als das am besten geeignete Material herausgestellt³ (zu 1.). Der Weitwinkelreflex der amorphen Phase des PET (Winkelbereich : 5-35° für 2θ , d.h. ab einem Winkel von 2,5° zwischen Primärstrahl und Streufolie gibt es Weitwinkelstreuung [36]), lenkt die Intensität des Primärstrahles in den Szintillationszähler um. Somit sinkt die vom Absorptionsdetektor detektierte Intensität, je weiter der Reflex aus seinem Erfassungsbereich wandert (siehe Abbildung 4.4). Den korrekten Winkel zwischen Strahl und Folie erhält man, wenn der auf dem Primärstrahl gemessene lineare Absorptionskoeffizient (Lambert-Beer'sches Gesetz, siehe Gleichung 5.6) mit dem über die Folie gemessenen Wert übereinstimmt. Für den Fall der PET-Folie ist dies bei ca. 5° erfüllt.

³Eigene Versuche und Kommunikation mit Arbeitsgruppe Prof. Hentschel

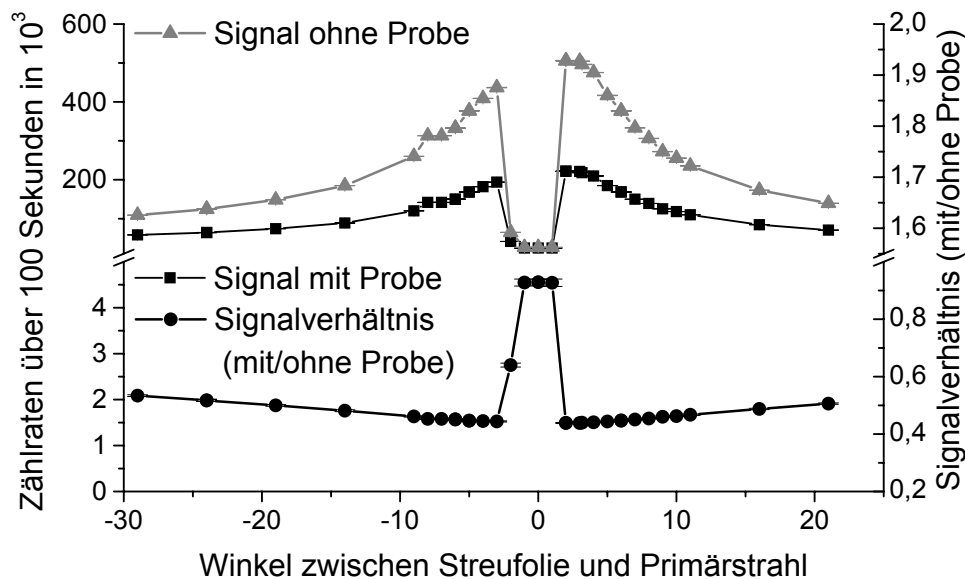


Abbildung 4.4: Vom Absorptionszähler gemessene Zählraten in Abhängigkeit vom Winkel zwischen Streufolie und Röntgenstrahl.

4.1.5 Streuwinkelverstellung

Um die Apparatur an die Brechkraft verschiedener Materialien anzupassen, muss der Winkel, unter dem die Refraktion gemessen wird, angepasst werden. An die Verstelleinrichtung sind folgende, aus der experimentellen Erfahrung hervorgegangene, Anforderungen zu stellen:

- Reproduzierbarkeit, ermöglicht durch mechanische, thermische und elektrische Stabilität.
- Parallelität der Kanten des zur Ausblendung verwendeten Spaltes oder Blocks zum Hauptstrahl.
- Streuwinkel kontinuierlich verstellbar, ohne das thermische Gleichgewicht der Kammer zu stören.

Die modifizierte Kratky-Kamera der Firma Ekenhorst ermöglicht eine Variation des Streuwinkels nur über den Austausch des fest montierten Beamblocks⁴. Bei vier mitgelieferten Blöcken und zwei Befestigungsmöglichkeiten sind acht unterschiedliche Streuwinkel einstellbar (Abbildung 4.5, Links). Um die Stabilität als großen Vorteil dieser räumlich fixen Anordnung zu erhalten, wurde eine Variation des Streuwinkels durch Unterlegen dünner Metallfolien untersucht. Das sich ausbildende Luftpolster zwischen

⁴Metallblock am Ende der Kamera. Er schützt den Refraktionszähler vor der hohen Intensität des Hauptstrahles.

Metallblock und Folie sowie das Einknicken der Folien beim Gebrauch verhindern eine akzeptable Reproduzierbarkeit der Streuwinkelseinstellung. Eine bessere Reproduzierbarkeit ergab sich mit der Verstellung eines Metallblocks auf einem Verschiebetisch. Er wurde an das Ende der Kratky-Kamera montiert, um deren thermisch bedingten Höhenänderungen zu folgen. Eine auf dem Metallblock aufgesetzte Messuhr erlaubt eine präzisere Einstellung des Streuwinkels (Abbildung 4.5, Mitte). Um den Streuwinkel mit bestmöglichem Kontrast für jedes Material einzustellen, muss er kontinuierlich verändert werden. Da der gesamte Versuchsaufbau temperaturempfindlich ist (siehe Kapitel 4.2.2), muss dieser Vorgang automatisiert ablaufen. Der neu motorisierte Höhentrieb einer Kratky-Kamera sowie ein in der Höhe einstellbarer Detektorspalt erlauben ein automatisiertes und genaues Arbeiten mit dem Aufbau (Abbildung 4.5, rechts; Genauigkeit der Höhenverstellung: $\pm 1 \mu\text{m}$, Wiederholgenauigkeit: $\pm 1 \mu\text{m}$). Leider kann die vorhandene Spindel des Höhentriebes nicht Spalt und Detektor gemeinsam bewegen. Dies hätte den Vorteil, dass immer derselbe Bereich des Szintillationszählers beleuchtet wird. Die flächige Empfindlichkeit des Zählers im beleuchteten Bereich ist homogen, so daß dieser Punkt nicht weiter berücksichtigt wird. Die zuletzt vorgestellte Anordnung wird für alle in Kapitel 6 vorgestellten Messungen benutzt. Sie erfüllt alle am Anfang des Kapitels gestellten Forderungen. Zudem bietet nur der Spalt der Original-Kratky-Kamera eine Verstellmöglichkeit, um Spalt und Hauptstrahl aufeinander auszurichten.

4.1.6 Auswertesoftware

Zur generellen Auswertung der gemessenen Daten wird eine kommerzielle Software der Firma SPECS[®] genutzt. Sie ermöglicht eine grafische Darstellung der Bilder, das Betrachten einzelner Schnitte sowie die Berechnung des Refraktionswertes. Ebenso sind skalare Bildmanipulationen und Bildverrechnungen möglich. Auch eine Korrektur der Messdaten bei zeitlicher Änderung der Nullzählraten ist implementiert.

Neben der kommerziellen Software wurden an Spezialfälle angepasste selbst entwickelte Programme zur verfeinerten Auswertung der Daten eingesetzt.

4.2 Externe Einflussgrößen

Bei Aufbau und Betrieb der Anlage zeigten sich einige Probleme. Besonders schwerwiegend im Hinblick auf Störeinfluß und Behebbarkeit des Problems sind Signalschwankungen. Da Messserien durchaus einen Monat oder länger dauern können, wurden Techniken entwickelt, die einen hinreichend konstanten Betrieb über diese Zeiträume sicherstellen. Dazu zählt unter anderem das Arbeiten mit Referenzproben, auf welches in Kapitel 5 eingegangen wird.

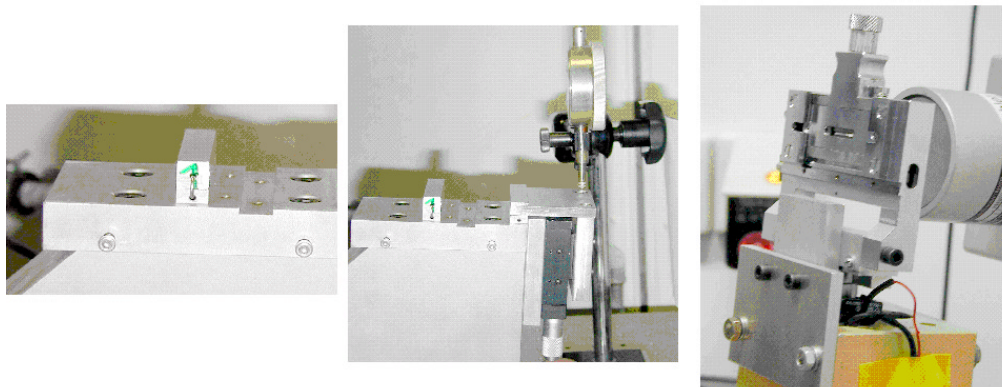


Abbildung 4.5: Verschiedene Einstellmöglichkeiten des Streuwinkels: Links: Gerät von Firma Ekenhorst; Mitte: Eigenbau mit Lineartisch; Rechts: Modifizierte Kratky-Höhenverstellung mit Detektorspalt.

Als Ursache für Schwankungen kommen folgende Einflussgrößen in Frage:

- Schwankung der Elektronik insbesondere durch thermische Einflüsse.
- Anlagenbedingte Einflussgrößen:
 - Thermische Schwankungen infolge eines zu schwachen Kühlsystems.
 - Thermische Schwankungen hervorgerufen durch den Röhrenhaubenshutter.
 - Ein- und Ausschaltverhalten der ganzen Anlage.
- Veränderungen der Streuwinkeleinstellung.
- Klimabedingungen im Röntgenraum.

Alle Punkte wurden jeweils separat untersucht. Dabei zeigte sich, daß die im folgenden erwähnten Größen dominieren.

4.2.1 Röntgenapparat

Abbildung 4.6 zeigt das Einlaufverhalten der Röntgenröhre. Deutlich sind in beiden Kanälen Änderungen der Zählraten über der Zeit zu erkennen. Nach Ablauf von ca. zehn Stunden haben sich die Zählraten in beiden Kanälen stabilisiert, und es können Messungen durchgeführt werden. Bedingt durch diese lange Einlaufzeit ist es empfehlenswert, die Anlage kontinuierlich zu betreiben. Öffnen und Schließen des Röhrenhaubenshutters beeinflussen ebenfalls die Zählrate. Dies lässt sich über die Wärmeentwicklung des Elektromagneten erklären, der zum Öffnen des Shutters betrieben wird: Die entstehende

Wärme führt zu einer Längenänderung der Röhrenhaube und somit in der Ausleuchtung der Kratkykammer zu einer Veränderung, welche sich als zeitliche Schwankung der Zählrate bemerkbar macht. Erst nach einer Schutterschließzeit von ca. fünf Minuten ist eine Veränderung zur vorherigen Zählrate messbar.

4.2.2 Temperatur und Feuchte

Um den Einfluss von Temperatur und Feuchte des Röntgenraumes auf die Messung zu bewerten, wurde der Raum kurzfristig erwärmt. Als dominierende Einflussgröße wurde die Temperatur vermutet, da eine Temperaturänderung des Raumes eine Längenänderung der Röhrenhaube bewirkt. Diese Längenänderung verschiebt den Fokus der Röhre vertikal und führt somit zu einer veränderten Ausleuchtung des Kratky-Kollimationssystems. Wie erwartet bewirkte die kurze Aufheizung des Raumes eine massive Änderung der Zählrate (Abbildung 4.8). Langzeitbeobachtungen zeigten, dass die Feuchte keinen Einfluss auf das Messsignal hat (Abbildung 4.7). Eine Klimaanlage sollte die Temperaturschwankungen des Röntgenraumes kompensieren. Leider korrigiert die Anlage einen Temperaturanstieg durch starkes Einblasen kalter Luft. Trotz Abschottung und Verändern der Ventilatoreinstellungen macht sich dies im Messsignal bemerkbar (Abbildung 4.9). Somit musste auf den Betrieb der Klimaanlage verzichtet werden. Da die Raumtemperatur wegen im Boden verlegter Heizungsrohre bei ca. 24-26°C liegt, wurde der Röntgenraum weitestgehend vom umgebenden Laborraum isoliert (Fenster auf der Aussenseite mit schwarzem Karton verklebt, damit das Rauminnere nicht durch Lichtabsorption erwärmt wird; Undichtigkeiten beseitigt; kein Deckenlicht). Diese Maßnahmen schafften letztendlich die zum konstanten Betrieb nötigen Bedingungen.

4.2.3 Verbesserungspotential der Anlage

Die hier vorgestellten Verbesserungsmassnahmen stammen aus der experimentellen Erfahrung, sie ermöglichen die Reduzierung der oben diskutierten Probleme.

Die Apparatur ist also sehr empfindlich gegen Temperaturschwankungen. Um der sich ändernden Ausleuchtung des Eintrittsspalt entgegenzuwirken, muss die Kamera an die Röhrenhaube mechanisch angekoppelt sein. Diese Idee ist bei den neueren Kratky-Kameras bereits realisiert [4].

Die Einstellung des Streuwinkels ist bei diesem Eigenbau über ein neu motorisiertes Schrittschaltwerk gelöst. Die Verschiebevorrichtung und somit auch der Detektorspalt sind mechanisch nicht mit der Kamera verbunden, so dass es zu einer thermisch bedingten Verschiebung beider Komponenten kommen kann. Somit wird bei Mehrfachmessungen nicht immer in denselben Raumwinkelarealen gemessen. Eine Nachjustage ist notwendig. Eine Kopplung zwischen Detektorspaltverschiebung und Kratky-Kamera

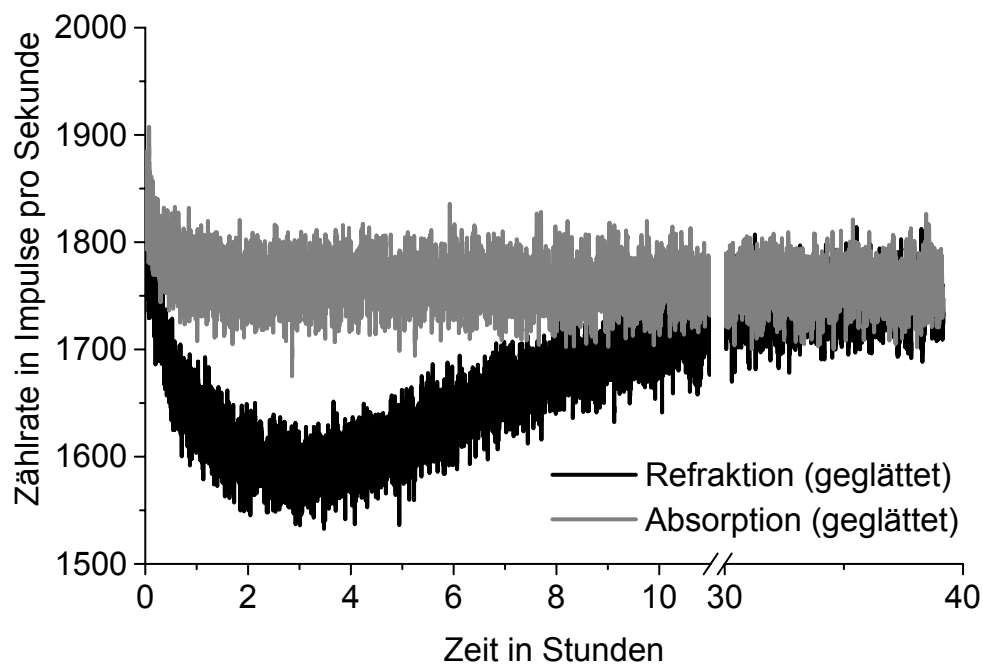


Abbildung 4.6: Einlaufen der Röntgenröhre.

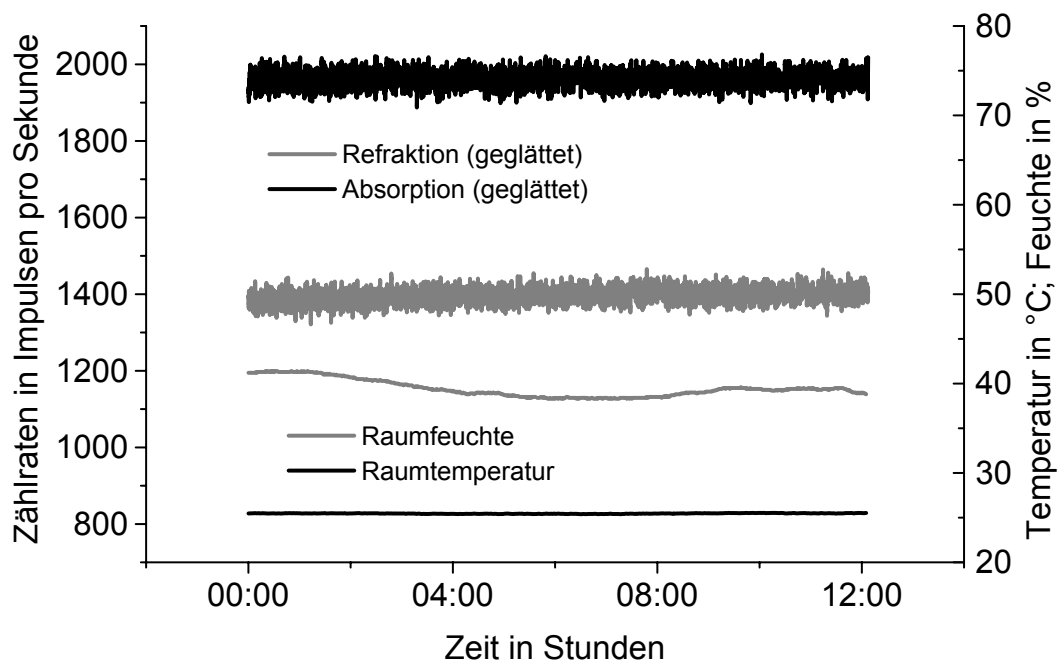


Abbildung 4.7: Einfluß der Feuchte auf die Zählrate (Zählrate im Rahmen der Fehler konstant!).

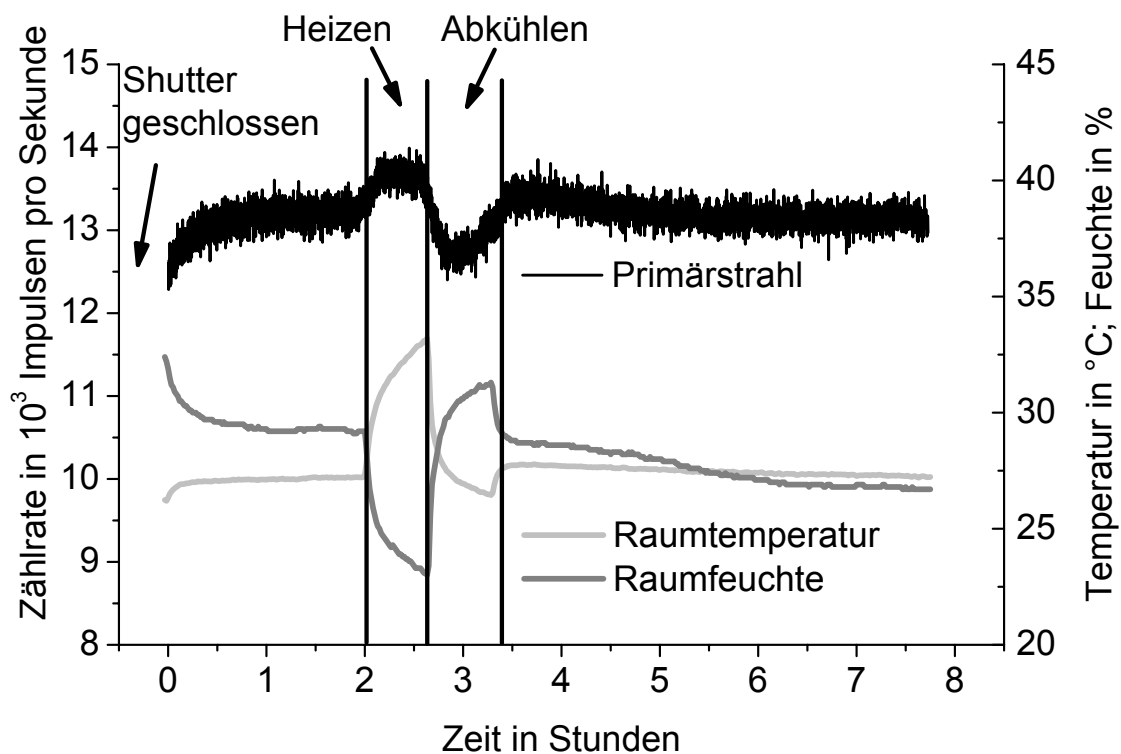


Abbildung 4.8: Einfluss der Temperatur auf die Zählrate.

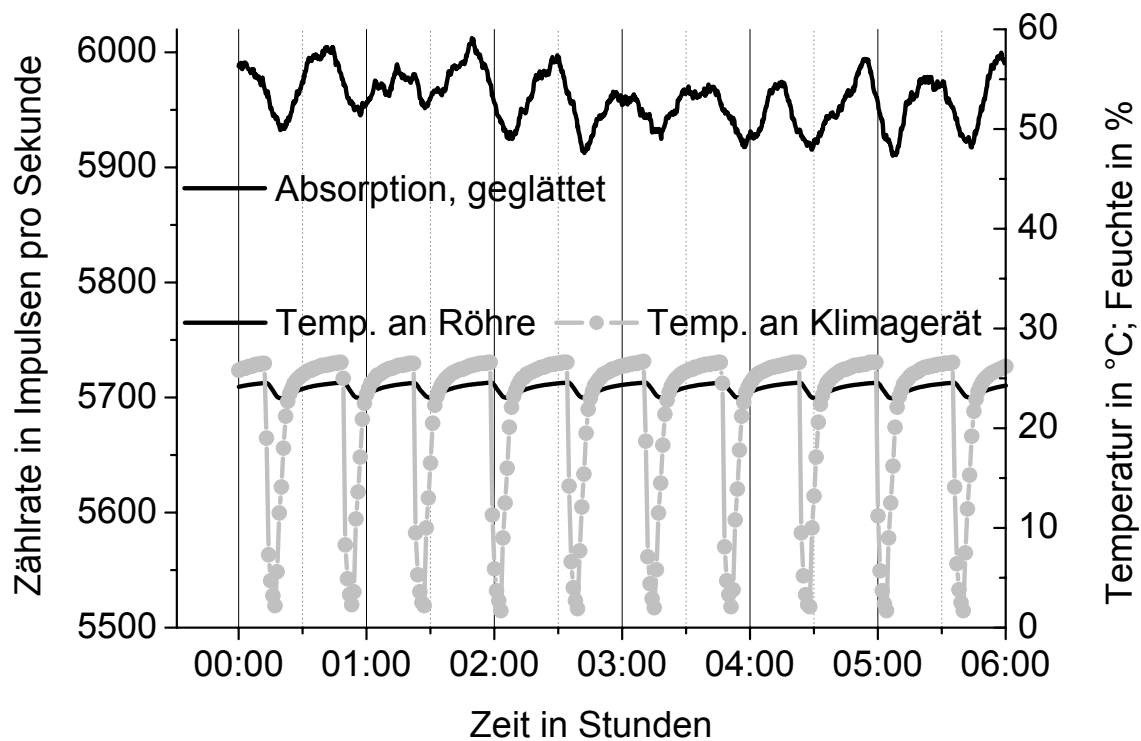


Abbildung 4.9: Einfluss der Klimaanlage auf die Konstanz der Zählrate. Die Zählrate folgt den Schwankungen der Raumtemperatur.

verbessert die Aussagesicherheit.

Da der Szintillationszähler bei der Messung nicht mitbewegt wird, beleuchtet der Messspalt verschiedene Bereiche des Detektors, die zudem unterschiedlich empfindlich auf Strahlung reagieren können. Eine zusätzliche getrennte Verschiebung des Szintillationszählers bzw. die gemeinsame Verschiebung von Detektorspalt und Szintillationszähler lösen das Problem⁵.

Eine reine Leistungssteigerung und somit eine Verringerung der Messzeit ist durch die horizontale Lage der Röntgenröhre zu erreichen. Dadurch verdoppelt sich die bestrahlte Fläche des Eintrittsspalt (s. Kapitel 4.1.1).

⁵der zum Streuwinkelscan verwendete Szintillationszähler dieser Apparatur wurde im relevanten Bereich untersucht. Er weist eine homogene Empfindlichkeit auf.

5 Ablauf einer Messung

Dieses Kapitel behandelt die Gesichtspunkte, auf die es bei der Durchführung von Messungen ankommt. Nach der Diskussion über den besten Detektorort für die refraktierte Strahlung werden die zur Auswertung benötigten Formeln zusammengestellt. Der zweite Teil dieses Kapitels stellt die Messmöglichkeiten mit der vorhandenen Apparatur vor.

5.1 Mögliche Detektororte für Refraktionsmessungen

Die Ablenkung von Strahlung bedingt durch Fasergeometrie und Brechungsindexdifferenz zeigt Abbildung 5.1 am anschaulichen Beispiel der Brechung von sichtbarem Licht an einer Glasfaser. Von der Strahlmitte aus erfolgt die Brechung in einen Raumwinkelbereich über und unter der Faser. Die gebrochene Strahlung ist also als zusätzliche Intensität auf einem Streuwinkel messbar.

Alternativ dazu bietet sich die indirekte und integrale Bestimmung der abgelenkten Intensität auf dem Hauptstrahl an. In Abbildung 5.2 sind die Intensitäten mit und ohne Probe dargestellt. Der Signalhub entsteht allein durch Brechung, da für die Intensität mit Probe die Absorption herausgerechnet wurde. Im Zentrum des Röntgenstrahles fehlt diese Intensität, die Zählratenabnahme im Zentrum ist daher ein Maß für die integrale Streuung. Die Asymmetrie in der Winkelabhängigkeit der Zählraten wird durch die Kratky-Kamera verursacht. Die Streuwinkelmessung erfolgt im Gebiet mit geringerer Untergrundstrahlung ab ca. 2 Bogenminuten. In den folgenden Unterkapiteln werden die Messvorschriften für beide Messorte hergeleitet. Dabei wird diskutiert, welcher Messwinkel das beste Signal-zu-Rauschverhältnis liefert.

5.1.1 Messung auf einem Streuwinkel

Verglichen mit einer Messung ohne Probe im Strahlengang, entsteht durch die Ablenkung von Strahlung an Grenzflächen in einer Probe eine Zusatzintensität $I_R^*(\Theta)$ auf einem Streuwinkel Θ . Dieses Signal beinhaltet Informationen über die Stärke der Brechung und somit über die Materialeigenschaften der Grenzfläche. Für die folgende Herleitung ([14] und [30]) wird der Streuwinkel Θ als konstant angenommen.

Zur korrekten Erfassung der Zusatzintensität $I_R^*(\Theta)$ muss berücksichtigt werden, dass

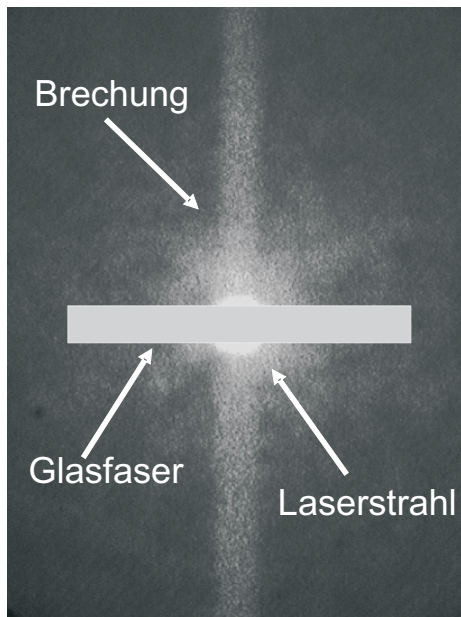


Abbildung 5.1: Refraktionsmuster einer zylindrischen Glasfaser (\varnothing : $80\ \mu\text{m}$) im Laserlicht (Leuchtschirm in Strahlrichtung gesehen).

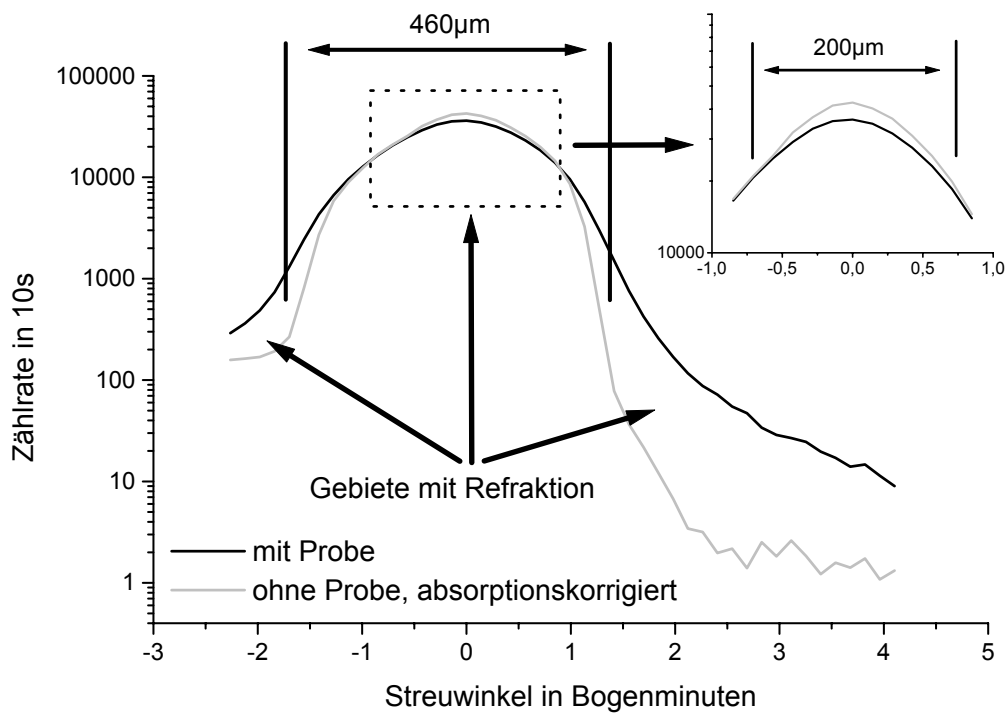


Abbildung 5.2: Streuwinkelabhängige Zählrate bei Beleuchtung einer Keramikprobe mit Röntgenstrahlung. Die Asymmetrie in der Zählrate für Streuwinkel ab ± 1 Bogenminute ist auf die asymmetrische Kratky-Kollimation zurückzuführen.

der Streuuntergrund $I_{R,0}(\Theta)$ der Kamera dem Messsignal $I_R(\Theta)$ überlagert ist. Der Untergrund $I_{R,0}(\Theta)$ entsteht z.B. durch Streuung an den Kanten der Kratky-Kollimation und an Luftmolekülen im Strahlengang. Auf dieser Basis gilt für die Streuintensität:

$$I_R^*(\Theta) = I_R(\Theta) - I_{R,0}(\Theta). \quad (5.1)$$

Bereits in Kapitel (3.4) wurde die Zusatzintensität für Brechung an Poren (Gleichung (3.25)) hergeleitet, so daß zusammenfassend folgt:

$$I_R^*(\Theta) = I_R(\Theta) - I_{R,0}(\Theta) = I_{R,0} \cdot N \cdot \pi \cdot R^2 \cdot \frac{16 \cdot \delta^2}{\Theta^4}. \quad (5.2)$$

Da der Brechungsindex innerhalb des bestrahlten Volumens V konstant ist, gibt es eine Proportionalität zwischen $I_R^*(\Theta)$ und der inneren Oberfläche O der streuenden Körper für dieses Volumen. Das durchstrahlte Probenvolumen V ist dabei proportional zur Durchstrahlungslänge d der Probe: $V = k_1 \cdot d$. Der gesamte Querschnitt der streuenden Objekte ist proportional zu deren Oberfläche O : $N \cdot \pi \cdot R^2 = \mathfrak{S} \cdot O$. Der Formfaktor \mathfrak{S} passt den Streuquerschnitt an die Oberflächengeometrie der streuenden Körper an. Für Kugeln gilt $\mathfrak{S}=4$, für schlanke Zylinder ist $\mathfrak{S} = \pi$. Um eine allgemeinere Größe zur Charakterisierung der Proben zu erhalten, wird anstelle der inneren Oberfläche O die Innere Oberflächendichte $\xi = \frac{O}{V}$ gewählt. Es ergibt sich somit:

$$N \cdot \pi \cdot R^2 = \mathfrak{S} \cdot k_1 \cdot d \cdot \xi \quad (5.3)$$

Da die Messung auf einem fest eingestellten Streuwinkel durchgeführt wird und der Brechungsindex sich nicht ändert, kann der winkelabhängige Term in Gleichung (5.2) als Konstante betrachtet werden:

$$k_2 = \frac{16 \cdot \delta^2}{\Theta^4}. \quad (5.4)$$

Die Abhängigkeit aller Größen vom Streuwinkel Θ wird daher im folgenden vernachlässigt. Mit Hilfe dieser Substitutionen ergeben sich folgende Änderungen in Gleichung (5.2):

$$I_R^* = I_{R,0} \cdot \mathfrak{S} \cdot k_1 \cdot d \cdot \zeta \cdot k_2 = I_R - I_{R,0} \quad (5.5)$$

Befindet sich eine Probe im Strahl, so wird $I_{R,0}$ in der Probe durch Absorption zusätzlich geschwächt. Der Messwert I_R unterliegt bereits der Probenabsorption und braucht nicht mehr angepasst zu werden. Die Absorptionseigenschaften der Probe können über eine Messung auf dem Hauptstrahl gewonnen werden. Nach dem Beer'schen Absorptionsgesetz erfolgt die Schwächung der Primärstrahlintensität I_0 exponentiell mit der Dicke. Der lineare Absorptionskoeffizient μ_L und die Probendicke d sind ein Maß für die Dämpfung:

$$I_A = I_0 e^{-\mu_L d}. \quad (5.6)$$

Somit folgt für $I_{R,0}$:

$$I_{R,0} \xrightarrow{\text{Absorption}} I_{R,0} \cdot e^{-\mu_L d} = I_{R,0} \cdot \frac{I_A}{I_0} \quad (5.7)$$

Alle bisher aufgetretenen Konstanten lassen sich zu einer Apparatekonstanten $k = \mathfrak{S} \cdot k_1 \cdot k_2$ zusammenfassen. Diese gilt nur bei unverändertem Streuwinkel Θ und ermöglicht somit die Einführung eines Refraktionswertes

$$C = k \cdot \xi, \quad (5.8)$$

welcher sich messtechnisch leicht bestimmen lässt:

$$C = \frac{1}{d} \left[\frac{I_R/I_{R,0}}{I_A/I_0} - 1 \right] \quad (5.9)$$

Zur Bestimmung des Refraktionswertes C sind alle vier Größen nacheinander zu erfassen. Da nur Intensitätsverhältnisse in die Bestimmung des Refraktionswertes einfließen, können die Zählraten mit Hilfe einer Streufolie gemessen werden (siehe Abbildung 5.3), um die Messzeit zu verkürzen. Die so gewonnenen Intensitäten sind proportional zu den Ursprungsgrößen (siehe Kapitel 4.1.4). Die Streufolie ermöglicht somit eine simultane Messung aller benötigten Größen. Die Gleichung zur Bestimmung des Refraktionswertes C lautet also:

$$C = \frac{1}{d} \left[\frac{I_{Ref}/I_{Ref,0}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} - 1 \right] \quad (5.10)$$

mit

I_{Ref}	Messsignal MIT Probe im Refraktionskanal; über Streufolie
$I_{Ref,0}$	Messsignal OHNE Probe im Refraktionskanal; über Streufolie
I_{Abs}	Messsignal MIT Probe im Absorptionskanal; über Streufolie
$I_{Abs,0}$	Messsignal OHNE Probe im Absorptionskanal; über Streufolie

Der Wertebereich von C erstreckt sich von 0 bis ∞ (s. Anhang 8.1). Um aus dem relativen Refraktionswert C die absolute Größe einer inneren Oberflächendichte ξ zu bestimmen, muss die Apparatekonstante k über eine Kalibrierung an einer Probe ermittelt werden, deren innere Oberflächendichte bekannt ist. Im Falle von Faserverbundwerkstoffen eignen sich Faserrovings. Für Keramiken benutzt man Schüttungen monodisperser Pulver oder Referenzkeramiken, welche sich mit Hilfe der Quecksilberhochdruckporosimetrie vermessen lassen.

5.1.2 Messung auf dem Primärstrahl

Das Hauptproblem der Refraktionsmessungen auf einem Streuwinkel ist die geringe Zählrate und dadurch bedingt eine lange Messzeit. Eventuelle thermische Schwankungen im Versuchsaufbau bewirken Signaländerungen in den Messungen, und eine Wiederholung der Messung wird notwendig. Ein Ausweg ist die Erfassung des Refraktionsphänomens

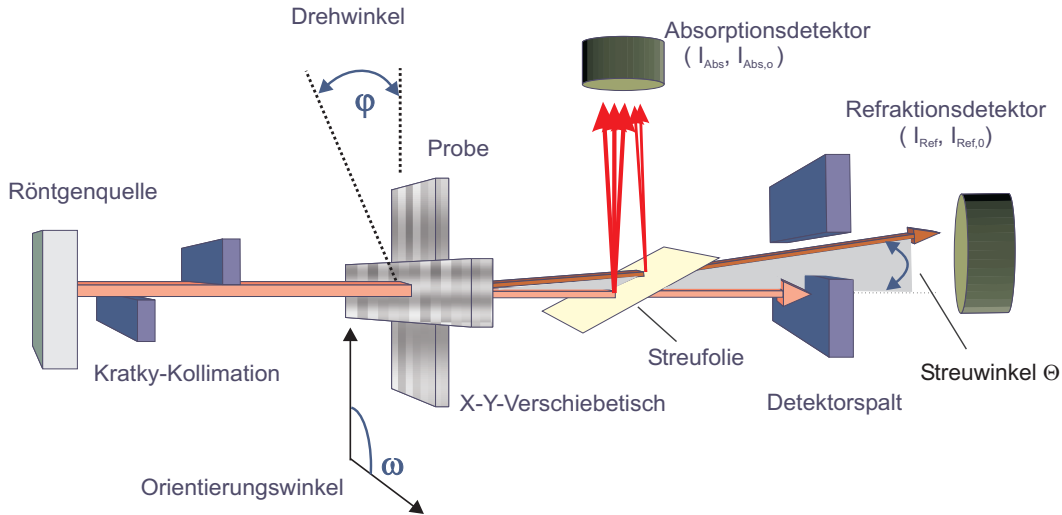


Abbildung 5.3: Versuchsaufbau für Messungen mit Röntgenrefraktionsverfahren.

direkt auf dem Hauptstrahl. Hier steht soviel Strahlung zur Verfügung, dass Messzeiten im Bereich von zehntel Sekunden möglich sind. Zudem ist die Intensität der insgesamt abgestreuten Strahlung nutzbar und nicht nur wie bisher die selektiv unter einem Streuwinkel erfasste deutlich geringere Intensität. Um den Refraktionszähler nicht zu zerstören, muß der Hauptstrahl mit Hilfe von Blenden auf ca. 1mm horizontal begrenzt werden, entsprechend auch der Detektorspalt.

Im Primärstrahl zeigt sich der Brechungseffekt durch eine Intensitätsabnahme (s. oben Abbildung 5.2), die praktisch dem Integral der refraktierten Strahlung entspricht. Auf dieser Basis ist die refraktierte integrale Intensität auf dem Primärstrahl $I_{R,HS}^*$ die Differenz zwischen der Primärstrahlintensität ohne ($I_{R,0}^{HS}$) und mit Probe (I_R^{HS}),

$$I_{R,HS}^* = I_{R,0}^{HS} - I_R^{HS}. \quad (5.11)$$

Äquivalent zu dieser Beschreibung muß sich diese Intensität ergeben, wenn über die gesamte durch N Fasern oder Poren gestreute Intensität (siehe Gleichungen 3.24 bzw. 3.25) integriert wird:

$$I_{R,HS}^* = \int_{\alpha_0 \approx 0}^{\Theta_C} I^{Poren}(\Theta) d\Theta = I_{R,0}^{HS} \cdot N\pi R^2 \cdot 16\varepsilon^2 \int_{\alpha_0 \approx 0}^{\Theta_C} \Theta^{-4} d\Theta = I_{R,0}^{HS} \cdot N\pi R^2 \cdot k_3 \quad (5.12)$$

mit $k_3 = 16/3 \cdot \varepsilon^2 [\alpha_0^{-3} - \Theta_C^{-3}] = const.$

Somit ergibt sich für die refraktierte Intensität auf dem Hauptstrahl unter Ausnutzung der in Kapitel 5.1.1 eingeführten Konstanten

$$I_{R,HS}^* = I_{R,0}^{HS} - I_R^{HS} = I_{R,0}^{HS} \cdot \underbrace{\mathfrak{S} \cdot k_1 \cdot d \cdot \xi}_{N\pi R^2} \cdot k_3 = I_{R,0}^{HS} \cdot m \cdot d \cdot \xi \quad (5.13)$$

mit $m = \mathfrak{S} \cdot k_1 \cdot k_3 = \text{const.}$

Auch hier ist zu berücksichtigen, dass I_R^{HS} bereits die Absorption durch die Probe beinhaltet. Somit folgt für $I_{R,0}^{HS}$:

$$I_{R,0}^{HS} \xrightarrow{\text{Absorption}} I_{R,0}^{HS} \cdot e^{-\mu_L d} = I_{R,0}^{HS} \cdot \frac{I_A}{I_0}. \quad (5.14)$$

Für den Refraktionswert $H = m \cdot \xi$ ergibt sich:

$$H = \frac{1}{d} \left\{ 1 - \frac{I_R^{HS} / I_{R,0}^{HS}}{I_A / I_0} \right\}. \quad (5.15)$$

Da auch hier der zweite Szintillationszähler zur indirekten Bestimmung der Zählraten auf dem Primärstrahl genutzt werden soll, folgt die Bestimmungsgleichung:

$$H = \frac{1}{d} \left\{ 1 - \frac{I_R^{HS} / I_{R,0}^{HS}}{I_{Abs} / I_{Abs,0}} \right\}. \quad (5.16)$$

Die Funktion kann Werte zwischen 0 und 1 annehmen (s. Anhang 8.1). Im Gegensatz zur Messung auf einem Streuwinkel ist der dynamische Bereich stark eingeschränkt, denn der Referenzwert ist nicht Null, sondern die transmittierte Intensität. Ein Vorteil dieser Messart besteht jedoch darin, daß der gemessene Refraktionswert unabhängig vom Streuwinkel ist. Die Apparatekonstante m kann somit direkt ermittelt werden, und im Gegensatz zur Messung auf einem Streuwinkel ist ein direkter Vergleich unterschiedlich streuender Körper möglich.

5.1.3 Vergleich beider Messverfahren

Um das Potential beider Messverfahren zu vergleichen, wurde das Signal-zu-Rauschverhältnis (S/N) mithilfe einer Referenzkeramik ermittelt. Da bei beiden Verfahren die Höhe des Detektorspaltes die Zählrate beeinflusst, wurde auch diese Höhe in die Untersuchung einbezogen. Um S/N vergleichen zu können, wurde die Breite des Röntgenstrahls so weit reduziert, dass bei offenem Detektorspalt auf dem Primärstrahl (und somit auch auf einem Streuwinkel) Messungen möglich waren. Für die Messungen auf dem Primärstrahl wurde S/N in Strahlmitte ausgewertet. Bei den Messungen auf dem Streuwinkel wurde das Maximum von S/N benutzt. Folgende Formeln lagen der Auswertung zugrunde: Refraktion auf dem Primärstrahl:

$$\text{Signal} : I_{R,0}^{HS} \cdot e^{-\mu_L d} - I_R^{HS} = I_{R,0}^{HS} \cdot \frac{I_A}{I_0} - I_R^{HS} \quad (5.17)$$

$$\text{Noise} : \frac{I_A}{I_0} \Delta I_{R,0}^{HS} + \frac{I_{R,0}^{HS}}{I_0} \Delta I_A + I_{R,0}^{HS} \cdot \frac{I_A}{I_0^2} \Delta I_0 + \Delta I_R^{HS} \quad (5.18)$$

Refraktion auf dem Streuwinkel:

$$\text{Signal} : I_R(\Theta) - I_{R,0}(\Theta) \cdot e^{-\mu_L d} = I_R(\Theta) - I_{R,0}(\Theta) \cdot \frac{I_A}{I_0} \quad (5.19)$$

$$\text{Noise} : \frac{I_A}{I_0} \Delta I_{R,0} + \frac{I_{R,0}}{I_0} \Delta I_A + I_{R,0} \cdot \frac{I_A}{I_0^2} \Delta I_0 + \Delta I_R \quad (5.20)$$

Bei allen Messungen wurde die Nullzählrate des Szintillationszählers (hier: Zählereignisse hervorgerufen z.B. durch kosmische Strahlung oder Detektorrauschen) abgezogen. Für Messungen auf dem Primärstrahl nimmt S/N mit zunehmender Detektorspalthöhe ab (s. Abb. 5.4), weil Brechung nur in einem Bereich von ca. 200 μm des Hauptstrahles stattfindet (Strahlbreite: ca. 400 μm ; siehe Abbildung 5.2). Daher ist S/N des Refraktionsignals ab einer Detektorspalthöhe von 500 μm Null. Die Abnahme von S/N erklärt sich über das starke Anwachsen der Zählraten und deren Fehler (\sqrt{N}) mit wachsender Detektorspaltgrösse. Bei Messungen auf dem Streuwinkel ist S/N generell um den Faktor 10 grösser als bei Messungen in der Mitte des Strahls, da die Zählraten und deren Standardabweichung kleiner sind. In Abbildung 5.5 ist dies für einen Detektorspalt von 100 μm dargestellt. Obwohl das Signal auf dem Primärstrahl deutlich höher ist als für die Streuwinkelmessung, verhindert das stärkere Rauschen der hohen Zählraten auf dem Primärstrahl zusammen mit der relativ geringen Signaländerung auf dem Hauptstrahl (12%) ein besseres Signal/Rausch-Verhältnis.

Fazit dieses Vergleiches ist, dass Messungen auf dem Primärstrahl prinzipiell möglich sind. Der Wert der Idee, die insgesamt refraktierte Strahlung direkt auf dem Primärstrahl zu messen, wird dadurch reduziert, dass die hohen Zählraten und deren Fehler eine genaue Erfassung verhindern. Das Signal/Rausch-Verhältnis und der kleine Wertebereich des Refraktionswertes H sind aber für aussagekräftige Schadenscharakterisierungen zu klein. Darum wurden alle in Kapitel 6 vorgestellten Messungen auf einem Streuwinkel durchgeführt.

5.2 Messmöglichkeiten mit der Refraktions-Apparatur

5.2.1 Simultanes oder sequentielles Messen

Wie bereits die obige Herleitung der Refraktionswerte zeigt, können diese mit zwei aufeinanderfolgenden einkanaligen Messungen mit demselben Szintillationszähler bestimmt werden. Einfacher ist es jedoch, beide Eigenschaften der Probe zweikanalig und somit simultan zu erfassen.

Ist die Absorption der Probe sehr hoch, empfiehlt sich das Arbeiten mit nur einem Zähler, da hierbei keine Verluste durch die Streufolie im Refraktionskanal entstehen. Die

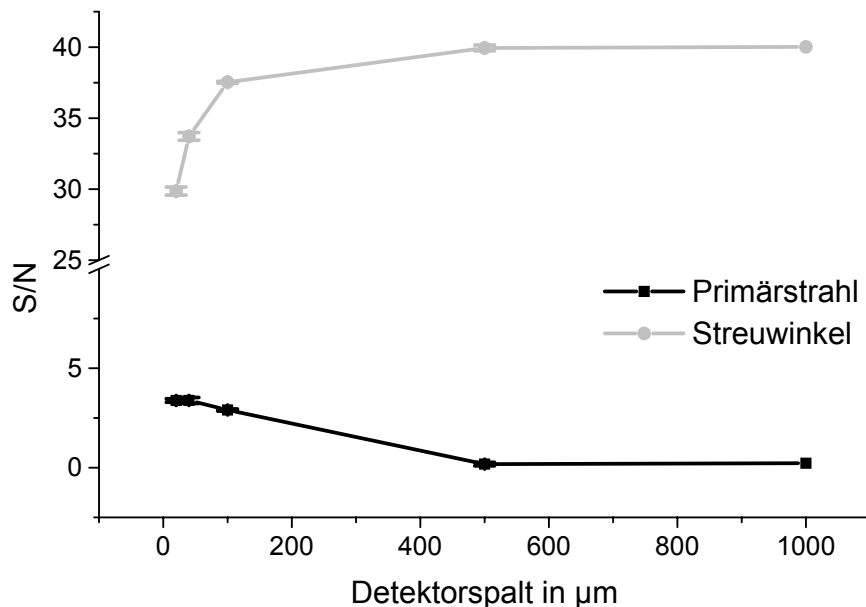


Abbildung 5.4: Signal zu Rauschverhältnis (S/N) für beide Refraktionsmethoden.

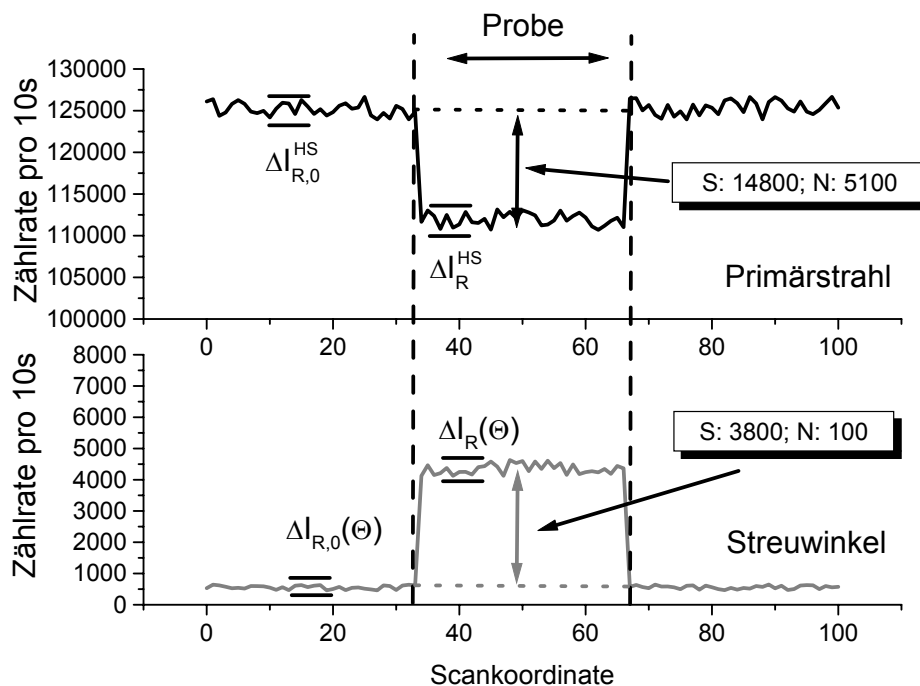


Abbildung 5.5: Darstellung der Zählraten bei der Refraktion für einen Detektorspalt von $100\ \mu\text{m}$. Oben: Primärstrahl; unten: Streuwinkel. Da die Fehler der Zählraten mit ihrer Wurzel skalieren, sind die Fehler bei Messungen auf dem Hauptstrahl grösser. Das Signal auf dem Primärstrahl ist höher. Das starke Rauschen der hohen Zählraten resultiert in einem besseren S/N für Messungen auf dem Streuwinkel.

Zählraten für die Absorption werden direkt auf dem Primärstrahl gemessen. Der Detektorspalt schützt dabei den Zähler vor zu hoher Intensität. Somit ist er bis an das technisch mögliche Limit belastbar. Allerdings muss der Streuwinkel zur Messung der Absorption verstellt werden. Für Wiederholungsmessungen ist daher der Einsatz von Referenzproben (siehe Kapitel 5.2.5) unumgänglich. Ein weiterer Nachteil ist die fast doppelt so lange Messzeit.

Der zweikanalige Aufbau hingegen ist durch die simultane Erfassung beider Kanäle schneller. Eine Verstellung des Beobachtungswinkels ist nicht erforderlich, was die Anlage wesentlich langzeitstabiler macht.

5.2.2 Informationsgehalt des Verfahrens bedingt durch die Probenorientierung

Die Röntgenrefraktionsverfahren bieten zwei Messmöglichkeiten:

- Die Röntgenrefraktometrie liefert den Mittelwert des Refraktionswertes der im Röntgenstrahl befindlichen Grenzflächen (Punktmessung ohne Ortsauflösung).
- Für die Röntgenrefraktionstopographie wird die Probe mit zwei Verschiebetischen durch den Röntgenstrahl bewegt. Nach Verrechnung beider Messkanäle erhält man ein zweidimensionales Bild des Refraktionswertes der Probe, das Röntgenrefraktionsstopogramm.

Je grösser der Refraktionswert ist, desto mehr Intensität wurde vom Hauptstrahl in den Streuwinkelbereich abgelenkt, der durch die Öffnung des Detektorspaltes vorgegeben ist. Der Spalt vor dem Refraktionsdetektor wirkt durch seine längliche Abmessung als räumlicher Filter: vom Refraktionsmuster der Probe gelangt nur jene Intensität in den Zähler, deren Verteilungsmuster parallel zur Spaltöffnung orientiert ist. So misst der Refraktionsdetektor im Falle einer parallel zum Messspalt liegenden Faser mehr Intensität, als wenn die Faser um 90° gedreht im Röntgenstrahl steht (siehe Abbildung 5.6), da das Brechungsmuster einer Faser senkrecht zur Faserachse orientiert ist. Diese Besonderheit des Versuchsaufbaus ermöglicht rudimentäre Aussagen über Faserorientierungen.

An Hand dieser einfachen Modellvorstellung soll der Informationsgehalt des Signals beim Rotieren der Probe diskutiert werden. Es steht ein Drehteller zur Verfügung (siehe Abbildung 4.1 in Kapitel 4.1), der eine Rotation um die drei Probenachsen (siehe Abb. 5.7) erlaubt.

Rotation um Achse 1: Diese Achse wird traditionell genutzt, wenn Daten für eine dreidimensionale Darstellung von Strukturen im Material gewonnen werden müssen. Sie wird bei der Computertomographie verwendet.

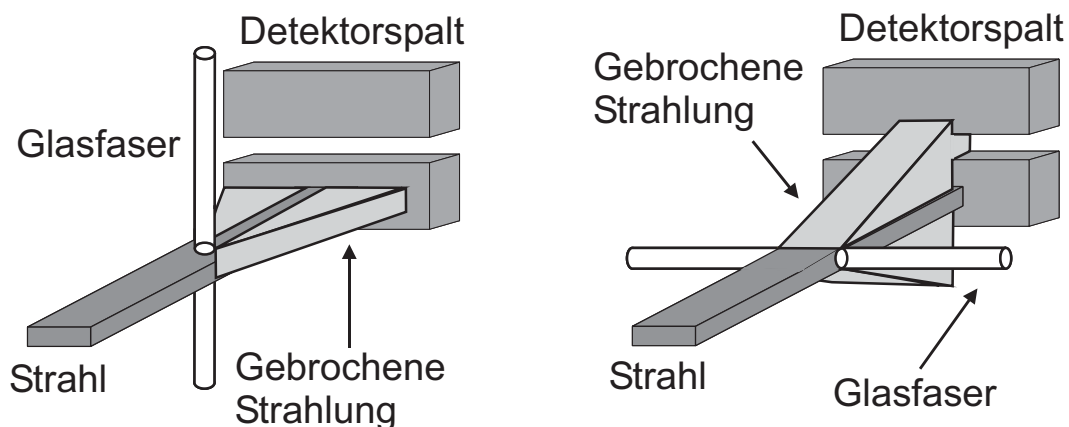


Abbildung 5.6: Orientierungsmessung mit Röntgenrefraktionsverfahren. Der Detektorspalt dient nicht nur zur Einstellung des Streuwinkels. Da nur ein Teil des Refraktionsignals zum Detektor gelangt, ist auch die Unterscheidung von Orientierungen möglich. Im linken Bild trifft die von der Faser weggebogene Intensität auf den unteren Teil des Spaltes. Im rechten Bild dagegen gelangt ein Teil der gebrochenen Strahlung in den Messspalt und wird registriert.

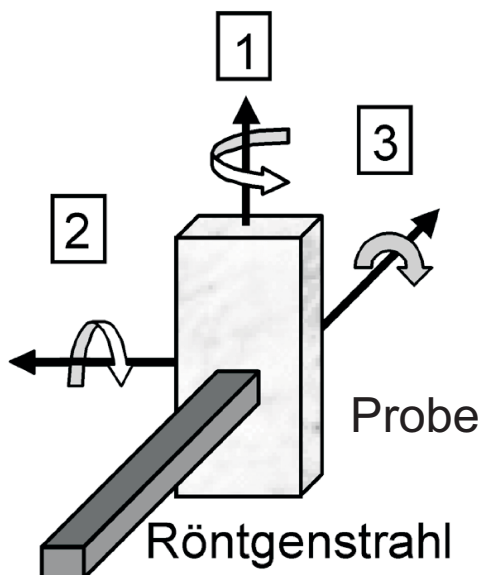


Abbildung 5.7: Drehachsen der Probe im Röntgenstrahl.

Rotation um Achse 2: Drehung um diese Probenachse liefert Informationen über Rissorientierungen. Zudem besteht die Möglichkeit, Fasern und Risse über ihren Umfang zu erfassen. Bezüglich der Fasern kann auf diesem Weg die Anbindung an die Matrix über den Faserumfang charakterisiert werden. Liegen die Fasern bei einer Probe in Strahlrichtung, bietet sich die Bestimmung der Faserorientierung durch Totalreflexion an der Faser-Matrix-Grenzfläche an.

Rotation um Achse 3: Rotation um diese Achse ergibt ebenfalls Informationen über Faser- oder Rissorientierungen. Diese Drehachse spielt bei den Untersuchungen in Kapitel 6.1 eine wesentliche Rolle.

Eine Trennung verschieden orientierter Strukturen im Material gelingt nur, wenn diese senkrecht zueinander ausgerichtet sind. Als Beispiel sei hier ein spritzgegossener Zugstab mit überwiegend in Zugrichtung liegenden Glasfasern betrachtet. Bei Zugbelastung erfolgt eine Schädigung der Fasern (eventuell Ablösung) und der Matrix (Risse). Die Schäden können nur deswegen getrennt untersucht werden, da die Risse senkrecht zur Zugrichtung und somit senkrecht zu den Fasern entstehen.

5.2.3 Einfluss der Detektorspalthöhe

Die Höhe des Detektorspaltes beeinflusst die gemessene Zählrate und somit die Messzeit. Je kleiner der Spalt ist, desto geringer ist die Zählrate. Entsprechend muss die Messzeit verlängert werden, um den Fehler der Einzelmessung klein zu halten (siehe Kapitel 4.1.3). Der Einfluß auf das Signal/Rausch-Verhältnis für die beiden möglichen Messorte wurde bereits in Kapitel 5.1.3 diskutiert. Darüber hinaus nimmt auch der errechnete Refraktionswert mit zunehmender Spaltgröße ab, da über größere Winkelbereiche gemittelt wird (Abbildung 5.8). Das Maximum des Refraktionswertes wandert zu kleineren Winkeln, hier von 1,41 Bogenminuten auf 1,27 Bogenminuten. Ursache ist die mit zunehmender Spaltgröße sinkende Auflösung für den Streuwinkel. Der Kontrast zwischen ungeschädigtem und defektem Material ist beim maximalen Refraktionswert am grössten (Streuwinkel Θ variiert). Da der Refraktionswert mit großem Detektorspalt abnimmt, sinkt auch das Auflösungsvermögen des Messverfahrens. Zusätzlich zur messtechnischen Unsicherheit vergrößern Unregelmäßigkeiten in der Probe den Fehler des Refraktionswertes. Eine Trennung verschiedener schädigungsbedingter Messeffekte von denen einer intakten Probe wird dadurch erschwert, wenn nicht gar unmöglich. Mit wachsender Detektorspaltbreite kann das Auflösungsvermögen abnehmen (Abbildung 5.9). Dieser Effekt muss beim Betrieb der Anlage berücksichtigt werden.

Es sollte eine Detektorspaltbreite gefunden werden, die diese Forderungen erfüllt:

1. Zählrate in akzeptabler Höhe, um die messtechnische Unsicherheit klein zu halten.
2. Messzeit so kurz wie möglich, um Schwankungen der Apparatur entgegenzuwirken.
3. Trennung schädigungsbedingter Messeffekte, z.B. Risse, von einer intakten Probe muß gegeben sein.

5.2.4 Streuwinkelbereiche

Bei Messungen mit Röntgenrefraktionsverfahren ist der Streuwinkel Θ die relevante einstellbare Größe. Er entscheidet prinzipiell über die Höhe des Refraktionswertes. Ziel ist es, bei seiner Wahl einen Kompromiss zu finden zwischen hoher Zählrate (kleine Messfehler) und gutem Kontrast (Trennung geschädigt-intakt etc.). Hält die Kratky-Kamera den Messort für das Refraktionssignal frei von Blendenstreustrahlung, dann wächst der Refraktionswert bis zum kritischen Winkel Θ_C der Totalreflexion an. Danach ist er für den einmaligen Streuprozess nicht mehr definiert, da keine Strahlung von der Probe abgelenkt wird. Im Falle von Mehrfachstreuung kann Θ_C jedoch übertroffen werden.

Die Messung zeigt aber, dass der Refraktionswert ein Maximum bei ca. 1,5 Bogenminuten hat und danach abnimmt, weil der Streuuntergrund der Kamera nicht korrekt unterdrückt wird (s. Abbildung 5.10). Ursache kann eine falsche Lage der Brücke zum Hauptschnitt der Kratky-Kollimation sein [37, S. 45] oder generell zu raue Oberflächen der Kollimationsblöcke. Relevant ist die Parallelität des Detektorspaltes zur Hauptebene¹. Bei zu tiefer Brücke tritt die Streuung regional begrenzt im Bereich einiger Bogenminuten auf. Liegt die Brücke über dem Hauptschnitt, tritt an der hinteren Kante der Brücke unbegrenzt schädliche Streuung auf. Der verwendbare Streuwinkelbereich der Kamera ist somit auf ca. zwei Bogenminuten beschränkt. Da die Zählraten des Refraktionssignals bei grösseren Streuwinkeln im Bereich weniger Counts pro Sekunde liegen, reicht der verfügbare Bereich aus.

¹Die Streuwinkelverstellung der Kratky-Kamera der Firma Ekenhorst erfolgt durch Austausch unterschiedlich hoher Metallblöcke. Die Parallelität der Blockoberkante zum Hauptschnitt ist somit gegeben. Aber auch hier zeigt sich eine Abnahme des Refraktionswertes mit zunehmendem Streuwinkel. Um die Parallelität des jetzt verwendeten Messspaltes zum Hauptschnitt der Kamera sicherzustellen, wird das Strahlprofil im Refraktionskanal gemessen und der Messspalt so lange verkippt, bis sich ein konstantes Strahlprofil einstellt.

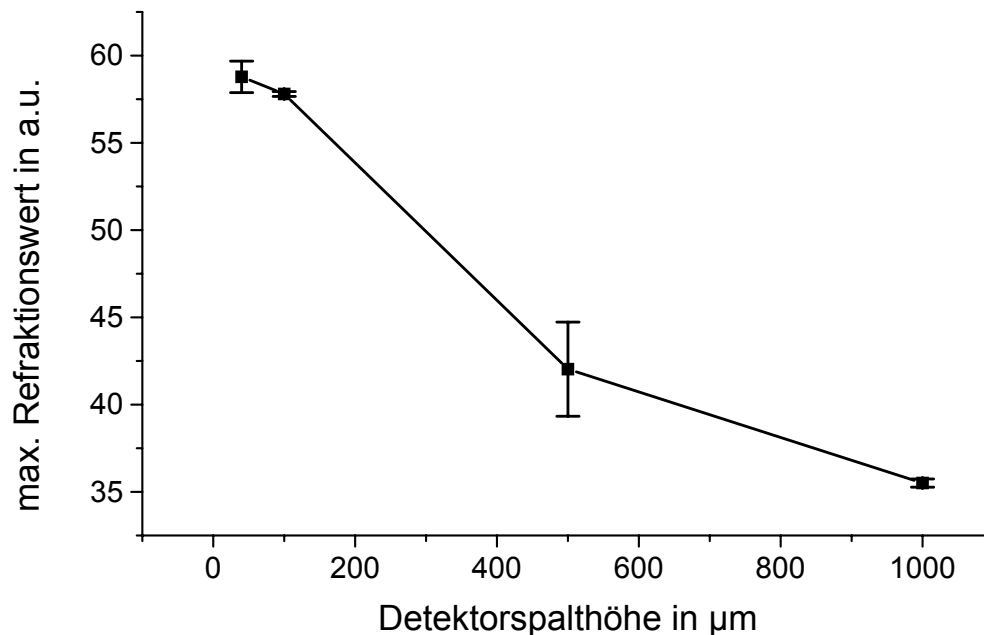


Abbildung 5.8: Abnahme des Refraktionswertes von Aluminiumoxydkeramik mit zunehmender Detektorspalthöhe. Ursache ist die Mittelung über größere Winkelbereiche.

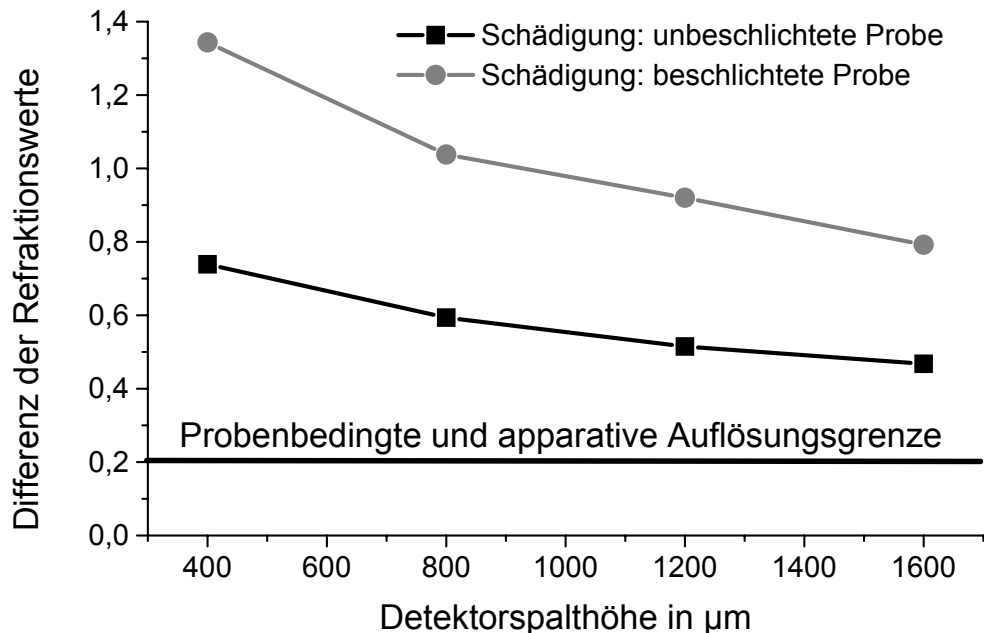


Abbildung 5.9: Trennvermögen bedingt durch Variation der Spaltbreite an geschädigten und ungeschädigten PP-Proben (mit und ohne Schlichte auf der Glasfaser). Probenbedingte und apparative Auflösungsgrenze: waagerechte Linie.

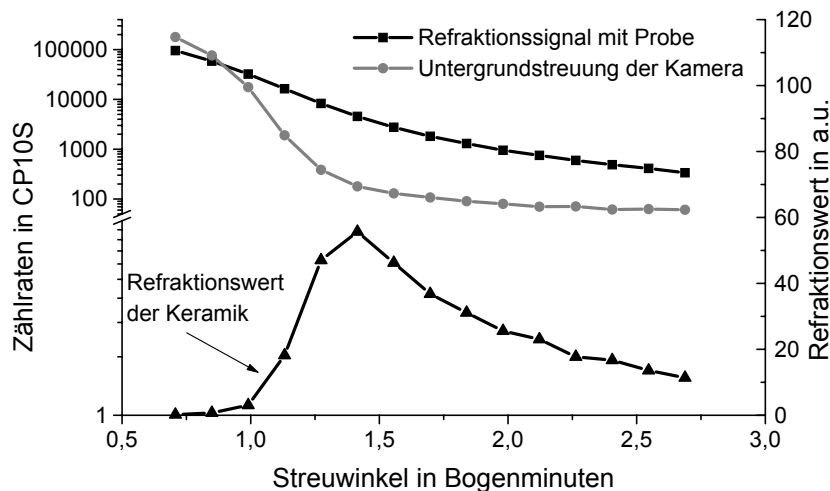


Abbildung 5.10: Untergrundstreuung der Kratky-Kamera verglichen mit der Probenstreuung (Refraktionssignal mit Probe). Der Refraktionswert nimmt bis zu einem Streuwinkel von ca. 1,5 Bogenminuten zu. Dann sinkt die Probenstreuung schneller als der Streuuntergrund der Kamera. Der Refraktionswert nimmt daher ab.

5.2.5 Referenzproben

Unkalibrierte Referenzproben

In Kapitel 4.2 wurden die externen Einflussgrößen auf das Experiment untersucht. Temperaturschwankungen im Labor verändern die Beleuchtung des Eintrittsspalt der Kratky-Kamera und somit die Lage des Hauptstrahles. Da der Detektorspalt während einer Messung ortsfest ist, ändert sich der Refraktionswert der Probe durch die Schwankung des Hauptstrahles. Die Einzelmessungen einer Messserie sind dann nicht mehr vergleichbar. Um Schwankungen der Anlage ausgleichen zu können, wird eine Referenzprobe mitgemessen, mit der der Streuwinkel wieder einjustiert werden kann. Die Referenzprobe muß folgende Eigenschaften haben:

1. Langzeitstabilität der mechanischen Eigenschaften, also Unempfindlichkeit gegenüber Temperatur- und Feuchteschwankungen (letzteres wichtig für Kunststoffe)
2. Lineare Absorptionskoeffizienten μ_L für Referenzprobe und zu untersuchendes Material müssen annähernd gleich sein.

Die erste Eigenschaft stellt sicher, dass sich die Referenzprobe nicht verändert. Dann bleibt der Refraktionswert der Probe im Maximum der Streukurve unverändert, er ist somit als Bezugspunkt für einen einjustierenden Streuwinkel nutzbar. Im Anschluss durchgeführte rechnerische Korrekturen der Daten können sich ebenfalls am Refraktionswert der Probe orientieren. Wenn die Absorptionskoeffizienten μ_L für Referenzprobe und

zu untersuchendes Material annähernd gleich sind, sind die Spektren nach dem Durchstrahlen der Probe vergleichbar. Rechnerische Korrekturen werden erleichtert, da ein Einfluss unterschiedlicher Spektren auf die Refraktionswerte ausgeschlossen ist. Erfüllt der zu charakterisierende Werkstoff alle oben genannten Forderungen, ist eine Probe des Werkstoffs als Referenzprobe nutzbar. Andernfalls muss eine Referenzprobe hergestellt werden. Wichtig ist, dass der Refraktionswert der Referenzprobe mit dem des Probenmaterials vergleichbar ist. Da Refraktionswert und Absorptionskoeffizient der Referenzprobe getrennt voneinander eingestellt werden müssen, empfiehlt sich die Herstellung aus einem rein streuenden² und einem rein absorbierenden³ Material. Beispielsweise kann der Referenzkörper aus zwei Lagen hochporösem Filterpapier und einer Lage Zinnfolie bestehen.

Kalibrierte Referenzproben

Die bisher besprochenen Referenzproben sind unkalibriert. Ihre Innere Oberflächendichte ξ ist nicht bekannt und wird für den oben geforderten Verwendungszweck auch nicht benötigt. Soll aber ξ bestimmt werden, muß die Referenzprobe bereits kalibriert sein. Je nach Material und Geometrie der Streukörper finden unterschiedliche Kalibrierkörper Verwendung.

Kugelförmige Streukörper Um die Innere Oberflächendichte ξ zu bestimmen, muss die Apparatekonstante $k = \frac{C}{\xi}$ (siehe Gleichung 5.8) bekannt sein. Für Messungen auf einem fixen Streuwinkel ist k konstant, so dass die Innere Oberflächendichte ξ der Probe über eine Kalibriermessung mit der Referenzprobe (Innere Oberflächendichte ξ_R , Refraktionswert C_R) gewonnen werden kann:

$$\frac{C}{\xi} = k = \frac{C_R}{\xi_R} \quad (5.21)$$

In der Praxis handelt es sich bei der Referenzprobe entweder um eine zertifizierte Keramik mit gezielt eingebrachter Porosität oder um eine Schüttung eines monodispersen Pulvers mit bekannter Korngröße R_C . Als rechnerische Bestimmungsgleichung für die Innere Oberflächendichte gilt allgemein:

$$\xi = \Pi \cdot \frac{O}{V} \quad (5.22)$$

²Am besten eignet sich hochporöses Filterpapier, da seine Absorption vernachlässigbar und die gestreute Intensität recht hoch ist.

³Beispielsweise Zinn- oder Aluminiumfolie, je nach verwendeter Wellenlänge und Probeneigenschaft.

mit

Π Packungsdichte, also der Raumerfüllungsgrad⁴.

O Teilchenoberfläche.

V Teilchenvolumen.

Eine Kugel hat ein Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis von $\frac{O}{V} = \frac{3}{R}$. Für ein Kalibrierpulver ergibt sich daher für die Innere Oberflächendichte [20]

$$\xi = \Pi \cdot \frac{3}{R_C}. \quad (5.23)$$

Bei einer Keramik ist der Raumerfüllungsgrad gegeben durch die Porosität p der Probe. Für die Innere Oberflächendichte folgt [20]

$$\xi = p \cdot \frac{3}{R}. \quad (5.24)$$

Für die Porosität gilt [20]

$$p = 1 - \frac{\mu_L}{\mu_{L,FK}} \quad (5.25)$$

mit

μ_L linearer Absorptionskoeffizient der Keramik

$\mu_{L,FK}$ linearer Absorptionskoeffizient des Festkörpers

Der Quotient $\frac{\mu_L}{\mu_{L,FK}}$ drückt das Verhältnis von Probendichte zu Festkörperdichte der Keramik aus. Die Porosität wird über eine Absorptionsmessung orts aufgelöst ermittelt (monochromatische Raster-Radiometrie). Zusätzlich kann für eine Keramikprobe der mittlere Porenradius im Streuvolumen bestimmt werden:

$$R = R_C \cdot \frac{p}{\Pi} \cdot \frac{C_C}{C} \quad (5.26)$$

mit

C Refraktionswert der Keramik

C_C Refraktionswert der Kugelpackung

⁴prozentualer Volumenanteil von Teilchen gleichen Durchmessers.

Zylinderförmige Streukörper Für faserverstärkte Materialien dient ein Faserroving von der im Komposit verwandten Sorte als Standardprobe. Mit Röntgenrefraktionsverfahren ist der Anteil freier (von der Matrix abgelöster) Fasern φ aus den Refraktionswerten bestimmbar [14]. Das zugrundeliegende Modell geht von zwei prinzipiellen Anbindungsmöglichkeiten aus:

Ideales Komposit Die Fasern sind vollständig von der Matrix umgeben

(Refraktionswert C_{ok})

Faserroving Die Fasern sind vollständig von der Matrix abgelöst

(Refraktionswert C_{Rov})

Die komplette Ablösung einzelner Fasern wird hier nicht berücksichtigt (siehe [14]). Mit dieser Modellvorstellung ergibt sich für den Refraktionswert eines Komposits C_k :

$$C_k = (1 - \varphi) \cdot C_{ok} + \varphi \cdot C_{Rov} \cdot \frac{\alpha_k}{\alpha_{Rov}} \quad (5.27)$$

mit

α_k Faservolumengehalt des Komposits

α_{Rov} Packungsdichte des Rovings

Der Quotient $\frac{\alpha_k}{\alpha_{Rov}}$ berücksichtigt den im Vergleich zum Roving geringeren Faservolumengehalt des Komposits. Auflösen obiger Gleichung nach φ liefert:

$$\varphi = \frac{C_k - C_{ok}}{\frac{\alpha_k}{\alpha_{Rov}} \cdot C_{Rov} - C_{ok}} \quad (5.28)$$

Weil bei der Probenherstellung eines „idealen Komposits“ nicht immer davon auszugehen ist, dass eine sehr gute Faser-Matrix-Anbindung erzielt wurde, muß der Refraktionswert C_{ok} berechnet werden [14]:

$$C_{ok} = C_{Rov} \cdot \frac{\alpha_k}{\alpha_{Rov}} \cdot \frac{(\rho_F - \rho_M)^2}{\rho_F^2} \quad (5.29)$$

6 Untersuchungsbeispiele

6.1 Charakterisierung von Proben mit zylindrischen Streukörpern

Glas- und Kohlestofffasern sind hervorragende Verstärkungselemente von Kompositwerkstoffen. Ihr Einsatz kann als gut ausgerichtete Langfaser in einem Laminat erfolgen oder als „prozessbedingt“ orientierte Kurzglasfaser. Im Gegensatz zu sphärischen Streukörpern ist die Brechung senkrecht zur Faserlängsachse orientiert (Brechung an Zylinderlinsen, siehe Kapitel 3.4). Somit ist eine Trennung zwischen dem Refraktionssignal von Fasern und anders orientierten Strukturen möglich. Die unten vorgestellten Messungen nutzen diese Eigenschaft, die bisher keine andere bekannte zerstörungsfreie Prüfmethode bietet, zur Erklärung des Schädigungsverhaltens der untersuchten Werkstoffe.

6.1.1 Charakterisierung impactgeschädigter CFK-Proben

In faserverstärkten Kunststoffen können Impactschäden auftreten (s. Abb. 6.1). Das Auftreffen des Einschlagkörpers (Stein, fallendes Werkzeug, etc.) erzeugt am Auftreffort eine Druckzone, und die dort entstehenden Schubspannungen führen zur Bildung von Rissen und konusartigen Delaminationen zwischen den einzelnen Lagen des Faserverbundwerkstoffes. Bei niedrigen Energien ist an den Deckschichten meist keine Veränderung zu erkennen, da die Deckschichten vom dahinterliegenden Material gestützt werden. Tieferliegende Schichten erfahren jedoch weniger Stützwirkung und können bis zum Faserbruch beschädigt werden. Je nach Schadensenergie ist es schwierig, einen Impact zu finden oder Aussagen über die verbleibende strukturelle Integrität des Faserverbundes zu treffen. Am besten sichtbar ist der Schaden auf der dem Einschlag abgewandten Seite. Impacts können über die auftretenden Kräfte oder die eingebrachte Energie beschrieben werden. Die Betrachtung der Kräfte liefert Aussagen über die Schädigungsschwelle. Die Impactenergien können zur Beschreibung des Schadensausmaßes herangezogen werden. Röntgenrefraktionsverfahren sprechen auf Grenzflächen im Werkstoff an, die eine Richtungsänderung der Röntgenstrahlung bewirken. Für eine merkliche Strahlablenkung sind bei senkrechter Durchstrahlung die Krümmungen delaminierter Grenzflächen zu gering.

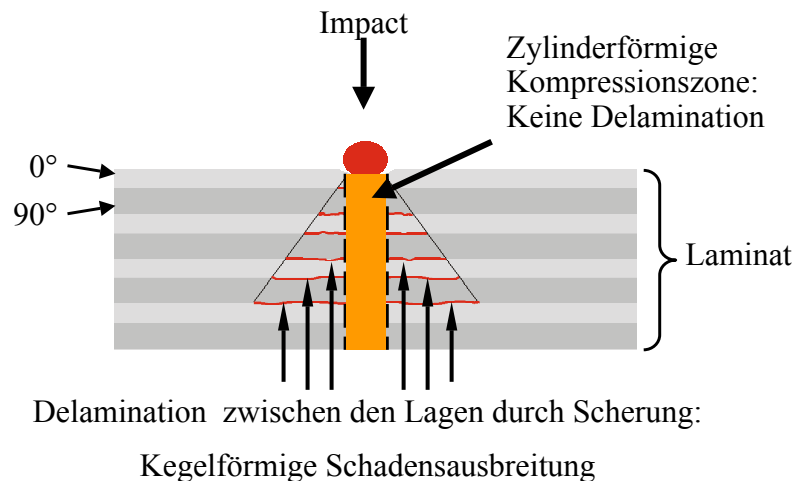


Abbildung 6.1: Schadensentstehung bei Impact.

Allerdings können Risse, die beim Abbau der Schubspannungen entstehen, detektiert werden.

Es wurden zwei verschiedene Probenaufbauten aus CFK untersucht: ein symmetrischer Lagenaufbau mit einem Kern aus vier Lagen, umgeben von je zwei senkrecht zum Kern orientierten Deckschichten ($[0_2, 90_2]_S$), sowie Proben mit einem unsymmetrischen Lagenaufbau aus sieben abwechselnden 0° - und 90° -Lagen. Die Lagenanordnung im erstgenannten Aufbau reduziert innere Spannungen und ist im Vergleich zum zweiten Lagenaufbau schadensresistenter. Die einzelnen Proben wurden nacheinander aus den gleichen Streifen der beiden Platten herausgetrennt, so dass sie, abgesehen von herstellungsbedingten Inhomogenitäten, als gleich anzusehen sind. Bei einer Kantenlänge von 4 cm und einer Probendicke von 1 mm wurden Röntgernrefraktionstopogramme mit Schrittweiten von 0,5 mm bis 2,5 mm horizontal und 0,25 mm vertikal durchgeführt. Eine wesentlich höhere räumliche Auflösung von $20 \mu\text{m}$ vertikal wie horizontal liefert mehr Details (s. Abbildung 6.2), die Messzeit für die gesamte Serie wäre allerdings zu hoch. Die Proben wurden mit Energien von 0,33 J bis 2,2 J geschädigt und unter Ausnutzung der Sensitivität der Apparatur für Faserorientierungen (s. Kapitel 5.2.2) mehrfach vermessen. Diese orientierungsaufgelöste Darstellung der Schädigung ist bisher nur mit Röntgennrefraktionsverfahren möglich. Das detektierte Röntgennrefraktionssignal erfasst hier die Faser-Matrix-Grenzfläche der günstigen Faserorientierung und zusätzlich die Matrixrisse in den senkrecht zur Untersuchungsrichtung stehenden Lagen. Die Ergebnisse für den symmetrischen Lagenaufbau in Abbildung 6.3 zeigen einen Anstieg der Refraktionswerte (höherer Grauwert) und auch ein Anwachsen des geschädigten Probenareals mit steigender Impactenergie. Eine tiefere Auswertung ist nur unter Zuhilfenahme statistischer Betrachtungen möglich. Der Schaden zeigt sich bei diesem Messverfahren durch

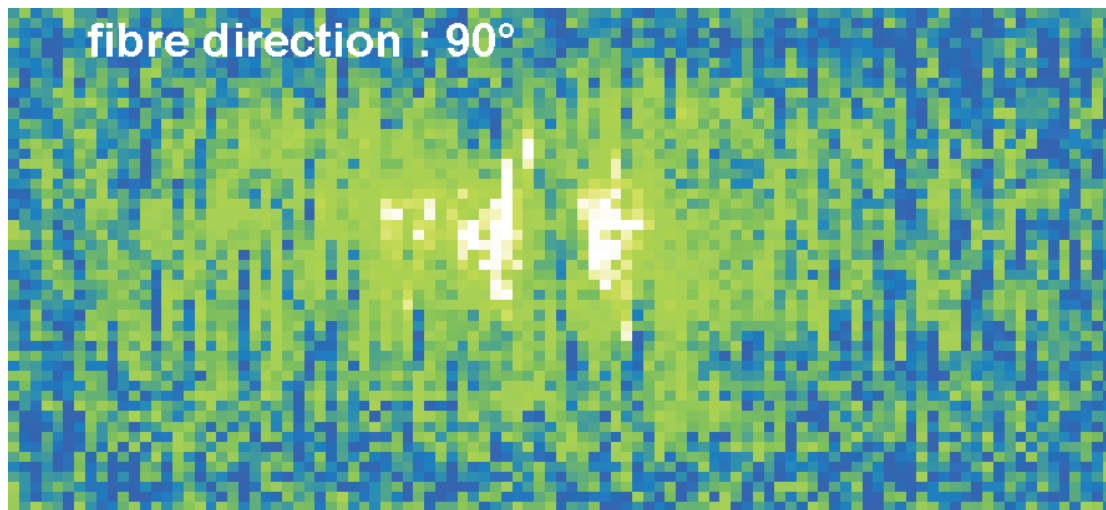


Abbildung 6.2: Hochauflöste Röntgenrefraktionsstopographie eines 5 J-Impactschadens (abgescannte Fläche: 3x6 mm²); Schrittweite: 20 μm [38].

eine Signalzunahme. Das Histogramm einer Messung an einer ungeschädigten Probe ist eine Gaussverteilung, da gleiche Probeneigenschaften mehrfach gemessen werden. Eine geschädigte Probe weist zusätzlich zur Gaussverteilung des ungeschädigten Bereiches einen langen Ausläufer zu hohen Refraktionswerten auf (Abbildung 6.4). Gelingt es, die intakte Matrix vom Schaden zu separieren, so ist die Summe der verbleibenden Refraktionswerte ein Maß für die Stärke der Schädigung. Eine Gaussverteilung ist durch Mittelwert und Standardabweichung charakterisiert. Werte innerhalb des Bereiches Mittelwert plus die doppelte Standardabweichung 2σ liegen zu 95% in der Verteilung. Werden nur Refraktionswerte oberhalb benutzt, trennt dieses „Cut-Kriterium“ das intakte Material bis auf 2,5% ab¹. Die auf diese Art verbleibenden Pixelwerte werden aufsummiert, durch die Pixelanzahl der gesamten Probe dividiert und auf die Lagenzahl der Proben bezogen, um die einzelnen Messungen untereinander vergleichbar zu machen. Es ergibt sich eine lineare Abhängigkeit zwischen Impactenergie und Refraktionswert. Die Steigung der Kurve gibt Auskunft über den Schaden in den jeweiligen Faserorientierungen. Werden die Fehler bei der linearen Regression an die Messwerte berücksichtigt, so ergeben sich folgende Werte:

Symmetrischer Aufbau der Laminatlagen, also $[0_2, 90_2]_S$ (siehe Abbildung 6.5):

	Steigung	Achsenabschnitt	Korrelationskoeffizient
Deckschichten	23 ± 3	$0,3 \pm 0,4$	0,97
Kernlagen	31 ± 3	$-0,2 \pm 0,4$	0,98

Aus den beiden unterschiedlichen Geradensteigungen folgt, dass die Kernlagen stärker geschädigt sind als die Deckschichten des Verbundes. Vom Auswertevorgang her ist zu

¹Die Werte unterhalb der Gaussverteilung werden bei der Auswertung nicht genutzt. Somit trennt das Kriterium 97,5% der ungeschädigten Probe ab.

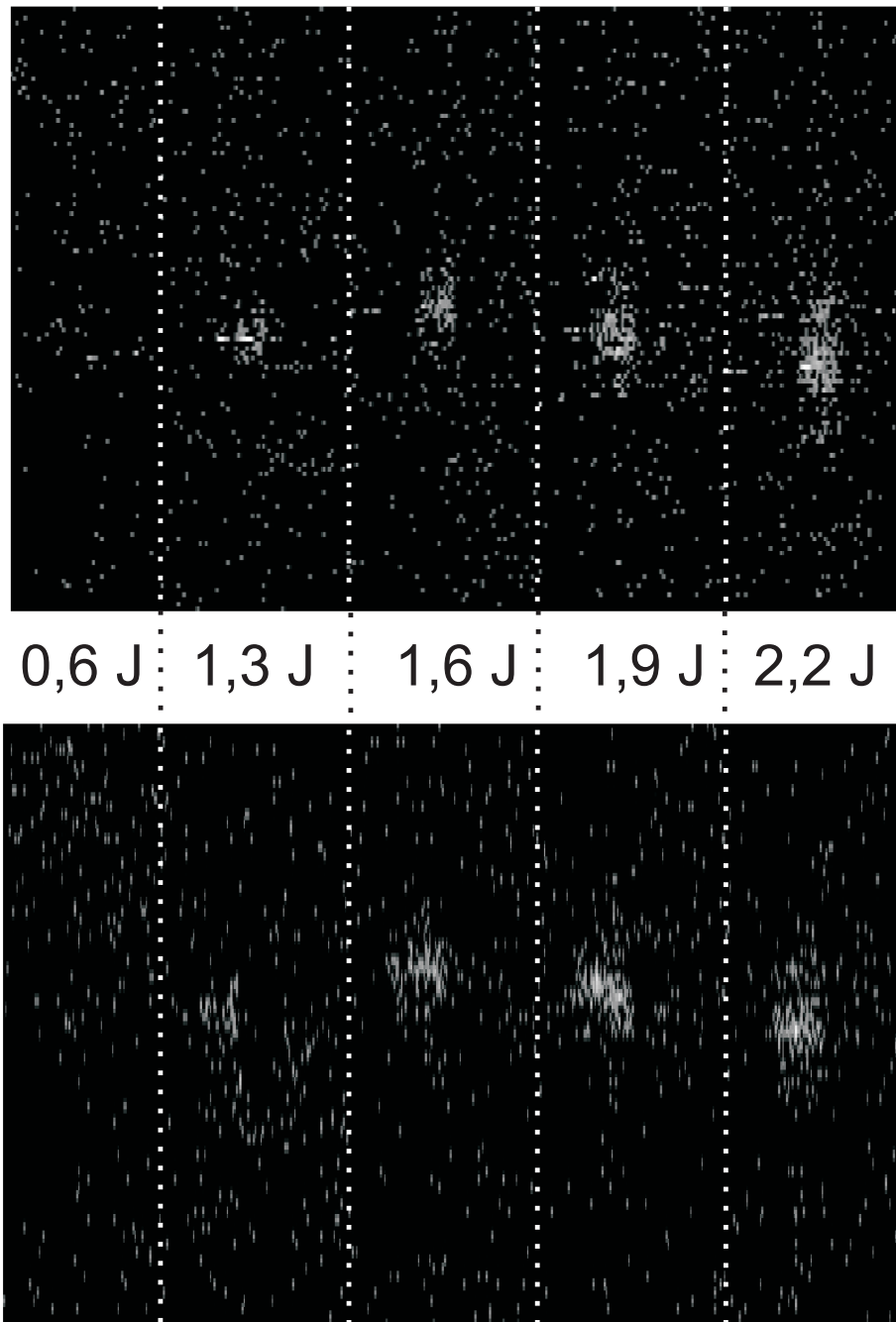


Abbildung 6.3: Impactserie aus CFK mit dem Lagenaufbau $[0_2, 90_2]_S$. Refraktionswerte der inneren (oben) und äusseren Lagen (unten). Mit zunehmender Impactenergie wächst auch das von der Röntgenrefraktionsstopographie detektierte geschädigte Areal an.

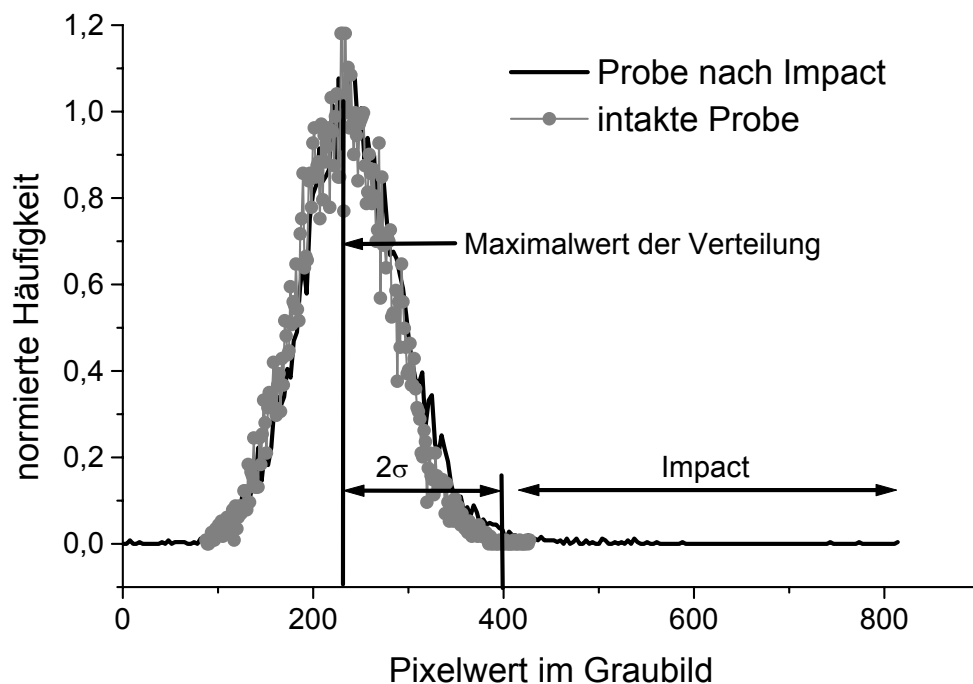


Abbildung 6.4: Auswerterezept für Impactschäden: Schneide die Bildwerte des intakten Laminates weg und ordne die verbleibenden Werte der Schädigung zu.

erwarten, dass die Achsenabschnitte der an die Messwerte angepassten Geraden im Rahmen der Fehler bei Null liegen. Dies gilt für Kern- und Decklagen dieses Aufbaus. Bei unsymmetrischem Aufbau der Laminatlagen, also abwechselnd 0° - und 90° -Lagen, ergibt sich hingegen (siehe Abbildung 6.6):

	Steigung	Achsenabschnitt	Korrelationskoeffizient
0° -Lagen	35 ± 5	-3 ± 1	0,95
90° -Lagen	11 ± 3	$2 \pm 0,3$	0,88

Bei diesen Proben zeigt sich ein ganz anderer Verlauf des Refraktionswertes. Im Rahmen der Messfehler besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Impactenergie und Schädigung. Da die Nulldurchgänge beider Geraden aber nicht im Koordinatenursprung liegen, wird die ermittelte Schädigung für eine intakte Probe nicht korrekt wiedergegeben. Ein Vergleich mit dem Ergebnis des anderen Laminats zeigt, dass die Werte für Energien kleiner 0,15 Joule pro Lage annähernd auf gleichem Niveau liegen. Danach erfolgt kein merklicher Anstieg mehr für den alternierenden Aufbau. Da sich die zusätzlich eingebrachte Energie nicht in Rissbildung auswirkt, ist wegen der Energiebilanz zu erwarten, dass das Ausbilden von Delaminationen zwischen den einzelnen Lagen begünstigt wird. Bedingt durch den grossen Krümmungsradius einer Delamination verglichen mit einem Riss, wird die Delamination von den Röntgenrefraktionsverfahren nicht erfasst.

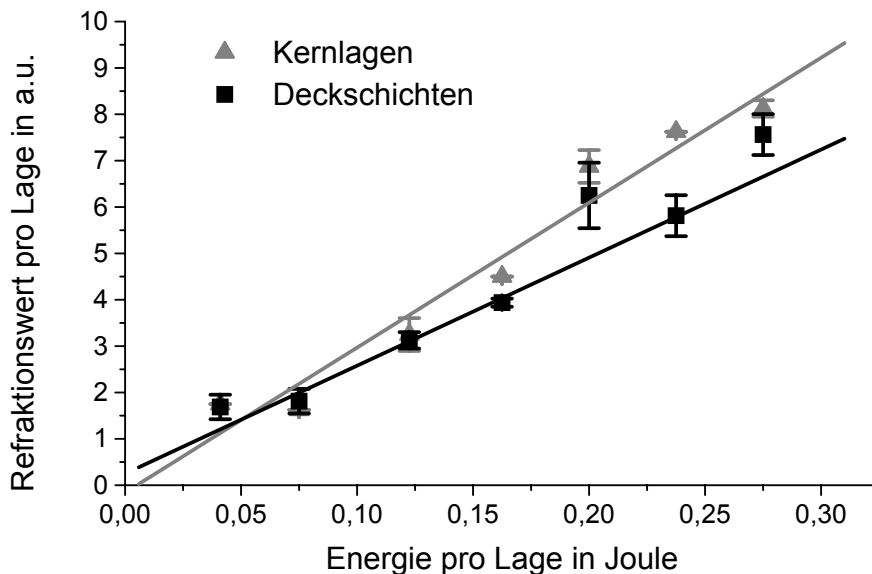


Abbildung 6.5: Schädigungsbedingter Signalhub für Impactschäden in einem CFK-Laminat mit symmetrischem Aufbau $[0_2, 90_2]_S$. Die Schädigung der inneren Lage ist größer als die der beiden äußeren. Die gezeigten linearen Regressionen dienen nur der visuellen Zuordnung.

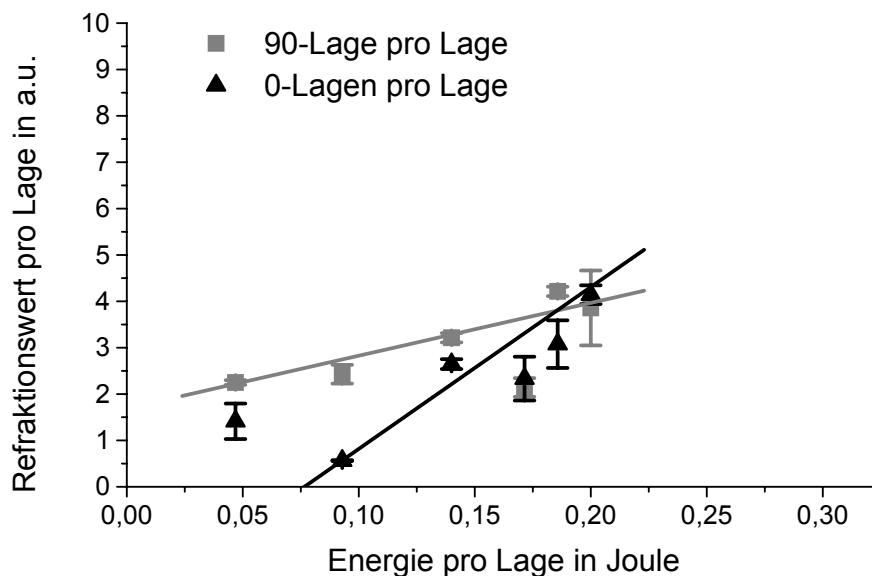


Abbildung 6.6: Schädigungsbedingter Signalhub für Impacts in CFK mit alternierenden 0° - und 90° -Lagen. Die detektierte Schädigung ist geringer und uneinheitlicher verglichen mit dem anderen Aufbau (Abb. 6.5). Noch größere Energien führen zum Durchschuß der Probe. Die gezeigten linearen Regressionen dienen nur der visuellen Zuordnung.

Vergleich der Ergebnisse der Röntgenrefraktionstopographie mit Messungen anderer ZfP-Verfahren

Um die bisher erhaltenen Ergebnisse einschätzen zu können, werden sie mit anderen ZfP-Verfahren verglichen, deren Funktionsprinzipien detailliert in Kapitel 8.2 beschrieben sind. Alle Verfahren untersuchen die selben Proben wie die Röntgenrefraktionstopographie, so dass eine Ergebniskorrelation möglich ist. Die Abbildungen 6.7 und 6.8 zeigen für Luftultraschall und optische Lockin-Thermografie qualitativ ein Anwachsen des geschädigten Areals. Mit ultraschallangeregter Lockin-Thermografie ist leider kein einheitliches Schädigungsmerkmal zu erkennen. Da zudem die Einkopplung des Ultraschalls in die Probe bedingt durch die geringe Probengrösse nicht reproduzierbar erfolgen kann, wird auf eine weitere Auswertung verzichtet. Die quantitative Analyse erfolgt auch hier über die statistische Auswertung der Bilder. Ähnlich wie bei den Refraktionsmessungen wird der Flächenanteil des mit dem jeweiligen Verfahren detektierten Schadensmerkmals bestimmt. Im Gegensatz zur Röntgenrefraktionstopographie äussert sich der Schaden in den LUS- bzw. OLT-Messungen durch niedrigere Amplituden bzw. Phasenwinkel. Im Histogramm der Messung wirkt sich der Schaden somit durch einen langen Ausläufer zu niedrigen Messwerten aus. Bei der statistischen Auswertung werden nur Werte berücksichtigt, die kleiner als der Mittelwert minus die doppelte Standardabweichung sind. Der Schädigungsanteil an der Probenfläche errechnet sich über die Summe der verbleibenden Pixel normiert auf die Pixel der gesamten Probe.

Luftultraschall Mit Hilfe von Luftultraschallmessungen sollen die im Werkstoff entstandenen Delaminationen über akustische Impedanzunterschiede bestimmt werden. Im Gegensatz zu konventionellem Ultraschall wird hier weder Wasser noch ein anderes Medium zur Einkopplung genutzt, die Proben bleiben also unbeeinflusst. Abbildung 6.9 zeigt die Flächenanteile der Delaminationen für die beiden unterschiedlichen Laminataufbauten. Für den symmetrischen Aufbau ändert sich der delaminierte Probenanteil bis zu einer Energie pro Lage von 0,16 J kaum, danach wächst er stark an, bis 50% der Probe delaminiert sind. Ein ähnliches Verhalten zeigt der unsymmetrische Aufbau. Hier setzt das Delaminationswachstum bei ca. 0,14 J ein. Die delaminierten Probenanteile sind bei diesem Lagenaufbau generell kleiner als bei dem symmetrischen. Die Energie des auftreffenden Geschosses wird daher wahrscheinlich vermehrt in Risswachstum umgesetzt.

Optische Lockin-Thermografie Dieses Verfahren spricht auf thermische Grenzflächen an. Um die gesamte Probe mit ca. 1 mm Dicke zu charakterisieren, wurde eine Modulationsfrequenz von 0,1 Hz gewählt. Die errechneten Flächenanteile der thermischen Grenzflächen für beide Aufbauten zeigt Abbildung 6.10. Hier wächst die errechnete Fläche für den unsymmetrischen Aufbau bereits ab einer Energie von 0,05 J pro Lage an.

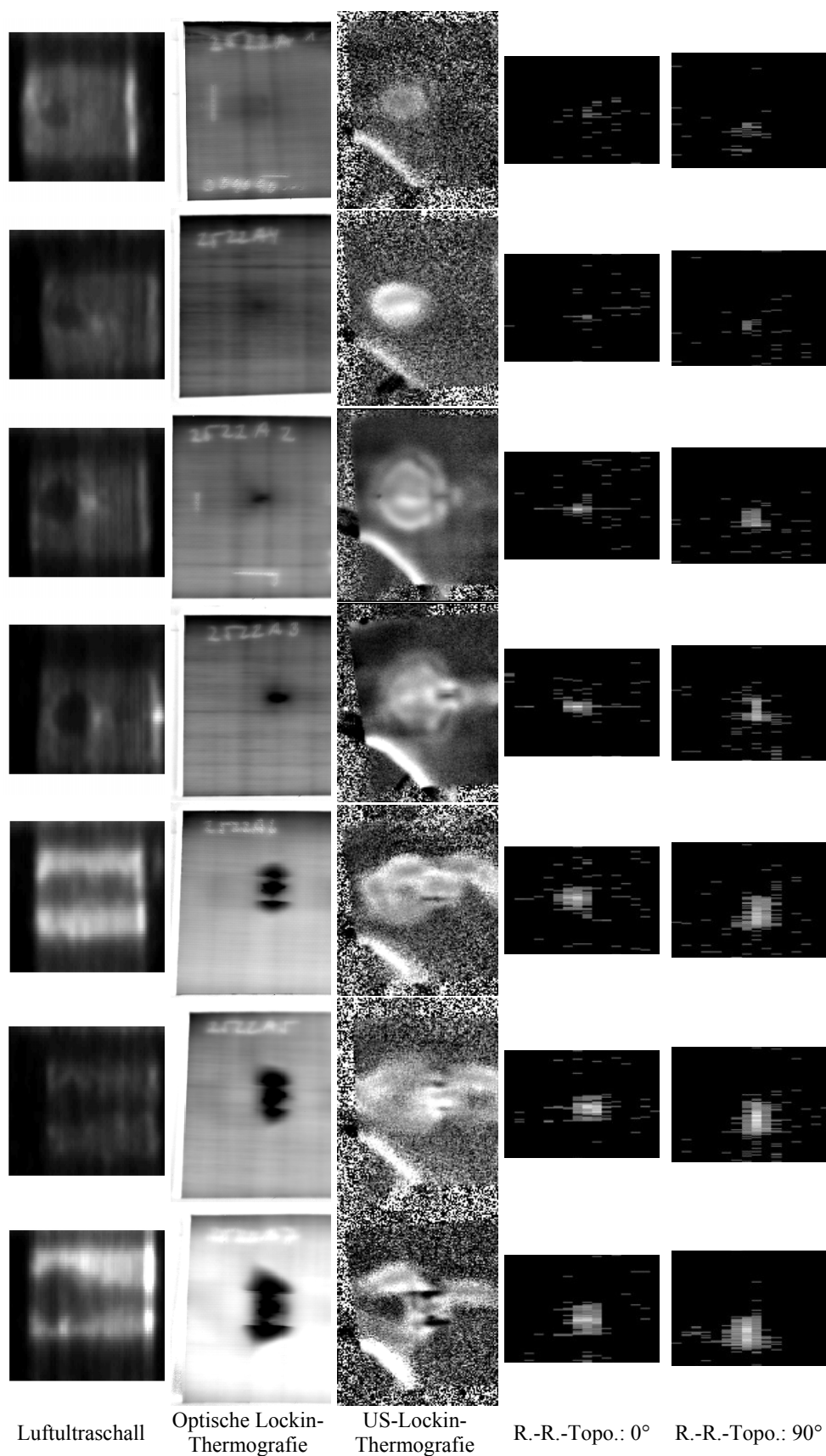


Abbildung 6.7: Verfahrensvergleich: Charakterisierung der CFK-Proben mit symmetrischem Aufbau mit unterschiedlichen ZFP-Verfahren. Die Schädigungsenergie wächst von oben nach unten.

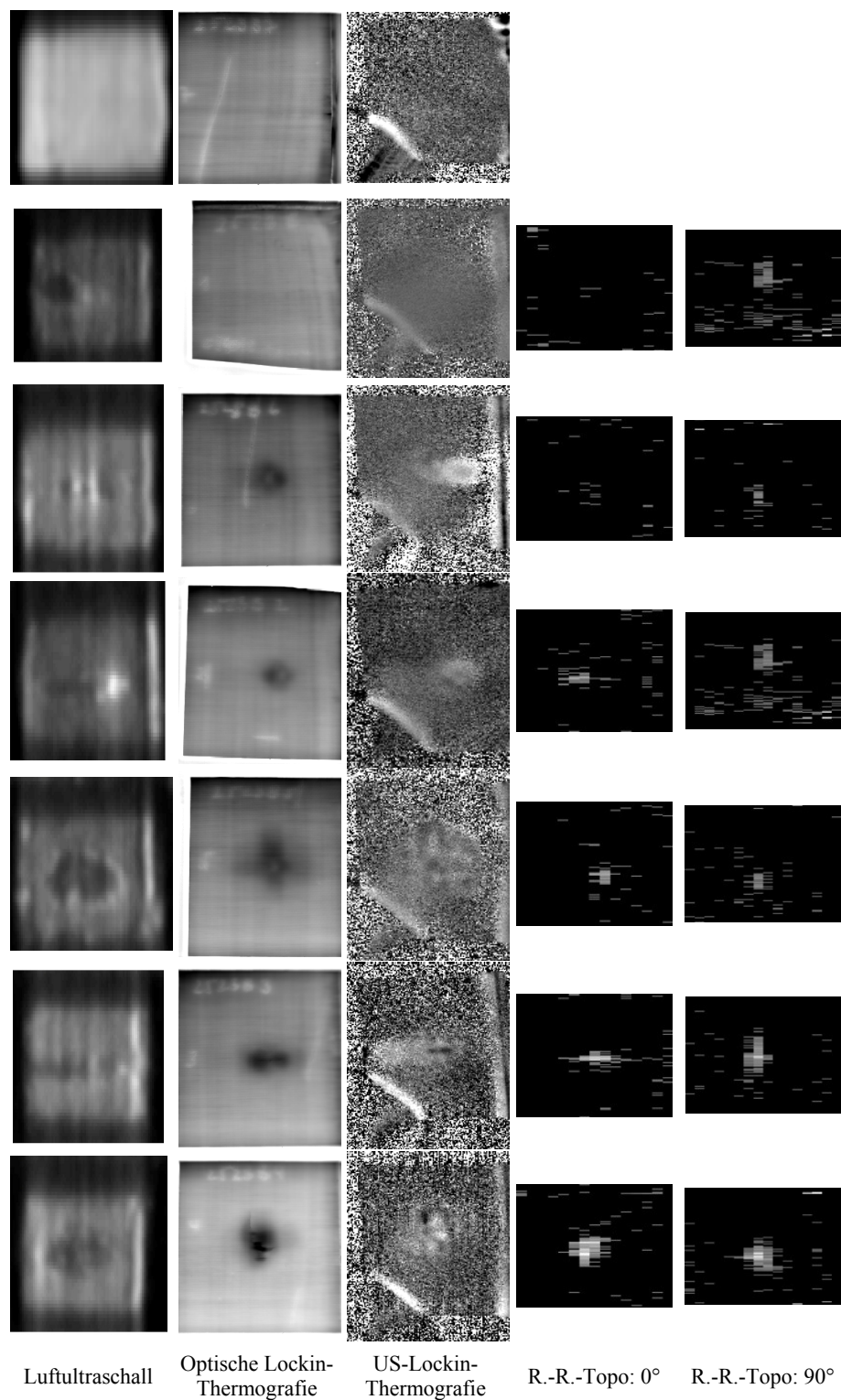


Abbildung 6.8: Verfahrenvergleich: Charakterisierung der CFK-Proben mit unsymmetrischem Aufbau mit unterschiedlichen ZFP-Verfahren. Die Schädigungsenergie wächst von oben nach unten. Die mit Luftultraschall detektierte Delamination in der zweiten Probe von oben wurde nach den Röntgenrefraktionsmessungen eingebracht. Dies ist durch Kontrollmessungen mittels Luftultraschall belegt. In der statistischen Auswertung wird daher der Wert 0 eingesetzt.

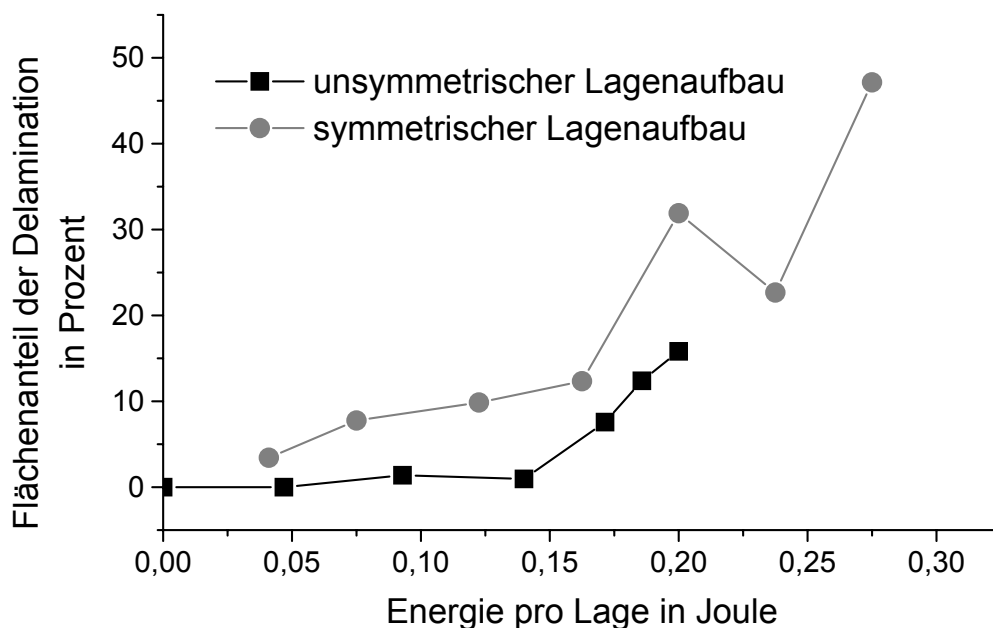


Abbildung 6.9: Bestimmung des Flächenanteils der Delamination in der Probe mit Luftultraschall. Die Punkte sind wegen der besseren Zuordnung verbunden.

Die Impacts mit geringerer Energie werden nicht angezeigt. Der symmetrische Aufbau zeigt konstante Schädigungsflächen und wächst erst ab einer Energie von 0,2 J pro Lage. Verglichen mit luftgekoppeltem Ultraschall sind die Flächenanteile kleiner.

Fazit für die Schädigung der Proben

Symmetrischer Aufbau Die am symmetrischen Aufbau gemessene Schädigung verhält sich wie erwartet: Das Refraktionssignal zeigt eine lineare Zunahme der Inneren Oberfläche mit der Schädigungsenergie. Die Ultraschallmessungen zeigen ein stetiges, ab 0,16 J pro Lage starkes Anwachsen der Delaminationen, bis die Hälfte der Probe enthaftet ist. Der Flächenanteil der detektierten thermischen Grenzflächen in der Probe bleibt bis zu einer Energie von 0,2 J pro Lage annähernd bei ca. 5%. Dann erst setzt ein Wachstum bis zur Verdopplung ein. Insgesamt detektieren alle Verfahren größere Schadensflächen für diesen Lagenaufbau. Die durch den Beschuss eingebrachte Energie wird auf die gesamte Struktur verteilt.

Unsymmetrischer Aufbau Der mit der Röntgenrefraktometrie detektierte Schaden ist generell kleiner und uneinheitlicher, verglichen mit dem symmetrisch aufgebauten Material. Die Luftultraschallergebnisse zeigen bis zu einer Energie von 0,14 J pro Lage kein Delaminationswachstum, die Energie wird wahrscheinlich zur Ausbildung von Rissen genutzt. In diesem Energiebereich zeigt das Refraktionssignal keine grösseren Änderungen,

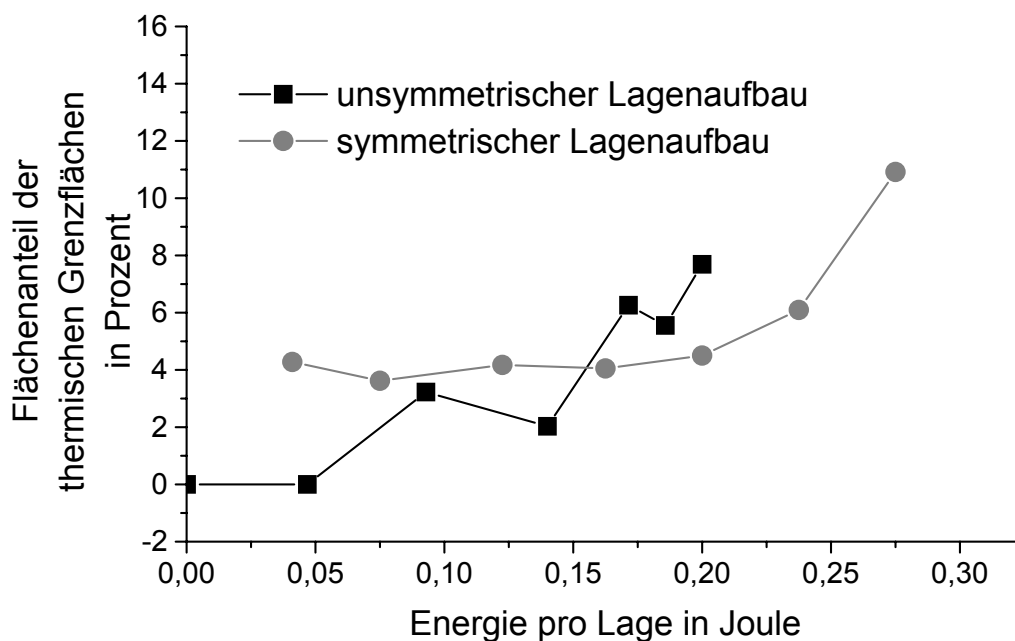


Abbildung 6.10: Bestimmung des Flächenanteils der mit optischer Lockin-Thermografie detektierten thermischen Grenzflächen in der Probe. Die Punkte sind nur wegen der Zuordnung verbunden.

so dass die entstehenden Risse möglicherweise bereits zu gross sind, um sie mit diesem Verfahren zu erfassen. Dass sie entstehen, lässt sich über die OLT-Messung nachweisen, die ab 0,05 J ein Anwachsen vor allem der oberflächenparallelen thermischen Grenzflächen, also der Delaminationen, misst. Ab 0,14 J pro Lage wird die Energie vermutlich zu einem Großteil in Delaminationswachstum eingesetzt (Ultraschallmessung). Die ständig wechselnde Faserorientierung der einzelnen Lagen verhindert dabei eine Schadensausbreitung in den Proben. Wie die Ultraschallmessungen belegen, ist die Delamination stark auf den Aufschlagort des Projektils begrenzt. Es kommt im Unterschied zum symmetrischen Aufbau zu keiner grossflächigen und energieverteilenden Ablösung. Die Ergebnisse der Röntgenrefraktionstopographie belegen, dass die Anzahl kleiner Risse nicht stark zunimmt.

Verfahrensvergleich Die Diskussion der Messergebnisse zeigt, dass sich die Aussagen der verwendeten ZfP-Verfahren gut ergänzen können. Die gesicherten Aussagen der Luftultraschallmessung bezüglich des Delaminationswachstums und die Ergebnisse der Röntgenrefraktionstopographie für das Risswachstum können die Schädigung in beiden Lageraufbauten gut charakterisieren. Die mit Hilfe der optischen Lockin-Thermografie detektierten thermischen Grenzflächen decken sich vom Wachstumsverhalten her nicht ganz mit den Verläufen, die die Ultraschallmessung für das Delaminationswachstum liefert. Zudem sind die Flächen der thermischen Grenzflächen generell kleiner als die mit

Luftultraschall detektierten Delaminationen. Der rein visuelle Vergleich der Messungen (siehe Abbildungen 6.7 und 6.8) lässt vermuten, dass OLT stärker auf die Risse in der Kompressionszone (im Luftultraschallbild als heller Fleck erkennbar) anspricht als auf die Delaminationen.

6.1.2 Untersuchungen an faserverstärktem Polypropylen

Ziel der im folgenden geschilderten Messungen war es, den Schädigungsverlauf an faserverstärktem Polypropylen (PP) zu verfolgen und das Werkstoffverhalten unter Belastung mit der Röntgenrefraktionstopographie zu untersuchen. Der Vergleich mit anderen ZfP-Verfahren soll die Qualität der Ergebnisse auf den Prüfstand stellen.

Für die Untersuchungen wurden mittels Spritzguß hergestellte Normzugproben (Typ 1 A) nach DIN EN ISO 527-2 mit 30 Gewichtsprozent Kurzglasfasern jeweils mit guter und schlechter Faser-Matrix-Haftung (Fasern geschichtet/beschichtet bzw. ungeschichtet/unbeschichtet) verwendet, die eine Vorzugsrichtung der Faserorientierung in Längs- bzw. Zugrichtung zeigen (siehe Abb. 6.11). Zur Ermittlung der Kennwerte (siehe Tabelle 6.1) wurden jeweils vier Zugversuche ausgewertet. Der E-Modul wurde abweichend von der Norm mit 5 mm/min ermittelt, da die Zugversuche mit der selben Geschwindigkeit durchgeführt werden. Aus den entsprechenden Spannungs-Dehnungs-Kurven (Abbildung 6.12) geht hervor, dass die Steifigkeit der Zugproben im Rahmen der Messfehler keine Unterschiede bezüglich der Faser-Matrix-Haftung zeigt. Das geschichtete Material weist wegen der besseren Faser-Matrix-Haftung generell fast doppelt so grosse Maximal- und Bruchspannungen auf wie das ungeschichtete. Die Faser-Matrix-Haftung spielt demzufolge im nichtlinearen Bereich eine große Rolle. Um den Zusammenhang zwischen Faser-Matrix-Haftung und Versagen zu ermitteln, wurden die Bruchflächen der gerissenen Proben untersucht [39]. Schon mit bloßem Auge erkennt man Unterschiede im

Material	E-Modul, ΔE 10 ³ MPa	max. Spannung MPa	Dehnung bei max. Spannung %	Bruch- Spannung MPa	Bruch- Dehnung %
ungeschichtet	5,9 ±0,2	41,2 ±0,4	2,5±0,1 ±0,4	39,4 ±0,3	2,8 ±0,3
geschichtet	6,2 ±0,1	77,9 ±0,8	2,9 ±0,1	77,3 ±0,9	3,2 ±0,2

Tabelle 6.1: Kennwerte für geschichtetes und ungeschichtetes Polypropylen (30% Glasfaseranteil).

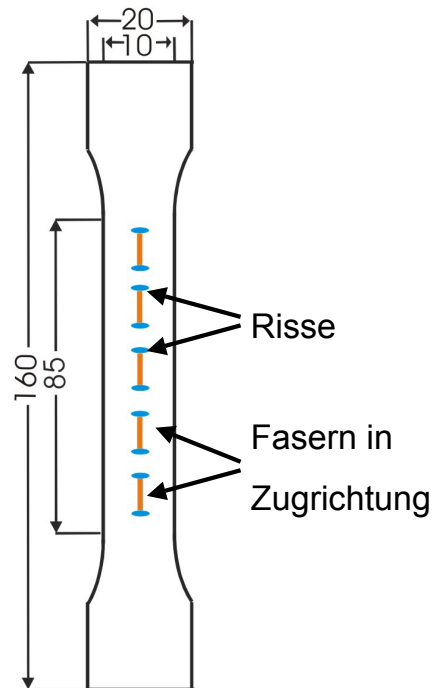


Abbildung 6.11: Abmessungen der Zugstäbe. Die Fasern sind überwiegend in Zugrichtung ausgerichtet. Bei der Schädigung sind die entstehenden Matrixrisse überwiegend senkrecht zu den Fasern orientiert.

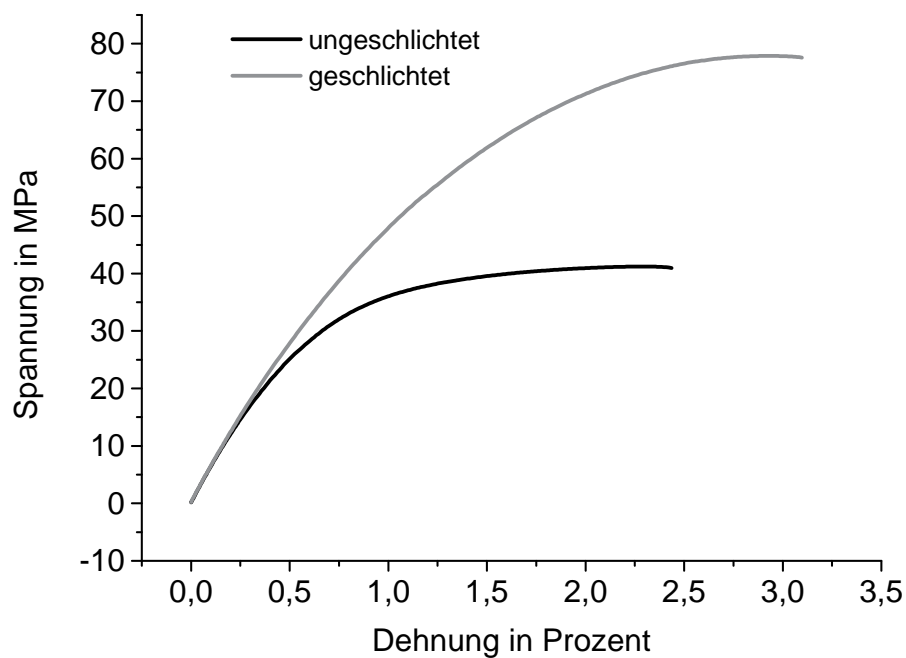


Abbildung 6.12: Spannungs-Dehnungs-Diagramm für ungeschichtetes und geschichtetes PP mit 30% (Gew.) Glasfaseranteil.

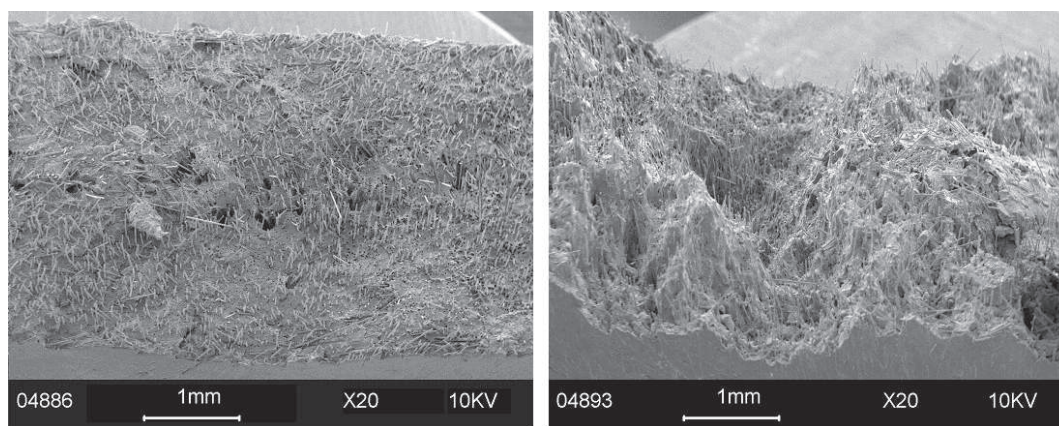


Abbildung 6.13: REM-Aufnahme der Bruchfläche von Proben mit schlechter (links) und guter (rechts) Faser-Matrix-Haftung.

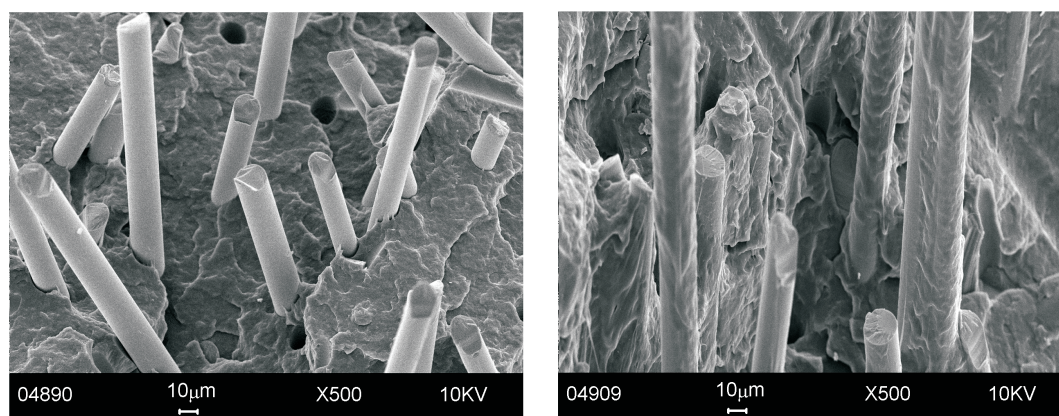


Abbildung 6.14: Detail-REM-Aufnahme von Proben mit schlechter (links) und guter (rechts) Faser-Matrix-Haftung.

Bruchverhalten: Bei den Proben mit schlechter Faser-Matrix-Haftung ist die Bruchfläche relativ glatt (Abbildung 6.13, links), bei den Proben mit guter Haftung (Abbildung 6.13, rechts) hingegen stark zerklüftet. Dies hatte zur Folge, dass nach einem Zerreißen der Proben die beiden Bruchflächen bei schlechter Haftung getrennt waren, während die beiden zerklüfteten noch ineinander hakten. Dieser Unterschied lässt vermuten, dass der Bruch bei guter Haftung langsamer abläuft als bei schlechter. Bei einer Vergrößerung der mit dem Rasterelektronenmikroskop erhaltenen Bruchflächenbilder ist bei schlechter Faser-Matrix-Haftung das Herauslösen der Fasern aus der Matrix zu erkennen (Abbildung 6.14, links). Die Proben versagen vorzugsweise an der Grenzschicht. In Proben mit guter Haftung klebt Matrix an den Fasern (Abbildung 6.14, rechts), was ein Versagen der Matrix vermuten lässt.

Charakterisierung geschädigter Proben mit der Röntgenrefraktionstopographie

Um den optimalen Streuwinkel für die Messungen zu bestimmen, wurden Streuwinkel-scans an ungeschädigten und geschädigten Zugproben durchgeführt. Bei einem Streuwinkel oberhalb 1,8 Bogenminuten sind sowohl die Proben mit und ohne Schlichte als auch die geschädigten von den ungeschädigten Proben mit ausreichendem Kontrast zu unterscheiden. Auf diesem Streuwinkel wurde der Schadensanstieg durch Zug für verschiedene Belastungsstufen untersucht. Die Charakterisierung begann an den Proben im ungeschädigten Zustand. Danach erfolgte die Schädigung an einer Zugprüfmaschine (Zwick BLA). Die gewünschte Dehnung wurde angefahren, zehn Minuten gehalten und dann entlastet. Anschließend wurden die Proben für zwölf Stunden im Normalklima gelagert (Temperatur: 23°C, Feuchte: 50%²). In dieser Zeit sind alle reversiblen Relaxationsprozesse im Material abgeklungen. Die Messung der Proben im geschädigten Zustand schließt den Charakterisierungszyklus ab. Die gleichzeitige Untersuchung einer ungeschädigten Referenzprobe ermöglicht die rechnerische Kompensation etwaiger Änderungen des Streuwinkels (z.B. durch Schwankung des Hauptstrahls). Alle Messungen wurden im entspannten Zustand der Proben durchgeführt, so dass keine direkten Aussagen über den belasteten Zustand möglich sind. Es wird angenommen, dass die verbleibende Rissdichte nach der Entspannung proportional zur Rissdichte bei Belastung ist.

Die Schädigung äußert sich integral über die gesamte Probe durch einen Anstieg des Refraktionssignals im Vergleich zum unbelasteten Zugstab. Bei horizontaler Probenausrichtung erkennt man im Refraktionssignal die Schäden an der Faser-Matrix-Grenzfläche, bei vertikaler Probenausrichtung werden die Schäden in der Matrix detektiert (siehe Kapitel 5.2.2). Die Abbildung 6.15 zeigt den schädigungsbedingten Signalhub in Abhängigkeit von der Dehnung jeweils für die Proben mit guter und schlechter Faser-Matrix-Haftung. Für Matrixschädigung (Abbildung 6.15 oben) ergibt sich in beiden Fällen am Anfang ein linearer Anstieg, wobei die Geradensteigung für das ungeschlichtete Material größer ist. Ab 2,0% Dehnung kommt es jeweils zu einem starken Anstieg der schädigungsbedingten Signaldifferenz. Beim geschlichteten Material setzt sich der Anstieg auch für 3% Dehnung fort. Das ungeschlichtete Material weist beim Bruch (ca. 2,6% Dehnung) einen Abfall im Signalverlauf auf, der möglicherweise auf einen Zusammenschluss der bis zu dieser Dehnstufe entstandenen kleinen Risse zu größeren Rissen hinweist, die eine kleinere innere Oberfläche haben³. Eine andere mögliche Erklärung wäre, dass die Proben eine geringere Schädigung aufweisen, da sie bereits beim langsamen Anfahren der Spannung brachen und das zehnmütige Halten der Spannung fehlt. Für die Schädigung an der Faser-Matrix-Grenzfläche (Abbildung 6.15 unten) ist ein ähnliches Verhalten zu er-

²DIN EN ISO 291-25/50-2

³Die Fusion von Mikrorissen zu Makrorissen resultiert in einer kleineren inneren Oberfläche, da die lokale Entspannung zur Schliessung anderer Risse führt, die nicht an der Fusion beteiligt sind.

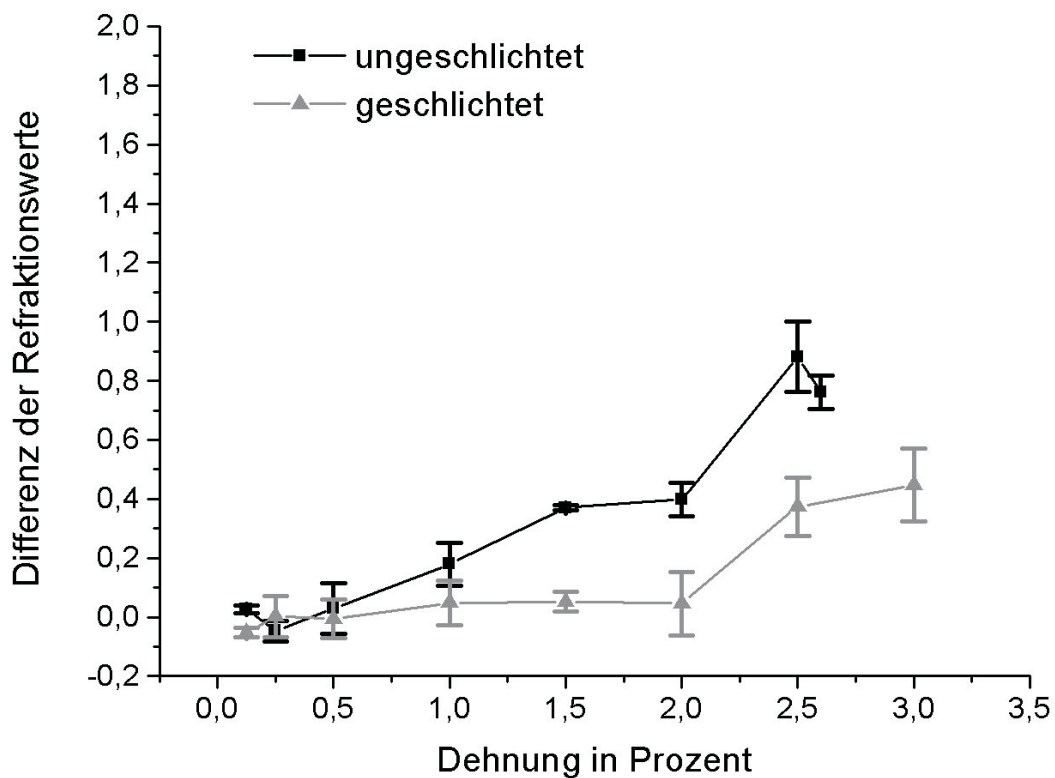
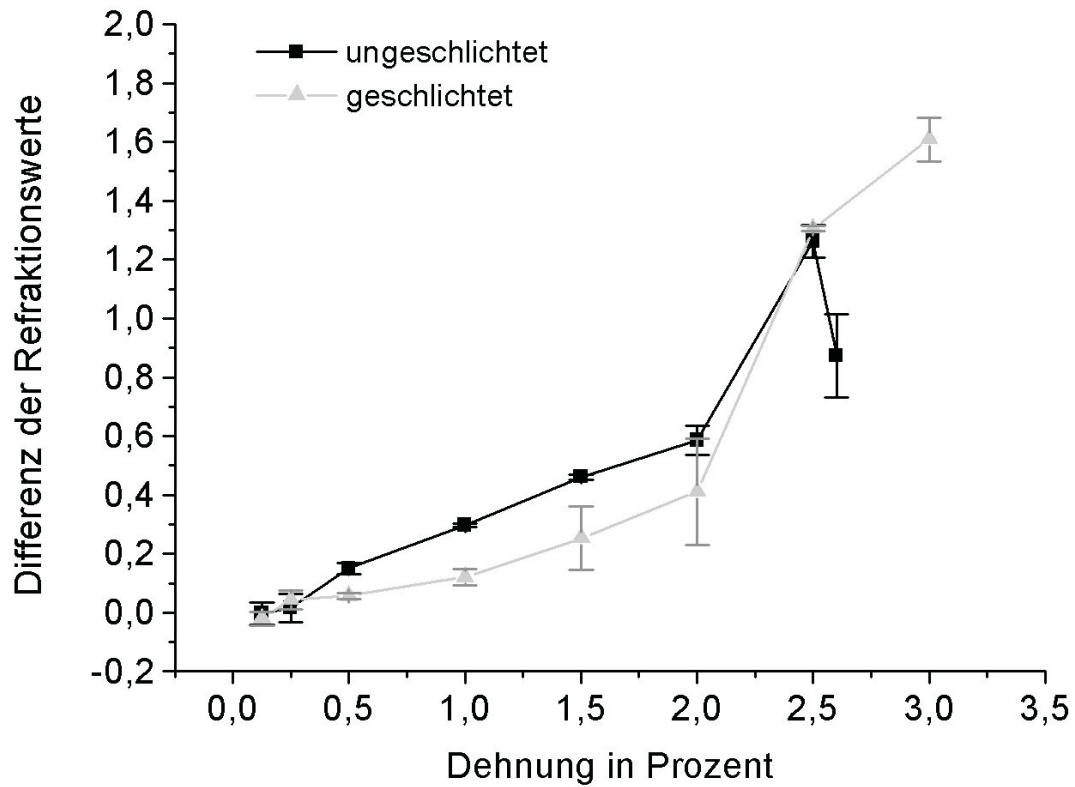


Abbildung 6.15: Schädigung der Matrix (oben) und der Faser-Matrix-Grenzfläche (unten) für geschichtetes und ungeschichtetes faserverstärktes Polypropylen. Das ungeschichtete Material bricht bei ca. 2,6% Dehnung. Die Messpunkte sind zur besseren Visualisierung mit Linien verbunden.

kennen: Nach einem linearen Anstieg des Signals (erneut eine größere Geradensteigung für die ungeschlichteten Fasern) folgt ab 2,0% Dehnung ein Bereich größerer Signaldifferenzen. Für die ungeschlichteten Fasern wird auch hier bei ca. 2,6% Dehnung (Bruch) ein Signalabfall beobachtet. Als Erklärung bieten sich wieder das Zusammenwachsen vieler kleiner Risse zu größeren und schlechter detektierbaren Rissen an, bzw. das sich ändernde Schädigungsbild beim Bruch durch die fehlende Haltephase.

Die geringere Signaldifferenz zwischen geschädigtem und ungeschädigtem Zustand für die Faser-Matrix-Grenzfläche beweist, dass die Matrixschädigung dominiert. Hier wird wieder deutlich, dass die Schlichte verstärkend wirkt. Bis zu einer Dehnung von 2,0% ist de facto keine schädigungsbedingte Signaländerung messbar. Die Spannung wird von der Matrix aufgenommen und durch kleine Risse abgebaut. Dies macht sich durch höhere Signaldifferenzen zwischen geschädigter und ungeschädigter Probe bemerkbar (siehe Abbildung 6.15 oben). Ab 2,5% Dehnung kann auch die beschlichtete Faser die Matrix nicht mehr halten: Die Matrix gleitet an der Faser ab, und es entstehen zusätzliche Grenzflächen. Diese Entwicklung setzt sich bis zum Bruch fort.

Um die Aussagefähigkeit der Ergebnisse abzuschätzen, wurden auch in diesem Fall Vergleichsmessungen mit anderen ZfP-Verfahren durchgeführt, mit denen die Schädigung ebenfalls detektiert und verfolgt wurde. Diese Vergleichsmessungen wurden an denselben Proben durchgeführt wie die Röntgenrefraktionstopographie. Zur Bestimmung der schädigungsbedingten Signalveränderung wurden ungeschädigte Proben vergleichend untersucht.

Charakterisierung geschädigter Proben mittels Thermografie

Die am IKP-ZfP (Institut für Kunststoffprüfung und Kunststoffkunde) entwickelten Lockin-Thermografieverfahren ermöglichen die Abbildung thermischer Grenzflächen im Werkstück. Die optisch angeregte Lockin-Thermografie (OLT) liefert dabei Informationen über alle im Material vorhandenen Grenzflächen, während die ultraschallangeregte Lockin-Thermografie (ULT) selektiv jene Grenzflächen anzeigt, an denen durch Reibung im Probeninneren Wärme entsteht (siehe Kapitel 8.2.3). Eine Charakterisierung der geschädigten Polypropylenproben mit ultraschallangeregter Lockin-Thermografie ist leider auf Grund der kleinen Probengröße nicht möglich: die Zugproben sind zu klein, um den Ultraschall reproduzierbar einleiten zu können. Daher erfolgte der Vergleich nur mit OLT.

Um die Schädigung integral über die Probendicke zu erfassen, wurden zuerst die Messmöglichkeiten in Transmission ausgelotet. Bei einer Modulationsfrequenz von 0,08 Hz war der durch Reflexion an den Probenrändern entstehende Randeffect klein genug, um den Phasenwinkel in einem Probenbereich akzeptabler Größe auszuwerten. Leider sind die Fehler der Messungen so gross und die Phasenwinkeländerungen so gering, dass die un-

terschiedlichen Probenarten nicht voneinander zu trennen sind (s. Abb. 6.16).

Alternativ bietet sich noch die Charakterisierung in Reflexion an. Im Gegensatz zur Transmissionsmessung ist der Zusammenhang zwischen Phasenwinkel und Probendicke nicht mehr linear. Bei einer Modulationsfrequenz von 0,1 Hz sind immerhin die geschichteten von den ungeschichteten Proben zu unterscheiden (s. Abb. 6.17). Darüber hinaus ist leider keine Zuordnung der Phasenwerte zu verschiedenen Dehnstufen der Proben möglich. Die gemessenen Phasenänderungen sind zu klein und gehen in der Standardabweichung (gemessen über die Probe) unter. Eine Bestimmung des Schädigungsgrades einzelner Proben ist mit Hilfe von Thermografieverfahren nicht möglich.

Charakterisierung geschädigter Proben mit Ultraschall

Zur Bestimmung der elastischen Eigenschaften wurden geschichtete und ungeschichtete Proben mit longitudinalem Ultraschall (Wasserankopplung, Prüffrequenz: 10 MHz) untersucht. Es wird die Laufzeit durch die Probe gemessen und mit Hilfe der bekannten Probendicke die Schallgeschwindigkeit bestimmt. Gemessen wird in der Probenmitte. Beide Probensorten zeigen eine Abnahme der Schallgeschwindigkeit im Rahmen der Fehlergrenzen (siehe Abb. 6.18). Der Zugversuch hat den Faser-Matrix-Verbund gedehnt und erweicht, was eine kleinere Schallgeschwindigkeit bewirkt. Die Schallgeschwindigkeitsänderung ist für das geschichtete Material kleiner (Geradensteigung: (-5 ± 2)) als für das ungeschichtete (Geradensteigung: (-27 ± 2)). Die Schlichte verstärkt also die Faser-Matrix-Haftung, und die durch die Dehnung eingebrachten Schädigungen sind geringer. Dieses Ergebnis der Röntgenrefraktionstopographie ist somit bestätigt. Eine Trennung zwischen Faser-Matrix-Schädigung und reiner Matrixschädigung (wie im Falle der Röntgenrefraktionstopographie) ist nicht möglich.

Charakterisierung geschädigter Proben mit klassischer Vibrometrie

Ziel war es, mit diesem Verfahren ebenfalls die durch Zug eingebrachte Schädigung zu charakterisieren. Zu diesem Zweck wurden die Proben mit einem Lautsprecher angeregt und mit einem scannenden Laservibrometer das Spektrum und die Schwingungsform im geschädigten Bereich der Probe ermittelt (siehe Abb. 6.19). Die Probe wurde mit zwei Drähten so gelagert, dass bei der untersuchten Schwingungsform die maximale Amplitude in der Probenmitte liegt. In den Auflagepunkten war die Amplitude minimal. Das Spektrum sollte aus mehreren Einzelmaxima bestehen, deren Breite sich schädigungsbedingt vergrößert. Über die zunehmende 3 dB-Breite der Resonanzkurven wäre die Dämpfung und damit die Schädigung der Proben charakterisiert. Die Untersuchungen zeigen, dass sich die der Biegeschwingung zugeordneten Frequenzen⁴ der Eigenschwingungen

⁴Die Schwingungsform wird durch die Vibrometersoftware visualisiert, so dass eine eindeutige Zuordnung der Frequenz zur jeweiligen Schwingungsmode der Probe möglich ist.

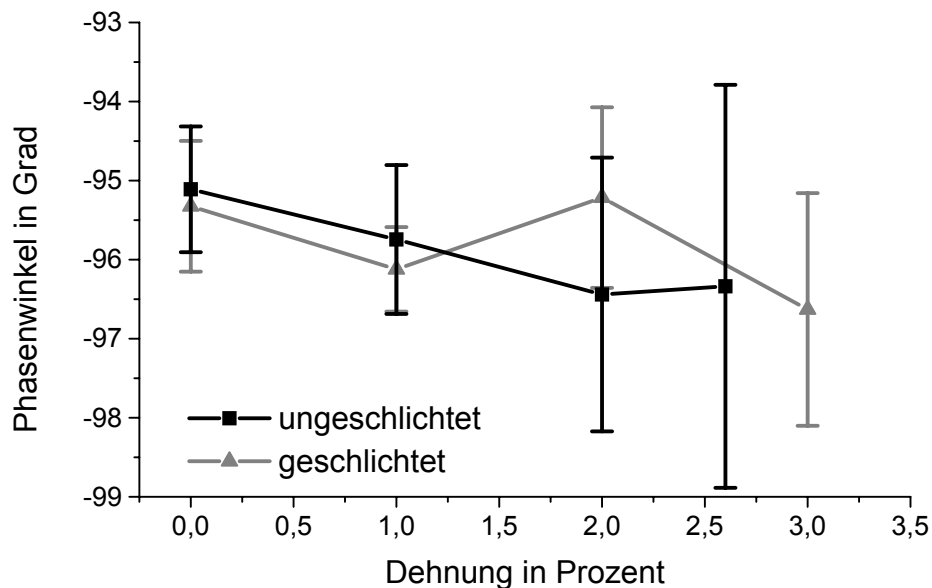


Abbildung 6.16: Ergebnisse der Charakterisierung mit OLT in Transmission (Modulationsfrequenz: 0,08 Hz). Die Fehler der Messung im Verhältnis zur Phasenwinkeländerung sind zu groß, um weiterführende Aussagen zu treffen.

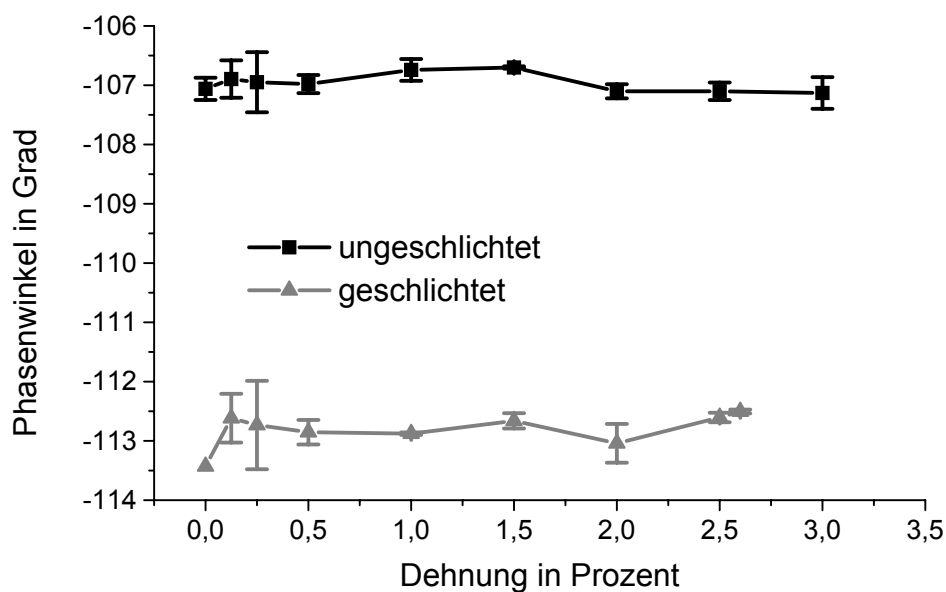


Abbildung 6.17: Ergebnisse der Charakterisierung mit OLT in Reflexion (Modulationsfrequenz: 0,1 Hz). Die Phase der thermischen Welle erlaubt eine Unterscheidung zwischen geschlichtetem und ungeschlichtetem Material. Darüberhinaus ist eine Zuordnung der Phasenwerte zu den Dehnungen der Probe nicht möglich.

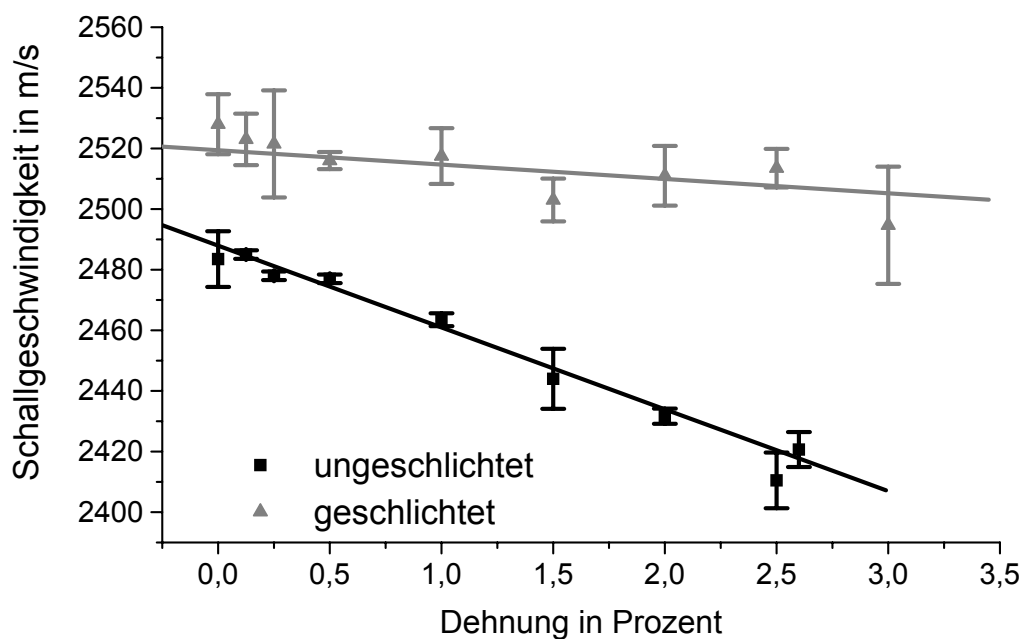


Abbildung 6.18: Ultraschallmessungen (longitudinale Wellen, $f=10$ MHz) an geschichteten und ungeschichteten Proben. Die Abnahme der Schallgeschwindigkeit mit wachsender Schädigung ist im Rahmen der Fehlergrenzen gut zu erkennen. Die Geschwindigkeit der ungeschichteten Proben bei 2,5% und 2,6% Dehnung ist im Rahmen der Fehler gleich.

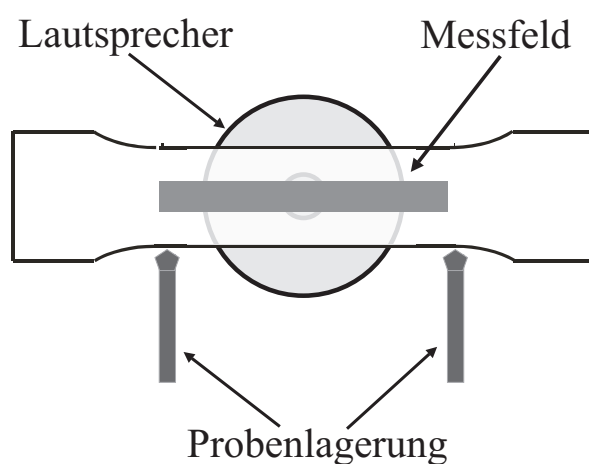


Abbildung 6.19: Versuchsaufbau zur Charakterisierung der Proben mittels Vibrometrie.

nicht einfach trennen liessen. Es entsteht ein quasi-kontinuierlicher Frequenzverlauf, in dem sich die zunehmende Schädigung durch ein Zu- und Abnehmen der Amplitude zeigt (siehe Abb. 6.20). Die Bestimmung von 3 dB-Breiten einzelner Resonanzen war nicht möglich. Wird nur die Maximalamplitude der Mittenfrequenz zur Auswertung herangezogen, so ergibt sich für die ungeschichteten Proben bei einer Frequenz von 4913 Hz eine leichte Amplitudenabnahme, was für eine Minderung der Steifigkeit der Proben spricht (siehe Abb. 6.21). Die Fehlerbalken markieren die Standardabweichung durch Mehrfachmessung an der selben Probe. Ihre Grössen zeigen das Problem dieser Methode auf: eine reproduzierbare Lagerung der Probe ist nur in Grenzen gegeben. Aus diesem Grund wurde auf eine Charakterisierung der geschichteten Probe verzichtet.

Fazit des Verfahrensvergleiches

Die Charakterisierung dieser Zugstäbe zeigt, dass die Röntgenrefraktionstopographie den Schädigungszustand dieser Proben am besten erfassen kann. Keines der vergleichend genutzten Verfahren konnte den Schädigungszustand quantitativ bestimmen. Für Thermografieverfahren waren die gemessenen Phasenwinkeländerungen im Rahmen der Messfehler zu gering. Dies gilt ebenso für die klassische Vibrometrie. Einzig die Ultraschallmessung in Tauchtechnik konnte für beide Probensorten den unterschiedlich starken Schaden detektieren. Eine Unterscheidung zwischen Faser-Matrix und reiner Matrixschädigung war nur mit Röntgenrefraktometrie möglich.

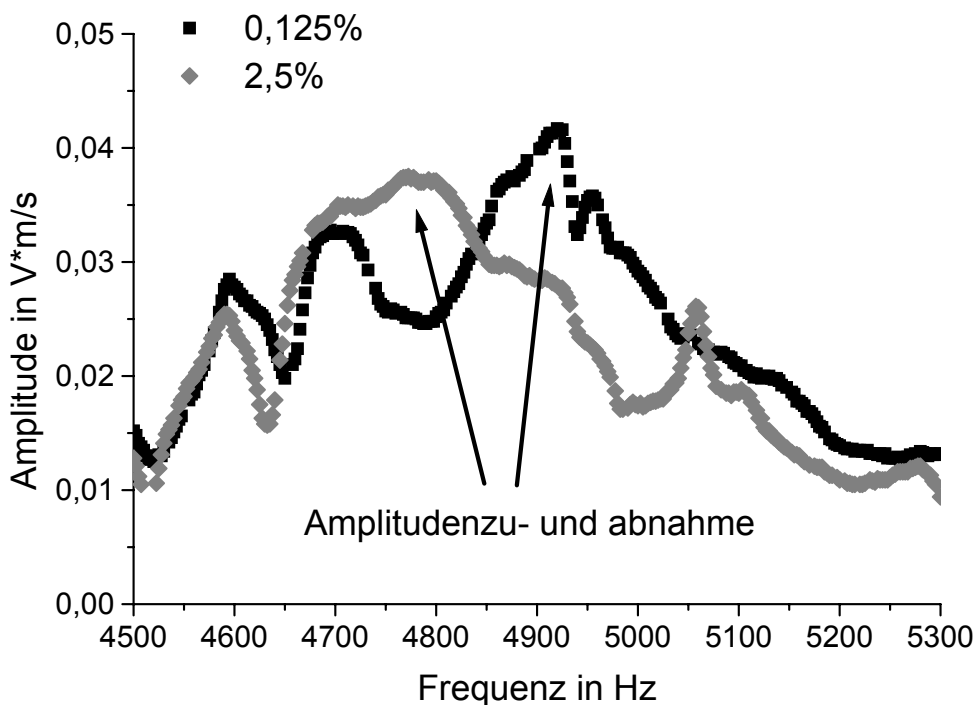


Abbildung 6.20: Resonanzkurven für das ungeschichtete Material nach unterschiedlichen Belastungen. Die Schädigung äussert sich durch eine Absenkung der Frequenz des Maximums um etwa 150 Hz (entsprechend etwa 3%).

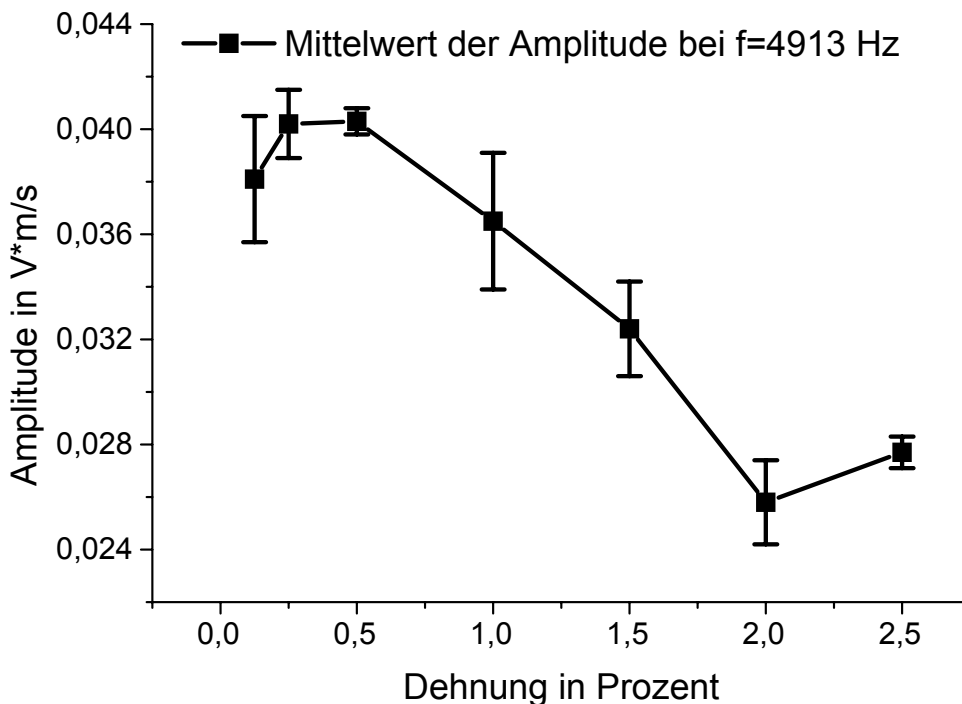


Abbildung 6.21: Mittelwerte der Amplitudenmaxima für eine Frequenz von 4913 Hz (erste Biegemode). Im Rahmen der Fehler nimmt die Amplitude ab einer Dehnung von 1,5% leicht ab.

6.1.3 Orientierungsmessungen mit Röntgenrefraktionsverfahren

Die Festigkeit von Faserverbundwerkstoffen wird wesentlich durch die Faser-Matrix-Haftung und die Ausrichtung der Fasern beeinflusst. Eine Möglichkeit, Faserorientierungen zu bestimmen, besteht darin, das Prüfobjekt zu zerschneiden und an den polierten Probenseiten die elliptischen Schnittflächen der Fasern hinsichtlich Achsenverhältnis und Achsenrichtung auszuwerten. Dieses Verfahren ist allerdings sehr zeitaufwendig, vor allem, wenn grössere Probenbereiche untersucht werden sollen. Darüber hinaus ist das Prüfobjekt nach der Untersuchung nicht mehr verwendbar.

Alternativ bieten sich zerstörungsfreie Prüfmethoden an. Mit Mikrowellenrasterverfahren sind unter Ausnutzung polarisationsabhängiger Effekte Faserorientierungen in plattenförmigen Bauteilen aus nicht leitenden Werkstoffen messbar [40]: Wenn der Brechungsindex von der Polarisationsrichtung des elektromagnetischen Feldes abhängt, ist die Resonanzlänge eines in Reflexion betriebenen Resonators mit eingebrachter Probe von der Richtung des \vec{E} -Vektors abhängig. Die zur Einstellung der Resonanz erforderliche Änderung der Resonatorlänge ist ein Mass für den Orientierungsgrad der Fasern: Statistisch verteilte Fasern liefern ein winkelunabhängiges Signal; unidirektional ausgerichtete Fasern bewirken hingegen bei Drehung des \vec{E} -Vektors einen doppelperiodischen Signalverlauf (s. Abb. 6.22, links).

Optisch angeregte Lockin-Thermographie nutzt die richtungsabhängigen Ausbreitungseigenschaften thermischer Wellen zur Faserorientierungsbestimmung aus. Bei punktförmiger modulierter Erwärmung mit einem Laserstrahl ist das Feld der thermischen Welle elliptisch [42]. Die Parameter der Ellipse (Achsenverhältnis, Richtung) spiegeln dabei Grad und Richtung der Anisotropie wieder. Abbildung 6.23, links zeigt den Messaufbau. Der Laserstrahl wird durch Verwendung eines holographischen Kreuzgitters in eine Punktmatrix aufgespalten, so daß die Faserorientierung an mehreren Probenpunkten simultan erfasst werden kann. Als Messbeispiel wurde eine CFK-Probe mit zwei senkrecht aufeinander stehenden Faserorientierungen verwendet. Die Dicke der jeweiligen CFK-Schicht einer Orientierung nimmt treppenartig ab. Die Messung (Abbildung 6.23, rechts) bei einer Frequenz von $f=0,03$ Hz zeigt links eine waagerechte Orientierung der Phasenellipsen. Durch die Abnahme der Deckschichtdicke ändert sich auch das Achsverhältnis der Phasenellipsen, so daß auf der rechten Seite die Ellipse senkrecht orientiert ist. Tiefenaufgelöste Untersuchungen sind mittels Frequenzvariation möglich (siehe Anhang 8.2.3). Auf Grund der thermischen Ähnlichkeit von Glasfaser und Matrixmaterial ist das Verfahren nicht auf glasfaserverstärkte Kunststoffe anwendbar [42].

Mit Ultraschall ist die Erfassung von Faserorientierungen ebenfalls möglich, weil eine einfallende Welle reflektiert wird, wenn der Schall senkrecht auf eine Mantellinie der Faser fällt. Bei Schrägeinschallung liefern nur die Fasern scharfe Reflexe, die ebene Bauteiloberfläche trägt hingegen nicht zu einem Echo bei [41]. Zusätzlich zum Mikrowellenverfahren,

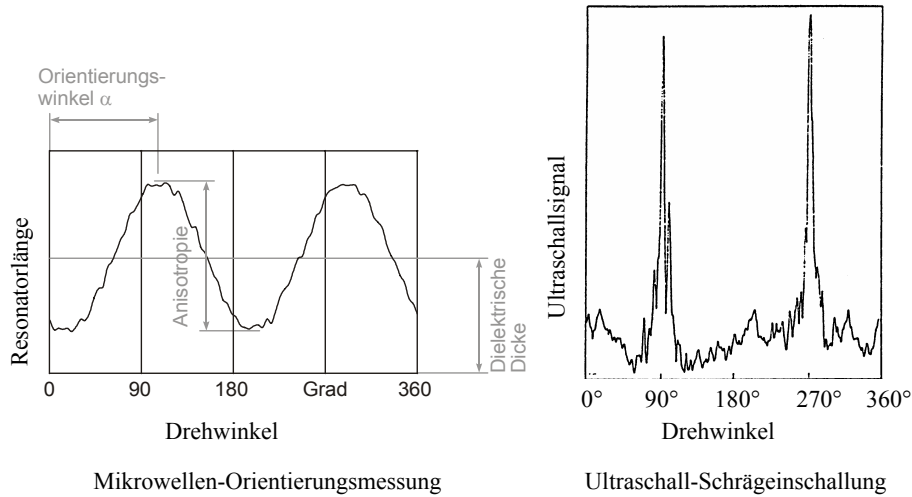


Abbildung 6.22: Signalverlauf bei Orientierungsmessungen mit Mikrowellen (links, schematisch [40]) und mit Ultraschall-Schrägeinschallung (rechts, an GFK-Laminat mit $0^\circ/90^\circ$ -Lagen [41]).

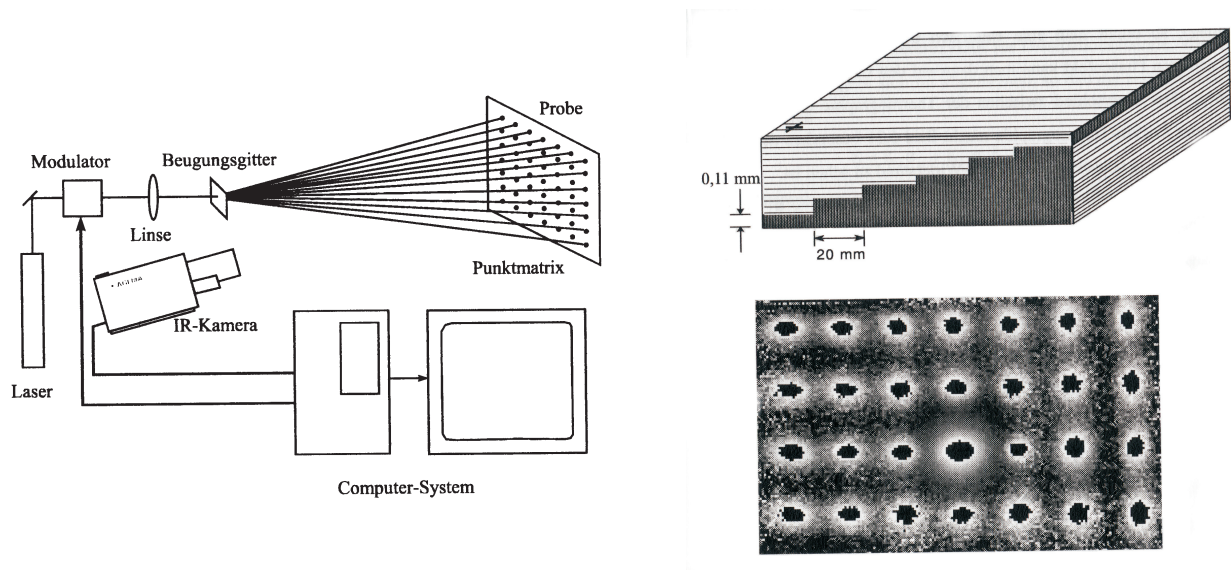


Abbildung 6.23: Orientierungsmessung mit Lockin-Thermografie [42]:

Links: Um mehrere Messpunkte simultan zu erfassen, wird die Temperatur durch Aufspaltung des Laserstrahls mit einem Kreuzgitter an vielen Punkten der Probe moduliert.

Rechts: Messergebnis in Reflexion an einer CFK-Probe mit zwei aufeinander senkrecht stehenden Faserorientierungen ($f=0,03$ Hz). Die Dicke der oberen unidirektionalen Schichten nimmt nach rechts treppenartig ab.

welches eine über die Bauteildicke integrierte Faserorientierung liefert, erhält man hier durch die Zeitabhängigkeit des Ultraschallsignals tiefenbezogene Daten. Wie das Beispiel in Abbildung 6.22 (rechts) zeigt, sind orthogonale Faserorientierungen mittels Schrägeinschallung gut trennbar. Das Mikrowellenverfahren hätte bei diesem 0/90-Laminat ein isotropes Signal geliefert, da der dielektrische Tensor nur zweistufig ist.

Der Vorteil von Schrägeinschallung mit Kontakttechnik ist die einseitige Zugänglichkeit der Probe. Soll eine Benetzung der Probenoberfläche mit Kontaktmittel vermieden werden, bleibt nur Luftultraschall. Orientierungsmessungen werden hier mittels Lambwellen durchgeführt. Wenn der Einstrahlwinkel um den Winkel Θ relativ zur Normalenrichtung der Probenoberfläche verkippt wird, kann bei einem bestimmten Winkel Θ_0 ein resonanzartiges Transmissionsmaximum auftreten, das die Erzeugung von Lambwellen anzeigt (s. Abb. 6.24, mitte und links). Aus der Schallgeschwindigkeit in Luft und dem Einfallswinkel Θ_0 lässt sich die Lambwellengeschwindigkeit berechnen: $c_{Lamb} = \frac{c_{Luft}}{\sin \Theta_0}$ ([43], [44]). Bei anisotropen Materialien sind Θ_0 und c_{Lamb} von der Einfallsrichtung α_{US} abhängig. Die Faserorientierung ergibt sich dann aus dem Maximum der Lambwellen-Geschwindigkeit bei Auftragung über dem Azimutwinkel α_{US} . Eine Messung an Buchenholz-Furnier (s. Abb. 6.24, rechts) zeigt das Potential der Methode [45]. Die Faserorientierung in der untersuchten Probe ist klar zu erkennen. Auch bei orthogonalen Strukturen funktioniert die Methode. Da die Lambwelle eine Plattenwelle ist und die Intensitäten des Luftultraschalls noch gering sind, eignet sich dieses Verfahren aber nur für dünne Bauteile. Die Radiografie bietet bisher keine befriedigende Abbildung von Faserorientierungen. Die hochauflösende Röntgen-Computertomographie hingegen ist in der Lage, verschiedene Faserorientierungen bei ausreichendem Kontrast durch Absorption zwischen Fasern und umgebender Matrix zu trennen. Die Bestimmung einer dreidimensionalen Orientierungsverteilung der tomographierten Volumens ist nur mit komplexen Algorithmen möglich [46]. Mittels Röntgenweitwinkelstreuung ist die Orientierung von Kohlenstoff- und Polymerfasern auf Grund deren molekularer Anisotropie zerstörungsfrei bestimmbar. Für isotrope und nichtkristalline Glasfasern scheidet dieses Verfahren jedoch aus [47].

Die Röntgenrefraktionsverfahren hingegen nutzen die orientierte Strahlaufweitung an Fasern (s. Abb. 6.25) für Orientierungsmessungen aus. Im folgenden wird die Aussagefähigkeit solcher Messungen auch im Hinblick auf Messzeit und Streuwinkel untersucht, und zwar beispielhaft an Kohlefaserkompositen. Messungen an GFK hätten zu ähnlichen Ergebnissen geführt.

Besonderheiten der Orientierungsmessung mit Röntgenrefraktionsverfahren

Das Ergebnis der Orientierungsmessung mit Röntgenrefraktionsverfahren hängt stark von den Streueigenschaften der Materialien ab, aber auch vom Versuchsaufbau. Zunächst erfolgen einige grundlegende Betrachtungen zu den einzelnen Einflussgrößen.

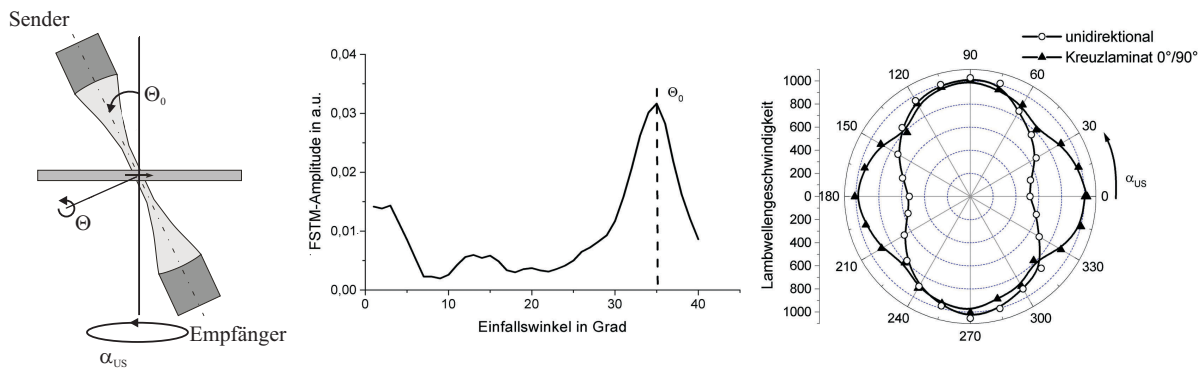


Abbildung 6.24: Links: Messaufbau für Orientierungsmessungen mit Lambwellen.

Mitte: Ermittlung von Θ_0 über einen Drehscan.

Rechts: Orientierungsmessungen an einem 0,8 mm dicken Buchenholz-Funier [45]. Das Verfahren erfasst die beiden $0^\circ/90^\circ$ Orientierungen in der Probe.

Wahl des Streuwinkels Abbildung 6.25 zeigt die Intensitätsverteilung bei Brechung von Röntgenstrahlung an einem Glasfaserbündel bei Punktkollimation. Nach einem etwas breiteren Fuss folgt nach außen ein schmaler werdender Ausläufer zu grösseren Streuwinkeln hin. Bei zusätzlichen Fasern oder bei Rissen mit anderen Orientierungen überlagern sich die Streuphänomene additiv. Befindet sich der Messspalt im Fuss des Streuphänomens, sind die Intensitätsverteilungen kaum zu trennen. Je grösser der Streuwinkel ist, bei dem der Messspalt beginnt, desto besser sind (wahrscheinlich) die richtungsabhängigen Refraktionsunterschiede trennbar, und umso höher ist aber auch die Messdauer. Da Probeninhomogenitäten sich sowohl im Refraktions- als auch im Absorptionssignal äussern, wird der Verlauf des Refraktionswertes über dem Drehwinkel der Probe zur Bestimmung von Orientierungen herangezogen. Der Streuwinkel wird so einjustiert, dass der Refraktionswert maximal ist (siehe Abb. 5.10). Dort ist die Trennung verschiedener Orientierungen am besten möglich, da sich hier Unterschiede im Refraktionswert am stärksten äussern. Messungen auf höheren Streuwinkeln und somit eine möglicherweise bessere Orientierungstrennung sind auf Grund der steigenden Messzeit nicht sinnvoll.

Strahlkollimation Wegen der Strichkollimation der benutzten Kratkykamera ist der Strahlquerschnitt rechteckig mit der längeren Seite in der Horizontalen. Dadurch steht mehr Intensität zur Verfügung, das reale Streusignal wird aber über dem Drehwinkel entsprechend der Spaltgeometrie "verschmiert". Eine analytische Rückrechnung ist nicht direkt möglich [21]. Die Entfaltung kann allerdings numerisch erfolgen, wenn eine ideal orientierte Referenzprobe vorhanden ist [21]. Bei Punkt-

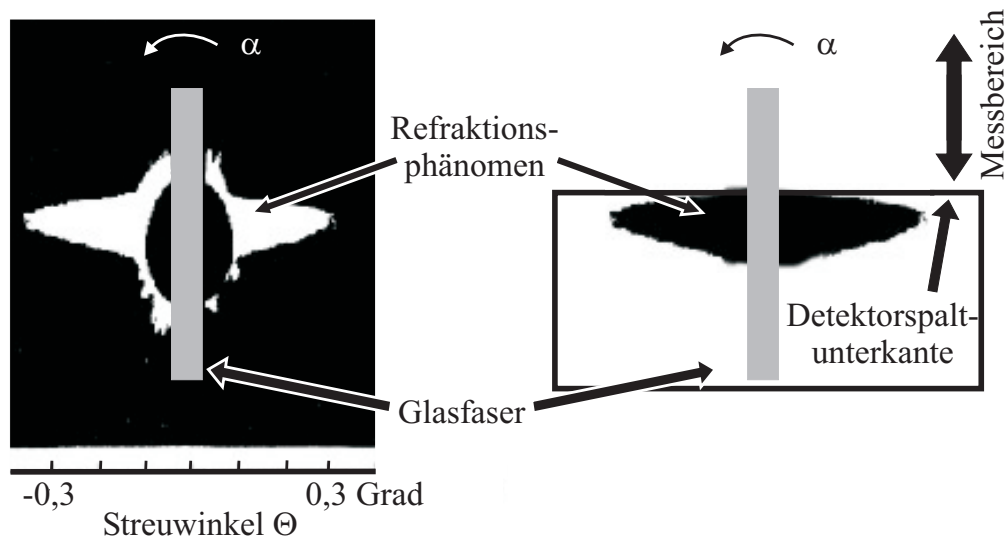


Abbildung 6.25: Links: Brechung von Röntgenstrahlung an einem vertikalen Glasfaserbündel mit hochauflösender Punktkollimation [48].

Rechts: Darstellung der Brechung in der Detektionsebene der Apparatur. Erst nach Drehung der Faser um α wird das Refraktionsphänomen vom Detektor erfasst. Eine detailliertere Darstellung zeigt Abbildung 8.4.

kollimation (Pinhole-Streukammer nach Kiessig) treten diese Probleme nicht auf, die Intensitäten sind allerdings geringer.

Wahl der Detektorspalthöhe Je schmaler der Detektorspalt gewählt wird, desto kleiner ist das Messsignal. Die Messzeit muss entsprechend verlängert werden. Daher wird der Detektorspalt bei den hier durchgeführten Messungen ganz geöffnet.

Die im folgenden vorgestellten Ergebnisse wurden mit offenem Detektorspalt und auf dem Streuwinkel erzielt, der den maximalen Refraktionswert liefert. Um Schwankungen der Anlage bedingt durch lange Messzeiten zu kompensieren, wurde eine isotrope Referenzprobe mitgemessen. Die Orientierungsinformation sollte sich direkt aus dem Verlauf der Refraktionswerte ergeben.

Orientierungsverlauf unidirektional orientierter Materialien

Um den Einfluss des Streuwinkels zu untersuchen, wurden am Beispiel von Buchenholz-Furnier Orientierungsmessungen auf zwei verschiedenen Streuwinkeln durchgeführt (s. Abb. 6.26). Die auf dem optimalen Streuwinkel von 1,5 Bogenminuten gemessene Verteilung (links) liefert deutlich bessere Ergebnisse. Die Orientierung der Faserkanäle ist durch die hohen Refraktionswerte im Signalverlauf klar erkennbar. Der Offset der Verteilung von 1,5 im Refraktionswert rührt wahrscheinlich von isotrop verteilten Strukturen

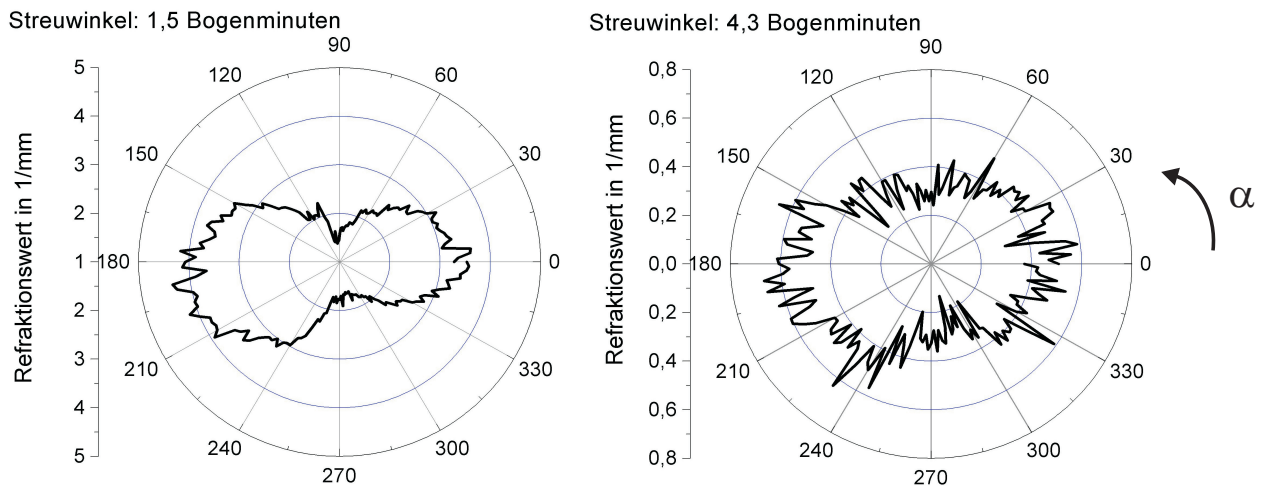


Abbildung 6.26: Orientierungsmessungen an einem Birkenholz-Funier. Die Messung auf dem für die Apparatur optimalen Streuwinkel (links) zeigt einen besseren Kontrast als die Messung auf einem grösseren Streuwinkel (rechts).

in der Probe her. Die Trennung verschiedener Orientierungen gelingt am besten auf dem „optimalen“ Streuwinkel, weil er der beste Kompromiss zwischen Messzeit und Ergebnisqualität ist. Dies ist eine Eigenschaft der Apparatur. Prinzipiell sollte der Kontrast bei ausreichender Unterdrückung des Streuuntergrundes bei höheren Streuwinkeln noch besser werden.

In Abbildung 6.26 fällt auf, dass sich keine schmalen Maxima ergeben, wie sie auf Grund der auf kleine Winkelbereiche konzentrierten Intensität (s. Abb. 6.25) zu erwarten wären, sondern ein über mehrere Grad langsam abnehmender Signalverlauf. Um eventuelle Inhomogenitäten im natürlichen Werkstoff Holz als Ursache auszuschließen, wurde der Signalverlauf zusätzlich mit einem industriell gefertigten hochorientierten und ungetränkten CFK-Roving untersucht (Abbildung 6.27). Der Refraktionswert geht hier bis auf Null herunter, da senkrecht zur Faserorientierung keine streuenden Strukturen vorhanden sind. Der doppelperiodische Verlauf folgt in guter Näherung⁵ einer \cos^2 -Funktion⁶ (Abbildung 6.27). Ursache für diesen Verlauf ist die Verschmierung der vom Refraktionsdetektor gemessenen Maxima (Herleitung siehe Anhang 8.3), da eine horizontale Auflösung des Detektorspaltes fehlt. Eine Reduzierung der Strahlbreite mit dem Ziel eines möglichst quadratischen Strahlprofils, ähnlich einer Punktkollimation, ändert nichts am prinzipiellen Verlauf (s. Abb. 6.28). Die Genauigkeit der Faserrichtungsbestimmung

⁵Modell: $y(x) = A \cdot \cos^2(x + \varphi)$ mit $A = (536 \pm 4) \cdot 10^{-2}$ und $\varphi = (-14 \pm 7) \cdot 10^{-3}$ Grad; $\chi^2 = 0,20013$

⁶Der \cos^2 -Verlauf gilt strenggenommen nur für die Intensität des Refraktionssignals. Bei **homogener** Absorption der Probe überträgt sich nur die Variation des Refraktionssignals auf die Refraktionswerte, und der \cos^2 -Verlauf kann auch hier genutzt werden.

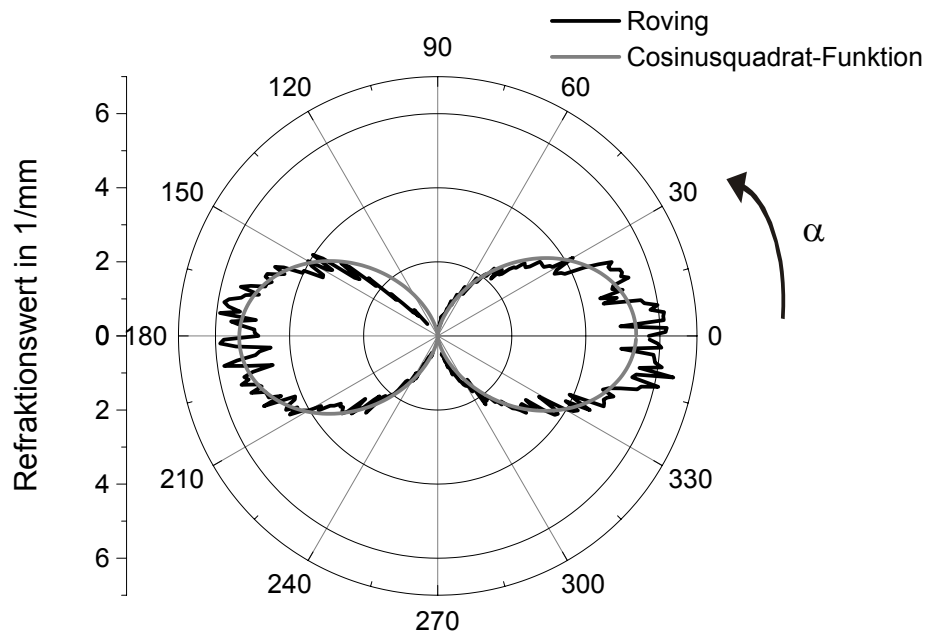


Abbildung 6.27: Orientierungsmessung an einem ungetränktem CFK-Roving. Die Messwerte folgen im Rahmen der Messgenauigkeit einer \cos^2 -Funktion.

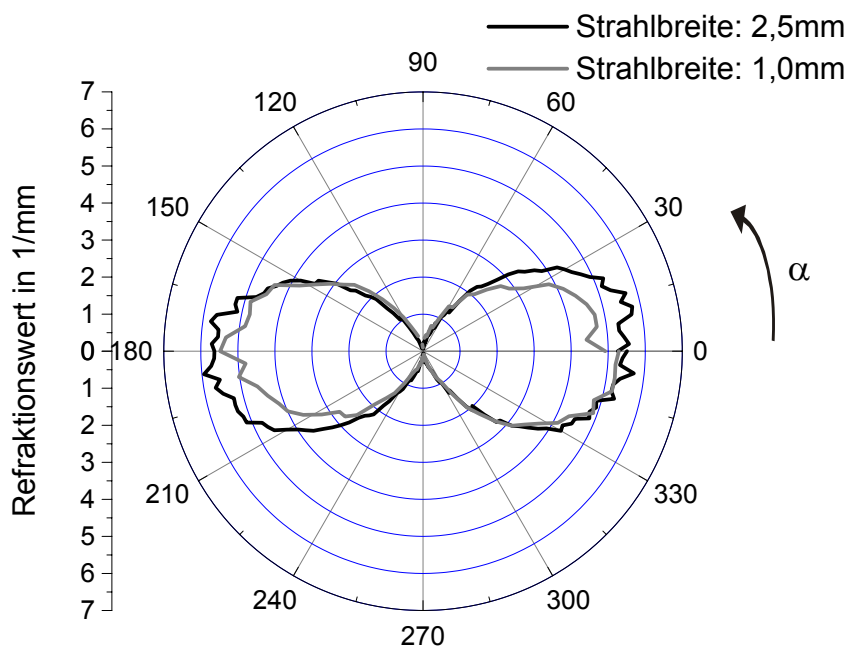


Abbildung 6.28: Orientierungsmessung an einem CFK-Roving mit unterschiedlichem Strahlquerschnitt. Der \cos^2 -förmige Verlauf lässt sich nur geringfügig schmaler gestalten. Bei einer weiteren Reduzierung des Strahlquerschnittes wird die Messzeit zu hoch. Die Unsymmetrie der Messung mit 1 mm Strahlbreite hat ihre Ursache in einem nicht-symmetrisch geschlossenen Brückenspalt.

lässt sich also mit einem Least-Square-Fit der Messdaten an die \cos^2 -Funktion oder mit einer komplexen Fouriertransformation der Messdaten steigern.

Orientierungsverlauf mit zwei Orientierungen im Material

Der \cos^2 -Verlauf der Refraktionszählrate verhindert die Trennbarkeit orthogonal zueinander stehender Strukturen⁷, wie in Abbildung 6.29 am Beispiel eines Rovings mit senkrecht zueinander stehenden Fasern gezeigt ist. Eine Verbesserung der Orientierungsmessung kann nur durch Erhöhung der horizontalen Auflösung am Detektorspalt über einen zusätzlichen vertikal positionierten Spalt erreicht werden. Leider sinkt die im Refraktionskanal gemessene Zählrate je nach Spaltgröße stark ab, so dass Schwankungen die Messung stärker beeinflussen und eine Trennung der Orientierungen vereiteln. Allerdings zeigen Modellrechnungen mit Hilfe von Gleichung 8.10 auch, dass erst ab einem Streuwinkel von ca. 3 Bogenminuten eine merkliche Änderung im ansonsten konstanten Signal auftritt (s. Abb. 6.30). Bedingt durch den Verlauf des Streuuntergrundes im Refraktionskanal wird sich diese Dynamik nicht im Refraktionswert zeigen, so dass der eben diskutierte Sachverhalt nicht verifizierbar ist. Auf Grund der niedrigen Zählraten auf so hohen Streuwinkeln ist eine Orientierungsmessung mit dieser Verbesserung nicht sinnvoll. Andere Verfahren liefern meist schnellere und exaktere Ergebnisse.

Das Ergebnis wirft die Frage auf, ob es mit Röntgenrefraktionsverfahren möglich ist, zwei Orientierungen γ_1 und γ_2 mit einem Abstandswinkel $\Delta\gamma$ kleiner als 90 Grad zu trennen. Die verschiedenen Fälle, die sich hier ergeben, zeigt schematisch Abbildung 6.31. Legt man zu einer bekannten Orientierung (die Orientierungsrichtung γ_1 sei 0 Grad) eine unbekannte unter dem Winkel $\Delta\gamma$ hinzu, so liegt das Maximum des Refraktionssignals verschoben bei $\frac{\Delta\gamma}{2}$ (Herleitung siehe Anhang 8.3, Gleichung 8.12). Voraussetzung ist dabei, dass beide Orientierungen zu gleichen Anteilen vorliegen. Ein entsprechendes Verhalten würde man auch bei einer Mikrowellenmessung finden. Der Nachteil dieser Vorgehensweise zur Bestimmung von $\Delta\gamma$ ist aber, dass eine Orientierung bekannt sein muss und dass der Winkel zwischen beiden Orientierungen nur erfasst wird, sofern er weit genug unter 90° liegt.

Es gibt allerdings eine weitere Möglichkeit, mit Röntgenrefraktionsverfahren zwei UD-Orientierungen zu trennen, wenn diese zu gleichen Anteilen auftreten. Ursache ist der für die Einzelorientierung gefundene \cos^2 -Verlauf bei der UD-Messung, wobei das Refraktionssignal auf Null zurück geht. Überlagern sich zwei Orientierungen γ_1 und γ_2 ($\gamma_2 - \gamma_1 = \Delta\gamma < 90^\circ$), werden die Refraktionssignale addiert, und das Signal geht nicht mehr auf Null zurück. In Anhang 8.3 wird gezeigt, wie mit Hilfe des Modulationsgrades \mathfrak{M} der Winkel $\Delta\gamma$ bestimmt werden kann.

⁷wegen $\cos^2(\phi) + \sin^2(\phi) = 1$

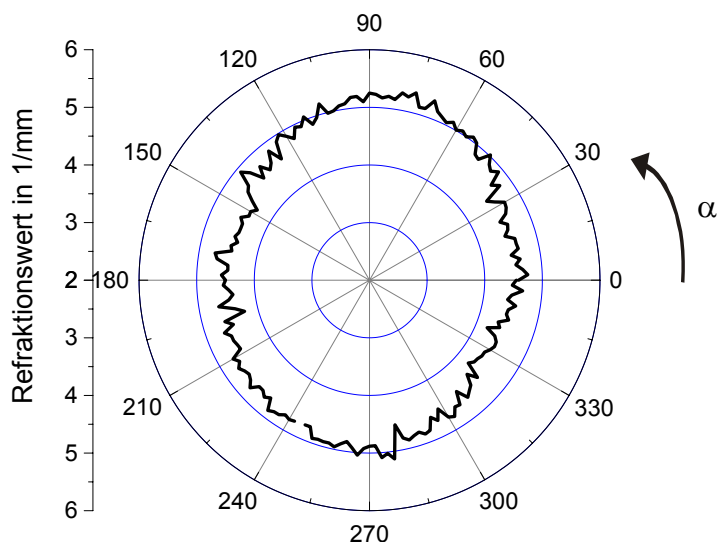


Abbildung 6.29: Orientierungsmessung an einem Roving mit orthogonal orientierten Fasern. Der errechnete Refraktionswert ist in Übereinstimmung mit der Modellrechnung nahezu konstant. Die geringen Schwankungen werden durch kleine Unterschiede im Fasergehalt hervorgerufen (mehr Fasern mit 90° als mit 0° im Strahl).

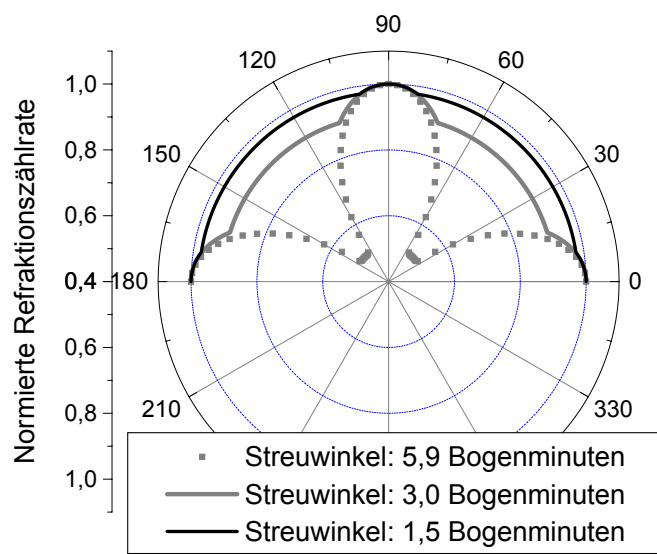


Abbildung 6.30: Modellrechnungen für das vom Refraktionsdetektor gemessene Signal bei Orientierungsmessungen an einem Roving mit 0° und 90° orientierten Fasern. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die Intensitäten auf die jeweiligen Maxima normiert. Mit wachsendem Streuwinkel scheint eine Trennung möglich. Nicht berücksichtigt ist hier der Untergrund der Kratky-Kamera, der auf diesen Streuwinkeln vergleichbar mit der von der Probe gestreuten Intensität ist.

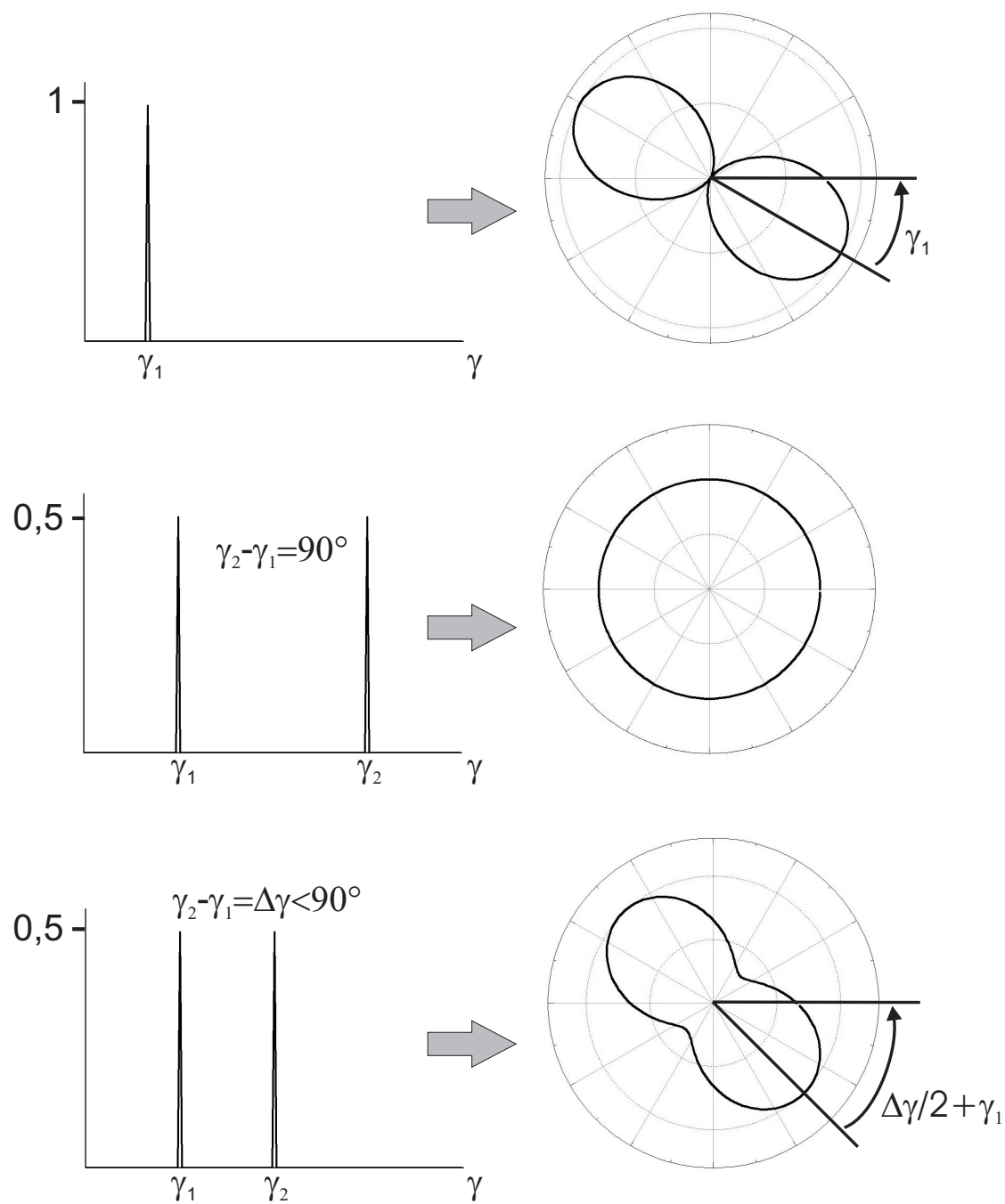


Abbildung 6.31: Schematische Darstellung der Abhängigkeit zwischen der Verteilung der Faserorientierungen und dem Refraktionssignal. Prinzipiell ergibt sich ein \cos^2 -Verlauf. Liegen die beiden Faserorientierungen γ_1 und γ_2 um 90° auseinander, folgt aus der Überlagerung beider Orientierungen ein Kreis, ansonsten ein \cos^2 -Verlauf mit einem Offset.

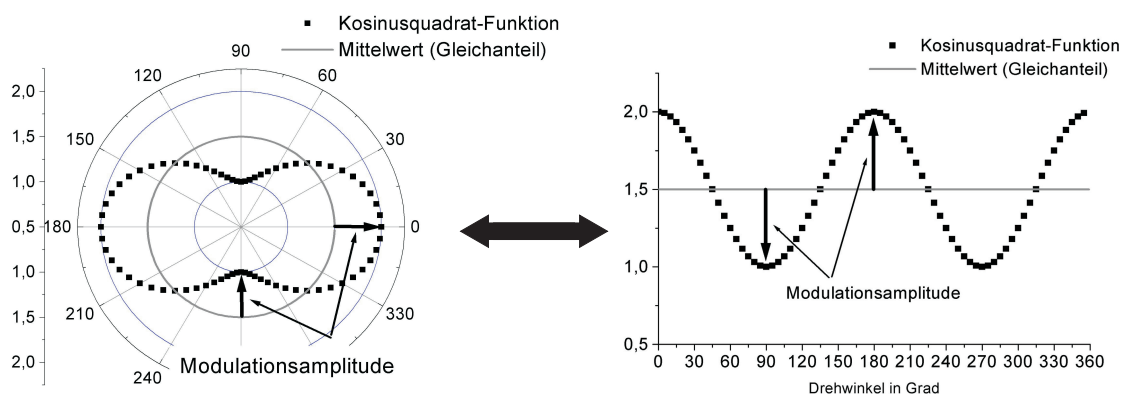


Abbildung 6.32: Veranschaulichung der Definition des Modulationsgrades (links: Polarkoordinaten, rechts: Kartesische Koordinaten).

Der Modulationsgrad ist das Verhältnis der Modulationsamplitude zum Gleichanteil (=Mittelwert) eines Signals (grafische Veranschaulichung in Abb. 6.32):

$$\mathfrak{M} = \frac{\frac{1}{2}(Max - Min)}{\frac{1}{2}(Max + Min)}. \quad (6.1)$$

Für das einfache Modell zweier überlagerter \cos^2 -Funktionen ergibt sich der Modulationsgrad in Abhängigkeit von $\Delta\gamma$ zu

$$\mathfrak{M} = \cos(\Delta\gamma). \quad (6.2)$$

Abbildung 6.33 zeigt die Ergebnisse der Orientierungsmessung an 0° und 45° orientierten Fasern. Die Bestimmung von $\Delta\gamma$ aus den Messwerten erfolgte zum Vergleich auf drei Wegen⁸:

Aus der Signalverschiebung mittels Fit	$(47,7 \pm 0,4)$ Grad
Aus dem Modulationsgrad $\mathfrak{M} = 0,69$	46,4 Grad
Aus der FFT über das Phasenspektrum	48,6 Grad
Aus der FFT über das Amplitudenspektrum	$\mathfrak{M} = 0,67 \Rightarrow \Delta\gamma = 48,2$ Grad

Alle Ergebnisse stimmen im Rahmen der Fehlergrenzen mit den erwarteten (45 ± 2) Grad (Ungenauigkeit bedingt durch Probenpräparation) nahezu überein. Das einfache Modell für den Modulationsgrad liefert bereits ein recht gutes Ergebnis. Im Anhang 8.3 wird das exakte Modell vorgestellt, welches allerdings die genaue Kenntnis der Anlagengeometrie voraussetzt. Wichtig ist, dass allein schon mit Hilfe des Modulationsgrades zu erkennen ist, dass zwei Orientierungen gleicher Häufigkeit in der Probe vorhanden sind.

⁸Zur Bestimmung mittels FFT aus dem Amplitudenspektrum: Der Gleichanteil findet sich bei der Frequenz 0, die Modulationsamplitude entspricht der größten Amplitude der Signalfrequenz.

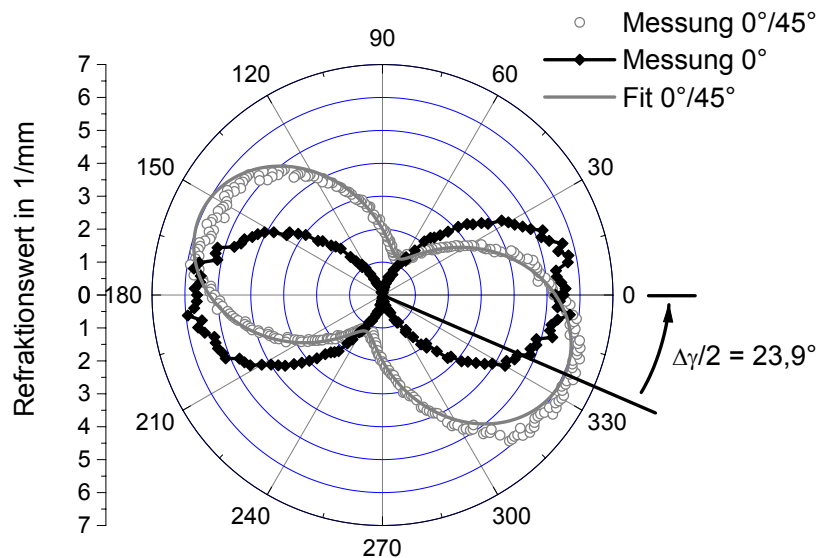


Abbildung 6.33: Messung und Fit für die Orientierungsmessungen an einem Roving mit 0° und 45° orientierten Fasern. Das Maximum der Intensität verschiebt sich um den Winkel $\frac{\Delta\gamma}{2} = 23,9^\circ$ (Modell: $\frac{\Delta\gamma}{2} = 22,5^\circ$).

Wie weit trägt die Methode, auch im Hinblick auf Verteilungsbreiten? Prinzipiell geht es um Überlagerungen sinusartiger Funktionen. Das Ergebnis gilt also auch bei kontinuierlicher Verteilung der Faserorientierungen in Folge der Linearität im Bereich der Winkel-funktionen, so dass sich prinzipiell wieder ein Bild ähnlich Abbildung 6.33 ergibt. Wenn also statt der beiden Winkel γ_1 und γ_2 eine wie im Spritzguss praxistaugliche symmetrische Verteilung angenommen wird mit dem Schwerpunkt $(\gamma_1 + \gamma_2)/2$ und einer Breite β , dann ist zu erwarten, dass die Inversion einen Wert $\Delta\gamma$ liefert, der mit der Breite β korreliert, wobei der Zusammenhang von der Verteilungsfunktion $H(\gamma)$ abhängt. In jedem Fall wäre dieser Wert $\Delta\gamma$, der einen Ersatzwert für zwei diskrete Winkel darstellt, ein Maß für die Streuung der lokalen Richtungen beim Spritzgussbauteil und somit eine für die Praxis relevante Information bei nicht-transparenten Werkstoffen. Die Messungen oben wurde an Rovings $0^\circ/45^\circ$ durchgeführt. Beim Vorhandensein einer Matrix (z.B. Spritzguss oder Laminat) wird sich noch ein rotationssymmetrischer Intensitätsanteil überlagern, der im konkreten Fall zusätzlich berücksichtigt werden muss.

6.2 Charakterisierung von Werkstoffen mit sphärischen Streukörpern

Bei sphärischen Streukörpern kann es sich um eine Ansammlung von Partikeln oder Poren handeln. Die Richtung der Strahlablenkung ist auf Grund der unterschiedlichen Vorzeichen der Brechungsindexdifferenzen für beide Streukörper verschieden (Poren: Sammellinsen, Kugeln: Zerstreuungslinsen). Im Gegensatz zu Fasern erfolgt die refraktive Kleinwinkelstreuung ohne Vorzugsrichtung (Brechung an Fasern und Poren, siehe Kapitel 3.4). Ähnlich wie bei zylindrischen Streukörpern bestehen auch hier quantitative Analysemöglichkeiten. Die im folgenden vorgestellten Messungen nutzen die Eigenschaften dieser isotropen Streuung zur Charakterisierung von Keramik.

6.2.1 Charakterisierung von Aluminiumoxid-Keramiken

Industrielle Hochleistungskeramik wird aufgrund ihrer guten mechanischen und thermischen Eigenschaften in unterschiedlichen technischen Bereichen eingesetzt, beispielsweise für Hitzeschilde im Raumfahrtbereich, Fahrzeugmotoren, medizinische Implantate und Vielschichtplatinen im Bereich der Elektronik. Die Eigenschaften keramischer Werkstoffe werden entscheidend durch den Herstellungsprozeß bestimmt, und zwar von der Pulveraufbereitung bis zur Temperaturführung beim Sinterprozess. Ziel aktueller Forschung ist es, die mechanischen und thermischen Eigenschaften zu verbessern [30]. Dies geschieht über die Optimierung von Größe und Anzahl der Poren im Werkstoff sowie über die Optimierung des Gefüges.

Zur indirekten Charakterisierung des Porengefüges stehen mehrere bewährte Verfahren zur Wahl. Die offene Porosität, also Poren, die von außen einem Gas oder einer Flüssigkeit zugänglich sind, kann mittels Wasserintrusion [49] oder Quecksilber-Druckporosimetrie [50] bestimmt werden. Unter Annahme zylindrischer Poren liefert die Quecksilber-Druckporosimetrie auch eine Verteilung der Porenradien. Beide Verfahren sind auf Grund der hohen Drücke nicht für Grünkörper geeignet. Die Lichtmikroskopische Gefügeanalyse an Schliffbildern [51] gestattet als einziges Verfahren die Bestimmung der Gesamtporosität sowie die Ermittlung der Porenform, der mittleren Porengröße und der Porengrößenverteilung. Für eindeutige Aussagen müssen die untersuchten Anschliffe eben, kratzer- und ausbruchfrei sein. Die mit den erwähnten Verfahren gemessenen Porenkennwerte sind alle methodenspezifisch, so dass ein direkter Vergleich nicht möglich ist.

Für eine Untersuchung mit der monochromatischen Raster-Radiometrie [52] [53] ist eine Zerstörung der Probe nicht nötig. Das Verfahren eignet sich für Grün- und Sinterkörper. Es beruht auf der Abschwächung eines monochromatischen Röntgenstrahls beim Durchgang durch eine Probe. Kennt man den linearen Absorptionskoeffizienten für den dichten

Werkstoff, ist mittels Gleichung 5.25 die Porosität orts aufgelöst bestimmbar. Offene und geschlossene Porosität werden hier gleichermaßen erfasst.

Das Verfahren der Röntgen-Refraktions-Topographie führt, neben der Refraktionsmessung, eine monochromatische Raster-Radiometrie im Absorptionskanal durch. Unter der Annahme kugelförmiger Poren ist eine Bestimmung der Porengrößen möglich. Die Gleichungen hierzu wurden bereits in Kapitel 5.2.5 vorgestellt.

Im folgenden sollen die Randbedingungen untersucht werden, unter denen die Röntgenrefraktionsverfahren Porenkenngrößen liefert. Am Beispiel dreier Aluminiumoxidkeramiken unterschiedlicher Sintertemperatur wird das Potential des Verfahrens aufgezeigt.

Apparative Besonderheiten bei der Bestimmung von Porenkenngrößen

Gemäss Kapitel 5.2.5 wird erwartet, dass die angeführten Zusammenhänge für die Innere Oberflächendichte ξ und den Porenradius R für alle Streuwinkel Θ gelten. Abbildung 6.34 zeigt das Verhalten von ξ über dem Streuwinkel für drei unterschiedliche Sinterstufen von Aluminiumoxidkeramik. Die experimentellen Details werden im folgenden Kapitel erläutert. Erst ab einem Streuwinkel von ca. 3 Bogenminuten ist das Ergebnis für die Innere Oberflächendichte und den Porendurchmesser im Rahmen der Messgenauigkeit stabil. Dieses Verhalten liegt im Verlauf der Refraktionszählraten begründet. Um die Innere Oberflächendichte auf die Zählraten zurückzuführen⁹, wird zunächst der Refraktionswert für grosse Werte angenähert:

$$C = \frac{1}{d} \left[\frac{I_{Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} - 1 \right] \cong \frac{1}{d} \frac{I_{Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} \quad (6.3)$$

Ersetzt man in ξ den Refraktionswert durch die Näherung, ergibt sich für die innere Oberflächendichte

$$\begin{aligned} \xi &= \xi_R \cdot \frac{C(\Theta)}{C_R(\Theta)} = \xi_R \frac{d_R}{d} \cdot \frac{\left[\frac{I_{Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} \right]}{\left[\frac{I_{R,Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)}{I_{R,Abs}/I_{Abs,0}} \right]} \\ &= \xi_R \frac{d_R}{d} \cdot \frac{I_{R,Abs}/I_{Abs,0}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} \cdot \frac{I_{Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)}{I_{R,Ref}(\Theta)/I_{Ref,0}(\Theta)} \\ &= \xi_R \underbrace{\frac{d_R}{d} \cdot \frac{I_{R,Abs}}{I_{Abs}}}_{const.} \cdot \frac{I_{Ref}(\Theta)}{I_{R,Ref}(\Theta)}. \end{aligned} \quad (6.4)$$

Das Subskript R kennzeichnet dabei die Grössen, die zur Referenzprobe gehören. Auffällig ist, dass sich die Nullzählraten beider Messkanäle wegekürzen und somit für die

⁹Das Vorgehen liefert für den Porenradius die gleichen Ergebnisse.

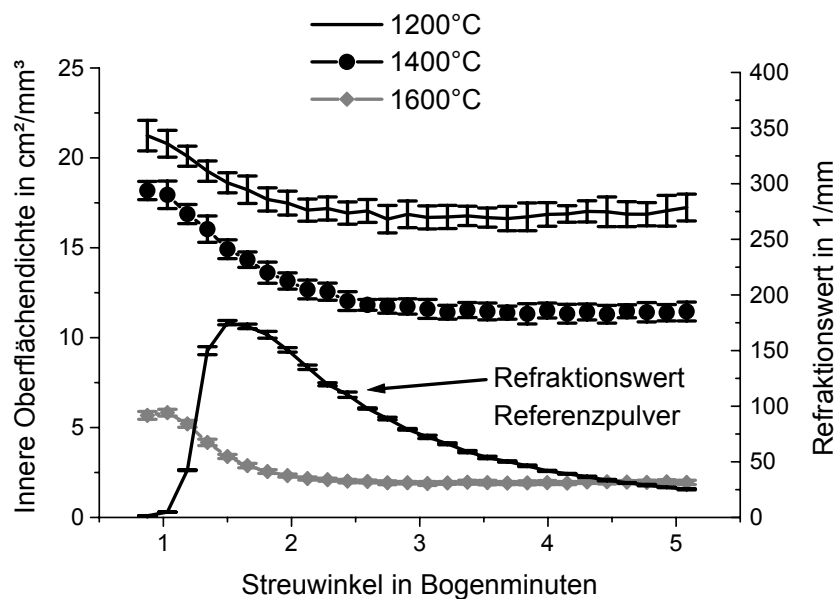


Abbildung 6.34: Verlauf der Inneren Oberflächendichte ξ der untersuchten Keramiken über dem Streuwinkel. Zum Vergleich ist der Refraktionswert des Referenzpulvers mit abgebildet. Ab ca. 3 Bogenminuten sind die Werte für ξ konstant.

Bestimmung der inneren Oberflächendichte und der Porenradien nicht von Bedeutung sind. Wenn ξ nicht von Θ abhängen soll, muss die Ableitung nach dem Streuwinkel verschwinden:

$$\begin{aligned} \frac{d\xi}{d\Theta} = 0 &= \frac{\partial \xi}{\partial I_{Ref}} \frac{\partial I_{Ref}}{\partial \Theta} + \frac{\partial \xi}{\partial I_{R,Ref}} \frac{\partial I_{R,Ref}}{\partial \Theta} \\ &= \frac{1}{I_{R,Ref}} \frac{\partial I_{Ref}}{\partial \Theta} - \frac{I_{Ref}}{I_{R,Ref}^2} \frac{\partial I_{R,Ref}}{\partial \Theta}. \end{aligned} \quad (6.5)$$

Der konstante Term wurde nicht weiter berücksichtigt. Die Bedingung führt somit auf folgende Differentialgleichung:

$$I_{R,Ref} \cdot \frac{\partial I_{Ref}}{\partial \Theta} = I_{Ref} \cdot \frac{\partial I_{R,Ref}}{\partial \Theta} \quad (6.6)$$

Folgende Funktionstypen erfüllen diese Differentialgleichung:

- Θ^n , mit $n \in \mathbb{R}$
- $e^{n \Theta}$, mit $n \in \mathbb{R}$
- $\ln(n \Theta)$, mit $n \in \mathbb{R}$

Schränkt man für die ersten zwei Typen den Wertebereich von n auf negative Zahlen ein, erhält man einen mit wachsenden Θ abnehmenden Verlauf, wie im Experiment.

Sintertemperatur		1200 Grad	1400 Grad	1600 Grad
Fitfunktion	$A \cdot \Theta^n$			
	$A + \Delta A \ (10^3)$	593 ± 3	413 ± 3	$52,4 \pm 0,7$
	$n + \Delta n$	$-2,395 \pm 0,004$	$-2,440 \pm 0,005$	$-2,24 \pm 0,01$
	χ^2	0,2	0,1	0,2
Fitfunktion	$A \cdot e^{n \Theta}$			
	$A + \Delta A \ (10^3)$	273 ± 15	182 ± 11	26 ± 1
	$n + \Delta n$	$-0,63 \pm 0,01$	$-0,63 \pm 0,02$	$-0,60 \pm 0,02$
	χ^2	28,8	13,9	4,6

Tabelle 6.2: Ergebnisse der linearen Regression an die Refraktionszählraten.

Da die Logarithmusfunktion einen ansteigenden Verlauf hat, wird sie hier nicht weiter betrachtet.

Die Kurven der linearen Regression an die Refraktionszählraten ab 3 Bogenminuten mit den beiden verbliebenen Funktionstypen zeigen, dass der Potenzansatz am besten passt (siehe Tabelle 6.2).

Die Theorie aus Kapitel 3.4 sagt $n = -4$ voraus. Der hier ermittelte Wert von $n \simeq -2,4$ ist kleiner. Ursachen sind die Verschmierung des Messsignals durch die Breite des Detektorspaltes sowie die Mittelung über grosse Streuwinkelbereiche durch den offenen Detektorspalt. Darüber hinaus berücksichtigt Gleichung 3.25 keine Mehrfachstreuung, die vermutlich ebenfalls einen Einfluss hat.

Fazit ist, dass streuwinkelunabhängige Werte für innere Oberflächendichten und Porenradialen erst ab einem Streuwinkel von ca. 3 Bogenminuten erwartet werden können. Obwohl die in Kapitel 3.4 zitierten Zusammenhänge sofort konstante Werte erhoffen lassen, da sie zur korrekten Funktionenklasse gehören, bewirken die Strahlverschmierung und die Mittelung der Refraktionsintensität über grosse Streuwinkelbereiche eine Änderung des Exponenten in der gemessenen Streufunktion.

Charakterisierung verschiedener Sinterstufen von Aluminiumoxid-Keramiken

Ziel der im folgenden geschilderten Messungen ist es, anhand verschiedener Sinterstufen von Aluminiumoxidkeramik (die in der Technik besonders häufig eingesetzt wird) die Einsatzmöglichkeiten der Röntgenrefraktionsverfahren zu demonstrieren. Die Herstellung¹⁰ erfolgte für alle Proben gleich: Aus Al_2O_3 -Pulver wurden Probenkörper gepresst und gebrannt. Der Sintervorgang erfolgte bei drei unterschiedlichen Endtemperaturen (1200°C, 1400°C und 1600°C), wobei die Temperatur mit 1 K/min angefahren und nach

¹⁰Die Proben wurden freundlicherweise am MPI Stuttgart gefertigt.

Sintertemperatur in °C	ξ in cm^2/mm^3	Porendurchm. D in μm	Porosität p in %
1200	$16,9 \pm 0,7$	$1,2 \pm 0,1$	$34,7 \pm 0,6$
1400	$9,1 \pm 0,6$	$1,3 \pm 0,1$	$31,6 \pm 0,7$
1600	$1,9 \pm 0,1$	$8,6 \pm 0,6$	$27,7 \pm 0,6$

Tabelle 6.3: Ergebnisse der Charakterisierung der Aluminiumoxidproben mit Röntgenrefraktometrie.

12 Minuten mit 3 K/min abgekühlt wurde. Das Al_2O_3 -Pulver dient als Referenzkörper für die Bestimmung der Inneren Oberflächendichte und der Porendurchmesser (mittlerer Teilchendurchmesser laut Analyse mittels Lichtstreuung¹¹: $d_{50} = 2,221 \mu m$). Nach Gleichung 5.23 wird die Packungsdichte des Pulvers zur Berechnung von ξ benötigt. Diese erhält man aus der Messung der Porosität, die den im Vergleich zum dichten Körper fehlenden Masseanteil angibt. Die Packungsdichte bezieht sich aber auf den dichten Anteil des Körpers, so dass Packungsdichte und Porosität wie folgt verknüpft sind:

$$\Pi = 1 - p \quad (6.7)$$

Für das Pulver ergab sich eine Packungsdichte von $\Pi = 0,466 \pm 0,005$, was fast einer einfach-kubischen Raumanordnung mit $\Pi = 0,524$ entspricht. Gemäß Gleichung 5.23 hat das Referenzpulver damit eine Innere Oberflächendichte von $\xi = (12,6 \pm 0,1) \frac{cm^2}{mm^3}$. Zum Verständnis der Ergebnisse in Tabelle 6.3 wird der Sinterprozess kurz vorgestellt [54], [55], [56]. „Sintern“ ist die Verfestigung bzw. Verdichtung eines Pulvers oder Grünkörpers zu einem kompakten Werkstoff infolge einer Temperaturbehandlung. Die treibende Kraft hinter diesem Vorgang ist die Reduzierung von Oberflächen- und Grenzflächenenergie, die über Interdiffusion und Sinterhalsbildung (also Zusammenwachsen der Körner) letztlich zur Verfestigung führt. Dabei können auch Kornwachstum (Ausbildung zusammenhängender Areale) und Porenschrumpfung (Hohlraumminimierung) auftreten. Für eine optimal gesinterte Probe liegt die geschlossene Porosität fast bei 0%. Der Sinterprozess ohne Flüssigphase läuft in drei Phasen ab:

Anfangsstadium Hier besteht eine offene Porosität, an den Berührungstellen des feinkörnigen Ausgangsmaterials (typisch etwa $1 \mu m$) bilden sich Materialbrücken („Sinterhalse“) aus, und die Poren runden sich ab. Als Massentransportmechanismus dominiert die Diffusion.

Hauptstadium Die Sinterhalse wachsen, und die Partikelkörner nähern sich an. Dadurch nimmt die Porosität ab. Es ändert sich die Geometrie des Materials. Zu Beginn gibt es immer noch offene Porosität.

¹¹Analyse wurde freundlicherweise am MPI Stuttgart durchgeführt; Gerät: Mastersizer 2000

Endstadium Der Körper hat seine maximale Dichte erreicht. Das Kornwachstum kommt bedingt durch Verunreinigungen im Ausgangsmaterial zum Stillstand [56].

Die Messungen zeigen, wie erwartet, eine Abnahme der Porosität mit steigender Sinter-temperatur. Die Porosität sinkt nicht auf 0%, da offene und geschlossene Porosität erfasst werden. Die Innere Oberflächendichte nimmt ebenfalls mit wachsender Temperatur stark ab, wie es die Minimierung der Oberflächenenergie und das daraus resultierende Kornwachstum fordert. Der Porendurchmesser zeigt erst bei 1600°C eine Vergrößerung, für die niedrigeren Temperaturen ist er im Rahmen der Messgenauigkeit gleich. Ursache ist, dass das Kornwachstum im Endstadium des Sinterprozesses (Aluminiumoxid wird bei ca. 1500°C gesintert) auch ein Porenwachstum bewirkt [56]: Die kleinen Poren sammeln sich an den Korngrenzen und Zwickeln und bilden dort grössere Poren.

7 Diskussion und Ausblick

Röntgenstrahlen ermöglichen durch ihre hohe Durchdringungsfähigkeit Einblicke ins Probeninnere, so dass sie für Materialcharakterisierungen gut geeignet sind. Im Unterschied zu Absorption und Beugung wird die Brechung von Röntgenstrahlung („Refraktion“) in der Schädigungsanalyse bisher weniger genutzt. In dieser Arbeit wurde untersucht, welche Möglichkeiten die von Hentschel entwickelten Röntgenrefraktionsverfahren eröffnen und welche Einschränkungen zu beachten sind.

Eine Schwierigkeit war beispielsweise die unerwartet hohe Empfindlichkeit der Anlage gegen Temperaturschwankungen. Die Temperaturstabilisierung und die langen Einlaufzeiten bis zur Einstellung des Temperaturgleichgewichts sind für erfolgreiche Langzeitmessungen ganz wesentliche Voraussetzungen, die letztlich aus den sehr kleinen Ablenkwinkeln resultieren.

Wie aus der geometrischen Optik bekannt ist, erfolgt die Brechung an einer Zylinderlinse (Glasfaser) senkrecht zum Primärstrahl und zur Längsachse der Linse. Es wird also Intensität vom Primärstrahl auf Winkel ober- und unterhalb desselben gestreut, so dass der Brechungseffekt direkt im Primärstrahl als fehlende Intensität (integral) oder aber auf einem Streuwinkel als Zusatzintensität gemessen werden kann. Die Untersuchungen zeigten, dass trotz der geringeren Intensität das Signal-zu-Rauschverhältnis auf einem Streuwinkel besser ist. Die hohen Zählraten im Primärstrahl bedingen nämlich einen statistischen Fehler, der die kleinen Effekte überdeckt. Da mit zunehmender Detektorspalthöhe das Signal-zu-Rauschverhältnis ebenfalls günstiger wird, erfolgten alle weiteren Untersuchungen auf einem fixen Streuwinkel bei offenem Detektorspalt.

Um die Leistungsfähigkeit des Verfahrens für die Materialcharakterisierung zu untersuchen, wurden zwei besonders praxisrelevante Gebiete herausgegriffen: Die Schädigung langfaserverstärkter Kunststoffe durch Impact und die Schädigung kurzglasfaserverstärkter Kunststoffe durch Zug. Vergleichende Untersuchungen mit bekannten zerstörungsfreien Prüfverfahren erlauben es, den Informationsgewinn herauszuarbeiten, den die Röntgenrefraktionstopographie bietet.

Die Charakterisierung geimpacteter CFK-Proben wurde an $0^\circ/90^\circ$ -Laminat mit einem achtlagigen symmetrischen Aufbau und an einem siebenlagigen unsymmetrischen Aufbau durchgeführt. Für Vergleichszwecke wurden Luftultraschall und optisch angeregte Lockin-Thermografie eingesetzt. Mit der Röntgenrefraktionstopographie kann der Scha-

den für beide Faserorientierungen getrennt bestimmt werden, eine neue Möglichkeit, die kein anderes ZfP-Verfahren bietet. Beim symmetrischen Aufbau liefert die Röntgenrefraktionstopographie einen linearen Zusammenhang zwischen der Impactenergie pro Lage und dem Refraktionswert, beim unsymmetrischen Aufbau aber nicht. Die Refraktionswerte sind dabei außerdem generell kleiner. Die Luftultraschallmessungen zeigen in beiden Fällen ein Schwellwertverhalten für das Delaminationswachstum. Beim symmetrischen Aufbau entstehen generell grössere Ablösungen. Für die thermischen Grenzflächen ergaben sich vergleichbare Aussagen, die damit bestimmten Delaminationsflächen sind aber generell kleiner als die mit Luftultraschall ermittelten. Die mit der optischen Lockin-Thermografie detektierten thermischen Grenzflächen decken sich vom Wachstumsverhalten her nicht ganz mit den Verläufen, die die Ultraschallmessung für das Delaminationswachstum liefert. Bereits der rein visuelle Vergleich der Messungen lässt vermuten, dass OLT stärker auf Risse in der Kompressionszone anspricht als auf Delaminationen. Die beobachteten Schädigungsverläufe zeigen, dass der symmetrische Aufbau die eingebrachte Energie auf eine grössere Fläche verteilt, beim unsymmetrischen Aufbau kommt es hingegen zu einer Konzentration der Schädigung auf den Aufschlagort. Der Vergleich der Messergebnisse weist darauf hin, dass sich die Aussagen der verwendeten ZfP-Verfahren gut ergänzen, weil die unterschiedlichen physikalischen Mechanismen alle Defekte jeweils aus einem anderen „Blickwinkel“ darstellen. Die Resultate der Luftultraschallmessung bezüglich des Delaminationswachstums in Kombination mit den Ergebnissen der Röntgenrefraktionstopographie für das Risswachstum können die Schädigung in beiden Lagenaufbauten gut charakterisieren.

Die sich anschließende Charakterisierung von glasfaserverstärktem Polypropylen nutzt ebenfalls die Stärke des Verfahrens, unterschiedliche Orientierungen im Werkstoff zu untersuchen. Es lagen Proben mit geschichteten (stärkere Faser-Matrix-Haftung) und ungeschichteten Fasern vor, die überwiegend in Zugrichtung orientiert waren, so dass Faser-Matrix-Grenzfläche und Matrixrisse getrennt betrachtet werden konnten. Die Ergebnisse der Röntgenrefraktionstopographie zeigten, dass für beide Probenmodifikationen die Entstehung von Matrixrissen der dominierende Schädigungsmechanismus ist. Die Charakterisierung der Faser-Matrix-Grenzfläche ergab, dass die geschichteten Fasern den Verbund stärker zusammenhalten als die ungeschichtete Variante. Von den zu Vergleichszwecken eingesetzten ZfP-Methoden konnte nur wassergekoppelter Ultraschall die Schädigung der Zugstäbe erkennen. Die Schädigungsevolution war jedoch allein mit Röntgenrefraktionsverfahren verfolgbar.

Diese beiden vorgestellten Materialuntersuchungen zeigen beispielhaft die neuen Möglichkeiten, die sich bedingt durch die Richtungsabhängigkeit der Brechung in Verbindung mit der Quantifizierbarkeit des Schadens ergeben. Kombiniert mit anderen Prüfverfahren lassen sich über die reine Schädigungsanalyse hinausgehend auch Erkenntnisse für die

Materialoptimierung ableiten, wie am Beispiel des unsymmetrischen CFK-Lagenaufbaus gezeigt.

Die vorgestellten Materialcharakterisierungen nutzen die Möglichkeit zur Trennung zweier Faserorientierungen im Werkstoff nur ansatzweise aus. Genauere Untersuchungen sollten zeigen, ob ähnlich wie mit Mikrowellen- oder Ultraschallverfahren die Bestimmung von Faserorientierungen möglich ist. Messungen an Proben mit nur einer einzigen Faserorientierung zeigten, dass das Refraktionssignal in Abhängigkeit von der Drehung der Probe um den Primärstrahl als Drehachse einen \cos^2 -Verlauf hat. Das Signal zweier sich überlagernder Faserorientierungen ist ebenfalls \cos^2 -förmig mit einem Offset. Die Lage des Maximums gibt die mittlere Faserorientierung an. Allein über den Modulationsgrad des Signals lässt sich entscheiden, ob im Material eine oder zwei Faserorientierungen vorhanden sind. Darüber hinaus ergibt sich aus dem Modulationsgrad die Ausrichtung beider Orientierungen. Für mehrere Orientierungen werden die Verhältnisse vor allem analytisch komplexer und wurden nicht weiter betrachtet. Trotzdem handelt es sich hier um eine interessante Fragestellung in Hinblick auf kurzglasfaserverstärkter Werkstoffe. Neben der Verfolgung von Schädigungen können auch absolute Kennwerte des untersuchten Werkstoffs bestimmt werden. Für Keramiken sind dies die Innere Oberflächendichte oder der Porendurchmesser. Hier war die Frage, auf welchem Streuwinkel die Charakterisierung am besten durchgeführt werden kann, da die Messzeit mit zunehmenden Streuwinkel ansteigt. Während die theoretische Herleitung zeigt, dass diese Bestimmung auf jedem Streuwinkel möglich ist, gelang dies experimentell erst ab einem Streuwinkel von ca. 3 Bogenminuten. Als Ursache wird die Intensitätsverschmierung durch den breiten Messspalt sowie die Mittelung über grosse Streuwinkelbereiche diskutiert.

Die vorgestellten Ergebnisse weisen das Potential der Röntgenrefraktionsverfahren auf. Viele Resultate, wie z.B. die orientierungsaufgelösten Schädigungscharakterisierungen an geimpactetem CFK oder an fasergefülltem Polypropylen, sind nur mit Röntgenrefraktionsverfahren erzielbar. Solche Ergebnisse tragen daher ganz erheblich zum Verständnis von Schädigungsevolutionen bei. Trotz der hohen apparativen Anforderungen und der langen Messzeit ergänzt sich die Methode daher sehr gut mit bekannten klassischen zerstörungsfreien Prüfverfahren.

Auf der Basis dieser Arbeit steht nunmehr eine Methode zur Verfügung, die nicht nur das Repertoire der verfügbaren zerstörungsfreien Prüfmethode erweitert, sondern die hinsichtlich ihres Potentials für die Werkstoffcharakterisierung und Schädigungsforschung völlig neue Perspektiven eröffnet. Das verbesserte Verständnis von Versagensabläufen kann langfristig die Zuverlässigkeit moderner Werkstoffe wesentlich verbessern. Dazu sind allerdings noch weiterführende Arbeiten erforderlich, um die hier nur beispielhaft aufgewiesenen Möglichkeiten zu vertiefen und in die Praxis zu überführen.

8 Anhang

8.1 Betrachtungen zum Bereich des Refraktionswertes

In Kapitel 5 werden zwei Möglichkeiten vorgestellt, den Refraktionseffekt messtechnisch zu erfassen. Hier folgt die Herleitung der Bereiche für die Refraktionswerte C und H . Für den Refraktionswert auf einem Streuwinkel gilt:

$$C = \frac{1}{d} \left[\frac{I_{Ref}/I_{Ref,0}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} - 1 \right], \quad (8.1)$$

und für den Refraktionswert auf dem Hauptstrahl

$$H = \frac{1}{d} \left\{ 1 - \frac{I_R^{HS}/I_{R,0}^{HS}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} \right\}. \quad (8.2)$$

Die obigen Gleichungen beinhalten die beiden Terme

$$\frac{I_{Abs}}{I_{Abs,0}} \in]0..1] \quad (8.3)$$

und

$$\frac{I_{Ref}}{I_{Ref,0}} \in]0..\infty]. \quad (8.4)$$

Für den Fall der Refraktion auf dem Hauptstrahl ist zu berücksichtigen, dass die refraktierte Intensität I_{Ref} immer kleiner als die Intensität ohne Probe ist,

$$\frac{I_{Ref}}{I_{Ref,0}} \in]0..1]. \quad (8.5)$$

Somit ergeben sich die Wertebereiche

$$C = \frac{1}{d} \left[\frac{I_{Ref}/I_{Ref,0}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} - 1 \right] \in [0..\infty[\quad , \quad (8.6)$$

$$H = \frac{1}{d} \left\{ 1 - \frac{I_R^{HS}/I_{R,0}^{HS}}{I_{Abs}/I_{Abs,0}} \right\} \in [0..1[\quad . \quad (8.7)$$

8.2 Zum Vergleich benutzte zerstörungsfreie Prüfverfahren

8.2.1 Ultraschallverfahren

Die Ultraschallprüfung ist ein etabliertes und bewährtes Prüfverfahren [57], da es durch die Verwendung hoher Frequenzen (100 kHz – 100 MHz) eine hohe Orts- und Tiefenauflösung bietet. Die Untersuchungen können sowohl in Reflexion (Sender und Empfänger sind identisch) als auch in Transmission (die Probe befindet sich zwischen Sender und Empfänger) erfolgen. Hierzu erzeugt der Sender einen Wellenpuls, der sich durch das zu untersuchende Material bewegt und an einer Grenzfläche (Defekt oder gewollte Struktur im Bauteil) auf Grund des Impedanzunterschiedes teilweise reflektiert wird. In Reflexionsanordnung läßt sich bei bekannter Gruppengeschwindigkeit aus der Laufzeit des Pulses zurück zum Sender die Tiefenlage des Defektes berechnen. Neben Impedanzunterschieden können Defekte zudem noch eine höhere Dämpfung aufweisen, die das Ultraschallsignal zusätzlich zur Materialdämpfung schwächen. Als bildgebende Größe wird daher die Amplitude des reflektierten (oder transmittierten) Ultraschallsignals verwendet, die gegen die Probenkoordinaten farbkodiert aufgetragen wird. Das C-Bild („Contour Scan“, Abbildung 8.1) ist die Darstellung des Rückwandechos: Da das Echo durch Schäden im Material geschwächt wird, zeigt das C-Bild die Projektion der Defekte. Bedingt durch die mechanische Scaneinrichtung ist der Zeitaufwand für die Messungen hoch. Um mit Frequenzen im Bereich einiger MHz arbeiten zu können, die eine hohe Auflösung ermöglichen, ist zudem ein Kopplungsmedium (z.B. Wasser oder Gel) zur Impedanzanpassung (d.h. Reduzierung der Reflexionsverluste) erforderlich.

Luftultraschall in Transmission

Bei der Verwendung von Luftultraschall entfällt das Koppelmedium. Die vom Sender (Frequenz: 450 kHz) im Burstbetrieb erbrachte Leistung reicht aus, um den Impedanzunterschied zwischen Luft und Probe zu überwinden. Untersuchungen an offenen Defekten, in die ansonsten das Koppelmedium eingedrungen wäre, sind somit überhaupt erst möglich. Solche Messungen in Transmissionsanordnung entsprechen prinzipiell einem C-Bild, weil nicht die Tiefenlage eines Defektes erfasst wird, sondern nur seine Auswirkung auf das Signal.

8.2.2 Laservibrometrie

Wird ein Bauteil mittels Schall angeregt, so breitet sich in ihm eine elastische Welle aus. Da der Impedanzunterschied zur umgebenden Luft hoch ist, kommt es durch die

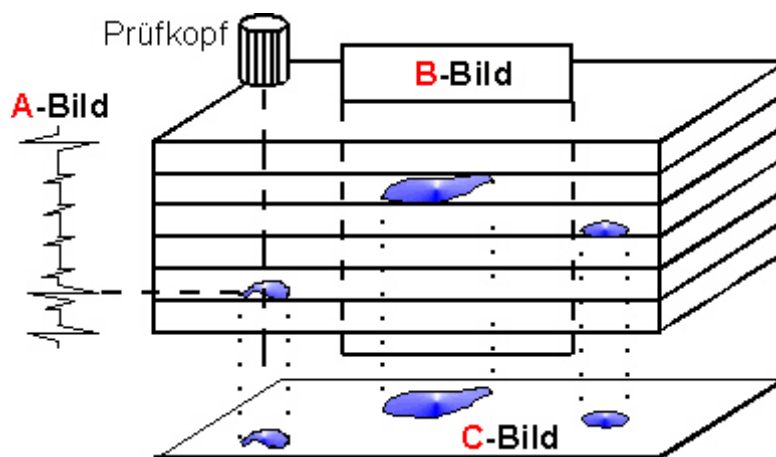


Abbildung 8.1: Signaldarstellungen für die Ultraschallprüfung.

fortwährende Überlagerung hin- und rücklaufender Wellen zur Ausbreitung „stehender Wellen“, dabei muss z.B. beim beidseitig eingespannten Stab die Bauteillänge einem ganzzahligen Vielfachen der halben Schallwellenlänge entsprechen. Diese ortsbeständigen Schwingungsformen sind für die Form des Bauteils und die anregende Frequenz charakteristisch. Gibt es eine strukturelle Schwächung (Defekt) in der Probe, so ist hier die Schallgeschwindigkeit und damit auch die Wellenlänge lokal verringert. Reißuferreibung im Defektbereich sorgt zudem für eine erhöhte Dämpfung. In der mechanischen Übertragungsfunktion zeigt sich ein Defekt deshalb in einer Resonanzverschiebung und -verbreiterung. Anregung und Lagerung der Probe müssen so gewählt sein, daß die eingeschwingene Mode auf den Defekt reagieren kann. Am Defektort darf sich also kein Knoten befinden. Der prinzipielle Nachteil dieser Methode liegt in der starken Abhängigkeit der Resonanzfrequenzen von der Geometrie des Prüfobjektes. Fertigungstoleranzen, die Unterschiede in den Abmessungen bewirken, können somit Fehler überdecken.

Zur Detektion der Moden wurde für die hier durchgeführten Versuche ein scannendes Laser-Doppler Vibrometer benutzt, das die Frequenzverschiebung des von einer sich bewegenden Oberfläche reflektierten Lichts zur Geschwindigkeitsbestimmung auswertet. Die Probenoberfläche wird abgerastert und unter Berücksichtigung von Amplitude und Phase lokaler Schwingungen die Gesamtschwingungsform rekonstruiert und bildhaft dargestellt.

8.2.3 Thermografieverfahren

Die am IKP-ZfP entwickelten Lockin-Thermografieverfahren [58] bilden Grenzflächen im Werkstück ab. Die optische Lockin-Thermografie liefert dabei Informationen über alle im Material vorhandenen thermischen Grenzflächen, während die ultraschallangeregte Lockin-Thermografie selektiv nur die Grenzflächen anzeigt, an denen im Probeninneren

durch Reibung Wärme entsteht.

Das Grundprinzip der optischen Lockin-Thermografie (OLT) beruht darauf, daß eine thermische Welle mittels Lampen (oder Warmluft) simultan auf der ganzen Probe erzeugt wird. Die an der Oberfläche erzeugte Welle dringt in das Bauteil ein und wird z.B. an Defekten reflektiert und überlagert sich der einfallenden Welle. Schnelle thermographische Abrasterung an vielen Stellen während einer Modulationsperiode erfaßt den zeitlichen Temperaturfeldverlauf an der Probenoberfläche (siehe Abbildung 8.2). Phase und Amplitude des lokalen Wechselsignals werden für alle Bildpunkte mit digitaler Lockin-Technik analysiert (phasenempfindliche Modulationsthermographie oder Lockin-Thermographie) [59], [60]. Das Verfahren liefert Phasen- und Amplitudenbilder, wobei die optischen oder infraroten Oberflächenstrukturen des Prüfobjektes in den Phasenbildern unterdrückt und praktisch nur die thermischen Strukturen gezeigt werden [61]. Die Tiefenreichweite, die mit der Phase größere Werte aufweist als mit der Amplitude [59], hängt von der Modulationsfrequenz ab [62].

Die ultraschallangeregte Lockin-Thermografie (ULT) benutzt einen ähnlichen Versuchsaufbau wie die optisch angeregte, wobei das Lampenarray durch einen Ultraschallgenerator ersetzt wird (siehe Abbildung 8.3). Der Ultraschall wird vorzugsweise im Defektbereich gedämpft und erzeugt dabei Wärme. Moduliert man die Amplitude des Ultraschalls mit einer tiefen Frequenz, so pulsiert die erzeugte Wärme, und der Defekt emittiert eine thermische Welle bei der Modulationsfrequenz, so dass die Fouriertransformation bei dieser Frequenz ausschließlich den Defekt im Sinne einer thermischen Dunkelfeldmethode hervortreten lässt [63, 64, 65, 66]. Diese defektselektive Methode besitzt außerdem prinzipiell eine vergrößerte Tiefenreichweite: Die Welle muß nicht mehr den Weg von der Oberfläche zum Defekt und zurück durchlaufen, sondern nur den halben Weg, da sie am Schaden selbst entsteht. Die reichweitenbegrenzte Interferenz thermischer Wellen entfällt somit.

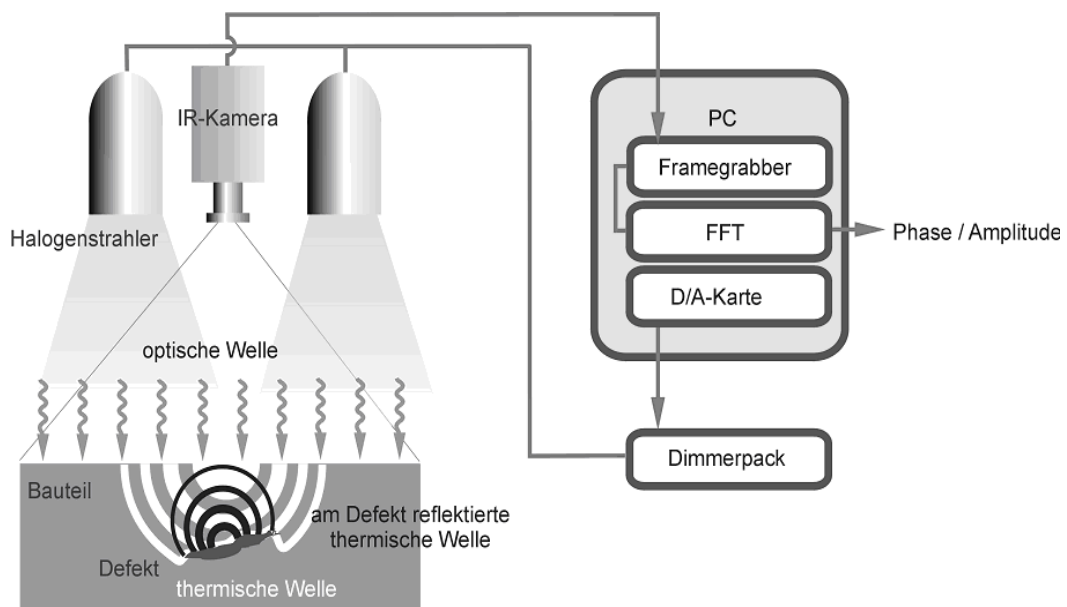


Abbildung 8.2: Versuchsaufbau zur optischen Lockin-Thermografie (OLT) [60].

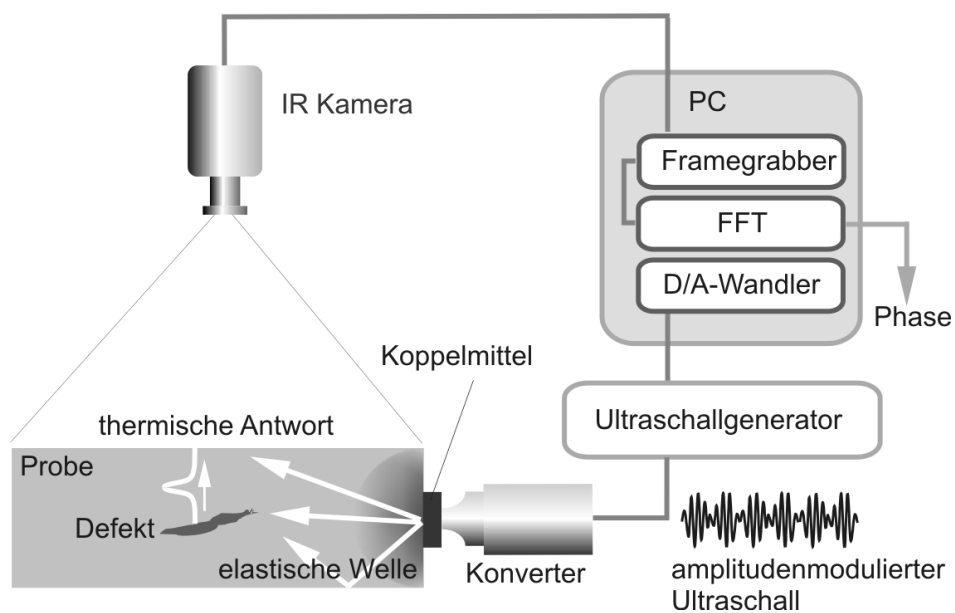


Abbildung 8.3: Versuchsaufbau zur ultraschallangeregten Lockin-Thermografie (ULT) [64].

8.3 Intensitätsverlauf über dem Drehwinkel bei Untersuchungen eines Rovings

Bei der Drehung einer Probe mit unidirektionaler Faserorientierung um die Strahlachse erwartet man gemäss der scharfen Intensitätsverteilung (s. Gleichung 3.24 und Abb. 6.25) einen entsprechend deutlichen Intensitätsverlauf über dem Drehwinkel. Bedingt durch die Breite von Primärstrahl und Detektorspalt wird die Intensität aber verschmiert, da der Detektor horizontal nur durch die Strahlbreite begrenzt ist. Im folgenden soll der Intensitätsverlauf über dem Drehwinkel für eine unidirektional orientierte Faserprobe hergeleitet werden. Ausgehend von der Intensitätsverteilung eines Rovings über dem Streuwinkel (Gleichung 3.24) ergibt sich die vom Detektor gemessene Intensität $I_{ges}(\phi)$ durch Integration entlang des Refraktionsphänomens (siehe Abb. 8.4):

$$I_{DET}(\phi) = \int_{r_1(\phi)}^{r_{\max}} I^{Roving}(\Theta) \cdot dr. \quad (8.8)$$

Mit dem Abstand d zwischen Primärstrahlmitte und Detektorspaltunterkante folgt für die untere Grenze der Integration $r_1(\phi) = d/\cos \phi$. Das Streuphänomen reicht nur bis zum Winkel der Totalreflexion θ_C , so dass sich die obere Grenze des Integrals zu $r_{\max} = A \cdot \tan \Theta_C$ ergibt (mit A = Abstand Probe-Detektorspalt). Somit lässt sich für die gesuchte Intensität schreiben:

$$\begin{aligned} I_{DET}(\phi) &= \int_{r_1(\phi)}^{r_{\max}} I^{Roving}(\Theta) \cdot dr = I_0 N R \delta^2 \int_{r_1(\phi)}^{r_{\max}} \Theta^{-3} \cdot dr \\ &= I_0 N R \delta^2 \int_{r_1(\phi)}^{r_{\max}} \left[\arctan\left(\frac{r}{A}\right) \right]^{-3} \cdot dr. \end{aligned} \quad (8.9)$$

Mit $r \ll A$ ist $\arctan(x) \approx x$,

$$I_{DET}(\phi) = I_0 N R \delta^2 \int_{r_1(\phi)}^{r_{\max}} \left[\frac{r}{A} \right]^{-3} \cdot dr = \frac{1}{2} I_0 N R \delta^2 A^{-3} \left(\frac{\cos^2 \phi}{d^2} - A^2 \tan^2 \Theta_C \right). \quad (8.10)$$

Die Intensität ist nur bis zum Grenzwinkel $\phi_E = \arccos\left(\frac{d}{r_{\max}}\right)$ definiert, bei dem das Streuphänomen des Rovings gerade nicht mehr in den Detektorspalt fällt. Für Winkel größer als ϕ_E wird die Intensität auf 0 gesetzt.

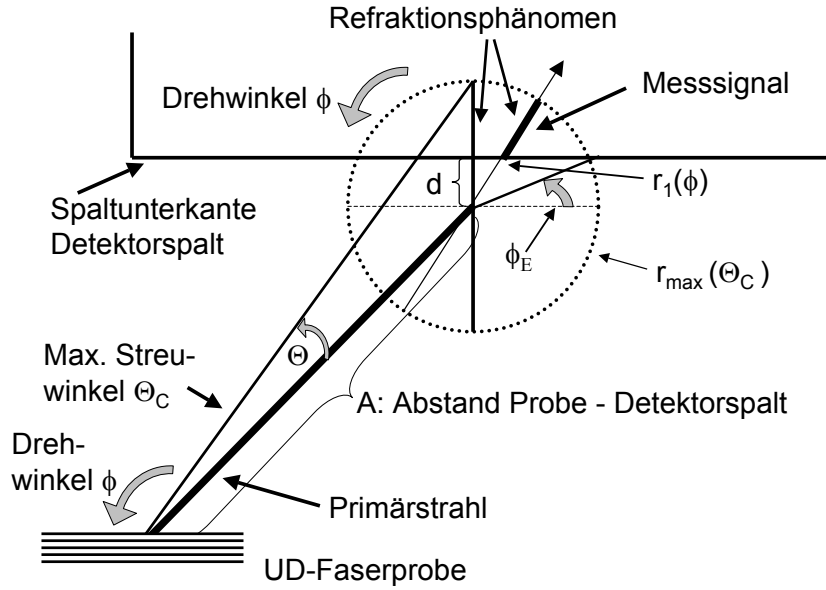


Abbildung 8.4: Verhältnisse bei der Brechung in der Kratky-Kamera. Der Detektor erfasst den als *Messsignal* markierten Bereich von $r_1(\phi)$ bis $r_{max}(\theta_C)$ des zur Primärstrahlmitte symmetrischen Streuphänomens. Hierbei ist $r_{max}(\theta_C)$ der Radius, bei dem das Refraktionssignal durch Totalreflexion endet.

Überlagerung zweier Orientierungen

Zur mathematischen Darstellung zweier Orientierungen, die sich um den Winkel $\Delta\gamma$ unterscheiden, werden beide Einzelintensitäten addiert. Für die Gesamtintensität $I_{ges}(\phi)$ folgt:

$$\begin{aligned} I_{ges}(\phi) &= I_{DET}(\phi) + I_{DET}(\phi + \Delta\gamma) \\ &= \frac{M}{d^2} (\cos^2 \phi + \cos^2(\phi + \Delta\gamma)) - 2BM, \end{aligned} \quad (8.11)$$

mit den Konstanten $M = \frac{1}{2} I_0 N R \delta^2 A^{-3}$ und $B = A^2 \tan^2 \Theta_C$.

Mit den trigonometrischen Beziehungen $\cos^2 x + \cos^2 y = 1 + \cos(x + y) \cos(x - y)$ und $\cos^2 x = \frac{1}{2}(1 + \cos 2x)$ folgt schliesslich

$$I_{ges}(\phi) = 2 \frac{M}{d^2} \cos(\Delta\gamma) \cos^2\left(\phi + \frac{\Delta\gamma}{2}\right) - \underbrace{\left[\frac{M}{d^2} (1 + \cos \Delta\gamma) - 2BM \right]}_{const(\Delta\gamma)}. \quad (8.12)$$

Es ergibt sich ein um eine Konstante verschobener \cos^2 -förmiger Verlauf. Konstante, Amplitude und Winkelverschiebung hängen von $\Delta\gamma$ ab. Um den Unterschied zwischen einer verkippt eingebrachten unidirektionalen Probe und einer Probe mit zwei Orientierungen herauszufinden, können der Modulationsgrad \mathfrak{M} sowie die Konstante ($const(\Delta\gamma)$) genutzt werden. Im Falle der unidirektionalen Probe ist die Modulation maximal, wie

die Messungen in Abbildung 6.33 an einem 0° -Roving und einem Roving mit 0° und 45° -Fasern zeigen. Wie bereits in Kapitel 6.1.3 definiert, ist der Modulationsgrad \mathfrak{M} das Verhältnis des alternierenden Anteils zum Gleichanteil eines Signals:

$$\mathfrak{M} = \frac{\frac{1}{2}(Max - Min)}{\frac{1}{2}(Max + Min)}. \quad (8.13)$$

Aus den Gleichungen 8.11 bzw. 8.12 folgt

$$\begin{aligned} \text{für die Orte der Maxima} \quad & \phi_{max} = n\pi - \frac{\Delta\gamma}{2} \\ \text{und für die der Minima} \quad & \phi_{min} = (2n + 1)\frac{\pi}{2} - \frac{\Delta\gamma}{2}. \end{aligned}$$

Der Zusammenhang zwischen $\Delta\gamma$ und dem Modulationsgrad ist dann

$$\mathfrak{M} = \frac{\frac{2M}{d^2} \left\{ \cos^2\left(\frac{\Delta\gamma}{2}\right) - \sin^2\left(\frac{\Delta\gamma}{2}\right) \right\}}{\frac{2M}{d^2} - 4 B M} = \frac{\cos(\Delta\gamma)}{1 - 2 B d^2}. \quad (8.14)$$

Im Gegensatz zum vereinfachten Modell aus Kapitel 6.1.3 hängt der Modulationsgrad von apparativen Parametern ab, was die Bestimmung von $\Delta\gamma$ erschwert. Für die dort vorgestellte Messung an $0^\circ/45^\circ$ -Roving liefert das obige Modell $\Delta\gamma = 48,9^\circ$. Da die Fasern der Probe manuell ausgerichtet wurden, wird die Genauigkeit des Faserzwischenwinkels $\Delta\gamma$ auf $\pm 2^\circ$ geschätzt. Das Ergebnis liegt also durchaus im Rahmen der Fehlergrenzen. Die besten Bestimmungsmöglichkeiten für $\Delta\gamma$ sind der Fit an die Messwerte mit Gleichung 8.12 sowie die FFT (sowohl Amplituden- als auch Phasenspektrum), da keine apparativen Parameter benötigt werden. Allerdings muss man dazu die Lage einer Orientierung in der Probe kennen. Prinzipiell ermöglichen aber alle Modelle und die daraus resultierenden Modulationsgrade die Inversion, d.h. die Bestimmung des Winkels zwischen zwei Faserorientierungen aus dem Verlauf der Refraktionswerte.

Literaturverzeichnis

- [1] RÖNTGEN, W. C.: Über eine neue Art von Strahlen. In: *Sitzungsbericht der physikalisch-medizinischen Gesellschaft Würzburg* 137 (1895)
- [2] BEIER, W.: *Wilhelm Conrad Röntgen*. B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, 1995
- [3] GLOCKER, R.: *Materialprüfung mit Röntgenstrahlen*. Berlin/Heidelberg : Springer-Verlag, 1985
- [4] GLATTER, O. ; KRATKY, O.: *Small angle x-ray scattering*. 24/28 Oval Road London NW1 : Academic Press INC. LTD, 1982
- [5] DAVIS, B. ; TERRIL, H. M.: The refraction of x-rays in calcite. In: *Physics* 8 (1922), S. 357–361
- [6] NARDORF, R. von: Refraction of x-rays by small particles. In: *Phys. Rev.* 28 (1926), S. 240–246
- [7] COMPTON, A. H. ; ALLISON, S. K.: *X-rays in theory and experiment*. D. van Nostrand Company, Inc., 1949
- [8] LOSSAU, N.: *Röntgen: Eine Entdeckung verändert unser Leben*. Köln : vgs Verlagsgesellschaft, 1995
- [9] AGARWAL, B. K.: *X-ray spectroscopy*. Berlin, Heidelberg, New York : Springer Verlag, 1991
- [10] LENGELER, B. ; TÜMMLER, J. ; SNIGIREV, A. ; SNIGIREVA, I. ; RAVEN, C.: Transmission and gain of singly and doubly focusing refractive x-ray lenses. In: *J. Appl. Phys.* 84 (1998), Nr. 11, S. 5855–5861
- [11] LENGELER, B. ; SCHROER, C. ; RICHWIN, M. ; TÜMMLER, J. ; DRAKOPOULOS, M. ; SNIGIREV, A. ; SNIGIREVA, I.: A microscope for hard x-rays based on parabolic compound refractive lenses. In: *Appl. Phys. Lett.* 74 (1999), Nr. 26, S. 3924–3926

- [12] SCHROER, C. ; KUHLMANN, M. ; HUNHER, U. ; GÜNZLER, T. ; DRAKOPOULOS, M. ; SOMOGYI, A. ; SCHUG, C. ; SCHRÖDER, W.: Nanofocussing parabolic refractive x-ray lenses. In: *Appl. Phys. Lett.* 82 (2003), Nr. 9, S. 1485–1487
- [13] HENTSCHEL, M. P. ; HOSEMANN, R. ; LANGE, A. ; UTHER, B. ; BRÜCKNER, R.: Röntgenkleinwinkelbrechung an Metalldrähten, Glasfäden und hartelastischem Polypropylen. In: *Acta Crystallographica A* (1987), Nr. 43, S. 506–513
- [14] HENTSCHEL, M. P. ; HARBICH, K.-W. ; LANGE, A.: Nondestructive evaluation of single fibre debonding in composites by x-ray refraction. In: *NDT&E* 27 (1994), Nr. 5, S. 275–280
- [15] HARBICH, K.-W.: Röntgen-Refraktions-Defektoskopie. In: *Materialprüfung* 35 (1993), Nr. 11-12, S. 347–348
- [16] EKENHORST, D. ; LANGE, A. ; HENTSCHEL, M. P.: Röntgen-Refraktion. In: *Materialprüfung* 39 (1997), Nr. 5, S. 175–179
- [17] HARBICH, K.-W. ; HENTSCHEL, M. P. ; SCHORS, J. ; LANGE, A.: Röntgen-Refraktions-Topographie zur Bewertung von Mikrorissen und Schlagschäden in Verbundwerkstoffen. In: *DGZfP Jahrestagung* Bd. 2. Celle, 1999, S. 685–690
- [18] HARBICH, K.-W. ; MEYER, K. ; LANGE, A. ; HENTSCHEL, M. P.: Poren in Keramik bestimmen. In: *Materialprüfung* 36 (1994), Nr. 6, S. 234–238
- [19] HARBICH, K.-W. ; RABE, T. ; MÜCKE, U. ; LANGE, A.: Charakterisieren von Poren in Sinterglaskeramik. In: *Materialprüfung* 36 (1994), Nr. 7-8, S. 303–305
- [20] HARBICH, K.-W. ; HENTSCHEL, M. P. ; LANGE, A.: Quantitative Röntgen-Refraktions-Topographie von keramischen Werkstoffen. In: *Materialprüfung* 38 (1996), Nr. 5, S. 181–186
- [21] HARBICH, K.-W. ; LANGE, A. ; HENTSCHEL, M. P.: Röntgen-Rotations-Refraktometrie. In: *Materialprüfung* 37 (1995), Nr. 1-2, S. 19–21
- [22] HENTSCHEL, M.P. ; MÜLLER, K.W. ; LANGE, A. ; SCHORS, J.: *X-ray refraction topography characterizes internal nano interfaces*. 2004. – 16. World Conference on Nondestructive Testing, Montreal, Kanada 30.08. - 03.09.2004
- [23] HENTSCHEL, M. P. ; HARBICH, K.-W. ; LANGE, A. ; RUDOLPH, H.-V.: X-ray refraction of paper and pigments. In: *Materialprüfung* 37 (1995), Nr. 3, S. 60–62
- [24] ATTWOOD, D.: *Soft x-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications*. Cambridge University, 1999

- [25] HECHT, E.: *Optics*. Addison Wesley Longman, Inc., 1998
- [26] HAKEN, H. ; WOLF, C.: *Molekülphysik und Quantenchemie*. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 1994
- [27] HENKE, B. L. ; GULLIKSON, E. M. ; DAVIS, J. C.: X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at E=50-30000 eV, Z=1-92. In: *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 54 (1993), Nr. 2, S. 181–342
- [28] BONSE, U. ; HART, M.: An x-ray interferometer. In: *Appl. Phys. Lett.* 6 (1965), S. 155
- [29] SAGEL, K.: *Tabellen zur Röntgenstrukturanalyse*. Berlin, Heidelberg : Springer, 1958
- [30] FENSCH-KLEEMANN, F. E. ; MÜLLER, B. R. ; HARBICH, K.-W. ; HENTSCHEL, M. P.: *Handbuch Technische Keramische Werkstoffe*, Fachverlag Deutscher Wirtschaftsdienst GmbH & Co. KG, 2002, S. 1–15
- [31] Seiffert GmbH & Co. KG: *Bedienungsanleitung ISO-Debyeflex 3003*. 1998
- [32] SPROULL, W.: *X-rays in practice*. McGraw-Hill Book Company, Inc., 1946
- [33] SCHOTANUS, P.: *Scionix scintillation detectors*. Scionix, 1996
- [34] LEO, W. R.: *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Berlin, Heidelberg : Springer Verlag, 1987
- [35] NEUERT, H.: *Kernphysikalische Messverfahren*. Karlsruhe : G. Braun GmbH, 1966
- [36] FAKIROV, S. (Hrsg.): *Handbook of thermoplastic polyesters*. Weinheim : WILEY-VCH, 2002
- [37] KRATKY, O.: Ergebnisse der Röntgenkleinwinkelstreuung bei der Bestimmung der Größe und Gestalt von Makromolekülen in Lösung. In: *Makromolekulare Chemie* 35A (1960), S. 12–48
- [38] BULLINGER, O. ; BUSSE, G. ; HARBICH, K.-W.: X-ray refraction topography of impact damage of CFRP laminates. In: GREEN, B. B.; Hentschel M. P. (Hrsg.): *Nondestructive Characterisation of Materials XI*, Springer-Verlag Berlin, 2003, S. 177–184
- [39] *Sonderforschungsbereich 381: Charakterisierung des Schädigungsverlaufes in Faser-verbundwerkstoffen mittels Zerstörungsfreier Prüfung; Ergebnisbericht 1997 - 1999*. Universität Stuttgart, 2000

- [40] DIENER, L.: *Zerstörungsfreie Kunststoffprüfung mit Mikrowellen im Nahfeld offener Hohlleiter*, Universität Stuttgart, Fakultät Verfahrenstechnik, Diss., 1997
- [41] DIENER, L. ; WU, D. ; STEEGMÜLLER, R. ; BUSSE, G.: Nondestructive evaluation of fibre orientation. In: HEMELRIJCK, D. (Hrsg.) ; ANASTASSOPOULOS, A. (Hrsg.): *Nondestructive Testing*, A. A. Balkema, Rotterdam, Brookfield, 1996, S. 245–249
- [42] WU, Datong: *Lockin-Thermographie für die zerstörungsfreie Werkstoffprüfung und Werkstoffcharakterisierung*, Universität Stuttgart, Fakultät Verfahrenstechnik, Diss., 1996
- [43] SOLODOV, I. ; BUSSE, G.: New approaches to acoustic non-destructive evaluation of composite materials. In: *Current Topics in Acoustical Research* 3 (2003), S. 163–177
- [44] SOLODOV, I. ; STOESSEL, R. ; BUSSE, G.: Material characterization and NDE using focused slanted transmission mode of air-coupled ultrasound. In: *Research in Non-Destructive Evaluation* 15 (2004), S. 1–21
- [45] SOLODOV, I. ; PFLEIDERER, K. ; BUSSE, G.: Nondestructive characterization of wood by monitoring of local elastic anisotropy and dynamic nonlinearity. In: *Holz-forschung* 58 (2004), S. 504–510
- [46] CLARKE, A.R. ; EBERHARDT, C.N.: *Microscopy techniques for materials science*. Abington Hall, Abington : Woodhead Publishing Limited, 2002
- [47] HENTSCHEL, M. P. ; LANGE, A. ; HARBICH, K.-W. ; EKENHORST, D. ; SCHORS, J.: Röntgentopographie der Faser- und Polymerorientierungen. In: *Materialprüfung* 39 (1997), Nr. 4, S. 121–123
- [48] HENTSCHEL, M. P. ; HARBICH, K.-W.: Einzelfaserhaftung in Kompositen. In: *Materialprüfung* 35 (1993), Nr. 3, S. 63–67
- [49] *DIN 51056: Prüfung keramischer Roh- und Werkstoffe; Bestimmung der Wasseraufnahme und der offenen Porosität*. Berlin : Beuth Verlag, 1985
- [50] *DIN 66133: Bestimmung der Porenvolumenverteilung und der spezifischen Oberfläche von Feststoffen durch Quecksilberintrusion*. Berlin : Beuth Verlag, 1993
- [51] EXNER, H.: *Qualitative and quantitative surface microscopy*. Bd. 2. Amsterdam : North Holland Phys. Publ., 1983. – 621–638 S
- [52] CLARK, G.L.: *The Encyclopedia of x-rays and gamma rays*. New York : Reinhold publishing corporation, 1963

- [53] CHAMBELLAN, D.: Radiometric imaging device by continuous moving for non destructive testing, gamma ray and x-ray tomodensitometry. In: *6th European conference on non destructive testing*. Nizza, 1994
- [54] SCHATT, W.: *Sintervorgänge*. Düsseldorf : VDI-Verlag, 1992
- [55] RAHAMAN, M. N.: *Ceramic processing and sintering*. 270 Madison Avenue, New York : Marcel Dekker, Inc., 1995
- [56] SALMANG, H. ; SCHOLZE, H.: *Keramik Teil 1: Die physikalischen und chemischen Grundlagen der Keramik*. Berlin : Springer, 1982
- [57] SOKOLOFF, S.: Zur Frage der Fortpflanzung ultraakustischer Schwingungen in verschiedenen Körpern. In: *Elektr. Nachr.-Technik*, 6 (1929), S. 454 – 461
- [58] BUSSE, G. ; WU, D.: *Patent DE 4203272 C2*. 1992
- [59] BUSSE, G.: Optoacoustic phase angle measurement for probing a metal. In: *Appl. Phys. Lett.* 35 (1979), S. 759 – 760
- [60] BUSSE, G. ; WU, D. ; KARPEN, W.: Thermal wave imaging with phase sensitive modulated thermography. In: *J. Appl. Phys.* 71 (1992), S. 3962 – 3965
- [61] ROSENCWAIG, A. ; BUSSE, G.: High resolution thermal-wave microscopy. In: *Appl. Phys. Lett.* 36 (1980), S. 725 – 727
- [62] ROSENCWAIG, A.: Photoacoustic microscopy. In: *Am. Lab.* 11 (1976), S. 39 – 49
- [63] MIGNOGNA, R. B. ; GREEN, R. E. ; DUKE, J. ; HENNEKE, E. G. ; REIFSNIDER, K. L.: Thermographic investigations of high-power ultrasonic heating in materials. In: *Ultrasonics* 7 (1981), S. 159 – 163
- [64] ZWESCHPER, Th. ; DILLENZ, A. ; BUSSE, G.: Ultrasound lock-in thermography - a defect selective NDT method for the inspection of aerospace components. In: *Insight* 43 (2001), S. 173 – 179
- [65] J., Rantala ; D., Wu ; G., Busse: Amplitude modulated lock-in vibrothermography for NDE of polymers and composites. In: *Research in Nondestructive Evaluation* 7 (1996), S. 215 – 218
- [66] ZESCHPER, Th. ; DILLENZ, G. Scherling D. ; BUSSE, G.: Ultrasound excited thermography using frequency modulated elastic waves. In: *Insight* 45 (2003), S. 178 – 182

Lebenslauf

Zur Person :

Name	Oliver Bullinger
Geburtsdatum / -ort	05.02.1971 / Kaiserslautern

Schulbildung :

26.05.1990	Allgemeine Hochschulreife
------------	---------------------------

Wehrdienst :

07/1990 - 09/1991	Klarinettist im Heeresmusikkorps 6 in Hamburg
-------------------	---

Hochschulstudium :

10/1991 - 09/1994	Grundstudium der Physik an der TU Kaiserslautern mit Nebenfach Informatik
-------------------	---

10/1994 - 06/1997	Hauptstudium der Experimentalphysik an der TU Kaiserslautern mit Nebenfach Informatik
-------------------	---

07/1997 - 06/1998	Diplomarbeit: „Grundlegende Untersuchungen zur Leckwellenleitung anhand von Quarzglaskapillaren“
-------------------	---

06/1998	Diplom
---------	--------

seit 11/1998	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kunststoffprüfung und Kunststoffkunde IKP der Universität Stuttgart in der Abteilung Zerstörungsfreie Prüfung
--------------	--

seit 01/2000	Stellvertretender Abteilungsleiter
--------------	------------------------------------

seit 12/2001	zusätzlich fachlicher Leiter der Gruppe „Elektromagnetische Wellen“
--------------	---

Juli 2005