48

# Wenn die Faser mit dem Plättchen

#### Orientierungsverhalten von Zusatzstoffmischungen simulieren

Additive bestehen oft aus Zusatzstoffmischungen heterogener Komponenten. Deren Anisometrie führt dabei zu Bauteileigenschaften, die sehr stark von der Ausrichtung der Zusatzstoffe abhängig sind. Daher ist die Beschreibung des Orientierungsverhaltens für die Auslegung additivierter Kunststoffbauteile bereits in einer frühen Phase der Bauteilentwicklung essenziell.



Simulierte Faserorientierung für eine Zusatzstoffmischung aus Fasern und Kugeln mit jeweils einem Volumenanteil von 4%

Kunststoffe besitzen den großen Vorteil der kostengünstigen Verarbeitung bei hoher Formgebungsvielfalt, was sie als Werkstoff insbesondere für komplexe Bauteile im Großserienumfeld attraktiv macht. Um die Bauteileigenschaften auf die Anwendung maßzuschneidern, werden Kunststoffe additiviert. So lassen sich gezielt mechanische Eigenschaften durch faserförmige Zusatzstoffe erhöhen oder die Wärmeleitfähigkeit durch elektrisch leitfähige Kupferplättchen steigern.

Weil die Anforderungen an Kunststoffe steigen, werden Additive meist nicht nur einzeln, sondern oft bereits als Zusatzstoffmischung aus heterogenen Komponenten beigefügt. Die Anisometrie der Zusatzstoffe führt dabei zu anisotropen Bauteileigenschaften, die sehr stark von der Ausrichtung der Zusatzstoffe abhängig sind. Aus diesem Grund ist die Beschreibung des Orientierungsverhaltens für die Auslegung additivierter Kunststoffbauteile bereits in einer frühen Phase der Bauteilentwicklung essenziell. Technisch ist es daher üblich, die aus der Verarbeitung resultierende Zusatzstofforientierung zu simulieren.

#### Erste Modelle und Messungen

Für die Vorhersage der Orientierung wurden Theorien für faser- und plättchenförmige Zusatzstoffe aufgestellt und validiert. So beschrieb Jeffery bereits 1923 die Bewegungsgleichung von Partikeln in einem Strömungsfeld [1]. Das nur für verdünnte Suspensionen gültige Jeffery-Modell wurde durch Folgar und Tucker um einen Wechselwirkungsterm erweitert, dessen Interaktionskoeffizient die zentrale Modellgröße darstellt [2]. In ersten Versuchen wurde dieser Koeffizient experimentell bis zu einem Füllgrad von 16% ermittelt, und es konnte gezeigt werden, dass er vom Füllgrad  $\Phi$  und dem Aspektverhältnis r = L/l als Verhältnis aus größter (L) und kleinster Kantenlänge (I) der Partikel abhängt und für zunehmende  $\Phi$ -r ansteigt. Sowohl Phan-Thien et al. [3] als auch Bay [4] stellten darauf aufbauend empirische Modelle zur Bestimmung des Interaktionskoeffizienten für Suspensionen höherer Füllgrade auf, deren Ergebnisse allerdings in Widerspruch zueinander stehen (**Bild 1**).

Während Bay mit der Vorstellung argumentiert, dass Fasern bei zunehmendem Füllgrad aufgrund der geringeren Bewegungsfreiheit als Kollektiv strömen, sind Phan-Thien et al. der Überzeugung, dass der Interaktionskoeffizient für niedrige  $\Phi$ -*r*-Werte stark zunimmt und sich im Unendlichen dem Grenzwert 0,03 annähert.

Mit den Faserorientierungsmodellen konnten sowohl für faserförmige als auch für plättchenförmige Zusatzstoffe gute Ergebnisse erzielt werden [1–5]. Bislang gibt es für Zusatzstoffmischungen allerdings kein geeignetes Modell und keine



**Bild 1.** Interaktionskoeffizient in Abhängigkeit des Produkts von Füllgrad und Aspektverhältnis in unterschiedlichen Modellen und Messungen (Quelle: IKT)

systematischen Untersuchungen bezüglich der Interaktionskoeffizienten. Da die Form des Zusatzstoffs den Verlauf des Interaktionskoeffizienten stark beeinflusst, ist allerdings davon auszugehen, dass eine Füllstoffwechselwirkung bei verschieden geformten Zusatzstoffen für eine zuverlässige Aussage zur Orientierung berücksichtigt werden muss.

Da das Folgar-Tucker-Modell bislang ausschließlich für jeweils eine Art von Zusatzstoff validiert wurde, liegt das aktuelle Bestreben darin, dieses für die Beschreibung des Orientierungsverhaltens von Mischsystemen zu erweitern. Hierfür werden experimentell die Interaktionskoeffizienten für orientierungsaktive (z.B. Fasern oder Plättchen) und orientierungspassive (Kugeln) Zusatzstoffmischungen bei unterschiedlichen Füllgraden und Zusammensetzungen ermittelt. Darauf aufbauend wird ein analytisches Modell entwickelt, das letztlich für die Entwicklung eines Simulationsmodells genutzt werden soll.

#### Methode zur Bestimmung des Interaktionskoeffizienten

Mithilfe einer statistischen Versuchsplanung wurden zunächst die Interaktionskoeffizienten und Orientierungsverteilungsfunktionen für zwei unterschiedliche Zusatzstoffmischungen ermittelt, und zwar sowohl für die Mischung orientierungsaktiver Kupferplättchen und orientierungspassiver Glaskugeln als auch für die Mischung zweier orientierungsaktiver Zusatzstoffe (Kurzglasfasern und Kupferplättchen). Zum Einsatz kamen plättchenförmige Kupferpartikel (Typ: Cubrotec 5000, Hersteller: Schlenk Metallic Pigments GmbH, Roth) sowie gemahlene Kurzglasfasern (Typ: CP 160, Hersteller: Mühlmeier GmbH & Co. KG, Bärnau) und Mikroglaskugeln (Typ: < 50 µm, Her-



Bild 2. Aufbau eines Couette-Rheometers (Quelle: IKT)

steller: Mühlmeier). Als Kunststoffmatrix wurde ein 2-Komponenten-Epoxidharzsystem (Typ: Biresin CR82 (Harz) und Biresin CH80-1 (Härter), Hersteller: Sika Deutschland GmbH, Stuttgart) verwendet. Insgesamt wurden Füllgrade von 0.5 bis 15 Vol.-% betrachtet bei vier Zusammensetzungen innerhalb eines Füllgrads von 20:80 (Z1) bis 80:20 (Z4). Das aushärtende Epoxidharz ermöglicht es, die Orientierung der Zusatzstoffe in der Scherströmung festzuhalten und diese anschließend zu analysieren. Für die experimentellen Untersuchungen wird ein temperierbares Couette-Rheometer (Bild 2) zur Erzeugung der Scherströmung und zur Aushärtung des Epoxidharzsystems eingesetzt. »

# **Die Autoren**

Sebastian Joas, M. Sc., ist seit 2016 wissenschaftlicher Mitarbeiter des Instituts für Kunststofftechnik (IKT) der Universität Stuttgart;

sebastian.joas@ikt.uni-stuttgart.de Fabian Willems, M. Eng., ist seit 2013 wissenschaftlicher Mitarbeiter des IKT. Julian Kattinger, M. Sc., ist seit 2018 wissenschaftlicher Mitarbeiter des IKT. Prof. Dr. rer. nat. habil. Marc Kreutzbruck leitet das IKT seit 2014.

#### Dank

Die Forschungarbeiten wurden als Projekt 327744866 gefördert durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG).

# Service

- Literatur & Digitalversion
- Das Literaturverzeichnis und ein PDF des Artikels finden Sie unter www.kunststoffe.de/2019-12

#### **English Version**

Read the English version of the article in our magazine Kunststoffe international or at www.kunststoffe-international.com



Bild 3. Experimentelle Vorgehensweise zur Bestimmung der Interaktionskoeffizienten (Quelle: IKT)

Die Suspension unterliegt im Becher einer einfachen Scherströmung, die es erlaubt, das Folgar-Tucker-Modell für den zweidimensionalen Fall anzuwenden. Nach Aushärtung der Suspension wird im nachfolgenden Schritt eine Probe aus dem Becher gefräst, in ein zusätzliches Harzsystem eingebettet, geschliffen, poliert und für einen besseren Kontrast bei der mikroskopischen Analyse besputtert (Bild 3). Die Farbaufnahmen aus dem Mikroskop wurden mithilfe der Open-Source-Bildbearbeitungssoftware Fiji [6] in Bilder mit 256 Graustufen (8 Bit) konvertiert sowie Teilaufnahmen zu einem Motiv zusammengefügt und zur Trennung der Füllstoffe vom Hintergrund binarisiert. Fasern, Kugeln oder Plättchen werden in einem teilweise manuellen, teilweise automatisierten Verfahren farbig markiert. Mittels Auswertung des jeweiligen Farbkanals lassen sich Fasern, Kugeln und Plättchen dann unterscheiden und ihre Orientierung durch Approximation mittels Ellipsen getrennt bestimmen (**Bild 4**). Der Winkel zwischen Abszisse und Hauptachse der Ellipse beschreibt die Orientierung des Zusatzstoffs.

Die numerische Ermittlung des Interaktionskoeffizienten erfolgt anschließend





mittels der Software Matlab. Durch Variation des Interaktionskoeffizienten wird die vereinfachte Folgar-Tucker-Gleichung an die experimentelle Häufigkeitsverteilung der Orientierungswinkel gefittet. Ein Beispiel für die Orientierungsverteilungsfunktion zeigt **Bild 5**.

#### Ermittlung der Interaktionskoeffizienten

Für die Mischung von Kupferplättchen und Mikroglaskugeln lassen sich die Kurven für die resultierenden Interaktionskoeffizienten (**Bild 6**) bei konstantem Aspektverhältnis r=35 in vier Bereiche einteilen:

- Für Füllgrade < 1% nehmen die erhaltenen Werte der Interaktionskoeffizienten mit steigendem Produkt aus Füllgrad und Aspektverhältnis kontinuierlich ab, was damit erklärt werden kann, dass Kupferplättchen hier vollständige Bewegungs- und Rotationsfreiheit haben. Kollidiert ein Kupferplättchen mit einer Mikroglaskugel, wird der Orientierungswinkel deutlich von der Strömungsrichtung abgelenkt.
- Für Füllgrade von 1% bis 5% verringert sich der mittlere Abstand der Plättchen, sodass eine Drehung beim Kontakt mit einer Kugel unwahrscheinlicher wird, woraus ein Interaktionsminimum resultiert.

- Für Füllgrade über 5% liegt eine konzentrierte Suspension vor. Die Zusatzstoffe berühren sich untereinander so häufig, dass ein annähernd feststoffartiges Verhalten angenommen werden kann. Wird ein Kupferplättchen durch die Anwesenheit einer Glaskugel von seinem ursprünglichen Orientierungswinkel abgelenkt, werden die umliegenden Kupferplättchen davon ebenfalls beeinflusst, und es entsteht eine Art Kettenreaktion.
- Für Füllgrade über 7,5% ist das feststoffartige Verhalten bereits so ausgeprägt, dass eine weitere Erhöhung des Füllgrads keine markante Änderung des Interaktionskoeffizienten zur Folge hat.

Für die Zusatzstoffmischung aus Kupferplättchen und Glasfasern ist ähnlich wie bei der ersten Mischung ein signifikanter Anstieg des Interaktionskoeffizienten ab der Stelle 1,75 zu erkennen (**Bid 7**). Zu denselben Ergebnissen kam auch Skrabala [5] in seinen Untersuchungen zum Orientierungsverhalten von Kupferplättchen. Da Proben mit einem Füllgrad über 7,5% nicht mehr mit der entwickelten Methodik herstellbar sind, ist keine sichere Aussage über den weiteren Verlauf der Graphen möglich. Es lässt sich aber vermuten, dass die Suspensionen wie bei der Zusatzstoffmischung von Kupferplättchen und Mikroglaskugeln ein feststoffartiges Verhalten annehmen, sodass sich die Interaktionskoeffizienten nur noch minimal erhöhen und ein Plateau entsteht.

#### Entwicklung eines Simulationsmodells

Basierend auf der Arbeit von Heinen [7] wurde in der Open-Source-Software OpenFoam [8] das Faserorientierungsmodell von Folgar-Tucker [2] um einen aktiven bzw. passiven Zusatzstoff erweitert, sodass die Orientierung von Zusatzstoffmischungen (Multifüllstoffen) vorhergesagt werden kann. Dazu wurden orientierungsaktive und -passive Füllstoffe unterschiedlich berücksichtigt, da beispielsweise in einer Mischung aus Kupferplättchen und Glaskugeln nur die Kupferplättchen eine Orientierungsbewegung ausführen. Die Gegenwart von orientierungspassiven Zusatzstoffen ändert jedoch – beispielsweise durch direkten Kontakt – die Orientierungsbewegung der orientierungsaktiven Zusatzstoffe.

Besteht die Zusatzstoffmischung aus zwei orientierungsaktiven Partikeln, muss das Orientierungsverhalten beider Zusatzstofftypen unter Berücksichtigung gegenseitiger Wechselwirkungen beschrieben werden. Da anzunehmen ist, dass sich die Orientierungsbewegung bei einer Interaktion von beispielsweise Fasern und Plättchen nicht wechselseitig gleich verhält, bedarf es zweier Teilmodelle. Unabhängig von der Zusatzstoffgeometrie steigt die Wahrscheinlichkeit der Interaktion mit zunehmendem Füllgrad. Eine weitere entscheidende Größe ist das Aspektverhältnis des Füllstoffs, da ein höheres Aspektverhältnis mit einer größeren Interaktionswahrscheinlichkeit einhergeht.

Zur ersten Anwendung und Überprüfung des Modells wird als Simulationsgeometrie ein durchströmter Flachkanal (Länge: 300 mm, Kanalbreite: 16 mm, Tiefe: 2 mm) mit einer zylindrischen Aussparung (Durchmesser: 12 mm) verwendet (**Bild 8**). Das Rechengitter besteht aus 4000 Hexaederelementen mit einer verringerten Elementgröße im Bereich der Aussparung. Als Randbedingung wurde die Eintrittsgeschwindigkeit der Suspension in den Flachkanal mit 2,3 mm/s vorgegeben, wobei an den »

# KUTEKO/

Die kompakte Zuliefermesse für die kunststoffverarbeitende Industrie

# 12. - 14.05.2020

A2 Forum | Rheda-Wiedenbrück

#### Das bietet Ihnen die KUTENO:

- Kooperationsmöglichkeiten: Aussteller entlang der gesamten Prozesskette
- Expertendialog: gesonderte Kommunikationsflächen für den Kontakt mit Fachbesuchern
- Full-Service-Paket: Inklusive schlüsselfertigem Messebau und Catering
- Zentraler Standort: Lage inmitten von 12 wichtigen Branchenclustern

### Jetzt Standplatz buchen!

info@kuteno.de | www.kuteno.de Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG



Bild 5. Beispiel für eine Orientierungsverteilungsfunktion (Quelle: IKT)

Wänden ideale Wandhaftung angenommen wird. Da es sich um eine druckgetriebene Strömung handelt, ist der Druck am Austritt mit 0 bar vorgegeben. Die Matrix ist hierbei als inkompressibles und newtonsches Fluid definiert. Die initiale Zusatzstofforientierung am Eintritt wird als zufällig angenommen. Die ersten Ergebnisse des erweiterten Modells zeigen für einen verwendeten Zusatzstoff (Fasern) gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Heinen [7]. Für eine Zusatzstoffmischung, bestehend aus einem orientierungspassiven Zusatzstoff (hier: Glaskugeln mit Durchmesser < 50 µm) und einem orientierungsaktiven Zusatzstoff (hier: Kurzglasfasern mit einem Aspektverhältnis von 67) mit jeweils einem Volumenanteil von 4%, können vergleichbare Ergebnisse erzielt werden. Die Ergebnisse mit und ohne zusätzlichen orientierungspassiven Zusatzstoff zeigen jedoch im Vergleich miteinander bislang nur geringfügige Unterschiede in der vorhergesagten Orientierung in den Randschichten.

Im Titelbild ist der Orientierungsgrad der Fasern in Fließrichtung dargestellt. Die Fasern werden im Allgemeinen in der zentralen Kernschicht durch die resultierenden Kräfte der dominierenden Dehnströmung sowie den Quelleffekt an der Fließfront senkrecht zur Fließrichtung orientiert. In den Randschichten hingegen steigt infolge der Wandhaftung und der einfrierenden Schmelze bzw. der temperaturabhängigen Erhöhung der Viskosität der Schergeschwindigkeitsgradient von der Mitte zur Wand an. Dieser Effekt kann vor allem im Bereich vor und hinter der Aussparung beobachtet werden.



Bild 6. Interaktionskoeffizient für eine Mischung aus Mikroglaskugeln und Kupferplättchen (siehe Bild rechts) (Quelle: IKT)





Bild 7. Interaktionskoeffizient für eine Mischung aus Kurzglasfasern und Kupferplättchen (siehe Bild rechts) (Quelle: IKT)



Bild 8. Simulationsgeometrie des durchströmten Flachkanals mit zylindrischer Aussparung (Quelle: IKT)

Im Bereich der Aussparung kommt es entsprechend dem vorliegenden Strömungsprofil zu einer deutlichen Umorientierung. Dabei fällt vor allem in diesem Bereich auf, dass die Ergebnisse eine Unstetigkeit aufweisen, die bislang nicht erklärt werden kann. Dementsprechend wird der vorliegende Solver in aktuellen Untersuchungen intensiv auf eine korrekte Vorhersage geprüft.

#### Fazit

Es wurde eine Methode zur Bestimmung der Interaktionskoeffizienten entwickelt, validiert und auf zwei verschiedene Multifüllstoffsysteme mit orientierungsaktiven und orientierungspassiven Füllstoffen angewandt. Die experimentellen Ergebnisse bestätigen die Ergebnisse von Skrabala. So ist beispielsweise ein charakteristischer Anstieg des Interaktionskoeffizienten bei einem Füllgrad von 5% erkennbar, da an dieser Stelle der Übergang von einer halbverdünnten zu einer konzentrierten Suspension stattfindet. Bei Füllgraden > 7,5% kommt es zu feststoffartigem Verhalten.

Weiterhin zeigte sich, dass ein ausgeglichenes Mischungsverhältnis zu einem höheren Interaktionskoeffizienten führt. Um statistisch repräsentative Zusammenhänge über das Interaktionsverhalten von Zusatzstoffmischungen abzuleiten, sind allerdings weitere Versuche notwendig. Darüber hinaus soll analysiert werden, ob die Ergebnisse auf andere Strömungen, wie beispielsweise überlagerte Scher- und Dehnströmungen, bei gleichem Füllgrad und Mischungsverhältnis übertragen bzw. umgerechnet werden können.

Obwohl eine Validierung des Modells an Bauteilen noch aussteht, die für Anwendungen Relevanz besitzen, sind die ersten Ergebnisse sehr vielversprechend. Das Simulationsmodell soll schließlich aufwendige experimentelle Untersuchungen zur Analyse der Zusatzstofforientierung ersetzen und so für beliebige Bauteile die Vorhersage von bestimmten mechanischen oder thermischen Eigenschaften bereits frühzeitig in der Produktentwicklung ermöglichen.

