

Systematische Analyse des Verschweißprozesses von Schaumpartikeln mittels dielektrischer Erwärmung

Von der Fakultät für Ingenieurwissenschaften
der Universität Bayreuth
zur Erlangung der Würde eines
Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)
genehmigte Dissertation

von
Marcel Raimond Dippold, M. Sc.
aus
Kulmbach

Erstgutachter: *Prof. Dr.-Ing. Holger Ruckdäschel*
Zweitgutachter: *Prof. Dr.-Ing. Dietmar Drummer*
Tag der mündlichen Prüfung: *20.11.2025*

Lehrstuhl für Polymere Werkstoffe
Universität Bayreuth
2025

Kurzfassung

Partikelschäume kommen in einer Vielzahl von unterschiedlichen Produkten zum Einsatz. Diese Technologie verlangt eine nachträgliche Verschweißung der individuellen Partikel durch einen Temperatureintrag zu einem dreidimensionalen Bauteil. Dieser Schritt basiert bis jetzt standardmäßig auf einer Erwärmung durch heißen Wasserdampf, was jedoch besonders im Bereich der energetischen Effizienz signifikante Nachteile mit sich zieht. Die Radiowellen-Technologie (RF) bietet eine dampflose Alternative und besitzt ein hohes Potential in der Einsparung von wichtigen Ressourcen in der Zukunft. Der Prozess basiert dabei auf der dielektrischen Erwärmung des Schaums durch das elektromagnetische Wechselfeld und wird durch physikalische Material-Prozess-Interaktionen bestimmt. Das umfassende Gesamtziel der Arbeit ist daher der grundlegende Aufbau eines Prozessverständnisses zur Verarbeitung von Schaumpartikeln mittels der innovativen RF-Technologie am Beispiel eines kommerziellen expandierten thermoplastischen Polyurethans (ETPU).

Zunächst wurden die allgemeinen Charakteristika der Schaumpartikel und deren Grundpolymer untersucht. Der Fokus lag hierbei zunächst auf den dielektrischen Eigenschaften, welche in Abhängigkeit der Temperatur und Frequenz bestimmt wurden. Die Analyse der Schaumpartikel bei unterschiedlichen Dichten durch eine speziell designete Messzelle stellt die komplexen Interaktionen innerhalb eines solchen Zweiphasensystems dar. Die dielektrischen Eigenschaften konnten durch ein neu entwickeltes Mischungsmodell erfolgreich aus den Kennwerten des Grundpolymers in Abhängigkeit zur Dichte vorhergesagt werden. Zusätzlich wurde ein neuartiges Verfahren entwickelt, um die Verschweißfestigkeit von einzelnen Schaumpartikeln quantitativ unter definierten Bedingungen im Labormaßstab zu evaluieren. Dadurch konnte der Mechanismus der Verschweißung basierend auf der grenzflächennahen Rekristallisation von aufgeschmolzenen Domänen aufgeklärt werden.

Anschließend wurden Verarbeitungsversuche bei unterschiedlichen Parametern durchgeführt. Der Verlauf der Leistung des Generators über die Zeit liefert dabei wichtige Erkenntnisse über den Prozess und kann in eine direkte Korrelation zu den dielektrischen Eigenschaften der Schaumpartikel über die Temperatur gestellt werden. Auch die Temperaturentwicklung wurde über einen faseroptischen Sensor im Kern des Schaum aufgezeichnet. Diese zeigt jedoch eine deutliche Verzögerung und Dämpfung der Werte durch die thermische Trägheit des Sensors auf, was über den Vergleich mit der thermischen Historie der verschweißten Bauteile validiert werden konnte. Die unzureichende Oberflächenqualität stellt auch bei längeren Verschweißzeiten eine Herausforderung der RF-Technologie dar. Durch die damit einhergehenden höheren Temperaturen

kann die Oberfläche sowie die mechanischen Eigenschaften unter Zugbeanspruchung verbessert werden. Die Rissinitiierung am Rand der Prüfkörper führt jedoch durchweg zu einer Reduktion der Festigkeit. Bei hohen Temperaturen konnte zudem eine thermische Schädigung der Schaumstruktur durch ein komplettes Aufschmelzen festgestellt werden, was ein oberes Temperaturlimit in der Verarbeitung des Materials darstellt.

Die zuvor generierten Kennwerte des Materials wurden abschließend in einen digitalen Zwilling überführt. Dieser kann ich zwei Schritte unterteilt werden. Die vorgelagerte elektro-thermische Simulation ermöglicht die Vorhersage der elektromagnetischen Feldverteilung sowie der Erwärmung des Bauteils. Das Simulationsmodell konnte dabei durch die Leistungskurven und die Temperaturentwicklung des Sensors mit den realen Messungen validiert werden und zeigt eine hohe Übereinstimmung auf. Abschließend wurden die lokalen Verschweißfestigkeiten durch die temperaturabhängigen Ergebnisse der vorherigen Messungen definiert. Im virtuellen Zugversuch konnte das Versagensverhalten der realen Prüfkörper nachgestellt werden. Auch die Zugfestigkeiten der Prüfkörper konnten mit hoher Genauigkeit durch die Simulation vorhergesagt werden. Lediglich die Bruchdehnung weicht aufgrund der thermischen Schädigung des Materials ab.

Die Arbeit stellt durch die Aufklärung der grundsätzlichen Zusammenhänge und dem Aufbau eines validierten digitalen Zwillings bis hin zur Vorhersage der mechanischen Eigenschaften einen wesentlichen Beitrag zur Forschung im Bereich der RF-Technologie dar. Die Erkenntnisse können direkt auf die Material- und Prozessoptimierung übertragen werden und helfen damit den innovativen Prozess des RF-Verschweißens zur ressourcenschonenden Verarbeitung von Schaumpartikeln auf dem breiten Markt zu implementieren.

Short summary

Particle foams are used in a wide range of applications. Their two-step processing requires a subsequent welding of individual foam particles by thermal energy into a three-dimensional component. This step is conventionally performed by heating the beads with saturated steam. This, however, poses significant disadvantages in terms of energy efficiency. Radio-frequency (RF) technology offers a steam-free alternative with high potential for saving critical resources in the future. The process is based on dielectric heating of the foam by an electromagnetic field and is thus governed by complex material–process interactions. The overall objective of this work is to establish a fundamental process understanding for the welding of foam particles using the innovative RF technology, demonstrated on a commercially available expanded thermoplastic polyurethane (ETPU).

First, the general characteristics of the foam particles and their base polymer were examined. Particular focus was placed on the dielectric properties, which were investigated as a function of temperature and frequency. The analysis of foam particles with varying densities using a specially designed measurement cell revealed the complex interactions within such a two-phase system. The dielectric properties could be successfully predicted from the properties of the base polymer using a newly developed mixing model dependent on density. In addition, a novel method was developed to quantitatively evaluate the weld strength between individual foam particles under defined laboratory conditions. This allowed the evaluation of the welding mechanism, which is based on interfacial recrystallization of molten domains.

Subsequently, processing trials were conducted under various parameter settings. The evolution of the power of the generator over time provided important insights into the process and was directly correlated with the temperature-dependent dielectric properties of the foam particles. Temperature development was also recorded using a fiber-optic sensor placed in the foam core. However, the measurements showed a distinct delay and damping due to the thermal inertia of the sensor, which was validated by comparing with the thermal history of the welded components. Inadequate surface quality remained a challenge for the RF technology, even at extended welding times. Higher welding times and consequently elevated temperatures led to improved surface quality and tensile strength. Crack initiation at the edges of the specimens consistently resulted in a reduction in mechanical strength. At elevated temperatures, thermal degradation of the foam structure was observed due to complete melting, which defines an upper temperature limit for material processing.

Finally, the experimentally determined material properties were transferred into a digital twin. This model was developed in two steps. The first electro-thermal simulation enabled the prediction of field distribution and temperature development in the part. The simulation model was validated against experimental power and temperature data and showed a high level of agreement. Subsequently, the local welding strengths were defined based on the temperature-dependent results of previous measurements. In a virtual tensile test, the failure behavior of the real specimens could be replicated. The simulated tensile strengths closely matched the experimental values. Only the elongation at break exhibited a divergent behavior, attributed to thermally induced damage to the material.

Through the fundamental investigation of material–process relationships and the development of a validated digital twin up to the prediction of mechanical properties, this work makes a significant contribution to scientific understanding. The findings can be directly applied to the optimization of materials and processes and thereby support the broader implementation of the RF welding technology as a resource-efficient processing method for particle foams.

Danksagung

Zunächst möchte ich mich an dieser Stelle bei allen Menschen bedanken, die mich bei dieser Arbeit über die letzten Jahre begleitet und unterstützt haben.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr.-Ing. Holger Ruckdäschel für die Möglichkeit und das Vertrauen an solch einem spannenden und zukunftsträchtigen Projekt am Lehrstuhl Polymere Werkstoffe zu arbeiten. Ich danke ihm für die hervorragende Betreuung und zahllose Diskussionen mit immer wieder neuen Impulsen.

Herrn Prof. Dr.-Ing. Dietmar Drummer danke ich für die Übernahme der Zweitkorrektur und dem fachlichen Austausch.

Des Weiteren möchte ich mich herzlich bei allen Kolleginnen und Kollegen am Lehrstuhl für Polymere Werkstoffe und besonders der Arbeitsgruppe der Polymerschäume sowie der Neuen Materialien Bayreuth GmbH bedanken, die mich während der kompletten Zeit wissenschaftlich unterstützt haben. Mein ausdrücklicher Dank gilt Justus, Eduardo, Martin, Michael, Tim und den drei Florians für den wissenschaftlichen Austausch, jedoch insbesondere auch für die Zeit neben der Arbeit.

Ein besonderer Dank geht an meine Studentinnen und Studenten, Annalena, Christian, Alexander und Michael, die einen signifikanten Beitrag an der Weiterentwicklung der Messmethoden und der Simulation sowie in der Generierung der Ergebnisse hatten.

Zusätzlich möchte ich mich ausdrücklich bei den Kollegen des Projektkonsortiums von adidas, Makrina, Korbinian, Maximilian und Claudia, sowie bei Kurtz, Alina und Michael, für die Unterstützung bei den RF-Versuchen und den durchgehenden wissenschaftlichen Diskussionen bedanken.

Schlussendlich möchte ich den wohl größten und wichtigsten Dank an meine Familie und meine Freundin Katrin aussprechen, die mich durchgehend mit großem Verständnis auch in anstrengenden Zeiten unterstützt haben.

Abkürzungen

µCT	Mikro-Computertomographie
CAD	„computer aided design“ rechnergestützte Konstruktion
DIC	„digital image correlation“
DSC	„differential scanning calorimetry“ Dynamische Differenzkalorimetrie
DUT	„device under test“
EPA	Expandiertes Polyamid
EPBT	Expandiertes Polybutylenterephthalat
EPC	Expandiertes Polycarbonat
EPET	Expandiertes Polyethylenterephthalat
EPHBV	Expandiertes Poly(hydroxybutyrat-co-hydroxyvalerat)
EPP	Expandiertes Polypropylen
EPS	Expandiertes Polystyrol
ETPA	Expandiertes thermoplastisches Polyamidelastomer
ETPU	Expandiertes thermoplastisches Polyurethanelastomer
EZ	Einheitszellen-Mischungsmodell
FDM	Finite Differenzen Methode
FEM	Finite-Elemente-Methode
HS	Grenzen nach <i>Hashin und Shtrikman</i>
IMS	„industrial, scientific and medical band“
MDI	Methylendiphenylisocyanat
MRE	„mean relative error“ Mittlerer relative Fehler

OSL	<i>„open/short/load“</i>
PBT	Polybutylenterephthalat
PEBA	Polyetherblockamid
PEEK	Polyetheretherketon
PEI	Polyetherimid
PEN	Polyethylennapthalat
PET	Polyethylenterephthalat
PHBV	Poly(hydroxybutyrat-co-hydroxyvalerat)
PLA	Polylaktid
PMMA	Polymethylmethacrylat
POM	Polyoxymethylene
PP	Polypropylen
PS	Polystyrol
PTFE	Polytetrafluorethylen
PTHF	Polytetrahydrofuran
PVC	Polyvinylchlorid
PVDF	Polyvinylidenfluorid
PVOH	Polyvinylalkohol
RAP	<i>„rigid amorphous phase“</i>
RF	<i>„radio frequency“</i> Radiowellen
SCM	<i>„steam chest molding“</i> Dampfbasierte Verarbeitung
SEM	<i>„scanning electron microscope“</i> Rasterelektronenmikroskop

TPA	Thermoplastisches Polyamidelastomer
TPC	Thermoplastisches Copolyesterelastomer
TPE	Thermoplastisches Elastomer
TPO	Thermoplastisches Polyolefinelastomer
TPU	Thermoplastisches Polyurethanelastomer
TTS	Zeit-Temperatur-Superposition

Formelzeichen

C_p	Wärmekapazität in $J/(kg * K)$
D_0	Ursprünglichen elektrischen Verschiebungsdichte in C/m^2
D_{ic}	„degree of intimate contact“ Grad der direkten Kontaktfläche in -
D_{rep}	Diffusionskoeffizient in m^2/s
E_{Dip}	Elektrisches Feld durch die Dipole in V/m
E_{RMS}	Quadratisches Mittel der elektromagnetischen Feldstärke in V/m
G^*	Komplexer Schubmodul in MPa
H_2O	Wassermolekül
M_W	Molekulargewicht in g/mol
P_v	Volumetrische Leistungsaufnahme in W/m^3
T_g	Glasübergangstemperatur in $^{\circ}C$
T_m	Schmelztemperatur in $^{\circ}C$
Z^*	Komplexe Impedanz in Ω
f_x	Volumetrischer Anteil in %
k_0	Wellenzahl im freien Raum in $1/m$
k_B	Bolzmann-Konstante in J/K
t_∞	Zeit bis zur vollständigen Heilung in s
δ^-	Negative Partialladung in -
δ^+	Positive Partialladung in -
ε_0	Permittivität von Vakuum in $(A^*s)/(V*m)$ ($8,854 \times 10^{-12}$)
ε_e	Permittivität der Exklusion in -

ϵ_{eff}	Permittivität des effektiven Mediums in -
ϵ_i	Permittivität der Inklusion in -
ϵ_r	Relative Permittivität in -
ϵ'_r	Realteil der relativen Permittivität in -
ϵ''_r	Imaginärteil der relativen Permittivität in -
μ_i	Individuelles Dipolmoment in C^*m
μ_r	Elektromagnetische Permeabilität in $(V^*s)/(A^*m)$
σ_B	Bruchspannung in MPa
τ_{rep}	Reptationszeit in s
$\Delta\epsilon$	Dielektrische Stärke in -
CO ₂	Kohlenstoffdioxid
N ₂	Stickstoff
ρ	Dichte in kg/m^3
C	Kapazität in F
D	Elektrischen Verschiebungsdichte in C/m^2
E	Elektrisches Feld in V/m
F	Kraft in N
P	Kontaktdruck in N/mm^3
P	Polarisation in C/m^2
Q	Wärmequelle in W/m^3
U	Spannung in V
V	Volumen in m^3

d	Abstand in m
f	Frequenz in Hz
g	Kirkwood/Fröhlich-Korrekturfaktor in -
k	Thermische Leitfähigkeit in $W/(m*K)$
q	Ladung in C
α	Parameter im Modell nach <i>Cole und Cole</i> in -
μ	Dipolmoment in D
π	Kreiszahl in -
σ	Leitfähigkeit in S/m
φ	elektrische Potential in V
ω	Frequenz in rad/s

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung.....	I
Short summary	III
Danksagung	V
Abkürzungen	VI
Formelzeichen.....	IX
Inhaltsverzeichnis.....	XII
1. Einleitung und Motivation.....	1
2. Stand der Technik.....	3
2.1. Partikelschäume und deren Anwendungen	3
2.2. Formgebende Verarbeitung vom Schaumpartikel zum Formteil	5
2.2.1. Konventionelle dampfbasierte Technologie	5
2.2.2. Neuartige Verarbeitungsprozesse	7
2.2.3. Radiowellen-Verschweißen	8
2.3. Hintergründe der Verschweißung von Schaumpartikeln.....	11
2.3.1. Diffusions-basierte Verschweißung.....	12
2.3.2. Einfluss kristalliner Bereiche	16
2.4. Dielektrische Eigenschaften von Polymeren	20
2.4.1. Grundlage der Polarisationsmechanismen	21
2.4.2. Relaxationsmechanismen von Polymeren.....	24
2.4.3. Dielektrische Eigenschaften mehrphasiger Systeme.....	33
2.4.4. Analyse mittels Impedanzspektroskopie	40
2.5. Simulative Abbildung des Prozesses.....	42
2.5.1. Grundlagen der Finite Elemente Methode	43
2.5.2. Elektro-thermische Simulation.....	45
2.5.3. Mechanische Simulation	47
2.6. Zusammenfassung.....	49
3. Zielsetzung und Struktur der Arbeit.....	51
4. Materialien und experimentelle Methoden.....	55
4.1. Schaumpartikel.....	55
4.2. Analytische Methoden	56

4.2.1.	Dynamische Differenzkalorimetrie	56
4.2.2.	Wärmeleitfähigkeit	57
4.2.3.	Dichtebestimmung	58
4.2.4.	Partikelgrößenbestimmung	58
4.2.5.	Mikroskopie	59
4.2.6.	Analyse der Verschweißung an einzelnen Partikeln	59
4.2.7.	Impedanzspektroskopie	59
4.3.	Radiowellen-Verschweißung	62
4.4.	Mechanische Charakterisierung	63
4.5.	Software zur numerischen Simulation	64
5.	Ergebnisse und Diskussion	66
5.1.	Materialeigenschaften von Grundpolymer und Schaumpartikeln	66
5.1.1.	Strukturelle Eigenschaften der Schaumpartikel	66
5.1.2.	Analyse der thermischen Eigenschaften	68
5.1.2.1.	Schmelzverhalten mittels dynamischer Differenzkalorimetrie	68
5.1.2.2.	Wärmekapazität des Polymers	70
5.1.2.3.	Wärmeleitfähigkeit der Schaumproben in Abhängigkeit der Dichte	70
5.1.3.	Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften	71
5.1.3.1.	Komplexe Permittivität des Grundpolymers	72
5.1.3.2.	Übertrag auf die Eigenschaften der Schaumpartikel	79
5.1.3.3.	Zwei-Phasen-Mischmodell für die komplexe Permittivität des Schaums	82
5.1.4.	Direkte Analyse des Verschweißverhaltens	86
5.1.4.1.	Entwicklung einer neuartigen Messmethode	86
5.1.4.2.	Verschweißverhalten in Abhängigkeit der Temperatur	89
5.1.4.3.	Einfluss des Rekristallisationsverhaltens	92
5.2.	Verarbeitung der Schaumpartikel mittels RF-Technologie	94
5.2.1.	Korrelation der Leistungsaufnahme und der resultierenden Temperaturentwicklung mit den Prozessparametern und den dielektrischen Eigenschaften	94
5.2.2.	Einfluss der Prozessführung auf die Bauteileigenschaften	100
5.2.2.1.	Einfluss auf die Oberflächenqualität	100
5.2.2.2.	Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften unter Zugbeanspruchung	103
5.3.	Aufbau eines digitalen Zwillings mittels multiphysikalischer Simulation	110
5.3.1.	Erarbeitung der grundlegenden Simulations-Umgebung	110
5.3.1.1.	Elektro-thermische Simulation	111
5.3.1.2.	Mechanische Simulation	113

5.3.2. Ergebnisse der elektro-thermischen Simulation	115
5.3.3. Ergebnisse der mechanischen Simulation	123
6. Zusammenfassung und Ausblick	130
7. Literatur- und Quellenverzeichnis.....	134
Lebenslauf.....	147
Publikationen.....	148

1. Einleitung und Motivation

Zelluläre Strukturen und Schäume sind keineswegs eine neuartige Erfindung der Menschheit. In der Natur gibt es eine Vielzahl von Vertretern, welche sich über Jahrtausende durch natürliche Evolution als beste Option für die unterschiedlichsten Funktionen durchgesetzt haben [1,2]. Die technologischen Fortschritte der letzten Jahrzehnte ermöglichen es, diese Materialklasse für die Herstellung diverser Produkte zu nutzen. Besonders Schaumstoffe auf der Basis von Polymeren stellen einen stetigen Begleiter unseres alltäglichen Lebens dar. Deren komplexes Eigenschaftsprofil kann je nach Anwendung gezielt auf die Anforderungen des Produktes angepasst werden. Diese Materialklasse zeichnet sich neben speziellen mechanischen Eigenschaften auch durch die Fähigkeit der thermischen und akustischen Isolation aus. Im Allgemeinen können polymere Schäume aus vernetzten Duromeren und Elastomeren oder Thermoplasten hervorgehen. Je nach Herstellungsverfahren können so die unterschiedlichsten Geometrien mit variablen Dichten und Zellstrukturen geschaffen werden.

Eine der relevantesten Klassen der thermoplastischen Schäume stellen die Partikelschäume dar. Diese zeichnen sich durch einen hohen Grad an Designfreiheit bei gleichzeitig niedriger Dichte aus. Dadurch finden sie Einsatz in den unterschiedlichsten Anwendungen, von thermischer Isolation im Bauwesen über mechanische Dämpfung in Crashstrukturen bis hin zu diversem Sportequipment. Der Aufbau aus individuellen Partikeln verlangt jedoch den zweiten Verarbeitungsschritt, das sogenannten Verschweißen. Hier wird durch den Einsatz einer gewissen Energie in Form von Temperatur ein dreidimensionales Bauteil erzeugt. Die Erwärmung kann dabei durch mehrere Arten geschehen. In der klassischen Verarbeitung, welche bereits seit über 70 Jahren eingesetzt wird, dient heißer gesättigter Wasserdampf als Medium des Wärmeübertrags [3]. Die Temperatur kann hierbei über den Dampfdruck reguliert werden und führt zu einer effektiven und homogenen Erwärmung der Partikel, was jedoch auch Nachteile mit sich bringt. Zunächst wird für die Dampferzeugung zumeist Erdgas verwendet, welches bei der Verbrennung das Treibhausgas Kohlenstoffdioxid (CO_2) freisetzt. Zusätzlich kommt es zu thermischen Verlusten in dem Transport des heißen Dampfes über Rohrleitungen sowie bei der Erwärmung der zumeist metallischen Werkzeuge. Trotz vieler energetischer Optimierungen des Prozesses mit neuen Werkzeugtechnologien und angepasster Prozesssteuerung wird dadurch nur ein Bruchteil der Energie für die Erwärmung der Schaumpartikel genutzt. Des Weiteren ist die Temperatur des zumeist genutzten Satt dampfes aufgrund der Dampfdruckkurve von Wasser durch den maximal erreichbaren Druck limitiert. Gerade bei der Verarbeitung von Partikeln aus technischen Polymeren wie Polyethylenterephthalat (PET) oder Polybutylenterephthalat (PBT) kommen

konventionelle Anlagen mit bis zu 5 bar (ca. 160 °C) an ihre Grenzen oder darüber hinaus, was die Entwicklung neuer Materialien signifikant einschränkt [4]. Auch im Hinblick auf die in naher Zukunft notwendige Substitution von erdölbasierten Polymeren mit Materialien aus nachwachsenden Rohstoffen bietet die dampfbasierte Verschweißung eine Herausforderung. Die chemische Struktur vieler dieser neuen Alternativen (z.B. Polylaktid (PLA) und Poly(hydroxybutyrat-co-hydroxyvalerat) (PHBV)) wird durch Ester-Bindungen verknüpft, wodurch diese bei erhöhter Temperatur in Anwesenheit von Wasser zur Schädigung durch hydrolytischen Abbau neigen [5–8].

Die konventionelle Dampf-Verschweißung von Partikelschäumen stellt somit eine signifikante Hürde auf dem Weg zur nachhaltigen Herstellung eines breiten Feldes an Produkten des alltäglichen Lebens dar. Nach nahezu 70 Jahren Stillstand fanden über die letzten Jahre mehrere innovative Verarbeitungstechnologien den Weg in den Markt, welche teils komplett auf das Medium Dampf verzichten [9–11]. Unter diesen neuartigen dampflosen Prozessen stellt sich nach aktuellen Erkenntnissen das Radiowellen-Verschweißen als die relevanteste Technologie heraus. Der Hersteller Kurtz GmbH (Kreuzwertheim, Deutschland) führt dabei eine Vielzahl an Vorteilen gegenüber dem Dampf-Verschweißen auf. Neben dem kompletten Verzicht auf eine teure und wartungsintensive Dampfperipherie zeichnet sich der RF-Prozess hauptsächlich durch hohe Energieeinsparungen von bis zu 90 % (für expandiertes Polystyrol (EPS)) sowie Temperaturen von bis zu 250 °C aus [12]. Bei einem weltweiten Markt von 10,59 Mio. t an EPS allein im Jahr 2021, bietet diese innovative Technologie ein großes Potential zur Reduktion von klimaschädlichen Emissionen und kann somit einen wichtigen Beitrag zur Agenda für nachhaltige Entwicklung der Vereinten Nationen liefern [13,14].

Für eine erfolgreiche und breite Implementierung der neuen und komplexen Technologie erfordert es ein hohes Maß an Prozessverständnis. Die Betrachtung der wissenschaftlichen Literatur zeigt nahezu keine Studien auf, welche sich mit den grundlegenden physikalischen Prinzipien der Material-Prozess-Interaktion rund um das RF-Verschweißen beschäftigen. Eine ganzheitliche Betrachtung erfordert eine detaillierte Untersuchung von den Eigenschaften des Polymers über das Zusammenspiel mit dem elektromagnetischen Feld im Prozess bis hin zu den mechanischen Eigenschaften des finalen Bauteils.

Die Motivation dieser Arbeit ist es somit, die unzureichenden Erkenntnisse in der Material-Prozess-Interaktion rund um das RF-basierte Verschweißen zu erweitern und damit einen signifikanten Beitrag zur nachhaltigen Produktion von Bauteilen aus Partikelschäumen zu generieren.

2. Stand der Technik

Der folgende Stand der Technik dient als Grundlage für das Verständnis der vorhandenen Lücken der Wissenschaft rund um die Thematik der Arbeit. Nach einem kurzen Überblick über die Welt der Partikelschäume und deren Anwendungen wird tiefer auf die unterschiedlichen Technologien zur Verarbeitung von Partikelschäumen eingegangen. Der Fokus liegt dabei besonders auf dem RF-Prozess und dessen Potential und Herausforderungen. Anschließend werden die materialwissenschaftlichen Hintergründe der Verschweißung von Polymeroberflächen betrachtet, bevor die dielektrischen Eigenschaften von Polymeren und deren Mehrphasensysteme erklärt werden. Die Kombination dieser physikalischen Prinzipien legt die Basis für das grundlegende Prozessverständnis. Diese Zusammenhänge bilden die Grundlagen der simulativen Abbildung des Prozesses auf der Basis einer Finite-Elemente-Methode (FEM). Durch dieses Modell erfolgt neben der Betrachtung lokaler Phänomene auch die Vorhersage von Prozessverhalten und Bauteileigenschaften.

2.1. Partikelschäume und deren Anwendungen

Zelluläre Werkstoffe zeichnen sich durch das Zusammenspiel aus der formgebenden Matrix und dem darin liegenden Zellgas aus. Die Eigenschaften dieser zweiphasigen Systemen hängen hauptsächlich von der Auswahl der Matrix und dessen geometrischer Anordnung ab. Neben den biologischen Vertretern aus der Natur (z.B. Knochen und Holz) finden sich in der Industrie eine Vielzahl an unterschiedlichen Materialien und Herstellungsmethoden [2]. In speziellen Anwendungen werden beispielsweise Strukturen aus metallischen oder keramischen Werkstoffen genutzt [15].

Den industriell relevantesten Vertreter jedoch stellt die Klasse der Polymerschäume dar. Hierbei kann zunächst zwischen vernetzten Duromeren und Elastomeren sowie Thermoplasten unterschieden werden. Erstere bilden nach der chemischen Vernetzung eine thermisch stabile Struktur und werden daher oftmals für Anwendungen mit erhöhten Anforderungen hinsichtlich Wärmeformbeständigkeit eingesetzt. Thermoplastische Schäume zeichnen sich hingegen durch ein reversibles Erweichen unter Temperatur aus, welches ein erneutes Prozessieren und dadurch die Möglichkeit des Recyclings erlaubt. [16] Der Prozess des Aufschäumens kann dabei durch unterschiedliche Technologien ausgelöst werden, folgt jedoch stets dem gleichen physikalischen Prinzip. Zunächst müssen die beiden Phasen, Polymer und Treibmittel, homogen miteinander vermischt werden. Dies erfolgt entweder in der Schmelze oder im festen Zustand des Polymers

durch reine Diffusionsprozesse. Die Mischung wird anschließend einem thermodynamischen Ungleichgewicht ausgesetzt, was zur Separation des Gases von der Matrix und somit unter ausreichender Flexibilität der Matrix zum Aufschäumen führt. Dieses Ungleichgewicht kann durch einen Temperaturanstieg oder Druckabfall initiiert werden. Durch einen Abfall der Temperatur oder Viskositätserhöhung durch das Ausdiffundieren des Gases kommt es zuletzt zur Stabilisierung der Schaumstruktur. [2,17]

Eine spezielle Art der thermoplastischen Schäume sind die Partikelschäume. Die Herstellung kann dabei in zwei Arten unterteilt werden. Zum einen expandierte Partikel, welche in einem einzigen Prozess mit Treibmittel beladen und geschäumt werden. Dies kann entweder durch die Schaumextrusion mit nachgeschalteter Granuliereinheit oder, wie im Falle vom expandiertem Polypropylen (EPP), durch einen Autoklav-Prozess realisiert werden. Die zweite Variante stellen die expandierbaren Partikelschäume dar. Diese werden zunächst ebenfalls mittels Schaumextrusion unter Druck oder einem speziellen Autoklav-Prozess mit Treibmittel beladen, ohne zunächst eine Phasenseparation zu initiieren. Bei EPS wird das Treibmittel teilweise bereits unter Druck während der Suspensionspolymerisation hinzugefügt [18]. Dieses expandierbare Granulat wird in einem nachgelagerten Schritt durch eine Temperaturerhöhung aufgeschäumt [19]. Dieses Vorgehen spart Transportvolumen und damit Kosten und erlaubt es die gewünschte Dichte für die jeweilige Anwendung vor Ort beim Verarbeiter einzustellen. [3,4,20,21]

Zur dreidimensionalen Formgebung der einzelnen Partikel müssen diese anschließend noch miteinander verbunden werden. Die möglichen Varianten dieses Verschweißprozesses werden im folgenden Kapitel 2.2 genauer betrachtet. Die Separation des Schäumprozesses von der Formgebung ist die Besonderheit der Partikelschaumtechnologie und bringt eine Vielzahl an vorteilhaften Eigenschaften für das finale Bauteil mit sich. Zunächst einmal können komplexe Geometrien ähnlich dem Schaumspritzguss hergestellt werden, was ein hohes Maß an Designfreiheit und Funktionsintegration ermöglicht [18]. Des Weiteren zeichnen sich Partikelschäume zusätzlich durch niedrige Dichten und eine feine Zellmorphologie aus [5].

Das Zusammenspiel zwischen Material und Morphologie ermöglicht ein sehr variables Eigenschaftsprofil für Partikelschäume. Die niedrigen Dichten mit kleinen Zellen sind ideal für die thermische Isolierung, wodurch beispielweise EPS in vielen Anwendungen rund um die Bauindustrie sowie im Verpackungsbereich zu finden ist [22]. Auch die mechanischen Eigenschaften von Partikelschäumen spielen eine wichtige Rolle für viele Anwendungen. EPP besitzt ein exzellentes Verhalten auf stoßartige Kompression, was es zum idealen Werkstoff in Crash-Elementen im Automobilbereich macht [23,24]. Neben diesen klassischen Anwendungen

finden Partikelschäume auch immer mehr den Weg in speziellere Felder. Das im Jahr 2008 von der Firma BASF SE (Ludwigshafen am Rhein, Deutschland) entwickelte expandierte thermoplastische Polyurethan (ETPU) zeichnet sich durch sein nahezu komplett reversibles elastisches Verhalten aus und wird aufgrund der geringen Energiedissipation in Sportequipment wie Laufschuhen der Firma Adidas AG (Herzogenaurach, Deutschland) eingesetzt [25,26]. Als weitere Entwicklungen müssen noch Materialien mit erhöhter Temperaturstabilität sowie Partikelschäume auf Grundlage von biobasierten Polymeren aufgeführt werden [3,4].

Wie anhand des kurzen Überblicks gut zu erkennen ist, gibt es eine Vielzahl an unterschiedlichen Partikelschäumen mit ganz eigenen Eigenschaftsprofilen. Die Schaumpartikel können jedoch in den wenigsten Fällen als lose Schüttungen eingesetzt werden und benötigen zusätzlich einen formgebenden Prozess zur Herstellung dreidimensionaler Bauteile.

2.2. Formgebende Verarbeitung vom Schaumpartikel zum Formteil

Die formgebende Verarbeitung der einzelnen Schaumpartikel, oftmals auch Verschweißen genannt, spielt eine entscheidende Rolle auf dem Weg zum finalen Bauteil. Eine Ausnahme stellen dabei Technologien dar, welche auf einem Verkleben oder der chemischen Oberflächenmodifikation beruhen. Bei den sonstigen konventionellen Verfahren wird eine physikalische Verbindung zwischen den Partikelloberflächen thermisch angeregt (Kapitel 2.3). Der primäre Unterschied zwischen den Prozessen liegt dabei in der Art und Weise wie die Temperatur in Form von Energie eingetragen wird. Dies wird im Folgenden näher betrachtet.

2.2.1. Konventionelle dampfbasierte Technologie

Wie zuvor bereits angesprochen geht die Erfindung des ersten Partikelschaums eng einher mit der ersten Verarbeitungstechnologie. Im Jahre 1950 gelang es der Firma BASF SE (Ludwigshafen am Rhein, Deutschland), genauer den Mitarbeitern Dr. Rudolf Gaeth und Dr. Fritz Stastny, erstmals geschäumte Partikel auf Basis von Polystyrol (EPS) herzustellen [27]. Bereits im darauffolgenden Jahr wurde das Patent zur Verarbeitung dieses neuen Materials mittels Wasserdampf (SCM) eingereicht [28]. Seit diesem Zeitpunkt stellt die Technologie den industriellen Standard dar, welchen bis heute nahezu alle Partikelschäume weltweit durchlaufen.

Den grundlegenden Aufbau bilden drei miteinander verbundene Systeme. Aus einem Vorratsbehälter werden die Partikel über Rohrleitungen in Richtung des Werkzeuges transportiert. Die Verschweißanlage selbst besteht neben der Elektronik zur Steuerung aus der mechanischen

Schließeinheit und dem Werkzeug inklusive den Injektoren für die Partikel. Die Werkzeuge werden aufgrund thermischer und mechanischer Eigenschaften meist aus Aluminium oder Aluminium-Legierungen gefertigt. [29] Der Dampferzeuger ist ebenfalls über Leitungen verbunden. Dieser wandelt thermische Energie in heißen Wasserdampf um und wird industriell zumeist mit fossilen Brennstoffen (Erdgas oder Erdöl) betrieben [30,31].

Der Prozesszyklus kann primär in fünf Schritte unterteilt werden, die unabhängig von Material oder Prozessparametern durchlaufen werden (Abbildung 1) [3,18,32,33].

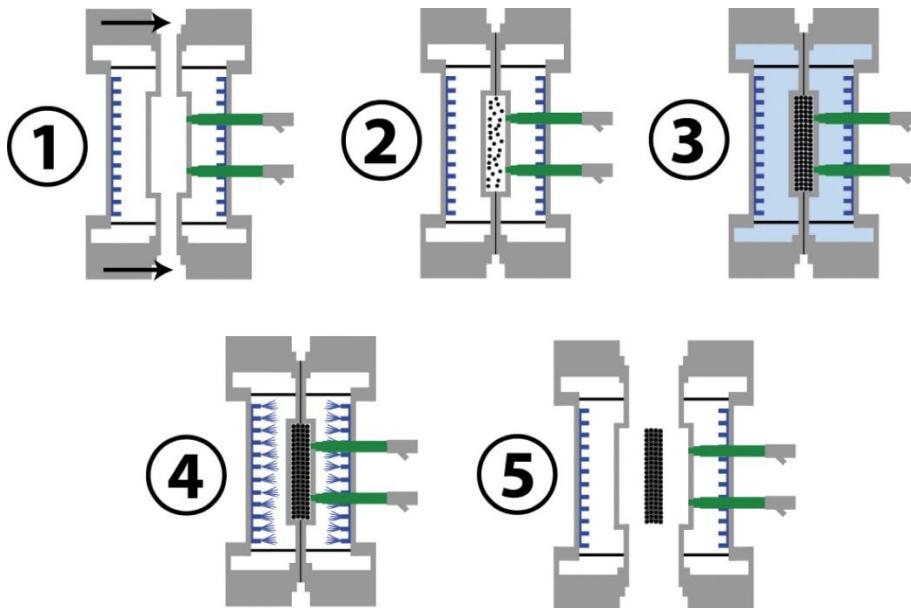


Abbildung 1: Schematische Darstellung der fünf Schritte der dampfbasierten Verarbeitung von Partikelschäumen: 1. Schließen des Werkzeuges, 2. Füllen mit Schaumpartikeln, 3. Bedampfung, 4. Kühlen und 5. Entformen des Bauteils. Reproduziert mit Genehmigung aus [3]

Zunächst werden die beiden Werkzeughälften geschlossen, wodurch eine abgeschlossene Form im Inneren entsteht. In diese werden im zweiten Schritt die Schaumpartikel über die Injektoren eingefüllt. Während des Befüllens kann ein Gegendruck im Werkzeug aufgebaut werden. Dadurch werden die Partikel leicht komprimiert und können so das Volumen besser ausfüllen. Eine Alternative dazu stellt das Spalt-Befüllen dar, bei der das Werkzeug im ersten Schritt nicht bis zur finalen Position zusammengefahren wird. Erst im befüllten Zustand schließt sich das Werkzeug komplett, was zur Kompression der Partikelschüttung führt. [29] Nach dem Spülen der Dampfkammern wird die Partikelschüttung anschließend mit Dampf durchströmt. Dieser wird nacheinander in beide Richtungen durch kleine Düsen durch das Werkzeug gelassen. Abschließend erfolgt die Autoklav-Bedampfung ohne Druckdifferenz zwischen den beiden Dampfkammern, wodurch die Oberfläche erhitzt und eine homogenen Verschweißung erzielt wird. [3,19,29,32] Zur Abkühlung und Stabilisierung des verschweißten Bauteils werden die Werkzeugoberflächen von außen mit kaltem Wasser besprührt. Bei ausreichender Formstabilität kann das fertige Bauteil

daraufhin durch automatische Auswerfer oder durch den Einsatz von Druckluft entformt werden. [3,29,32,33]

Der dampfbasierte Prozess wird im Allgemeinen als robust angesehen und wurde über die Jahrzehnte immer weiter optimiert. Über den anliegenden Druck kann die Temperatur des Wasserdampfes reguliert werden. Durch Wärmeleitung und Kondensation auf den Partikeln kommt es zu einem effizienten Energieübertrag [29]. Ein intelligentes Werkzeugdesign ermöglicht eine homogene Erwärmung des Bauteils und einem gezielten Energieeintrag in der Oberfläche der Partikel zur Verschweißung. Neben Verlusten durch den Transport des Dampfes und dem zumeist fossilen Energieträger, stellt die thermische Masse der metallischen Werkzeuge eine Herausforderung dar. Diese werden pro Zyklus erwärmt und wieder abgekühlt, wodurch nur ein Bruchteil der Energie wirklich im Partikelschaum zur Verschweißung genutzt wird [34]. Auch innovative Technologien, wie das Mono-Block Design oder dünnwandige Werkzeuge, können dies nur teilweise verbessern [3,29]. Neben den energetischen Nachteilen werden für die Verschweißung von technischen Thermoplasten erhöhte Temperaturen benötigt. Diese können jedoch nur mit exponentiell steigenden Drücken realisiert werden, was konventionelle Anlagen oftmals auf ca. 160 °C (5 bar) limitiert [4]. Zudem fördert die feuchte Umgebung bei erhöhten Temperaturen die hydrolytische Spaltung von vielen Polymeren. Gerade biobasierte Polymere, wie PLA und PHBV, sind aufgrund der Ester-Bindungen in ihrer Struktur besonders anfällig [5–8,19].

Die aufgeführten Limitierungen der konventionellen dampfbasierten Formgebung in Kombination mit aktuellen Materialtrends erfordern somit die Entwicklung innovativer Technologien.

2.2.2. Neuartige Verarbeitungsprozesse

Nach Jahrzehnten des Stillstandes auf Seiten der industriellen Technologien zur Verschweißung von Partikelschäumen wurden in den letzten Jahren mehrere innovative Vertreter auf den Markt gebracht. Der Fokus lag hierbei durchweg auf der Einsparung von Energie oder der Erweiterung der Partikelschaumtechnologie um neue Materialien oder Materialkombinationen.

In Zusammenarbeit der Siegfried Hofmann GmbH (Lichtenfels, Deutschland) mit der Fox Velution GmbH (Lichtenfels, Deutschland) wurde 2019 das dynamische variotherme Verfahren entwickelt und patentiert [10]. Dieses zeichnet sich durch eine direkte Temperierung des Werkzeuges aus, mit der die Schaumpartikel durch Wärmeleitung sowie einer nicht näher definierten Strahlung erwärmt werden [4]. Dadurch kann auf Dampf als Medium des Energieübertrags verzichtet werden. Die oberflächennahe Temperierung bringt jedoch auch

Limitierungen mit sich. Bei niedrigen Dichten und/oder erhöhten Bauteildicken verhindert die gute Isolationswirkung des Polymerschaums eine schnelle und homogenen Erwärmung des kompletten Volumens. Dies führt bei vergleichbaren Bauteilen zu einer signifikanten Reduktion der mechanischen Eigenschaften im Vergleich zum dampfbasierten Prozess. Das variotherme Verschweißen bietet somit nur für spezielle Bauteile mit erhöhten Dichten und dünnen Wandstärken eine valide Alternative. [35]

Eine weitere Technologie hingegen variiert nicht die Art des Energieeintrags zur Verbindung der Partikel, sondern den Verbindungsmechanismus an sich. Der sogenannte ATECARMA®-Prozess wurde 2019 durch die Teubert Maschinenbau GmbH (Blumberg, Deutschland) vertrieben [11,36]. Die Grundlage hierfür bildet eine wässrige Emulsion, welche zunächst auf die Partikeloberflächen aufgebracht und anschließend getrocknet wird. Die Partikel können danach z.B. in einem einfachen temperierten Werkzeug erwärmt werden. Dabei wird deren Oberfläche funktionalisiert und es entsteht eine kovalente Verbindung. Die Verarbeitung kann dadurch bei niedrigeren Temperaturen erfolgen [4]. Dieser Prozess eignet sich jedoch aufgrund der zusätzlichen Schritte und damit einhergehenden Kosten nur für Prototypen und Kleinserien, zeigt jedoch in speziellen Sandwichverbunden aus unterschiedlichen Materialien großes Potential auf. Zudem ist ein stoffliches Recycling aufgrund der irreversiblen Verbindungen nicht mehr möglich.

Neben diesen industriell eingesetzten Alternativen finden sich in wissenschaftlichen Veröffentlichungen noch eine Reihe weiterer Verarbeitungsmethoden im Labormaßstab. Die Partikel werden hier teilweise durch elektromagnetische Strahlung im Mikrowellenbereich erwärmt [37–40]. Eine weitere Möglichkeit stellt das gleichzeitige Aufschäumen und Verschweißen der Partikel mittels Autoklav-Technologie und einer Form dar, welche die finale Form des Bauteils vorgibt [41–43]. Auch ein reines Verkleben der Partikel auf Basis von Lösemitteln oder einem vernetzbaren Hilfsstoff ist in der Literatur zu finden [44–46]. Die hier aufgeführten Methoden sind jedoch nicht in einem industriellen Umfeld nutzbar und finden daher nur im akademischen Rahmen Anwendung.

2.2.3. Radiowellen-Verschweißen

Unter allen aufgezeigten Alternativen zum konventionellen dampfbasierten Verschweißen, bietet die Radiowellen-Technologie ein hohes Potential für einen großflächigen Einsatz in der Verarbeitung von Partikelschäumen. Die Technologie wurde 2017 durch die Kurtz GmbH (Kreuzwertheim, Deutschland) und Erfinder Victor Romanov patentiert [9]. Ähnlich der

dynamisch variothermen Verarbeitung, steht auch hier die Energiequelle im Fokus. Analog zum klassischen Mikrowellenofen werden die Schaumpartikel nach der Befüllung in eine Form durch die Interaktion mit einem elektromagnetischen Feld erwärmt [4,47]. Der grundlegende Aufbau besteht zunächst aus metallischen Aufspannflächen zur Positionierung der Werkzeughälften. Diese metallischen Fixierungen sind jeweils auf einer Seite direkt mit dem Ausgang des Hochfrequenz-Generators sowie gegenüberliegend mit einer Erdung verbunden und bilden somit die Elektroden zur Erzeugung des dazwischenliegenden elektromagnetischen Wechselfeldes. Das Werkzeug selbst unterscheidet sich jedoch stark von den Vertretern der dampfbasierten Technologie. Um einen Kurzschluss zwischen den beiden Elektroden zu verhindern, besteht die Form meist aus isolierenden Polymeren wie z.B. Polytetrafluorethylen (PTFE), Polyoxytmethylene (POM) oder Polyethylenterephthalat (PET) [47,48]. Je nach zu verarbeitenden Schaumpartikeln müssen die Werkzeugmaterialien zudem eine gewisse Wärmeformbeständigkeit besitzen, um die vorgegebene Endkontur des Bauteils zu gewährleisten.

Der komplette Zyklus des Prozesses zur Herstellung eines verschweißten Bauteils kann ebenfalls in mehrere Einzelschritte unterteilt werden, welche unabhängig von Bauteilgeometrie und Material konsistent sind. Dieser ist in Abbildung 17 als schematischer Kreislauf dargestellt.

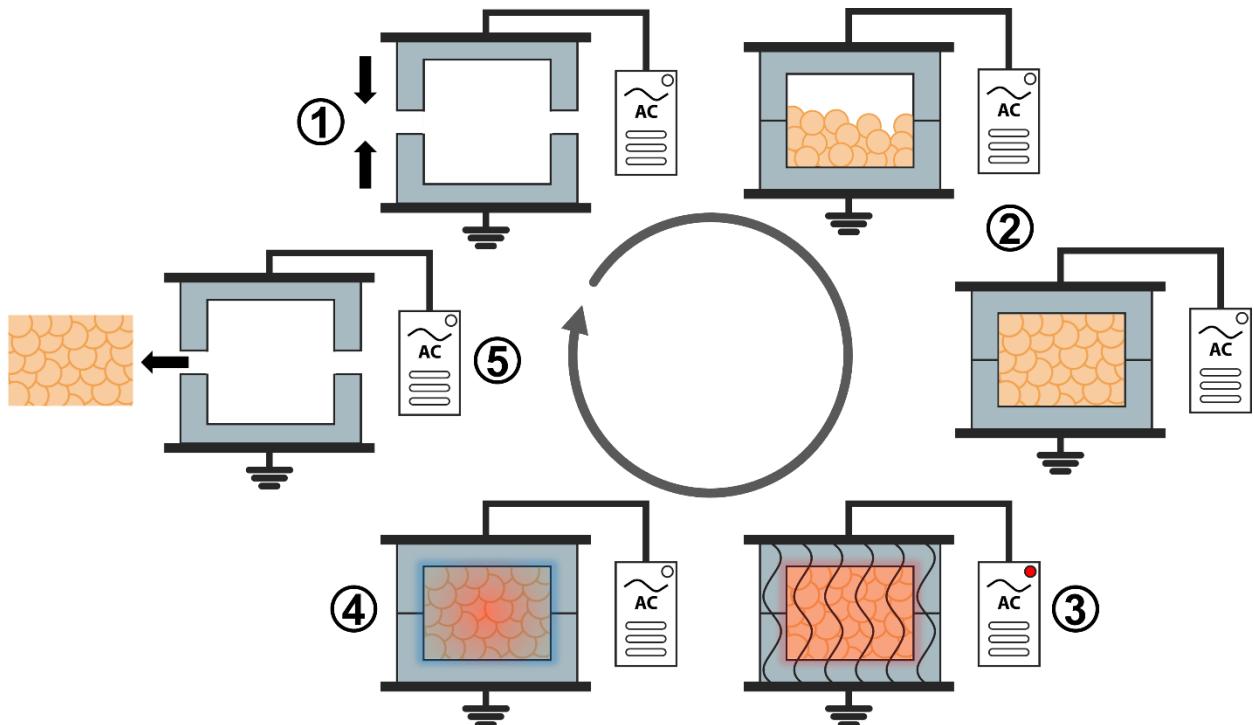


Abbildung 2: Schematische Darstellung eines Zyklus des RF-Prozesses: 1. Schließen des Werkzeuges, 2. Füllen mit Schaumpartikeln und optionales Kompaktieren, 3. Dielektrische Erwärmung, 4. Kühlen und Stabilisieren, 5. Entformen des Bauteils

Zunächst werden die beiden Werkzeughälften geschlossen, um die formgebende Innenkontur zu erzeugen. Anschließend wird diese mittels Injektoren mit den Schaumpartikeln befüllt. Zu

Forschungszwecken kann die Befüllung bei geöffnetem Werkzeug auch händisch erfolgen. Je nach Füllmethode kann es daraufhin noch zum Kompaktieren der Schüttung durch ein weiteres Zusammenfahren des Werkzeuges kommen. Dadurch werden Lufteinschlüsse zwischen den Partikeln minimiert und eine gewisse Kontaktkraft aufgebaut. Dies ist entscheidend für eine spätere homogene Verschweißung der Polymeroberflächen. Ist die finale Bauteilform erreicht, startet der Schritt der dielektrischen Erwärmung. Über den Generator wird dabei eine Wechselspannung an der aktiven Elektrode angelegt. Wie die Namensgebung bereits suggeriert, wird eine oszillierende Spannung im Radiowellen-Bereich genutzt [49]. Radiowellen zeichnen sich durch deutlich größere Wellenlängen im Bereich von mehreren Metern aus [50]. Im Vergleich zur klassischen Mikrowelle, entsteht somit keine stehende Welle zwischen den beiden Elektroden durch Interferenz, wodurch ein homogenes elektromagnetisches Feld und dadurch auch Erwärmung gewährleistet werden kann [51]. Aufgrund der weltweit eingeschränkten Nutzung von Frequenzen außerhalb der genehmigungsfreien ISM-Bänder (*industrial, scientific and medical band*) wird eine Frequenz von 27.12 MHz genutzt [51,52]. Vor der Entformung des Bauteils muss dieses noch durch Abkühlen stabilisiert werden, um die dafür notwenige strukturelle Integrität zu erreichen. Anschließend kann der Prozess zur Herstellung des nächsten Formteils erneut gestartet werden.

Wie bereits zuvor beschrieben, liegt der Fokus der Technologie auf der dielektrischen Erwärmung der Schaumpartikel. Diese wird durch die Interaktion des elektromagnetischen Wechselfeldes zwischen den Elektroden mit der dazwischenliegenden Materie ausgelöst und kann durch folgende Gleichung (2.1) beschrieben werden [51–55]:

$$P_v = 2\pi f \varepsilon_0 \varepsilon_r'' E_{RMS}^2 \quad (2.1)$$

Die volumetrische Leistungsaufnahme P_v des Materials wird zunächst durch die beiden Konstanten der Kreiszahl π und der Permittivität von Vakuum ε_0 bestimmt. Seitens des Prozesses geht zudem die Frequenz f sowie das Quadrat der elektromagnetischen Feldstärke E_{RMS}^2 ein. Aufgrund der zeitlichen Variation der Spannung wird der sogenannte RMS-Wert („root mean square“, quadratisches Mittel) genutzt, um die effektive durchschnittliche Feldstärke zu ermitteln. Eine homogene Feldstärke ist somit essenziell für eine gleichmäßige Erwärmung des gesamten Volumens. Bei komplexeren dreidimensionalen Bauteilen ist dies mit planaren Elektroden aufgrund von Feldverschiebungen und andere Effekten nicht mehr gegeben, weshalb eine simulative Optimierung der Elektroden- und Werkzeug-Geometrien notwendig ist. Zuletzt beeinflusst der Imaginärteil der relativen Permittivität ε_r'' des Materials die Leistungsaufnahme

linear. Eine detailliertere Betrachtung der dielektrischen Eigenschaften von Polymerschäumen und deren Interaktion mit dem elektromagnetischen Feld erfolgt in Kapitel 2.4.

Die Vorgänge während der Verschweißung mittels RF-Technologie beruhen somit auf definierten physikalischen Prinzipien und können dadurch vorhergesagt und gezielt variiert werden. Auch eine multi-physikalische Simulation der Vorgänge ist somit möglich. Neben den genannten Vorteilen entstehen durch diese Charakteristik auch Herausforderungen. Im Gegensatz zum konventionellen dampfbasierten Verschweißen mit definierten Temperaturen, einstellbar durch den Dampfdruck, ist die Erwärmung hier direkt an die Materialeigenschaften gekoppelt und kann sich über den Temperaturanstieg mit der Zeit verändern. Diese Phänomene sind bei jedem Material anders und müssen stets in Betracht gezogen werden. Die direkte Erwärmung der Partikel erlaubt eine gezielte Nutzung der Energie für die Verschweißung, wodurch bis zu 90 % Einsparung möglich sind [12]. Dieser signifikante Vorteil der Technologie stellt sich jedoch auch als größte Herausforderung dar. Trotz optimal ausgelegter Elektroden und einem Werkzeug mit homogenem elektromagnetischem Feld kann es durch Wärmeleitung zu ungleichmäßiger Erwärmung kommen. Bei dem standardmäßigen Einsatz von Werkzeugen aus PTFE, welches nicht im Feld angeregt wird, fungiert dieses als Temperatursenke. Dies führt zur starken Abkühlung der Oberflächen und somit zu einer inhomogenen Verschweißung über die Dicke des Bauteils.

Um dies zu verhindern ist neben dem dielektrischen Energieeintrag eine detaillierte Betrachtung des Verschweißverhaltens der Schaumpartikel, genauer derer Oberflächen, notwendig, um die Signifikanz der resultierenden Temperaturschwankungen besser einschätzen zu können.

2.3. Hintergründe der Verschweißung von Schaumpartikeln

Die mechanische Verbindung der einzelnen Schaumpartikel zu einem dreidimensionalen Bauteil stellt den zentralen Mittelpunkt der gesamten Partikelschaum-Technologie dar. Während die Eigenschaften der zellulären Struktur an sich hauptsächlich durch das Grundpolymer und die Morphologie bestimmt werden, hat die Verschweißung gerade auf die mechanischen Eigenschaften einen entscheidenden Einfluss. Nach dem Prinzip des schwächsten Gliedes kann dies die Gesamtperformance stark beeinträchtigen. Daher werden im Folgenden die materialwissenschaftlichen Hintergründe dessen näher beleuchtet.

2.3.1. Diffusions-basierte Verschweißung

Analog zu einer Vielzahl von anderen Eigenschaften, muss das Verschweißverhalten von Schaumpartikeln aus thermoplastischen Polymeren in amorphe und teilkristalline Vertreter unterteilt werden. Das Verschweißen zwischen den Oberflächen von Polymeren, oftmals auch als „healing“ bezeichnet, wird in einer Vielzahl an industriellen Prozessen gezielt genutzt.

Die Grundlage dessen liegt in der molekularen Struktur eines jeden Thermoplasten. Thermoplaste bestehen durch die Aneinanderreihung von einzelnen Bausteinen (Monomeren) aus langen Ketten, welche in den amorphen Bereichen ungeordnet vorliegen und ab einem kritischen Molekulargewicht untereinander Verschlaufungen ausbilden. Diese Verschlaufungen fungieren als temporäre, physikalische Verankerungen zwischen den Ketten bei einer extern induzierten Deformation. [56,57] Die umliegenden Nachbarketten schränken die einzelnen Segmente in ihrer lateralen Bewegung ein und bilden somit eine virtuelle Röhre aus. Innerhalb derer sind nur Bewegungen entlang der Hauptkette möglich. Diese kleinen Bewegungen werden durch thermische Fluktuationen, den sogenannten Brownschen Bewegungen, ausgelöst und wurden erstmals von *de Gennes* [58] untersucht. Durch diese Vibrationen mit kleiner Amplitude, jedoch hoher Frequenz, kann die einzelne Polymerkette über die Zeit aus ihrer ursprünglichen Röhre entweichen und somit im Volumen wandern (diffundieren). Dies wird als Reptation bezeichnet. Als Maß der Beweglichkeit der einzelnen Ketten werden die beiden Parameter des Diffusionskoeffizienten D_{rep} sowie der Reptationszeit τ_{rep} genutzt [59]. Diese Kenngrößen beschreiben, wie schnell sich die Kette im Volumen bewegen kann sowie die Zeit, in der diese die ursprüngliche Röhre verlassen hat. Die räumliche Ausdehnung des Polymers kann zudem durch das Molekulargewicht M_W beschrieben werden und hat direkten Einfluss auf die beiden Größen ($D_{rep} \propto M_W^{-2}$ und $\tau_{rep} \propto M_W^3$) [60]. Ketten mit mehreren aufeinanderfolgenden Segmenten benötigen somit eine längere Zeit, um sich durch diese zufälligen Bewegungen vollständig aus der ursprünglichen Röhre zu bewegen, was deren Diffusion im Volumen folglich verlangsamt. Auch die Temperatur spielt hierbei einen entscheidenden Faktor. Diffusionsprozesse werden durch Temperaturerhöhung aufgrund der verstärkten molekularen Bewegungen beschleunigt. Dies tritt jedoch erst oberhalb der Glasübergangstemperatur T_g des jeweiligen Polymers auf, da darunter die thermische Energie zur Überwindung der intermolekularen Wechselwirkungen nicht ausreicht [61]. [56,59,62–64]

Die zufällige Bewegung der Polymerketten innerhalb eines Volumens kann auch als Grundlage der Verschweißung über die Oberflächen hinweg herangezogen werden. *Wool et al.* [61] nutzten diese Theorie zur Betrachtung der Phänomene auf molekularer Ebene. Diese kann in vier

hauptsächliche Schritte unterteilt werden und ist in Abbildung 3 als schematische Darstellung aufgeführt.

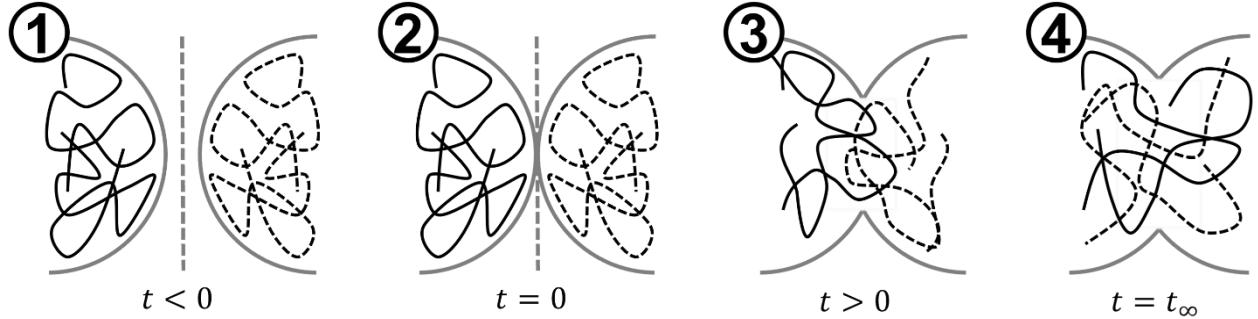


Abbildung 3: Schematische Darstellung der diffusionsbasierten Verschweißung zweier amorpher Partikeloberflächen über die Schritte der Umstrukturierung und Annäherung (1), Benetzung der Oberflächen (2), Interdiffusion der oberflächennahen Ketten (3) und zufälligen Neuanordnung über die Grenzfläche hinweg (4). In Anlehnung an [4,61]

Vor dem direkten Kontakt der beiden Oberflächen ($t < 0$) kommt es zu einer stetigen Umstrukturierung der Polymerketten im Volumen aufgrund der zufälligen, zuvor beschriebenen thermodynamischen Phänomene. Mit fortlaufender Annäherung kommt es anschließend zum Schritt der Benetzung, welche einen physikalischen Kontakt der Ketten initiieren. Der Kontakt ist entscheidend für eine direkte Interaktion der Ketten und in den meisten Fällen aufgrund der Rauigkeit der Oberflächen leicht verzögert. Die steigende Benetzung kann durch den Grad an direkter Kontaktfläche D_{ic} quantifiziert werden und ist abhängig von Temperatur, Anpressdruck sowie Oberflächenrauigkeit und nimmt mit der Zeit zu [60]. Die Benetzung startet daher meistens an einzelnen Punkten und breitet sich anschließend ausgehend davon weiter über die Fläche aus. Lediglich bei elastischen Polymeren kann durch die leichte Verformbarkeit bei ausreichend hohem Anpressdruck von einem unmittelbaren direkten Kontakt ausgegangen werden [61]. Dies hat im Normalfall dadurch zur Folge, dass der dritte Schritt der diffusionsbasierten Verschweißung, die Interdiffusion der oberflächennahen Ketten über die Grenzfläche hinweg, lokal zeitlich verzögert startet. Dieser Schritt ist entscheidend für die mechanische Verbindung der beiden Oberflächen und führt zu einer Erhöhung der Bruchspannung σ_B über die Zeit ($\sigma_B(t) \propto t^{1/4}$) [63]. Nach ausreichend langer Zeit ($t \geq t_\infty$) befindet sich die Grenzfläche in einem vollständig geheilten Status. In diesem Status ist die einstige Abgrenzung nicht mehr von den beiden Volumina zu unterscheiden und die mechanischen Eigenschaften gleichen dem Vollmaterial. Die Zeit bis zur vollständigen Heilung t_∞ verkürzt sich dabei mit steigender Temperatur ($t_\infty \propto x^{1/T}$) sowie niedrigerem Molekulargewicht ($t_\infty \propto M_W^3$). Beide Effekte können mit der erhöhten Beweglichkeit der Polymerketten und dadurch reduzierter Reptationszeit τ_{rep} erklärt werden. Auch der Kontaktdruck P spielt hierbei eine Rolle. Während dieser im vorhergehenden Schritt der

Benetzung einen positiven Einfluss aufweist, wirkt der Druck bezüglich der Interdiffusion hinderlich und erhöht die Zeit bis zur vollständigen Heilung ($t_\infty \propto x^P$). Unter Druckspannung kommt es hierbei zur Reduktion des freien Volumens und somit zu einer eingeschränkten Beweglichkeit der Kettensegmente [65]. Für eine optimierte Verschweißung müsste somit der Anpressdruck nach der Benetzung auf Null gesetzt werden, ohne den Kontakt zu verlieren. [61] Zusammenfassend ergibt sich somit für ein definiertes Polymer eine Abhängigkeit der Verschweißqualität von den drei Hauptfaktoren Temperatur, Kontaktdruck und Zeit [62]. Für die eher geringen Kräfte zur Kompression der Beads in der Partikelschaumverarbeitung kann der Einfluss des Drucks auf die Kettenbeweglichkeit weitestgehend vernachlässigt werden.

Die Anwendung dieser Theorie erfolgte bereits in mehreren Studien am Beispiel des klassischen Polystyrols (PS) sowie der dazugehörigen Schaumpartikel (EPS). *Bousmina et al.* [63] untersuchten die Verschweißung zweier ungeschäumter PS-Plättchen innerhalb eines Rotationsrheometer über die Zeit. Der Aufbau aus den beiden Plättchen wurde dabei durchgehend unter kleiner Amplitude und geringer Frequenz ($\omega = 1 \text{ Hz}$) gescherzt und dessen dynamische Antwort hinsichtlich des Beitrags des komplexen Schubmoduls G^* über die Zeit aufgetragen. Verglichen wurden hier unterschiedliche Vorbehandlungen der Prüfkörper. Für unbehandelte Oberflächen kommt es zu einem zweistufigen Verschweißverhalten, ausgelöst durch die bevorzugte Konzentration der Kettenenden innerhalb des Volumens. Diese müssen vor einem Überschreiten der Grenzfläche erst an die Oberfläche diffundieren. Die Abhängigkeit der Interdiffusion von der Konzentration an oberflächennahen Kettenenden konnte durch die Modifizierung der Oberflächen durch Vorscherung, mechanischen Bruch sowie einer Corona-Behandlung untersucht werden. Bei einem Überschuss an Kettenenden an der Oberfläche kann eine erste Interdiffusion durch Brownsche Bewegungen entlang der Kette erfolgen. Ist dies nicht der Fall, kann die Interdiffusion durch langsamere Reptations-Prozesse über die Grenzfläche hinweg beschrieben werden.

Betrachtet man den Grenzbereich zweier Schaumpartikel von Nahem, so ist hier der direkte Kontakt der beiden Hüllen aus Vollmaterial zu erkennen. Der Verschweißung von amorphen Partikelschäumen oberhalb der Glasübergangsbereichs liegen somit die gleichen Phänomene auf molekularer Ebene zugrunde [18]. Dieses Verhalten wurde bereits mit EPS als klassischem Vertreter in einer Vielzahl an Studien in Abhängigkeit der Temperatur (Dampfdruck) und Verschweißzeit untersucht. [66–68] Mit steigender Temperatur und Zeit nimmt die Anhaftung zwischen den Partikeln zu, bis es zu einem Versagen der inneren Schaumstruktur als schwächstes Glied im Verbund kommt. Dieses Verhalten kann mittels bildgebender Analyse der Bruchfläche

untersucht werden, wodurch zwischen Bereichen mit inter- (adhäsiv zwischen den Oberflächen) und intra-Partikel-Versagen (innerhalb der Partikel) unterschieden werden kann. Anhand der Versagensart der beiden Bruchflächen kann so ein prozentualer Anteil an optimaler Verschweißung bestimmt werden. Dieser steht in einem direkten Zusammenhang mit der resultierenden Zugfestigkeiten der verschweißten Bauteile.

Auch andere amorphe Partikelschäume mit erhöhter Glasübergangstemperatur und Wärmeformbeständigkeit konnten bereits zu Bauteilen verarbeitet werden. *Weingart et al.* [69,70] entwickelten einen Partikelschaum auf Basis von Polycarbonat (EPC). Die Partikel konnten hier mittels dampfbasierter Technologie bei erhöhten Drücken von 12 bis 14 bar (ca. 180 °C) knapp oberhalb der Glasübergangstemperatur zu formstabilen Bauteilen verarbeitet werden. Auch Partikelschaumbauteile aus Polyetherimid (PEI) konnten mittels Autoklav-Schäumen von *Feng et al.* [39,43] hergestellt werden. Die Verschweißung erfolgte hierbei entweder direkt während des Aufschäumens in einer Form oder durch nachträgliches Beschichten und anschließendem Erwärmten mittels Mikrowellen-Technologie. Die Interdiffusion zwischen den Grenzflächen erfolgt oberhalb des Glasübergangsbereichs, welcher durch die Zugabe von organischen niedermolekularen Stoffen wie Ethanol gesenkt wurde. Auch ein oberes Temperaturlimit konnte hier beobachtet werden, bei dem es zur Zellkoaleszenz und sogar thermischer Degradation kommt.

Die Verarbeitung von Schaumpartikeln aus amorphen Thermoplasten wurde bereits vielfach untersucht und beruht auf Brownschen Bewegungen der Kettensegmente und der darauf basierten Reptations-Theorie. Das untere Limit stellt hierbei der Glasübergangsbereich des Polymers dar und ist neben materialspezifischen Eigenschaften hauptsächlich abhängig von den Einflussgrößen Temperatur und Zeit. Nach oben stellt die unzureichende Stabilität der Schaumstruktur eine Grenze dar. Der daraus resultierende Temperaturbereich zur erfolgreichen Verarbeitung von amorphen Schaumpartikeln ist in Abbildung 4 schematisch anhand des Wärmestromsignals mittels dynamischer Differenzkalorimetrie (DSC) dargestellt.

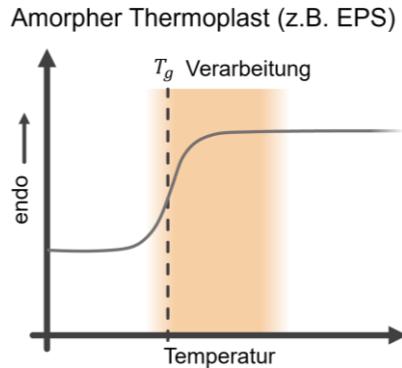


Abbildung 4: Schematische Darstellung des Wärmestroms mittels DSC eines Schaumpartikels aus einem amorphen Thermoplasten (z.B. EPS) mit klassischem Verarbeitungsfenster zur Verschweißung. In Anlehnung an [4,71]

2.3.2. Einfluss kristalliner Bereiche

Je nach chemischem Aufbau des Polymers kann es unter spezifischem Abkühlbedingungen zur Ausbildung von hochgeordneten Bereichen kommen. Diese Strukturen entstehen durch die enge Anlagerung von Kettensegmenten zu kristallinen Lamellen innerhalb des Polymers. Eine vollständige Kristallisation wird jedoch im Normalfall durch die Entropievergrößerung der stark verschlauften Ketten verhindert, wodurch eine teilkristalline Struktur mit amorphen Zwischenbereichen entsteht. Im Gegensatz zum Erweichen von amorphen Polymeren um den Glasübergang herum, kommt es hierbei zusätzlich zu einer starken Reduktion der Viskosität über einem meist engeren Temperaturbereich, dem sogenannten Schmelzebereich. Dabei wird die Ordnung der kristallinen Bereiche aufgebrochen und die Beweglichkeit der Ketten erhöht sich signifikant. [21,72]

Doppel-Peak-Verhalten

In der Verschweißung von Schaumpartikeln aus teilkristallinen Thermoplasten kann zwischen drei bekannten Wirkmechanismen unterschieden werden. Neben dem bereits angesprochenen EPS besitzt EPP wohl die größte industrielle Relevanz. Das ungeschäumte Polypropylen (PP) wird zunächst mittels Extrusion zu kleinen sphärischen Körnern granuliert, dem sogenannten μ -Granulat. Dieses wird anschließend in einem Rührautoklaven bei definierten Temperaturen und Drücken mit einem physikalischen Treibmittel unter stetigem Rühren in Wasser beladen. Wie die meisten teilkristallinen Polymere, besitzt das PP als μ -Granulat zunächst einen einzigen Schmelzebereich mit leichter thermischer Variation der Schmelztemperatur der einzelnen Segmente aufgrund unterschiedlicher Lamellendicken. Durch die Beladung bei erhöhter

Temperatur innerhalb des Schmelzebereichs kommt es zum Temperiern des Materials, wodurch niedrigschmelzende Kristallite zunächst aufgeschmolzen werden. Mit Unterstützung des plastifizierend wirkenden Treibmittels kommt es anschließend zur sogenannten Perfektionierung der Struktur der übrigen Kristalle, was auf molekularer Ebene eine Verdickung der Lamellen zufolge hat [73]. Der Peak dieses hochschmelzenden Bereichs verschiebt sich daraufhin zu erhöhten Temperaturen $T_{m,hoch}$ [74]. Nach der vollständigen Sättigung des Polymers mit dem Treibmittel wird durch das Öffnen des Ablassventils das μ -Granulat zusammen mit dem Wasser in den Entspannungstank abgelassen. Der dadurch auftretende Druckabfall führt zur Übersättigung des Polymers, wodurch das Aufschäumen initiiert wird und das Material gleichzeitig abkühlt. Durch die Temperaturreduktion kommt es zur erneuten Kristallisation einiger Ketten, wodurch ein zweiter niederschmelzender Bereich $T_{m,niedrig}$ entsteht. Das daraus resultierende Aufschmelzverhalten von z.B. EPP kann mittels DSC-Analyse als endotherme Peaks im Wärmestromsignal bestimmt werden und ist schematisch in Abbildung 5 (links) aufgeführt. [71]

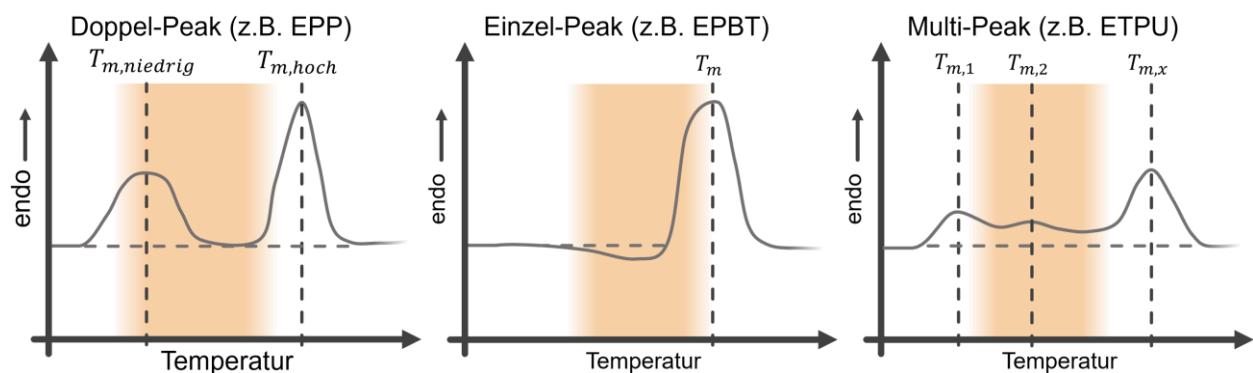


Abbildung 5: Schematische Darstellung des Wärmestroms mittels DSC von Schaumpartikeln mit Doppel-Peak (z.B. EPP), Einzel-Peak (z.B. EPBT) und Multi-Peak (z.B. ETPU) mit klassischem Verarbeitungsfenster in orange zur Verschweißung. In Anlehnung an [4,71,75–77]

Analog zum zuvor beschriebenen Verschweißen von amorphen Schaumpartikeln bildet sich hier wiederum ein bevorzugter Temperaturbereich aus, welcher durch die beiden Schmelzebereiche begrenzt wird. Die Verarbeitungstemperatur muss dabei hoch genug sein, um zumindest einen Teil der kristallinen Lamellen des niederschmelzenden Bereichs $T_{m,niedrig}$ aufzulösen. Die oberflächennahen Ketten der so neu gewonnenen amorphen Bereiche in den Schaumpartikeln können zunächst, analog zu EPS, durch Reptation über die Grenzfläche diffundieren. Dadurch werden Verschlaufungen der Polymerketten zwischen den Partikeln ausgebildet und eine mechanische Verbindung geschaffen [18]. Die hohe Ordnung und starken Wechselwirkungen der Kettensegmente innerhalb der kristallinen Bereiche verhindert eine derartige Bewegung bei niedrigeren Temperaturen. Neben der rein Diffusions-basierten Verschweißung, spielen hier jedoch die zuvor aufgeschmolzenen kristallinen Bereiche eine entscheidende Rolle. Diese können

während des Stabilisierungsschrittes unter Abkühlung des Bauteils im Inneren der Partikel sowie über die Grenzflächen hinweg rekristallisieren. Diese neu ausgebildeten Domänen wirken als Verbindungselemente zwischen den individuellen Partikeln und sind entscheidend für eine gute Verschweißung und die daraus resultierenden mechanischen Eigenschaften [33,78]. Am anderen Ende des Verarbeitungsfensters liegen die kristallinen Phasen des hochschmelzenden Bereichs $T_{m,hoch}$. Diese bleiben normalerweise während der Verschweißung unangetastet und fungieren als stabilisierende Elemente [3]. Dadurch bleibt die zelluläre Struktur des Schaums erhalten und es kommt nicht zum Kollabieren des Bauteils, was wiederum neben der Maßhaltigkeit auch die mechanischen und isolierenden Eigenschaften negativ beeinträchtigen würde. [3,33]

In Abhängigkeit des Grundpolymers sowie der thermischen Historie während des Röhrautoklav-Prozesses können Variationen in der Charakteristik von EPP-Partikel entstehen. Diese Abweichungen verlangen eine individuelle Anpassung des Verschweiß-Prozesses. Generell besitzen die meisten EPP-Typen jedoch einen optimalen Temperaturbereich von 130 bis 150 °C, was in der dampfbasierten Verarbeitung absoluten Dampfdrücken von 2,7 bis 4,7 bar entspricht [3,18,33,71,78]. *Handtke et al.* [35] zeigten in einer Studie jedoch auch die erfolgreiche Verarbeitung durch eine dampfflose Technologie in einem ähnlichen Temperaturbereich von ca. 140 °C. Das dafür genutzte variotherme Werkzeug wurde möglichst kontournah temperiert, um neben einer homogenen Temperaturverteilung die thermischen Verluste zu minimieren. Ein weiterer Faktor ist die Zeit der Verschweißung. Diese ist jedoch gegenüber der Temperatur ab einem gewissen Maß an Homogenität der Erwärmung eher zweitrangig [78]. Partikel mit Doppel-Peak-Verhalten, wie EPP, weisen somit ein klar abgegrenztes sowie eher breites Verarbeitungsfenster auf, was sich positiv auf eine stabile Prozessierung auswirkt.

Einzel-Peak-Verhalten

Auch ohne die Nutzung zweier getrennter Schmelzebereiche ist es möglich, Schaumpartikel aus teilkristallinen Thermoplasten durch Erwärmung miteinander zu verbinden. Hierbei kann zwischen zwei bekannten Phänomenen unterschieden werden. Zunächst ist es möglich die Ordnung von nur einem Teil der Kristallite mit niedrigerer Schmelztemperatur während der Verschweißung aufzulösen. Dadurch fungieren die restlichen geordneten Bereiche als mechanische Stabilisierung, um ein Kollabieren der Schaumstruktur zu verhindern. Wie in mehreren Studien bereits gezeigt, kann EPP neben dem klassischen Autoklav-Prozess auch durch Partikelschaumextrusion hergestellt werden. Ohne den zuvor beschriebenen Temperschritt kommt es hier nicht zur Ausbildung eines Doppel-Peaks. Dies führt zu einem deutlich engeren

Prozessfenster und generell niedrigeren Festigkeiten der verschweißten Bauteile. [79,80] Auch andere Schaumpartikel aus teilkristallinen Thermoplasten, wie z.B. EPA, konnten bereits mittels Extrusion hergestellt und erfolgreich verschweißt werden [81].

Daneben wurde auch ein zweiter Mechanismus zur mechanischen Verbindung von Schaumpartikeln knapp unterhalb des Schmelzebereichs entdeckt. *Kuhnigk et al.* [75,82] untersuchten die Verschweißung von EPBT-Partikeln, welche lediglich einen definierten Schmelzbereich von ca. 210 bis 235 °C besitzen. Durch den gezielten Einsatz eines Epoxid-basierten Kettenverlängerers konnte die Kristallisationskinetik des Polymers abgeschwächt werden. Dies kann auf eine erleichterte Interdiffusion der Ketten mit anschließender Kaltkristallisation und somit zur Ausbildung von kristallinen Domänen über die Grenzflächen hinweg zurückgeführt werden [83].

Die aufgeführten Beispiele zeigen die mögliche Verarbeitung von Schaumpartikeln auf der Basis von teilkristallinen Thermoplasten mit nur einem definierten Schmelzebereich auf (Abbildung 5). Die Prozessierung ist jedoch durch einen oftmals sehr engen Temperaturbereich anspruchsvoller und, wie am Beispiel EPP zu sehen, ergeben sich Abzüge in den mechanischen Eigenschaften im Vergleich zu Varianten mit Doppel-Peak aufgrund der einfacheren Verarbeitbarkeit.

Multi-Peak-Verhalten

Bei gewissen Thermoplasten kommt es aufgrund von Eigenheiten in der molekularen Struktur zur Ausbildung eines breiten oder mehrere Schmelzebereiche, welche sich überlappen können. Ein wichtiger Vertreter dieser sind die thermoplastischen Elastomere (TPE), welche vermehrt in unterschiedlichen Anwendungen als Partikelschaum eingesetzt werden. Im Vergleich zu anderen Thermoplasten besitzen TPEs eine sequenzielle Molekülstruktur aus Weichsegmenten und darin eingeschlossenen steiferen Hartsegmenten. Letztere zeichnen sich durch eine hohe Kristallinität und Steifigkeit bei Raumtemperatur aus, welche als physikalische Vernetzungspunkte im Material wirken. Die dazwischenliegenden Weichsegmente, meistens langketige Polyole mit niedriger Glasübergangstemperatur, sind dagegen flexibel und führen zur hohen Elastizität der TPEs. [84] Je nach chemischer Struktur des Hartsegments erfolgt nach der Norm DIN EN ISO 18064 eine Gruppierung in thermoplastische Elastomere auf z.B. Amid- (TPA), Copolyester- (TPC), Olefin- (TPO) oder Urethan-Basis (TPU) [85]. Die Aufteilung der Hartsegmente in definierte Blöcke verhindert während der Abkühlung die Formation von homogenen geordneten kristallinen Bereichen. Die so entstandene Variation in der Kristallperfektionierung führt bei TPEs teilweise zu einem breiten Schmelzebereich verglichen mit anderen teilkristallinen Thermoplasten. [86]

Dieses spezifische Verhalten von TPEs spiegelt sich auch in der Verschweißung der daraus resultierenden Schaumpartikel wider. In der Literatur wurden hier zumeist Materialien auf Basis von TPU (ETPU) sowie TPA (ETPA) untersucht. Letzteres ist auch oftmals unter den Markennamen PEBA (Polyetherblockamid) der Firmen Evonik Industries AG (Essen, Deutschland) und als Pebax® durch Arkema (Colombes, Frankreich) bekannt. Ähnlich der Verarbeitung von EPP mit einem Doppel-Peak, ist auch hier das Aufschmelzen eines gewissen Anteils an kristallinen Bereichen notwendig. Wie in Abbildung 5 schematisch dargestellt, ergibt sich daraus ein optimales Verarbeitungsfenster innerhalb des Schmelzebereichs. Eine Überschreitung des kompletten Bereichs führt hier jedoch erneut zum Kollabieren der Schaumstruktur, wodurch dieses das obere Temperaturlimit setzt [18]. Zusätzlich zur Interdiffusion von oberflächennahen Ketten können sich so während des Abkühlens ein Teil der zuvor geschmolzenen Bereiche der Hartsegmente erneut strukturieren und neue kristalline Bereiche ausbilden. Diese Rekristallisations-Prozesse über die Grenzflächen hinweg sind entscheidend für die Verschweißung von Schaumpartikeln aus TPEs und wurden sowohl von *Jiang et al.* [76,77] als auch von *Ge et al.* [32] bereits mehrfach untersucht.

Die Verschweißung dieser Materialien wird stets geprägt durch das Zusammenspiel der unterschiedlichen, überlappenden Schmelzebereiche und der anliegenden Temperatur. Der Kompromiss aus genügend aufgeschmolzenen Bereichen für eine anschließende Rekristallisation über die Grenzfläche hinweg und der ausreichenden mechanischen Stabilisierung der restlichen unangetasteten kristallinen Bereiche ist für eine erfolgreiche Verarbeitung entscheidend.

2.4. Dielektrische Eigenschaften von Polymeren

Wie zuvor in Kapitel 2.2.3 aufgezeigt, beruht die Interaktion zwischen dem elektromagnetischen Feld des RF-Prozesses mit den Schaumpartikeln auf deren dielektrischen Eigenschaften. Dieses Zusammenspiel wiederum ist die Quelle des Energieeintrags und somit direkt für die Erwärmung verantwortlich. Um die Phänomene der Verschweißung dieses neuartigen Prozesses detailliert zu verstehen, widmet sich das folgende Kapitel den dielektrischen Eigenschaften von Polymeren und deren zellulären Strukturen als Mehrphasensysteme sowie der dazugehörigen spektroskopischen Analysemethode.

2.4.1. Grundlage der Polarisationsmechanismen

Um die grundlegenden Polarisationsmechanismen besser verstehen zu können, muss zunächst die Charakteristik der elektromagnetischen Welle betrachtet werden. Ein elektrisches Feld ist im grundlegenden Sinne das Ergebnis der Potentialdifferenz zwischen zweier Ladungsträger. Die Stärke des vektoriellen Feldes \vec{E} wird durch die Krafteinwirkung auf einen elektrisch geladenen Körper im Raum definiert und kann für eine positive Probeladung durch Gleichung (2.2) quantifiziert werden. [87]

$$\vec{E} = \vec{F}/q^+ \quad (2.2)$$

Die resultierende Kraft \vec{F} ist somit direkt proportional zu der elektrischen Feldstärke sowie der Ladung q . Diese Annahme gilt jedoch nur im Falle eines statischen elektrischen Feldes. Kommt es jedoch zu einer zeitlichen Variation z.B. der Potentialdifferenz, so induziert diese ein magnetisches Feld senkrecht zum elektrischen Feld (Abbildung 6). [88]

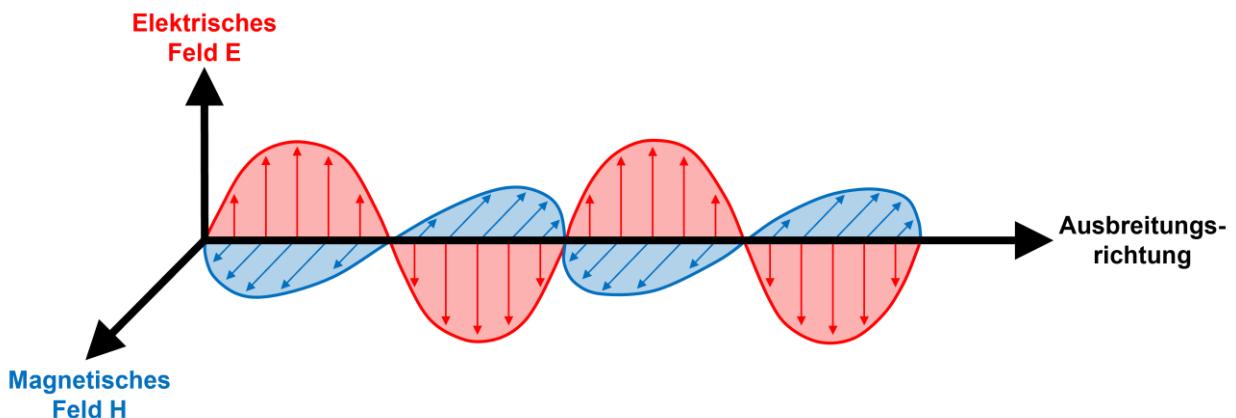


Abbildung 6: Schematische Darstellung einer elektromagnetischen Welle in Ausbreitungsrichtung mit im rechten Winkel zueinanderstehenden elektrischen (E) und magnetischen (H) Anteilen. In Anlehnung an [88]

Beide Wellen sind zudem senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und bilden somit eine Transversallwelle aus. Das Zusammenspiel der beiden Anteile des resultierenden elektromagnetischen Wechselfeldes wird auf mathematischer Ebene durch die Maxwell-Gleichungen beschrieben. Beide Anteile treten somit immer gekoppelt miteinander auf. [89]

Um die Interaktion des elektromagnetischen Felds mit Materie zu verstehen, wird die weitere Feldgröße der elektrischen Verschiebungsdichte \vec{D} definiert. Dieser Kennwert ist direkt proportional zur elektrischen Feldstärke, jedoch unabhängig von Polarisierungseffekten (Gleichung (2.3)).

$$\vec{D} = \epsilon_r^* \epsilon_0 \vec{E} \quad (2.3)$$

Neben der konstanten Permittivität von Vakuum ϵ_0 , wird die elektrische Feldverschiebung somit primär durch die relative komplexe dielektrische Permittivität ϵ_r^* der mit dem Feld interagierenden Materie beeinflusst. Die komplexe Charakteristik der relativen Permittivität wird durch zeitabhängige Phänomene über die Frequenz des anliegenden Feldes ausgelöst und kann in ihren Real- ϵ_r' und Imaginär-Teil ϵ_r'' separiert werden (Gleichung (2.4)). Die relative Permittivität ϵ_r wird hier zur Vereinfachung eingeführt, welche sich dementsprechend auf die Relation zur Permittivität von Vakuum bezieht und durch Gleichung (2.5) beschrieben wird. [90]

$$\epsilon_r^* = \epsilon_r' - i\epsilon_r'' \quad (2.4)$$

$$\epsilon = \epsilon_r \epsilon_0 \quad (2.5)$$

Die Fähigkeit eines Materials zur Verschiebung intrinsischer Ladungsträger (Dipole) wird Polarisation \vec{P} genannt. Dadurch kommt es zu einer Überlagerung mit der ursprünglichen elektrischen Verschiebungsdichte \vec{D}_0 (Gleichung (2.6)). [90]

$$\vec{P} = \vec{D} - \vec{D}_0 = (\epsilon_r^* - 1) \epsilon_0 \vec{E} \quad (2.6)$$

Die Dipole innerhalb des Materials sind dabei die Reaktion auf das externe elektromagnetische Feld und erzeugen daher ein entgegengesetztes elektrisches Feld \vec{E}_{Dip} . Das Feld wird dadurch direkt durch die Polarisation und damit durch die Permittivität des Materials beeinflusst (Gleichung (2.7)) und führt zu einer Abschwächung des ursprünglichen elektrischen Feldes (Gleichung (2.8)). [87]

$$\vec{P} = \epsilon_0 \vec{E}_{Dip} \quad (2.7)$$

$$\vec{E} = \vec{E}_0 - \vec{E}_{Dip} \quad (2.8)$$

Die Interaktion von Polymeren im elektromagnetischen Feld beschränkt sich hauptsächlich auf den elektrischen Anteil, da diese keine signifikanten magnetischen Eigenschaften besitzen. Auf der Materialseite beschreibt die komplexe relative Permittivität das Zusammenspiel mit dem Feld und basiert auf der Polarisation intrinsischer Ladungsträger. Diesen Phänomenen sind unterschiedliche Mechanismen zuzuordnen, welche sich aufgrund der Trägheit in der Ladungstrennung oberhalb gewissen Frequenzen nicht mehr polarisieren lassen. Dies resultiert in

einer stufenweisen Absenkung des Realteils ϵ'_r und einem gleichzeitig erhöhten Imaginärteil ϵ''_r innerhalb des jeweiligen Frequenzbereichs, wie in Abbildung 7 schematisch dargestellt. [90–92]

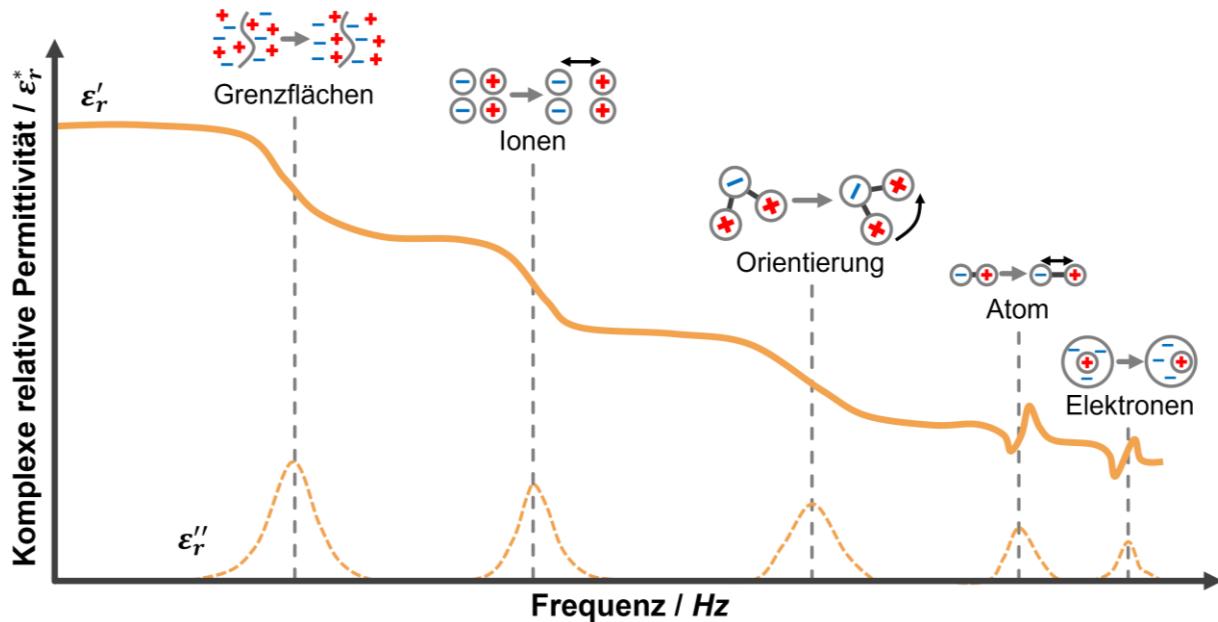


Abbildung 7: Darstellung eines beispielhaften Verlaufs des Real- und Imaginär-Teils der komplexen relativen Permittivität über die Frequenz mit unterschiedlichen Polarisationsmechanismen. In Anlehnung an [91,93–95]

Die aufgeführten Mechanismen können sich jedoch auch teilweise überlappen und sind nicht so klar abgegrenzt wie in der Darstellung. Bei niedrigen Frequenzen können sich je nach Materialien Ladungsträger an Grenzflächen anlagern und Ionen gegeneinander verschieben [96]. Durch die notwendige räumliche Bewegung der Ladungsträger sind diese Polarisationstypen jedoch auf langsame Wechsel des Feldes begrenzt. Das andere Ende des Spektrums nehmen die Atom- und Elektronen-Polarisation bei sehr hohen Frequenzen ein, welche durch eine Resonanz bei der jeweiligen Frequenz gekennzeichnet werden. Zuletzt besitzen viele Materialien, wie auch eine Mehrheit der Polymere, eine Orientierungspolarisation durch die ständige Umorientierung von Dipolen mit dem externen Wechselfeld. Diese Art der Polarisation ist zumeist im Megahertz-Bereich relevant und stellt, wie die beiden zuerst aufgeführten Vertreter, ein Relaxationsphänomen dar. [87,88]

Diese Relaxation der Dipole in der molekularen Struktur der Polymere ist der entscheidende Faktor in der dielektrischen Erwärmung von Schaumpartikeln aus Thermoplasten während der Verschweißung mittels der RF-Technologie. Wie diese mit den sonstigen thermischen Materialeigenschaften in Verbindung stehen und neben der Frequenz auch durch die Temperatur beeinflusst werden, wird im folgenden Kapitel erörtert.

2.4.2. Relaxationsmechanismen von Polymeren

Um die komplexen Vorgänge der Relaxationsmechanismen von Polymeren zu verstehen, muss zunächst die Grundlage der dafür verantwortlichen Dipole geschaffen werden. Ein simples Beispiel hierfür ist das Molekül Wasser (H_2O). Die Grundlage jedes permanenten Dipols liegt in der räumlichen Trennung elektrischer Ladungen. Im Fall von Wasser entstehen durch die unterschiedlichen Elektronegativitäten der Atome eine positive Partialladung an den beiden Wasserstoffatomen (δ^+) und eine negative Partialladung am Sauerstoffatom (δ^-) (Abbildung 8). [88,97,98]

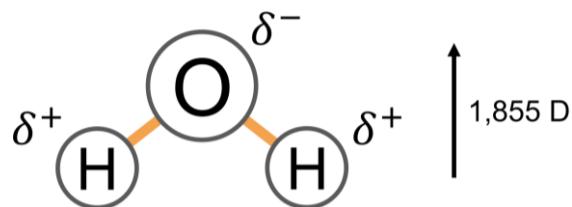


Abbildung 8: Isoliertes Wassermolekül mit Partialladungen und resultierendem Dipolmoment. In Anlehnung an [93,97]

Unter einem externen elektromagnetischen Feld mit ebenfalls positiven und negativen Elektroden entstehen somit unterschiedliche Anziehungs- und Abstoßungskräfte, welche über die Bindung des Sauerstoffatoms mit den jeweiligen Wasserstoffatomen zu einem induzierten Moment führen. Das sogenannte Dipolmoment μ zwischen den beiden Trägern der Ladung q mit dem Abstand d wird über die Gleichung (2.9) definiert. [90]

$$\mu = qd \quad (2.9)$$

Die Stärke des Dipolmoments hängt somit direkt von dem Abstand zueinander und der Stärke der Ladungsdifferenz ab. Betrachtet man nun das gesamte Molekül, so würden sich bei einem punktsymmetrischen Aufbau um das Sauerstoffatom die beiden Dipolmomente ausgleichen, da der gemeinsame partielle Ladungsschwerpunkt der positiven Wasserstoffatome exakt im Sauerstoffatom liegt. Das Molekül wäre von außen gesehen unpolar. Die leicht angewinkelte Anordnung der beiden Wasserstoffatome führt jedoch zu einem resultierenden Dipolmoment (1,855 D) mit einem positiven Schwerpunkt der beiden partiellen Ladungsträger der Wasserstoffatome mittig unterhalb des Sauerstoffatoms. [97,98]

Die Summe aller individueller Dipolmomente μ_i eines definierten Volumens V auf makroskopischer Ebene wird als Polarisation P bezeichnet und kann mit der Gleichung (2.10) beschrieben werden. [90]

$$P = \frac{1}{V} \sum \mu_i + P_{\infty} = \frac{N}{V} \langle \mu \rangle + P_{\infty} \quad (2.10)$$

Die Berechnung eines durchschnittlichen Dipolmoments $\langle \mu \rangle$ erlaubt eine vereinfachte Berechnung mit der Anzahl an Dipolmomenten N innerhalb des Volumens V . In beiden Fällen muss zudem noch die induzierte Polarisation P_{∞} als zusammengefasste Summe der Atom- und Elektronenpolarisation addiert werden, welche bei niedrigen bis mittleren Frequenzen stets aufgrund der hohen Relaxationszeit mit angeregt werden. Diese Betrachtung gilt jedoch nur für einen einzelnen isolierten Dipol. Innerhalb eines Materials kommt es zu überlagernden Wechselwirkungen mit angrenzenden Molekülen, was die makroskopisch messbare Polarisation beeinflusst. [90,99,100]

Ohne externes elektromagnetisches Feld kommt es innerhalb eines Materials zu einer durchgehenden Umorientierungen der Moleküle und dadurch auch der Dipole durch Brownsche Bewegungen. Diese Prozesse führen zu einer statistischen Unordnung, was zu einer Aufhebung der Polarisation auf makroskopischer Ebene führt [101,102]. Wird nun ein statisches externes Feld angelegt, so kommt es zur Ausrichtung der Dipole durch das induzierte Moment [88]. Interaktionen mit Nachbarn oder innerhalb des Moleküls führen jedoch zu einer gewissen Trägheit dieser Umorientierung, wodurch die maximale Polarisation erst zeitverzögert erreicht wird. Dieses Maximum der perfekten Orientierung entlang des Feldes wird zudem durch thermische Fluktuationen sowie Molekulinteraktionen abgeschwächt [103]. Wird das externe Feld nun schlagartig entfernt, kommt es durch die zuvor beschriebenen statistischen Bewegungen zu einem ebenfalls zeitabhängigen Abbau der Polarisation. Die Geschwindigkeit dieses Abbaus der Orientierung wird als Relaxationszeit τ definiert und gibt die Zeit an, um auf 36,8 % ($1/e$) des ursprünglichen statistischen Zustandes zurückzukommen [54,102]. [50,54,99]

Die klassische Theorie hierfür wurde durch *Debye* für ideale polare Flüssigkeiten mit einer einzelnen Relaxationszeit ohne Interaktionen mit anderen Molekülen aufgestellt [104]. Diese Theorie beinhaltet lediglich eine viskose Dämpfung der isolierten Dipole während der Umorientierung durch Reibungen und thermische Fluktuationen, ohne die elektrische Leitfähigkeit zu berücksichtigen. Abgeleitet davon können die folgenden Gleichungen (2.11) bis (2.13) zur Berechnung der komplexen Permittivität sowie dessen Real- und Imaginärteil nach *Debye* in Abhängigkeit der Kreisfrequenz ω ($\omega = 2\pi f$) beschrieben werden [90,92,103,105].

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_{\infty} + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_{\infty}}{1 + i\omega\tau} \quad (2.11)$$

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.12)$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\omega\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (2.13)$$

Dabei stellt ε_∞ die Permittivität gegen eine sehr hohe und ε_s bei einer sehr niedrigen Frequenz relativ zum betrachteten Relaxationsphänomen dar. Daraus abgeleitet kommt es somit um die spezifische Relaxationsfrequenz f_r ($f_r = \frac{1}{2}\pi\tau$) zu einem stufenweisen Abfall von ε' , da die hohe Frequenz des Wechselfeldes die Umorientierung der Dipole mit dem elektromagnetischen Feld durch Trägheit und interne Reibungen beschränkt (Abbildung 9, links).

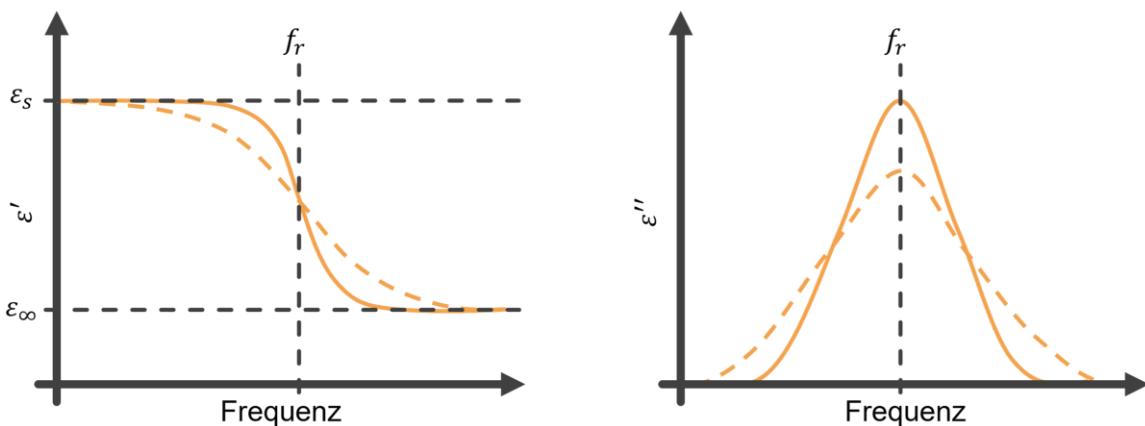


Abbildung 9: Beispielhafter Verlauf des Real- (links) und Imaginärteils (rechts) nach Debye (durchgezogene Linie) und eines realen Materials (gestrichelte Linie) über die Frequenz. In Anlehnung an [50,88,103,106]

Der Imaginärteil der komplexen Permittivität hingegen ist über die Kramers/Kronig-Relation mit dem Realteil verbunden und bildet daher einen Peak bei derselben Relaxationsfrequenz aus [88,90,107]. Moleküle mit erhöhter räumlicher Ausdehnung, wie z.B. Polymere, besitzen jedoch keine einzelnen klar definierten Relaxationszeiten, sondern ein gewisses Spektrum. Ausgelöst wird dies durch die Vielzahl an internen Freiheitsgraden der Ketten durch Brownsche Bewegungen, welche stets eine Änderung des Dipolmoments mit sich ziehen [102]. Dieses Relaxationszeitspektrum ist in Abbildung 9 im Vergleich zu einem idealen Modell nach Debye zu sehen und führt in beiden Fällen zu einer Verbreiterung der Kurven. [106]

Cole und Cole erweiterten daraufhin auf Grundlage empirischer Erkenntnisse das Debye-Modell um den Parameter α (Gleichung (2.14)) [103,108].

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + i\omega\tau)^{1-\alpha}} \quad (2.14)$$

Dieser gibt die Breite der Relaxationszeitverteilung an und wird oft als Cole-Cole-Parameter bezeichnet. Wie im Vergleich zu Gleichung (2.11) zu erkennen ist, ergibt sich bei $\alpha = 0$ das Modell nach Debye mit nur einer einzigen Relaxationszeit. In realen Systemen führen Heterogenität und molekulare Interaktionen zu einer Abweichung des idealen Relaxationsverhalten und somit zu einer Erhöhung von α . Auch dieses Modell besitzt jedoch gewisse Einschränkungen. Zunächst wird hierbei von einer symmetrischen Verteilung der Relaxationszeiten über die Frequenz ausgegangen. Des Weiteren wird nur eine einzige Relaxationszeit betrachtet sowie Koppelungen zwischen molekularen Bewegungen oder zwischen Relaxationsprozessen nicht berücksichtigt. Je nach Polymer und den zu betrachtenden Relaxationsprozessen können so Abweichungen entstehen. Daher wurde das Modell durch Cole-Davidson oder Havriliak-Negami jeweils weiterentwickelt, was jedoch die Komplexität in der Anwendung erhöht [88,90].

Wie zuvor beschrieben, entstehen permanente Dipole durch die unterschiedlichen Partialladungen innerhalb eines Moleküls. Im Fall von Polymeren können diese je nach molekularer Struktur in drei Typen unterteilt werden, welche sich durch ihre Positionierung in Relation zur Hauptkette unterscheiden (Abbildung 10). [90,106,109]

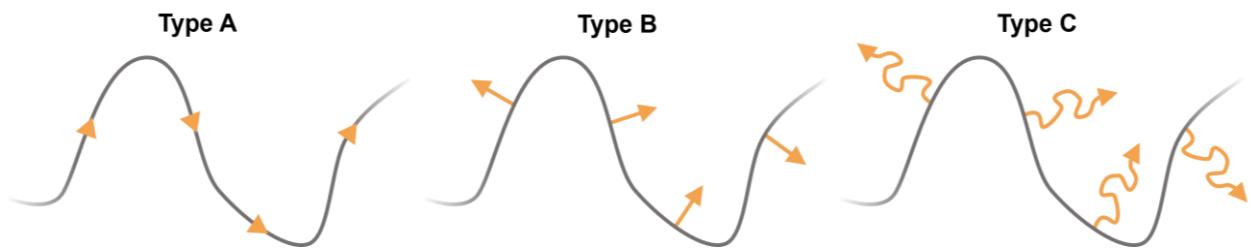


Abbildung 10: Abbildung der drei möglichen Anordnungen von Dipolen (orange Pfeile) in Relation zur Hauptkette des Polymers (graue Linie). In Anlehnung an [90,106,109]

Die erste Variante stellt der Typ A dar, bei dem die Dipole parallel zur Hauptkette des Polymers liegen. Durch die direkte Einbindung in die Hauptkette wird die Möglichkeit zur Orientierung stark durch die allgemeine Kettenbeweglichkeit bestimmt und ist allgemein eher eingeschränkt. Typ B hingegen beschreibt Polymere mit kurzen Seitenketten, welche fest mit der Hauptkette verbunden sind und somit direkt durch die Beweglichkeit der Kettensegmente beeinflusst werden. Viele synthetische Polymere können dem Typ B zugeordnet werden, wobei es oftmals auch zur Kombination aus A und B kommt. Abschließend gibt es zudem noch Vertreter des Typ C, bei dem die Dipole an längeren und flexiblen Seitenketten positioniert sind und damit eine erhöhte Beweglichkeit aufweisen. Die Grenzen zwischen Typ B und C sind hierbei jedoch nicht klar definiert [90,106,109].

Für das Gesamtsystem eines Polymers spielen zudem die Interaktionen auf molekularer Ebene eine entscheidende Rolle. Die möglichen Bewegungen einer Polymerkette können auf drei

Größenskalen definiert werden, welche die Beweglichkeit und damit die Relaxationszeit vorgibt. Auf unterster Ebene können Fluktuationen entlang einzelner monomerer Einheiten oder der Rotation kurzer Seitenketten im Wechselfeld entstehen. Sind mehrere monomere Einheiten betroffen, so wird dies als segmentale Bewegungen definiert, welche zudem für den Glasübergang der Polymere verantwortlich ist. Auf größter Ebene kommen Bewegungen der kompletten Kette, limitiert durch dessen virtuelle Röhre der Verschlafungen, zum Tragen. Diese stehen in direkter Korrelation zu den rheologisch-viskoelastischen Eigenschaften. [106]

Wie zuvor muss hierbei zwischen amorphen und teilkristallinen Polymeren unterschieden werden. Erstere besitzen über das gesamte Volumen homogene Eigenschaften und können bis zu drei unterschiedliche Relaxationsarten aufweisen. Bei sehr niedrigen Frequenzen kann es zudem noch einen reinen Leitfähigkeitsanteil im Imaginärteil ε'' geben, welcher umgekehrt proportional zur Frequenz ω ansteigt und in direkter Relation zur Leitfähigkeit σ steht (Gleichung (2.15)). [106]

$$\varepsilon'' = \frac{\sigma}{\omega^s} \quad (2.15)$$

Dieser Anteil wird zudem durch einen Korrekturparameter s beeinflusst, welcher für ohmsche Widerstände ohne Maxwell-Wagner-Polarisation $s = 1$ ergibt. Aufgrund des Isolationsverhaltens normaler Polymere trägt dieser Anteil nur bei Frequenzen von typischerweise unter 1 Hz signifikant zum Gesamtergebnis bei. [106]

Die drei reinen Relaxationsphänomene für amorphe Polymere teilen sich nach aufsteigender Frequenz in α' , α und β auf, wie in Abbildung 11 zu sehen ist [105].

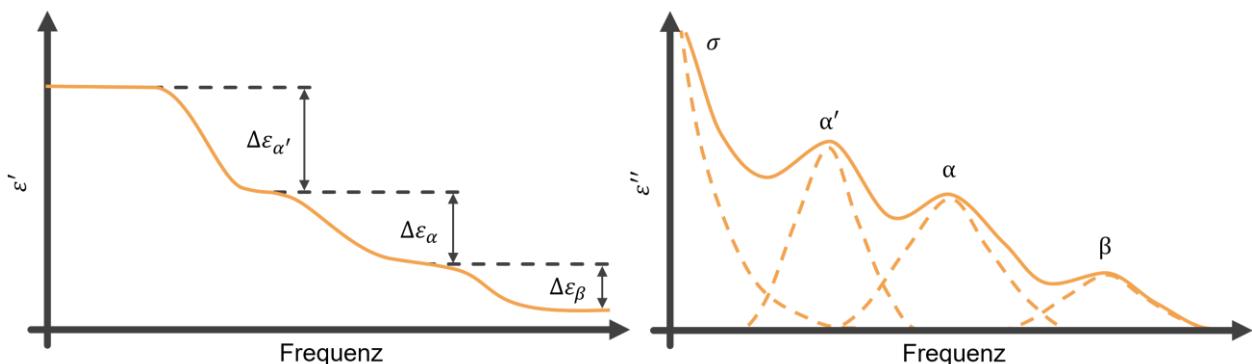


Abbildung 11: Beispielhafter Verlauf des Real- (links) und Imaginärteils (rechts) eines amorphen Polymers mit den Relaxationsphänomenen α' , α und β sowie dem Leitfähigkeitsanteil σ bei ε'' über die Frequenz. In Anlehnung an [90, 105, 106, 110]

Die dielektrische Stärke $\Delta\varepsilon$ der Relaxationsphänomene nimmt dabei typischerweise in der gleichen Reihenfolge ab, wodurch auch die Höhe der Peaks des Imaginärteils gleichzeitig abgeschwächt wird.

α' oder auch „normal mode“ Relaxation genannt, kann nur bei Polymeren des Typs A auftreten und ist der allgemeinen Kettenbeweglichkeit bei sehr niedrigen Frequenzen und erhöhen Temperaturen oberhalb des Glasübergangs zugeordnet. Diese entsteht durch Fluktuationen in der Distanz der Kettenenden zueinander. Das Phänomen kann ab einem kritischen Molekulargewicht von $M_C \approx 10^4 \text{ g mol}^{-1}$ durch die Theorie nach *Rouse*, analog der Diffusion, beschrieben werden. Die Relaxationszeit steigt dabei mit dem Molekulargewicht stark an ($\tau \sim M^{4,1}$). [111,112]

Mit steigender Frequenz wird zunächst das Limit der α -Relaxation erreicht. Dieses Phänomen wird durch die mikrobrownischen Bewegungen der Kettensegmente ausgelöst und auf kalorimetrischer Ebene als Glasübergang bezeichnet [113–116]. Diese Relaxationsart wird hauptsächlich durch Typ B Dipole bestimmt, welche transversal zur Kette angeordnet sind und sich durch rotatorische Fluktuationen bewegen können. Die dielektrische Stärke sinkt dabei mit steigender Temperatur. Der ε'' Peak der α -Relaxation ist dabei breiter über die Frequenz verteilt und zeigt eine eher asymmetrische Form auf, welcher dadurch gut über die Modellfunktion von Havriliak-Negami beschrieben werden kann (Gleichung (2.16)). [90,113,117,118]

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (i\omega\tau)^\beta)^\gamma} \quad (2.16)$$

Die beiden Formparameter β und γ mit $\beta > 0$ & $\beta\gamma \leq 1$ beschreiben dabei sowohl die symmetrische Verbreiterung, analog des Cole-Cole Modells, als auch den asymmetrischen Verlauf unter- und oberhalb der Relaxationsfrequenz. Die beiden Seiten des ε'' Peaks können dabei durch die jeweiligen Parameter m und n beschrieben werden [90,119].

$$\varepsilon'' \sim \omega^m \quad \text{für } \omega \ll 1/\tau \quad \text{mit } m = \beta \quad (2.17)$$

$$\varepsilon'' \sim \omega^{-n} \quad \text{für } \omega \gg 1/\tau \quad \text{mit } n = \beta\gamma \quad (2.18)$$

Die Form der Relaxationsfunktion ist hierbei nicht in Bezug auf eine Verteilung der Relaxationszeit, sondern eine intrinsische Eigenschaft der Dynamik des Systems. Die Breite des Relaxationsphänomens wird hierbei primär durch die Temperatur, die Kettenstruktur sowie der Verschlaufungs- oder Vernetzungsdichte beeinflusst. Für polymere Systeme liegt n zumeist zwischen $n = 0$ und $n = 0,5$ und weicht damit signifikant von niedermolekularen Materialien mit $n = 1$ (Debye-Relaxation) ab [120]. m hingegen liegt zwischen $m = 0$ und $m \leq 1$ und variiert mit intermolekularer Interaktion. Mit steigender Temperatur nehmen diese Interaktionen ab und m steigt an. [90,117,118]

Zuletzt kann bei hohen Frequenzen die β -Relaxation und dessen Peak in ε'' messbar sein. Diese basiert auf lokalen Fluktuationen in der Rotation der Dipole von Seitengruppen oder der Hauptkette. *Goldstein und Johari* führten einen weiteren Ansatz für die Erklärung der β -Relaxation ein [121]. Dieser beschreibt das Phänomen als generisches Merkmal des amorphen Zustandes, welches durch die intrinsische Struktur des Polymers vorgegeben wird. Die dielektrische Stärke dieses Relaxationstyps ist für Polymere mit Dipolen des Typs B zumeist deutlich geringer als die der zuvor beschriebenen Relaxationen, erhöht sich jedoch mit zunehmender Temperatur. Die Form ist weitestgehend symmetrisch und verengt sich unter Erwärmung. [90,106]

Bei manchen Polymeren (z.B. TPU, Polyvinylchlorid (PVC) und Polymethylmethacrylat (PMMA)) kommt es durch stark miteinander interagierende Gruppen zudem bei höheren Temperaturen zu einer Annäherung und teilweise zur Überlappung der α und β -Relaxation, dem sogenannten $\alpha\beta$ -Prozess [90].

Als Grundlage der Relaxationsmechanismen von teilkristallinen Polymeren muss zunächst deren Struktur näher betrachtet werden. Neben den ungeordneten amorphen Bereichen bestehen teilkristalline Polymere auch aus geordneten kristallinen Domänen, welche durch die sogenannte „*rigid amorphous phase*“ (RAP) getrennt werden. Die dielektrischen Eigenschaften von teilkristallinen Polymeren können somit als Mehrphasensystem betrachtet werden. Die geordneten Kristalllamellen werden dabei zumeist als unbeweglich angesehen und können nicht zu dielektrischen Relaxationen beitragen. An den Grenzflächen besteht zudem die Möglichkeit der Ladungstrennung, wodurch Effekte der Maxwell/Wagner-Polarisation entstehen können. Die Eigenschaften dieser Systeme müssen grundsätzlich nach Vertreter mit mittlerer (um die 50 %) und hoher Kristallinität (über 80 %) unterschieden werden. Bei hohen Kristallinitäten sind die Kettensegmente in den restlichen amorphen Domänen in der Beweglichkeit stark eingeschränkt, was deren Eigenschaften beeinflusst. [122,123]

Für niedrige bis mittlere Kristallinitäten bis um die 50 % zeigt der amorphe Anteil ein ähnliches Verhalten wie in komplett amorphen Polymeren mit α und β jedoch ohne α' -Relaxation auf. Für das Gesamtsystem kommt es aufgrund des unbeweglichen Anteils zu einer Reduktion der dielektrischen Stärke der β -Relaxation nach einer einfachen volumetrischen Mischungsregel. Dieses Verhalten zeigt, dass die restliche amorphe Phase nicht durch die kristallinen Bereiche beeinflusst werden und dadurch komplett zur Orientierung beitragen können. Die α -Relaxation durch die Kettenbeweglichkeit bei niedrigeren Frequenzen wird hingegen stärker durch die Kristallite eingeschränkt. Zunächst werden auch hier die dielektrische Stärke sowie die

Relaxationsfrequenz gesenkt. Zudem kommt es zu einer Verbreiterung des ε'' -Peaks über die Frequenz. Die α -Relaxation folgt hier keiner einfachen volumetrischen Mischungsregel, sondern wird mit steigender Kristallinität überproportional reduziert. Dies wird durch die RAP ausgelöst, welche durch die Nähe zur kristallinen Phase ebenfalls stark in ihrer Beweglichkeit eingeschränkt wird. Anderes als in amorphen Polymeren kommt es hier zu einem Anstieg des dielektrischen Stärke mit der Temperatur aufgrund des abnehmenden Anteils der RAP. [90,122,123]

Für teilkristalline Polymere mit überwiegend kristallinen Domänen hingegen sind die Relaxationsprozesse der amorphen Phase signifikant eingeschränkt. Die β -Relaxation wird durch die Beweglichkeit der restlichen amorphen Bereiche sowie Kettensegmente in der Nähe der Lamellenoberflächen bestimmt [124,124]. Der α -Prozess wird hierbei durch die molekulare Fluktuation einzelner Kettensegmente der amorphen Phasen ausgelöst und korreliert wiederum mit dem Glasübergang. Es entstehen jedoch auch neue Prozesse, welche die Eigenschaften dieser Polymere bestimmen. Der α_c -Prozess innerhalb der Lamellen wird durch die Rotation von Kettensegmenten hervorgerufen, wodurch die Relaxationsfrequenz durch die Temperatur direkt beeinflusst wird. [90]

Insgesamt werden die dielektrischen Eigenschaften von Polymeren jedoch primär durch die deutlich beweglicheren amorphen Bereiche bestimmt. Nur bei sehr hohen Kristallinitäten kommt es zu einem abweichenden Verhalten, welches in Spezialfällen berücksichtigt werden muss. Der spezifische Relaxationsmechanismus, welcher zur Interpretation der dielektrischen Eigenschaften eines Polymers evaluiert werden muss, hängt hierbei stark von der Frequenz des anliegenden Feldes und der Relaxationszeit ab. Weiteres wird durch die Beweglichkeit der relevanten Dipole bestimmt, was für Polymere durch die Moleküldynamik der Hauptkette wiederum stark von der Temperatur abhängt.

Diese spezielle Interaktion von Frequenz und Temperatur ist typisch für die dielektrischen Eigenschaften von Polymeren und wird als Zeit-Temperatur-Superposition (TTS) bezeichnet. Wie zuvor beschrieben, kommt es bei einer konstanten Temperatur zu einem stufenweisen Abfall des Realteils ε' über die Frequenz. Durch eine Erwärmung erhöht sich die Beweglichkeit der Polymerketten und der damit verknüpften Dipole. Dies führt zu einer Reduktion der Relaxationszeit und dadurch zu einer Erhöhung der Relaxationsfrequenz bis zu der der dielektrischer Beitrag des Mechanismus messbar ist (Abbildung 12, oben). [125–127]

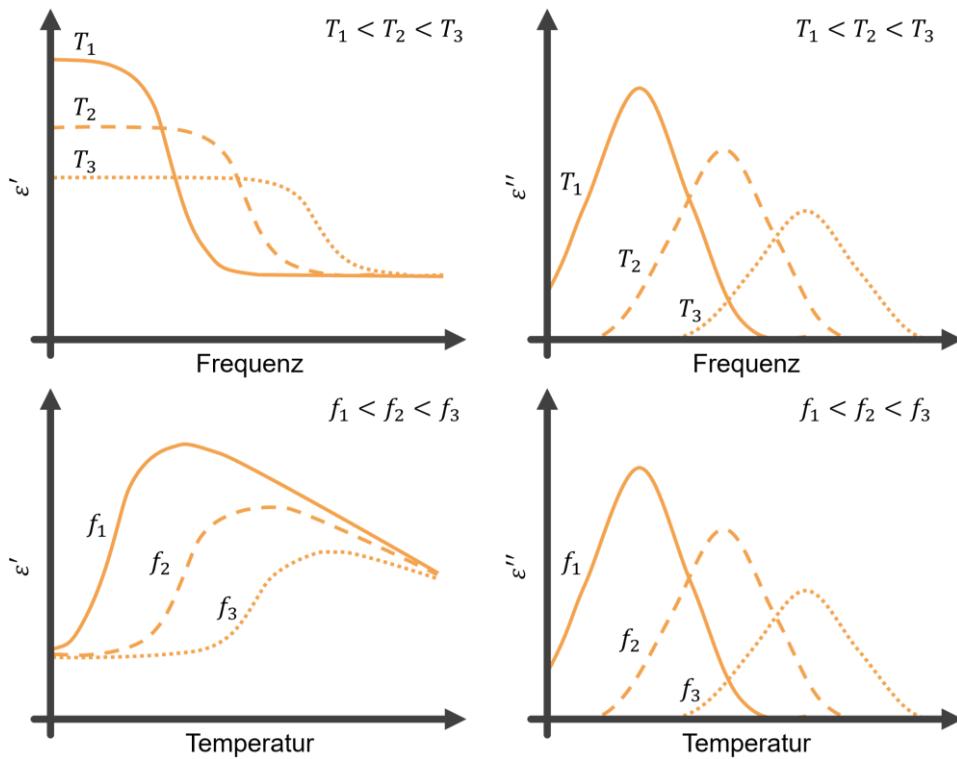


Abbildung 12: Beispielhafter Verlauf des Real- (links) und Imaginärteils (rechts) der komplexen Permittivität eines Polymers über die Frequenz (oben) und Temperatur (unten). In Anlehnung an [87,90,125,128]

Neben dieser Verschiebung führen die verstärkten thermischen Fluktuationen durch statistische Bewegungen der Dipole zu einer Reduktion der dielektrischen Stärke $\Delta\epsilon$ und somit zu einer Abschwächung des Realteils hin zu niedrigen Frequenzen. Die Temperaturabhängigkeit der dielektrischen Stärke kann durch die *Debye-Theorie* sowie mit der Verallgemeinerung durch *Kirkwood und Fröhlich* vorhergesagt werden (Gleichung (2.19)) [90,115,129].

$$\Delta\epsilon = \frac{1}{3\epsilon_0} g \frac{\mu^2}{k_B T} \frac{N}{V} \quad (2.19)$$

Neben der Temperatur T , spielt hier auch die Boltzmann-Konstante k_B sowie der Kirkwood/Fröhlich-Korrekturfaktor g eine Rolle, welcher die statistische Korrelation zwischen den Dipolen beschreibt. Analog dazu ist auch eine Verschiebung des Imaginärteils mit steigender Temperatur messbar, welche mit einer Reduktion der Höhe des Peaks einhergeht. [128,130]

Die Auftragung bei definierten Temperaturen über die Messfrequenz ist dabei für die Evaluation der Relaxationsphänomene und der allgemeinen dielektrischen Materialeigenschaften vorteilhaft. Für eine detaillierte Betrachtung des Verhaltens eines Materials unter dielektrischer Erwärmung bei konstanter Frequenz ist eine Auftragung mit vertauschten Parametern sinnvoll. Durch die Superposition mit der Temperatur kommt es unter Erwärmung des Polymers bei einer

gleichbleibenden Messfrequenz zunächst zu einem Anstieg des Realteils (Abbildung 12, links unten). Dieser Anstieg verschiebt sich mit steigender Frequenz hin zu höheren Temperaturen. Die umgekehrt proportionale Abhängigkeit der dielektrischen Stärke mit der Temperatur führt hier jedoch nicht zur Ausbildung einer Stufe, sondern zu einem abfallenden Kurvenverlauf. Dadurch kommt es unabhängig von der Messfrequenz zur Annäherung des Realteils bei erhöhten Temperaturen. Der Verlauf des Imaginärteils über die Temperatur ist vergleichbar mit dem Verlauf über die Frequenz. Neben der Verschiebung hin zu höheren Temperaturen, resultieren erhöhte Messfrequenzen in einer Abschwächung der Peak-Höhe, da diese erst bei höheren Temperaturen erreicht werden. [55,115,125]

Die Temperaturabhängigkeit der Relaxationsmechanismen ist dabei nicht konstant und genau entgegengesetzt der Frequenzabhängigkeit. Die Relaxationszeit der α -Relaxation durch die Bewegungen der Kettensegmente weist zumeist eine stärkere Abhängigkeit mit der Temperatur auf als die der β -Relaxation. Letztere besitzt dabei aufgrund lokaler Bewegungen generell niedrigere Aktivierungsenergien und wird dadurch weniger durch die Kettenbeweglichkeit beeinflusst. Diese unterschiedliche Temperaturabhängigkeit ist der auslösende Faktor für die zuvor beschriebene Annäherung der beiden Mechanismen bei hohen Temperaturen durch den $\alpha\beta$ -Prozess. Ein weiterer Faktor ist zudem das Aufschmelzen kristalliner Bereiche. Das Aufschmelzen führt zu einer signifikanten Erhöhung der Beweglichkeit der Polymerketten inklusiver der beteiligten Dipole, wodurch diese zur Polarisation beitragen können. [113,115]

Die dielektrischen Eigenschaften von Polymeren beruhen auf deren molekularen Aufbau und der Interaktionen zwischen den einzelnen Ketten. Diese enge Verknüpfung mit der allgemeinen Moleküldynamik verlangt eine detaillierte Betrachtung der Parameter Temperatur und Frequenz. Daneben zeigt sich, dass bereits im Falle von teilkristallinen Polymeren die Annahme einer homogenen Phase nicht mehr gültig ist, was für die Interaktion mit dem elektromagnetischen Feld berücksichtigt werden muss. Für viele Anwendungen kommt es zudem zur Zugabe von Additiven oder dem Einbringen einer weiteren Phase, z.B. Luft in polymeren Schäumen, um die Eigenschaften des Polymers weiter anzupassen. Die dadurch entstehenden Mehrphasen-Systeme werden im folgenden Kapitel betrachtet.

2.4.3. Dielektrische Eigenschaften mehrphasiger Systeme

Die Analyse der dielektrischen Eigenschaften eines heterogenen Mediums aus unterschiedlichen Phasen verlangt die detaillierte Evaluation mehrerer sich überlagernder Phänomene. Um dies besser zu verstehen, muss die Interaktion eines Mediums, auch Dielektrika genannt, mit dem

elektromagnetischen Feld, z.B. innerhalb eines Kondensators, betrachtet werden. Wird eine Spannung U als Potenzialdifferenz zwischen den beiden Elektroden eines Plattenkondensators durch eine externe Quelle angelegt, kommt es im vereinfachten Sinne zur Anlagerung von Ladungsträgern (Abbildung 13, links oben). [87,90,131]

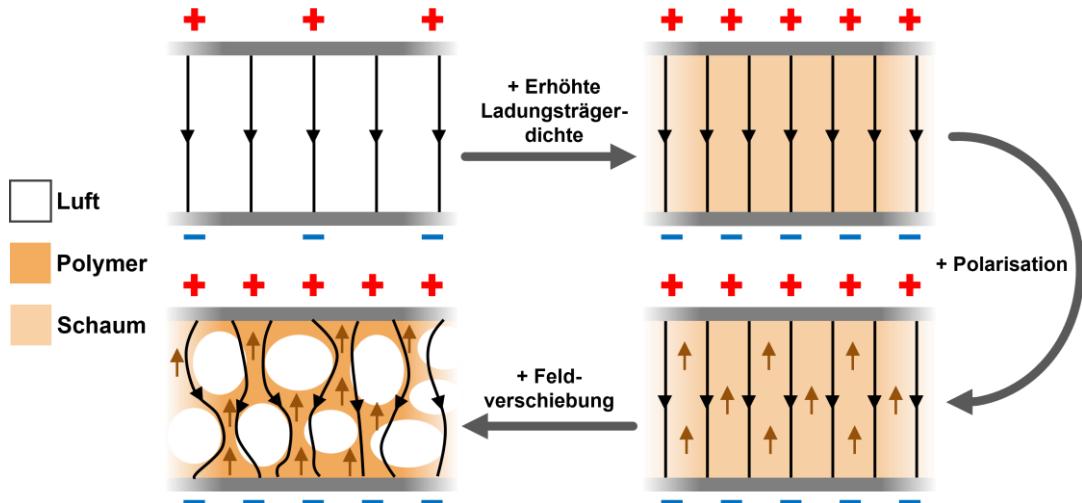


Abbildung 13: Schematische Darstellung der Feldverteilung eines Kondensators ohne Dielektrika, mit Dielektrika und erhöhter Ladungsträgerdichte, inklusive Polarisationsfeld des Dielektrika und als heterogenes Mehrphasensystem mit Feldverschiebung. In Anlehnung an [87]

Das Verhältnis zwischen der resultierenden Ladung Q auf den Elektroden und der angelegten Spannung U wird als Kapazität C bezeichnet. Über die Fläche des Kondensators A wird dadurch die dielektrische Verschiebungsdichte D in das Volumen des Dielektrika induziert (Gleichung (2.20)). [87]

$$Q = DA \quad (2.20)$$

$$D = \epsilon_0 E_0 \quad (2.21)$$

$$E_0 = \frac{Q}{\epsilon_0 A} \quad (2.22)$$

Für einen Kondensator im Vakuum (oder näherungsweise für Luft) mit ϵ_0 ergibt sich somit eine ursprüngliche elektrische Feldstärke zwischen den Platten ohne Dielektrika von E_0 . Wird nun ein polarisierbares Medium mit $\epsilon_r > 1$ in den Kondensator eingeführt, so kommt es zur Ausrichtung der internen Dipole entgegen dem externen elektrischen Feld [93]. Bei konstanter Spannung erhöht sich so die Anzahl der Ladungsträger auf den Elektroden durch die Anziehung der umgekehrten ausgerichteten Dipole, was wiederum in einer Verstärkung der originalen elektrischen Feldstärke E_0 resultiert (Abbildung 13, rechts oben). Wie zuvor in Kapitel 2.4.1 beschrieben, kommt es durch

die Polarisation des Dielektrika zur Ausbildung eines dem externen Feld E_0 entgegengesetzten Feldes E_{Dip} . Die resultierende effektive elektrische Feldstärke E wird dadurch abgeschwächt. [87,132]

$$E = E_0 - E_{Dip} \quad (2.23)$$

Für ein homogenes Dielektrika, welches das Kondensatorvolumen vollständig ausfüllt, ist die Erhöhung der ursprünglichen elektrischen Feldstärke E_0 gleich der Stärke des Polarisationsfelds E_{Dip} . Dies führt zu einer konstanten effektiven Feldstärke E unabhängig von den dielektrischen Eigenschaften des Dielektrika. Die Feldstärke kann in diesem Spezialfall durch den Quotienten aus angelegter Spannung U und dem Abstand d der parallelen Platten des Kondensators vereinfacht berechnet werden. Im Falle einer konstanten Ladung auf den Elektroden ohne extern angelegte Spannungsquelle kommt es zur Reduktion der effektiven Feldstärke durch die Einbringung eines Dielektrika. [87,90]

Oftmals befinden sich jedoch zwei oder mehr Phasen im elektromagnetischen Feld innerhalb eines Kondensators. Die einzelnen Phasen können zunächst in einem vereinfachten Schaltbild als einzelne homogene Kondensatoren dargestellt werden, solange die Leitfähigkeit vernachlässigt werden kann. Diese können in ihrer Anordnung in zwei verschiedenen Extrema zueinanderstehen (Abbildung 14). [87,93]

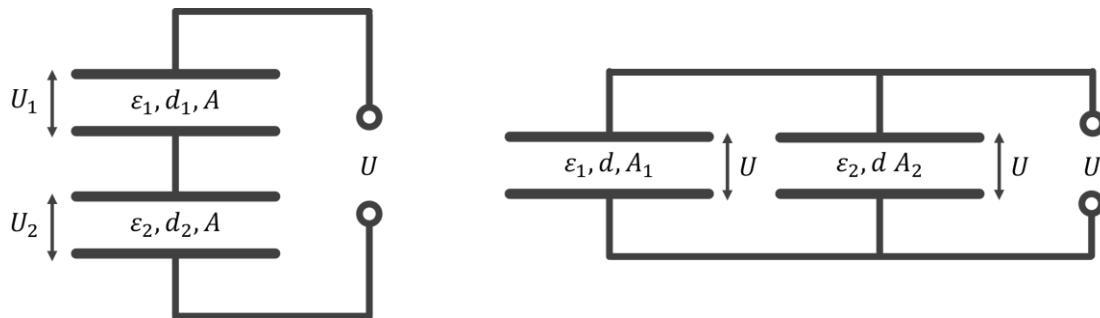


Abbildung 14: Darstellung der Ersatzschaltbilder einer Reihen- (links) und Parallelschaltung (rechts) zweier Kondensatoren mit unterschiedlichen Dielektrika. In Anlehnung an [87,133]

Die erste Variante hierbei stellt die Reihenschaltung dar. Die extern angelegte Spannung U teilt sich hierbei auf die beiden jeweils über das Dielektrika abfallenden Spannungen U_1 und U_2 auf. Die Kapazität des Ersatzkondensators wird durch die Permittivität ϵ_x , dem Abstand d_x und die Fläche A bestimmt. Dessen elektrische Feldstärken E_x wird durch das Verhältnis der Kapazität des Kondensators zum Gesamtsystem bestimmt. Für ein System mit zwei Dielektrika, wie in Abbildung 14, kann die Feldstärke jeweils mittels Gleichung (2.24) berechnet werden. [87]

$$E_1 = \frac{U}{d_1 + d_2 \frac{\epsilon_{r1}}{\epsilon_{r2}}} \quad (2.24)$$

Die effektive Feldstärke wird neben den Abständen somit primär durch das Verhältnis der Permittivität der beiden Dielektrika zueinander bestimmt. Grund hierfür ist die allgemeine Erhöhung der ursprünglichen elektrischen Feldstärke E_0 durch die beiden Dielektrika mit der lokalen Überlagerung des Polarisationsfeldes E_{Dip} . Dies führt zu einer Reduktion der effektiven Feldstärke E_x in dem Volumen des Mediums mit hoher Permittivität und einem umgekehrten Verhalten in zweiterem. [87]

Das zweite Extrema der Anordnung der beiden Kondensatoren des Ersatzschaltbildes ist die Parallelschaltung. Hierbei liegt eine konstante elektrische Feldstärke E über beide Bereiche an, da die ungleichmäßige Verteilung der Ladungsträger sich mit der Überlagerung des Polarisationsfeldes ausgleicht. [87]

Für geometrisch komplexere Systeme entsteht so zumeist ein gemischtes Verhalten zwischen den beiden Extrema. Zudem ist die komplette räumliche Trennung zwischen den Phasen (Kondensatoren des Ersatzschaltbildes) stark vereinfacht. In realen Systemen kommt es durch geometrische Effekte und Unterschiede in der Permittivität zur Verzerrung des elektromagnetischen Feldes durch das Brechungsgesetz. Wie in Abbildung 13 (links unten) schematisch dargestellt, werden dadurch die Feldlinien in parallel dazu gerichteten Bereichen mit erhöhter Permittivität gebündelt. [51,87,93,134]

Die Interaktion eines heterogenen Mehrphasensystems mit dem elektromagnetischen Feld wird somit von einer Vielzahl an globalen und lokalen Effekten beeinflusst, welche sich überlagern und dadurch dessen extern messbare dielektrische Eigenschaften signifikant beeinflussen. An den Rändern des Kondensators kommt es zudem zu einer Verzerrung des Feldes durch den sogenannten „fringing field“-Effekt [51]. Je nach Verhältnis der Elektrodenfläche zur deren Abstand muss dieser Effekt in der Analytik und Anwendungen in Randbereichen berücksichtigt werden. [93]

Für Systeme mit freien Ladungsträgern in einer Phase und einer zweiten isolierenden Phase können Polarisationseffekte an den Grenzflächen durch eine Ladungstrennung (*Maxwell-Wagner-Sillars Relaxation*) auftreten [135]. Dies sind oftmals in ihrer Stärke dem rein dipolaren Vertreter deutlich überlegen, treten jedoch meistens bei deutlich niedrigeren Frequenzen durch die räumliche Charakteristik auf [90]. [126,136]

Für eine einfachere Betrachtung der Vorgänge innerhalb eines Mehrphasensystems und dessen Interaktion mit der Umgebung wird das Konzept des effektiven Mediums genutzt [137]. Die Vereinfachung erlaubt die Betrachtung des komplexen Systems als ein effektives Medium mit homogenen repräsentativen Eigenschaften ($\epsilon_{eff} = \epsilon'_{eff} - j\epsilon''_{eff}$) [137]. Diese Eigenschaften werden primär durch die Permittivität der Teilvolumina sowie deren geometrische Anordnung beeinflusst. Die Vereinfachung ist jedoch nur für den Fall gültig, dass die Wellenlänge des elektromagnetischen Feldes deutlich größer (ca. Faktor 10) als die Dimension der Inhomogenitäten des Mehrphasensystems ist [132,137,138]. [93]

Die dielektrischen Eigenschaften eines Zweiphasensystems können zunächst durch die beiden Extrema aus Abbildung 14 eingegrenzt werden. Für eine reine Parallelschaltung kommt es durch die homogene elektrische Feldstärke in beiden Volumina zur maximalen Permittivität des effektiven Mediums $\epsilon_{eff,max}$. Diese kann dabei durch eine einfache Mischungsregel aus den volumetrischen Anteilen f_x und der jeweiligen Permittivität ϵ_x berechnet werden (Gleichung (2.25)). [93,133,134]

$$\epsilon_{eff,max} = f_1\epsilon_1 + f_2\epsilon_2 \quad (2.25)$$

Im Gegensatz dazu führt die Reduktion der elektrischen Feldstärke für die Phase mit erhöhter Permittivität in der Reihenschaltung zu einem unternormalen Einfluss auf die dielektrischen Eigenschaften des effektiven Mediums. Dieser Fall stellt das untere Limit dar und kann mittels Gleichung (2.26) bestimmt werden. [93,133,134]

$$\epsilon_{eff,min} = \frac{\epsilon_1\epsilon_2}{f_1\epsilon_2 + f_2\epsilon_1} \quad (2.26)$$

Die absoluten Grenzen, auch *Wiener Grenzen* genannt, stellen die Limits für Mehrphasensysteme unabhängig von der Art der Mischung dar und sind in Abbildung 15 dargestellt [132,134].

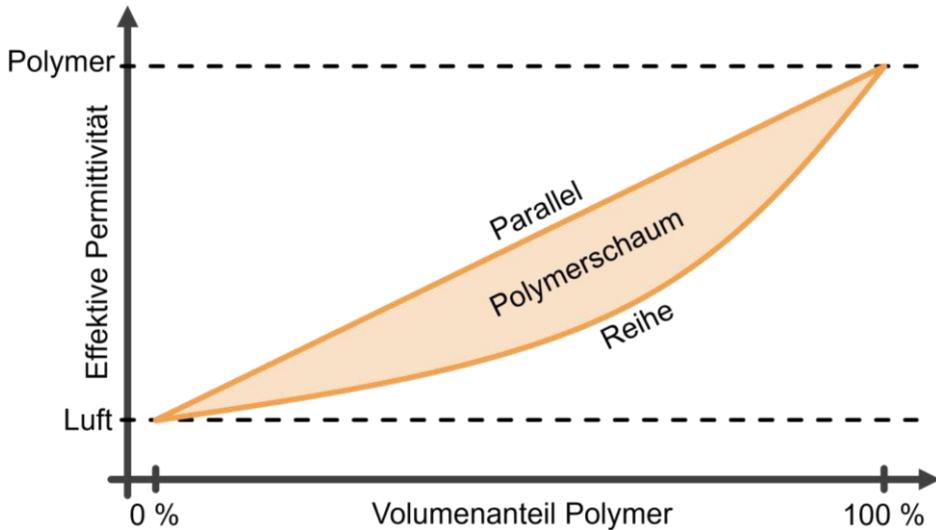


Abbildung 15: Beispielhafter Verlauf der effektiven Permittivität eines Polymerschaums über den Volumenanteil eingegrenzt durch die Parallel- und Reihenschaltung

Für makroskopisch isotrop verteilte Einschlüsse in einer Matrix können die Grenzen weiter eingeengt werden. Diese ursprünglich für die Beschreibung der magnetischen Permeabilität durch Hashin und Shtrikman eingeführten Grenzen basieren auf einer energetischen Betrachtung. Je nach dem Verhältnis der Permittivität (ε_1 und ε_2) der beiden Phasen entsteht daraus die obere und untere Grenze (Gleichungen (2.27) und (2.28)). [139]

$$\varepsilon_{eff,a} = \varepsilon_2 + \frac{f_1}{\frac{1}{\varepsilon_1 - \varepsilon_2} + \frac{f_2}{3\varepsilon_2}} \quad (2.27)$$

$$\varepsilon_{eff,b} = \varepsilon_1 + \frac{f_2}{\frac{1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} + \frac{f_1}{3\varepsilon_1}} \quad (2.28)$$

Neben der Einordnung der Permittivität des effektiven Mediums innerhalb definierter Grenzen, wurde eine Vielzahl an Mischungsregeln zur exakten Vorhersage der Permittivität entwickelt. Für Einschlüsse in einer Matrix können zunächst drei übliche Mischungsregeln aufgelistet werden. [90,131,137,140]

$$Maxwell-Garnett \quad \varepsilon_{eff} = \varepsilon_e + 3f\varepsilon_e \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e - f(\varepsilon_i - \varepsilon_e)} \quad (2.29)$$

$$Bruggeman \quad (1-f) \frac{\varepsilon_e - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_e + 2\varepsilon_{eff}} + f \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_{eff}}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_{eff}} = 0 \quad (2.30)$$

$$\text{„Coherent potential“} \quad \varepsilon_{eff} = \varepsilon_e + f(\varepsilon_i - \varepsilon_e) \frac{3\varepsilon_{eff}}{3\varepsilon_{eff} + (1-f)(\varepsilon_i - \varepsilon_e)} \quad (2.31)$$

Die Betrachtung nach *Maxwell-Garnett* erlaubt dabei eine ungleichmäßige Größenverteilung von klar definierten sphärischen Einschlüssen und ist konsistent über die komplette Bandbreite an volumetrischem Anteil f . Im Gegensatz dazu, ist für die symmetrische Mischungsregel nach *Bruggeman*, auch *Polder-van Santen* [141] oder *de Loor* [142] Regel genannt, keine Definition eines Einschlusses und einer Matrix notwendig. Die Mischungsregel ist somit symmetrisch in der Zuordnung der beiden Phasen und unabhängig von deren Form und Orientierung. Eine weitere bekannte Betrachtung von Zweiphasensystemen mit sphärischen Einschlüssen stellt die „*Coherent potential*“ Formel (Gleichung (2.32)) aus dem Bereich der Wellenausbreitung dar. Diese berücksichtigt die Wechselwirkung zwischen den Phasen. Alle drei Modelle führen hierbei zu gleichen Ergebnissen für verdünnte Systeme mit $f \ll 1$. [137,140]

Die zuvor beschriebenen Mischungsregeln können für isotrop verteilte sphärische Einschlüsse in einer homogenen Matrix durch eine allgemeine Formel beschrieben werden. [93]

$$\text{Allgemeine Formel} \quad \frac{\varepsilon_{eff} - \varepsilon_e}{\varepsilon_{eff} + 2\varepsilon_e + v(\varepsilon_{eff} - \varepsilon_e)} = f \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e + v(\varepsilon_{eff} - \varepsilon_e)} \quad (2.32)$$

Der dimensionslose Parameter v wird dabei durch die Geometrie der Einschlüsse und deren Wechselwirkungen zueinander beeinflusst. Je nach v entstehen so die drei zuvor genannten speziellen Regeln. Daneben wurden auch Mischungsregeln für elliptische, nadelförmige, plättchenförmige oder periodisch angeordnete Einschlüsse entwickelt. [93]

Eine weitere Art der Mischmodelle stellt die Klasse der „*power-law*“-Annäherungen dar. Diese beruhen auf der linearen Mischungsregel mit einer Erweiterung um den Exponenten a (Gleichung (2.33)). [131,137]

$$\varepsilon_{eff}^a = f\varepsilon_i^a + (1-f)\varepsilon_e^a \quad (2.33)$$

Die Art der Mischungsregeln wird zumeist für Mischungen mit sphärischen Einschlüssen in periodischer Anordnung genutzt, kommen jedoch bei hohen Anteilen an Einschlüssen und bei dem Kontakt derer an ihre Grenzen. Bekannte Vertreter hierbei ist die Varianten nach *Birchak* [143] ($a = 1/2$) sowie nach *Looyenga* [131] ($a = 1/3$).

Neben natürlichen mehrphasigen Materialien wie Schnee, Gestein, biologisches Gewebe und Holz, wurden Mischungsregeln auch für die Beschreibung der Permittivität von Polymeren

angewandt [93,140]. Beispielsweise erlaubt dies die Analyse von Polymerblends, kristallinen Bereichen und gefüllten Systemen als effektives Medium sowie deren Homogenität durch vorangegangene Prozessparameter [90].

Straåt et al. [133] untersuchten zudem die dielektrischen Eigenschaften von Extrusionsschaum aus Polyethylen in einem breiten Frequenzbereich von 600 Hz bis 11,2 GHz. Die Ergebnisse bewegten sich dabei innerhalb der *Wiener* Grenzen. Die zunehmende Orientierung der elliptischen Zellen senkrecht zur elektrischen Feldrichtung führte hierbei zu einer Annäherung an die untere Grenze für höhere Porosität.

Auch Schäume aus Polyethylennapthalat (PEN) [144] und Polyvinylidenfluorid (PVDF) [145] wurden bereits untersucht. Die experimentellen Ergebnisse zeigten in beiden Fällen eine gute Übereinstimmung mit der Mischungsregel nach *Bruggeman* auf. Auch im Bereich der Partikelschäume wurden Untersuchungen getätigt, welche auf eine Übertragbarkeit der zuvor beschriebenen Mischungsregeln hindeutet [146,147].

Die dielektrischen Eigenschaften von Mehrphasensystemen basieren auf der komplexen Überlappung von mehreren globalen und lokalen Phänomenen und können durch eine Betrachtung als effektives Medium beschreiben werden. Grundlage hierfür sind verschiedenen Mischungsmodelle, welche sich primär durch die geometrische Anordnung der Phasen sowie durch deren Interaktion unterscheiden. Unabhängig von dem zu untersuchenden Werkstoff ist die Auswahl der passenden Analyse-Technologie entscheidend für die Generierung von qualitativ hochwertigen Daten.

2.4.4. Analyse mittels Impedanzspektroskopie

Die Untersuchung der Interaktion eines Mediums im elektromagnetischen Wechselfeld verlangt die spezifische Auswahl der passenden Analysemethode. Zur Bestimmung von dielektrischen Eigenschaften wird sich hierbei oft des Parameters der Impedanz Z^* bedient. Analog zur Permittivität ϵ^* ist auch die Impedanz durch die Abhängigkeit der Frequenz komplexwertig und besitzt einen Real- und Imaginär-Teil (Gleichung (2.34)). [96]

$$Z^* = Z' - jZ'' \quad (2.34)$$

Die Untersuchung dieses Parameters über einen breiten Frequenzbereich wird Impedanzspektroskopie genannt und stellt ein zentrales Werkzeug für die Evaluation von elektrischen und elektrochemischen Systemen dar [148]. Diese Analysetechnik schafft die

Verbindung zwischen dem Verhalten eines realen Systems mit einem idealisierten Ersatzschaltkreis, was die Berechnung der tatsächlichen Materialeigenschaften ermöglicht. Die Impedanz eines Plattenkondensators kann hierbei in Abhängigkeit der Frequenz f durch dessen ursprüngliche Kapazität C_0 und die komplexe relative Permittivität ϵ_r^* des Dielektrika berechnet werden (Gleichung (2.35)). [107,149]

$$Z^* = \frac{1}{j2\pi f \epsilon_r^* C_0} \quad (2.35)$$

Die ursprüngliche Kapazität des Plattenkondensators ohne Dielektrika wird dabei durch die Gleichung (2.36) in Abhängigkeit der Permittivität von Vakuum ϵ_0 sowie der Fläche A und dem Abstand d definiert. [107,149]

$$C_0 = \epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (2.36)$$

Für ausreichend kleine Abstände d im Verhältnis zu $A^{0,5}$ können „fringing field“-Effekte hierbei vernachlässigt werden [149]. Unter Berücksichtigung einer definierten Geometrie der Messzelle kann so durch das passende Ersatzschaltbild auf die dielektrischen Eigenschaften des zu untersuchenden Materials zurückgerechnet werden.

Wie oftmals in der Analyse von Materialeigenschaften, gibt es auch in der Impedanzspektroskopie eine Bandbreite an verschiedenen Messtechniken. Neben deren Genauigkeit, Impedanz-Limits und Handhabung lassen sich diese primär in den abdeckbaren Frequenzbereichen einordnen. Für die Analyse von Materialien und Komponenten im Radiowellen-Bereich (ca. 10^6 – 10^9 Hz) werden besonders die (RF) I-V sowie die Netzwerkanalyse-Methode genutzt. Letztere erlaubt dabei Messungen über einen breiten Frequenzbereich mit einem unteren Limit von ca. 5 Hz und guter Genauigkeiten bei Messungen nahe der charakteristischen Impedanz. Die Methode verlangt jedoch eine erneute Kalibrierung bei einem Wechsel der Frequenz und ist eingeschränkt in dem messbaren Impedanz-Bereich. Die (RF) I-V Methode hingegen zeigt eine hohe Genauigkeit (ca. 1 %) in einem breiten Impedanz-Bereich für hohe Frequenzen von 1 MHz bis zu 3 GHz und stellt daher die bevorzugte Messmethode für RF-Komponenten in diesem Frequenzbereich dar. [90,150]

Die I-V Methode basiert dabei auf der Berechnung der Impedanz eines unbekannten Bauteils durch die gemessene Spannung und die indirekte Stromstärke über einen bekannten internen Widerstand. Die RF I-V Version ist dabei eine spezielle Variante mit einem Impedanz-anangepassten (50Ω) Messkreis und einem koaxialen Testanschluss für präzise Messungen bei erhöhten Frequenzen. [90,150]

Die hohen Messfrequenzen verlangen die Berücksichtigung von parasitären Fehlern (Induktivitäten und Kapazitäten) durch Kabel und anderen Bauteilen der Messtechnik [148]. Dies kann durch die verbesserte Abschirmung der Koaxialkabel nur bedingt unterdrückt werden, wodurch eine Kompensation notwendig ist [116]. Für die genutzte Messmethode eignet sich die sogenannte „open/short/load“ (OSL) Kompensation [151]. Die spezielle Art erlaubt präzise Messungen, bei denen eine Modellierung durch ein einfaches Ersatzschaltbild nicht möglich ist. Neben dem zu untersuchenden Material („device under test“ DUT), müssen hier auch Messungen im offenen Zustand, unter Kurzschluss sowie mit einem bekannten Material durchgeführt werden. Die unbekannten Einflüsse werden hierbei durch ein Viertor-Modell repräsentiert, wodurch die tatsächliche Impedanz des DUT Z_{DUT}^* aus der gemessenen Z_{MDUT}^* durch Gleichung (2.37) bestimmt werden kann. [150]

$$Z_{DUT}^* = \frac{(Z_{MS}^* - Z_{MDUT}^*)(Z_{ML}^* - Z_{MO}^*)}{(Z_{MDUT}^* - Z_{MO}^*)(Z_{MS}^* - Z_{ML}^*)} Z_{TL}^* \quad (2.37)$$

Zur Berechnung werden zudem die Impedanzen der gemessenen „open“ Z_{MO}^* , „short“ Z_{MS}^* und „load“ Z_{ML}^* sowie die tatsächliche Impedanz des bekannten „load“ Z_{TL}^* benötigt. Diese fortgeschrittene Kompensation ermöglicht zudem die Nutzung selbstgebauter Messzellen für spezielle Anwendungen und Materialien. Auch Analysen unter erhöhten Temperaturen innerhalb eines Ofens können durch solch einen Messaufbau realisiert werden [47,49].

Dieses Kapitel zeigt die komplexen Interaktionen zwischen den Materialien innerhalb eines Kondensators mit dem elektrometrischen Wechselfeld. Gerade lokale Effekte können nicht durch herkömmliche analytische Berechnungen aufgelöst werden und verlangen rechnergestützte numerische Lösungen durch Simulationsmodelle. Grundlagen der Simulationsmodelle und Möglichkeiten ihres Einsatzes für die Betrachtung und Vorhersage des Radiowellen-Verschweißens werden im folgenden Kapitel betrachtet.

2.5. Simulative Abbildung des Prozesses

Die simulative Abbildung von realen Prozessen erlaubt erweiterte und neuartige Einblicke in die Interaktionen von Einzelsystemen. Diese basieren auf mathematischen Modellen, können jedoch aufgrund der hohen Komplexität und durch teilweise nicht-linearen Eigenschaften nicht oder nur begrenzt durch analytische Formeln berechnet werden. Im folgenden Kapitel werden daher die Grundlagen der numerischen Simulation, genauer der Finite Elemente Methode, sowie deren

Anwendung zur Lösung elektro-thermischer sowie mechanischer Probleme im Hinblick auf den RF-Prozess näher beleuchtet.

2.5.1. Grundlagen der Finite Elemente Methode

Die Lösung realer physikalischer Problemstellungen verlangt die Überführung in äquivalente mathematische Systeme, welche durch differentielle oder integrale Gleichungssysteme beschrieben werden. Für einfache Prozesse können diese analytisch gelöst werden, um ein exaktes Ergebnis zu erhalten. Die meisten realen Systeme sind jedoch von komplexer Natur oder beinhalten nicht-lineare Materialeigenschaften, was eine analytische Lösung unmöglich macht. Hierfür wurden verschiedene numerische Methode entwickelt, welche die Lösung von komplexen Systemen mit einer ausreichenden Genauigkeit berechnen können. [152]

Die Grundlagen dieser Art der Problemlösung wurden 1943 im Bereich der Luft- und Raumfahrt erstmals für die Berechnung der strukturellen Eigenschaften von Bauteilen eingeführt [152]. Der Kerngedanke dieser Technik war dabei die Diskretisierung eines kontinuierlichen Körpers in individuelle Teilstücke, welche das Ausgangsbauteil in ihrer Summe und Interaktion miteinander repräsentieren. Diese sogenannten finiten Elemente werden durch Knotenpunkte definiert. Die numerische Lösung der jeweiligen physikalischen Zielgröße wird dabei zunächst nur für diese Punkte berechnet und anschließend für das Volumen des individuellen Elements zur kontinuierlichen Ergebnisdarstellung interpoliert [153]. Zusammen mit immer weiter steigender Rechenleistung ermöglicht diese Herangehensweise eine zeit- und kosteneffiziente Alternative zu realen Tests. Gerade im Bereich des Ingenieurwesens ist die numerische Simulation in einem breiten Anwendungsfeld ein essenzielles Werkzeug zur Optimierung von Prozessen und Produkten. [154,155]

Grundlegend kann zwischen zwei numerischen Verfahren zur Lösung der partiellen Differentialgleichungen unterschieden werden. Die Finite Differenzen Methode (FDM) basiert auf der Einteilung des Volumens in ein regelmäßiges Gitter [156]. Die darüber aufgestellten Differenzialgleichungen können direkt berechnet werden. Die Variante findet zum Beispiel Einsatz in der Fluidodynamik und bei einfacherem Wärmetransport. Daneben ist die FDM jedoch beschränkt auf simple Geometrien und auch Randbedingungen. Die Finite Elemente Methode hingegen ist hochgradig flexibel für nahezu alle physikalischen Problemstellungen und bietet eine hohe Genauigkeit der Lösungen auch bei komplexen Systemen. Wie durch den Namen bereits vorgegeben, wird das Volumen hierbei in individuelle Elemente aufgeteilt, welche durch ein globales Gleichungssystem verbunden sind. Die FEM ist daher die bevorzugte Variante für ein

breites Anwendungsfeld und ermöglicht zudem die Kombination von mehreren physikalischen Problemen. [152,153]

Vor der eigentlichen Simulation muss zunächst das geometrische Modell in Anlehnung an das reale Objekt gebildet werden. Dieses ist entweder zwei- oder drei-dimensional und wird zumeist mittels rechnergestützter Konstruktion (CAD) geschaffen. Auch die Definition der Problemstellung muss im Voraus durchgeführt werden, um neben der spezifischen Modellbildung auch eine zielgerichtete Analyse der Ergebnisse zu ermöglichen. Das allgemeine Vorgehen zur numerischen Lösung mittels FEM kann anschließend in drei hauptsächliche Schritte unterteilt werden (Abbildung 16). [157]

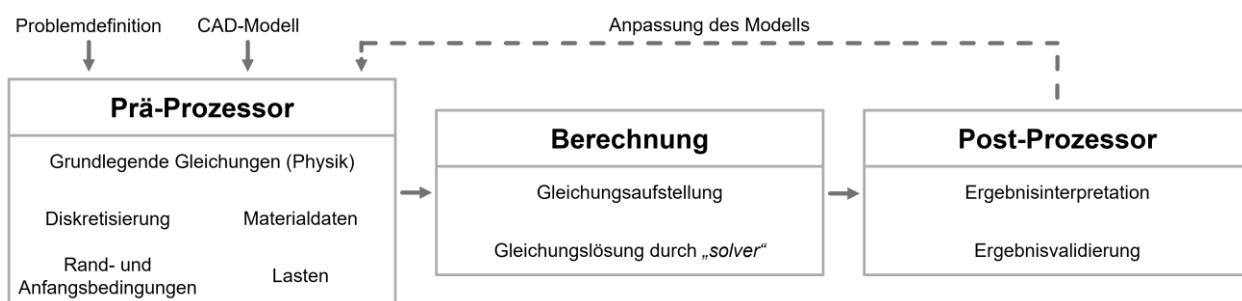


Abbildung 16: Schematischer Ablauf der FEM. In Anlehnung an [154,158,159]

Vor der mathematischen Berechnung des Gleichungssystems muss das Simulationsmodell aufbereitet werden, um eine möglichst nahe Abbildung des zu untersuchenden Prozesses zu gewährleisten. Entscheidend hierbei ist zunächst die Auswahl der passenden Physik. Dies gibt zunächst die sogenannte Feldvariable vor, nach der das Gleichungssystem anschließend aufgelöst wird [153]. Im Falle eines Wärmeübertragungs-Problems wäre dies z.B. die Temperatur. Die Auswahl der physikalischen Fragestellung gibt zudem die grundlegenden Gleichungen vor, auf deren Basis die Berechnung durchgeführt wird. Anschließend wird das kontinuierliche Volumen in individuelle finite Elemente diskretisiert. Für dreidimensionale Modelle werden hierbei hauptsächlich Tetraeder und Hexaeder genutzt [159]. Die Genauigkeit der Ergebnisse steigt dabei mit einer feineren Vernetzung, was jedoch auch die Rechenzeit signifikant ansteigen lässt [160]. Gerade in Bereichen mit hohen Änderungen der Feldvariable auf engem Raum, wie z.B. der Spannung in Kerben, werden kleinere Elemente (*h*-Typ) oder Polynome höherer Ordnung (*p*-Typ) benötigt, um die lokalen Vorgänge akkurat abilden zu können [154,161]. Moderne Simulationsprogramme bieten oftmals auch die Möglichkeit einer automatischen adaptiven Verfeinerung des lokalen Netzes auf Grundlage des vorherigen Lösungsschrittes. Dieses Vorgehen verlangt mehrere Durchläufe der Berechnung, diese sind jedoch durch das allgemein größere Netz jeweils deutlich effizienter, da der gesamte Rechenaufwand nur leicht durch lokale Verfeinerungen

erhöht wird [161]. Die Verknüpfung des virtuellen Volumens mit dem realen Werkstoffs erfolgt über das Materialmodell [154]. Dieses beinhaltet die essenziellen Eigenschaften des Materials zur Lösung der zuvor definierten Physik. Auch nicht-lineare Eigenschaftsprofile, wie z.B. eine Abhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit von der Temperatur, können hier hinterlegt werden. Die gründliche Auswahl eines akkurate Materialmodells innerhalb der Systemgrenzen ist dabei entscheidend für eine qualitativ hochwertige Lösung der Problemstellung. Bevor die Berechnung gestartet werden kann, müssen abschließend noch die Rand- und Anfangsbedingungen sowie extern aufgebrachten Lasten definiert werden [158]. Randbedingungen definieren dabei die Grenzen des Systems über die keine Berechnung stattfindet. Diese können in die drei Typen Dirichlet (Vorgabe eines definierten Wertes der Feldvariable, z.B. Temperatur), Neumann (Vorgabe von Flüssen oder Ableitungen der Feldvariable, z.B. Wärmestrom) und Cauchy (Kombination der beiden vorherigen, z.B. Konvektion) eingeteilt werden [161]. Anfangsbedingungen hingegen beschreiben die Systemeigenschaften zu Beginn speziell für dynamische oder transiente Simulationen. Die Lasten werden durch das repräsentative Realsystem vorgegeben und dem Modell durch einzelne Knotenpunkte oder als Verteilung über mehrere übertragen. [153,155,162]

Das finale Simulationsmodell mit allen notwendigen Informationen kann nun numerisch gelöst werden. Hierzu werden die grundlegenden Gleichungen für jedes finite Element durch die schwache Formulierung und Interpolation in die jeweilige Elementmatrix zur Berechnung überführt [153]. Anschließend werden die lokalen Matrizen in ein globales Gleichungssystem überführt, welches für die Feldvariable durch sogenannte „*Solver*“ gelöst wird. Diese „*Solver*“ können je nach Problemstellung direkt, interaktiv oder nichtlinear sein. [155,162,163]

Für die Verwertung der Ergebnisse einer FEM-Simulation wird abschließend noch eine Interpretation und Validierung benötigt (Post-Prozessor). Dabei werden die jeweiligen Werte visuell aufgearbeitet und auf Plausibilität gegenüber analytischer Lösungen oder realen Experimenten geprüft. Sind die Ergebnisse unzureichend in Genauigkeit oder erscheinen unplausibel, so kann das Modell angepasst und die Berechnung wiederholt werden [158]. [154,159]

2.5.2. Elektro-thermische Simulation

Die numerische Betrachtung der dielektrischen Erwärmung beruht auf der Koppelung einer elektromagnetischen mit einer thermischen Simulation und wird standardmäßig mittels FEM durchgeführt. Elektro-thermische Simulationen finden z.B. häufig Anwendungen in der

Sterilisation von Lebensmitteln [164,165]. Multiphysikalische Simulationen dieser Art laufen stets iterativ in mehreren Schleifen ab. Zumeist werden zunächst die elektromagnetischen Felder berechnet, wobei der magnetische Anteil zumeist für diese Art der Problemstellungen vernachlässigt werden kann. Diese Felder basieren auf der Grundlage der Maxwell-Gleichung (Gleichung (2.38)), welche als Feldvariable jeweils entweder das elektrische Potential φ (statisch) oder die elektromagnetische Feldstärke \vec{E} (dynamisch) besitzt. [166,167]

$$\vec{\nabla} \times (\mu_r^{-1} \vec{\nabla} \times \vec{E}) - k_0^2 \epsilon_r^* \vec{E} = 0 \quad (2.38)$$

Die elektrische Feldstärke wird durch die Wellenzahl im freien Raum k_0 , der relativen Permeabilität μ_r sowie der relativen Permittivität ϵ_r^* bestimmt. Über die dielektrischen Eigenschaften der Materialien können so in Abhängigkeit der lokalen elektromagnetischen Feldstärke die dissipierte Energie in Form von Wärme kalkuliert werden (Gleichung (2.1)). Dies wird anschließend als intrinsische Wärmequelle Q zusammen mit der lokalen Ausgangstemperatur der nachgelagerten thermischen Simulation übergeben. Auch die thermische Simulation wird von einer grundlegenden Gleichung (Gleichung (2.39)) mit der Temperatur T als Feldvariable mathematisch beschrieben.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla \times (k \nabla T) - Q = 0 \quad (2.39)$$

Entscheidend hierbei ist neben der Dichte des Materials ρ und der spezifischen Wärmekapazität C_p auch die thermische Leitfähigkeit k . Die thermischen Ergebnisse werden anschließend iterativ der elektromagnetischen Simulation erneut übergeben und die Schleife wird wiederholt bis die zuvor definierte Konvergenzkriterien erfüllt sind [168].

Neben einem iterativen „Solver“ sind zudem temperaturabhängige Eigenschaften des Materialmodells notwendig, um akkurate Ergebnisse unter steigenden Temperaturen zu generieren. Gerade bei multiphysikalischen Simulationen kann eine adaptive Netzverfeinerung hilfreich sein, um sowohl den Fehler als auch die notwendigen Rechenzeiten zu minimieren [160].

Eines der weitverbreitetsten konventionellen Simulationsprogramme zur Lösung multiphysikalischer Problemstellungen ist COMSOL Multiphysics® der COMSOL Inc. (Stockholm, Schweden) [167,169]. Das Programm ermöglicht dabei eine einfache Koppelung der unterschiedlichsten Simulationen und wurde bereits zur Untersuchung der dielektrischen Erwärmung von porösen Strukturen und polymeren Schäumen eingesetzt [170,171]. Auch im

Bereich der Partikelschäume wurden bereits erste numerische Simulationen mit COMSOL Multiphysics® durchgeführt.

Feng et al. [172] sowie *Calles-Arriaga et al.* [173] untersuchten zum Beispiel die Erwärmung und dadurch das Aufschäumen von mit Treibmittel beladenem Granulat aus Polyetherimid (PEI) respektive PS mittels Mikrowellen-Technologie. In beiden Fällen konnte die dielektrische Erwärmung über die Zeit abgebildet und vorhergesagt werden.

Schneider et al. [48] wiederum simulierten die dielektrische Erwärmung von bereits geschäumten EPS-Partikeln in einem stark vereinfachten RF-Prozess. Die sonst unpolaren Partikel wurden hierbei mit einer Beschichtung aus polarem Polyvinylalkohol (PVOH) versehen und rein simulativ unterschiedliche Schichtstärken sowie Partikeldurchmesser verglichen. Die Beschichtung führt zu einer verstärkten Erwärmung der Partiktoberflächen, wobei weder die Interaktion mit dem Werkzeug noch sonstige geometrische Effekte oder eine realitätsgtreue Anordnung der Partikel in der Schüttung unter Kompression berücksichtigt wurden.

2.5.3. Mechanische Simulation

Wie eingangs beschrieben, wurde die FEM erstmals zur Lösung von strukturellen Problemen entwickelt, was bis heute eine der hauptsächlichen Anwendungsfelder ist. Analog zur elektromagnetischen und thermischen Simulation wird das mechanische Modell ebenfalls durch grundlegende Gleichungen mathematisch definiert. Hierbei ist jedoch ein Satz an Gleichungen notwendig, welche in Kombination das strukturelle Verhalten des Körpers beschreiben. Entscheidend hierfür sind die Gleichgewichtsgleichung, die Dehnungs-Verschiebungs-Beziehung, die Kompatibilitätsbedingung und die konstitutive Beziehung [153]. Erstere basiert dabei auf dem Newtonschen Gesetz sowie auf der Impulserhaltung und besagt dabei, dass ein Körper unter Berücksichtigung aller inneren und externen Kräfte und Momente im Gleichgewicht sein muss. Die zweite Beziehung stellt die Korrelation der Verschiebung über dessen Gradient zur Dehnung auf. Die Kompatibilitätsbedingung stellt eine kontinuierliche Deformation ohne Lücken oder Überlappungen innerhalb des Volumens sicher. Die letzte Beziehung beschreibt wie das Material auf Spannungen und Dehnungen reagiert. Hierfür wird der Elastizitätstensor als primäre Materialeigenschaft eingeführt. [153]

Eine weitere Grundlage der mechanischen Simulation stellt das Prinzip der virtuellen Arbeit dar, welches eine ganzheitliche Summe der internen und externen virtuellen Arbeit auf null festlegt. Dieses kann wiederum in das Prinzip der virtuellen Verschiebung und der virtuellen Spannung unterteilt werden. Ersteres wird in der Festkörpermechanik dabei angewandt und besagt ein

Gleichgewicht der virtuellen Arbeit eines elastischen Systems, wenn die innere Spannung gleich der virtuellen Arbeit der äußeren Kräfte ist. [152]

Die Auswahl der passenden Vernetzung ist gerade für strukturelle Simulationen mit lokalen Spannungskonzentrationen entscheidend. Ein typisches Beispiel hierfür sind Kerben, welche zu lokalen erhöhten Gradienten der Feldvariable führen und somit eine feine Vernetzung verlangen. [174]

Auch zelluläre Werkstoffe konnten bereits mittels FEM strukturell simuliert werden. Hierbei ist jedoch die Berücksichtigung der heterogenen Mikrostruktur essenziell [175]. Auf Mesoebene können die Eigenschaften des Schaums als Interaktion von Zellwänden und -stegen sowie dem Zellgas numerisch untersucht werden. Neben der geometrischen Charakteristik sind hierbei primär die Eigenschaften des Matrixpolymers entscheidend. Die Schaumstruktur kann entweder mittels realen Messungen (z.B. Computertomographie) oder computergenerierter statistischer Verteilung, auch Tessellation genannt, anhand realer Verteilungskurven gebildet werden. Für zelluläre Systeme wird hierbei oftmals die Voronoi-Segmentation oder Methoden auf Basis des Kornwachstums zur Modellierung herangezogen [176,177]. Die heterogenen Eigenschaften auf Mesoebene können anschließend in ein makroskopisch homogenes Materialmodell überführt werden, was aus Gründen der Rechenzeit für größere Bauteile genutzt wird. Zudem können analytische Modelle wie das von Gibson und Ashby in die Entstehung des für Schaumstoffe stark dichteabhängigen Eigenschaftsprofils einbezogen werden [178]. [179–183]

Auch der spezielle Typ der Partikelschäume wurde bereits erfolgreich durch mechanische Simulation beschrieben. *Grüber et al.* [176] untersuchten den Einfluss des Zellgas auf die Kompression eines geschlossenzelligen EPP auf der zellulären Mesoebene. Zur Erzeugung der geometrischen Struktur wurden die Prüfkörper zunächst im Computertomographen analysiert und daraus die logarithmische Verteilungsfunktion der Zellgrößen berechnet. Diese wurde anschließend der „Open Source“-Software NEPER (Copyright *Quey et al.* [184]) zur Tessellation des Volumens übergeben, um eine realistische Zellstruktur zu generieren. Die numerische Lösung wurde anschließend in LS-DYNA des Entwicklers Ansys Inc. (Canonsburg, USA) durchgeführt. Die Ergebnisse zeigten eine große Übereinstimmung mit den experimentellen Untersuchungen bei Zellgas unter atmosphärischem Druck sowie im Vakuum.

Ebenfalls am Beispiel von EPP mit unterschiedlichen Dichten untersuchten *Gebhart et al.* [177] den Übertrag des Eigenschaftsprofils von Meso- auf Makroebene. Auch hier wurde eine ähnlicher Ansatz zur Erzeugung der zellulären Geometrie mittels Computertomographie und der Tessellation durch NEPER gewählt. Zusätzlich wurden jedoch noch lokale Unterschiede in der

Kristallinität in die Eigenschaften des Matrixpolymers mit einfließen gelassen. Das daraus generierte effektive Materialverhalten wurde anschließend als homogenes Profil der Software ABAQUS/EXPLICIT des Entwicklers Dassault Systems (Vélizy-Villacoublay, Frankreich) zur Simulation unter 4-Punkt-Biegung übergeben. Zudem wurde ein Vergleich mit experimentell ermittelten Materialdaten auf Mesoebene gezogen. Beide Methoden zeigten eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen des Biegeversuchs auf. Dies zeigt, dass für die strukturelle Simulation eines Partikelschaum-Bauteils sowohl numerisch generierte Eigenschaften auf zellulärer Mesoebene als auch homogene experimentelle Materialdaten auf Makroebene genutzt werden können.

Die numerische Simulation ist ein weitverbreitetes Werkzeug zur Beschreibung und Vorhersage von Material- und Bauteileigenschaften. Die Finite Elemente Methode stellt sich hierbei als besonders flexibel in der Modellierung komplexer Systeme und bei der Koppelung unterschiedlicher physikalischer Problemstellungen dar. Auch im Bereich der (Partikel-)Schäume wurde die Simulation bereits sowohl für die elektro-thermische als auch für die mechanische Betrachtung erfolgreich angewandt. In der Literatur ist eine signifikante Lücke in der Simulation der dielektrischen Erwärmung von Schaumpartikeln unter realen Bedingungen zu finden. Insbesondere die Kompression der Schaumpartikel und die Interaktion mit dem Werkzeug im RF-Prozess ist noch unerforscht. Auf Seiten der Mechanik lag der Fokus primär in der Abbildung der zellulären Struktur und weniger auf der Anhaftung der individuellen Schaumpartikel. Diese wird über die prozesseitige Verschweißung gesteuert und ist essentiell für die finalen Eigenschaften. Eine Verknüpfung der elektro-thermischen mit der mechanischen Simulation zur direkten Vorhersage der lokalen Bauteileigenschaften wurde ebenfalls noch nicht durchgeführt, weist jedoch ein enormes Potential in der Material- und Prozessoptimierung auf.

2.6. Zusammenfassung

In diesem abschließenden Kapitel werden die zentralen Aspekte des aktuellen Standes der Technik zum Radiowellen-Verschweißen von Schaumpartikeln zusammengefasst. Der konventionelle Verschweißprozess basiert auf der Zufuhr von gesättigtem Wasserdampf, der industriell meist durch die Verbrennung fossilen Erdgases erzeugt wird. Die damit verbundenen thermischen Verluste führen zu einer geringen energetischen Effizienz, wodurch zunehmend alternative Verfahren in den Fokus rücken. Der RF-Prozess bietet hierbei aufgrund des direkten volumetrischen Energieeintrags ein erhebliches Potenzial für eine zukünftig ressourcenschonendere Herstellung funktionaler Leichtbaustrukturen. Grundlage des Prozesses ist

die dielektrische Erwärmung des Polymers durch die Kopplung interner Dipole an ein hochfrequentes elektromagnetisches Wechselfeld.

Trotz der hohen technologischen Relevanz fehlen bislang grundlegende wissenschaftliche Untersuchungen zu den physikalischen Wechselwirkungen innerhalb dieses Prozesses. Insbesondere besteht kein umfassendes Verständnis über die Interaktion zwischen elektromagnetischem Feld, zellulärer Materialstruktur und verfahrenstechnischer Parameter. Die dielektrischen Eigenschaften solcher Mehrphasensysteme ergeben sich sowohl aus dem temperatur- und frequenzabhängigen Verhalten der Polymermatrix als auch aus der geometrischen Anordnung der Phasen und deren Anteil. Für den spezifischen Fall geschäumter Polymere mangelt es jedoch an systematischen Materialcharakterisierungen und verlässlichen prädiktiven Modellen.

Auch hinsichtlich des eigentlichen Verschweißmechanismus von Schaumpartikeln aus thermoplastischen Polyurethanen (ETPU) und dessen quantitativer Erfassung auf der Partikelebene bestehen signifikante Forschungslücken. Während die Nutzung multiphysikalischer Simulationen bereits vereinzelt für Teilespekte der dielektrischen Erwärmung sowie zur Vorhersage mechanischer Eigenschaften von Partikelschäumen demonstriert wurde, fehlt bislang ein übergreifender Ansatz, der beide Bereiche integriert und durch experimentelle Daten validiert ist. Insbesondere der Übertrag solcher Methoden auf expandierte thermoplastische Schäume in Partikelform blieb bisher unbehandelt.

Insgesamt zeigt sich, dass trotz des erkennbaren Potenzials der RF-Technologie zur dampflosen Verschweißung von Partikelschäumen die wissenschaftliche Aufarbeitung des Verfahrens bis auf wenige Ausnahmen noch am Anfang steht.

3. Zielsetzung und Struktur der Arbeit

Partikelschaumstoffe verbinden hohe Designfreiheit mit gleichzeitig guten mechanischen Eigenschaften und niedrigen Dichten. Neben der Erschließung neuer nachhaltiger Vertreter auf der Materialseite wurde innerhalb der letzten Jahre auch ein verstärkter Fokus auf innovative, dampflose Verarbeitungstechnologien gelegt. Der wichtigste und zukunftsträchtigste Repräsentant ist das Radiowellen-Verschweißen. Durch den direkten Wärmeeintrag kann eine hohe Energieeinsparung im Vergleich zum konventionellen dampfbasierten Verschweißprozess erzielt werden. Die komplexen multiphysikalischen Vorgänge verlangen jedoch ein hohes Maß an Prozessverständnis, was bisher noch nicht erarbeitet wurde. Die wissenschaftlichen Ergebnisse dieser Arbeit sollen daher genau diese Lücken schließen, um eine effiziente und breite Anwendung der nachhaltigen Technologie zu ermöglichen.

Das **Hauptziel** der vorliegenden Arbeit besteht in der Aufklärung von grundlegenden physikalischen Beziehungen zwischen den Eigenschaften der Materialien und deren Interaktion mit dem elektromagnetischen Wechselfeld sowie der Verarbeitbarkeit im neuartigen Radiowellen-Verschweißen. Um dieses Hauptziel zu erreichen, werden einzelne, aufeinander aufbauende Hypothesen mit spezifischen Unterzielen definiert.

Zunächst werden gezielt die Eigenschaften der Schaumpartikel sowie deren Grundpolymer untersucht, um grundlegende Prozessinteraktionen aufzuklären zu können. Ein besonderer Fokus liegt dabei auf den temperatur- und frequenzabhängigen dielektrischen Eigenschaften.

***Hypothese #1:** Die dielektrischen Eigenschaften des Zweiphasen-Systems ETPU hängen signifikant von Temperatur und Frequenz ab und können durch Messungen des Grundpolymers TPU vorhergesagt werden.*

Dazu soll eine detaillierte Analyse der Permittivität des Grundpolymers bei definierten Temperaturen von 20 °C bis in den Schmelzebereich bei 180 °C durchgeführt werden. Die Eigenschaften des geschäumten Systems werden dann bei definierten volumetrischen Anteilen und Temperaturen untersucht.

Unterziel #1.1: Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften von TPU und ETPU mittels Impedanzspektroskopie und deren Abhängigkeit von Temperatur und Frequenz.

Unterziel #1.2: Erarbeitung eines neuartigen Zweiphasen-Mischmodells auf Basis des Einheitszellen-Modells speziell für Polymerschäume zur Vorhersage der dielektrischen Eigenschaften in Relation zum volumetrischen Anteil an Polymer.

Ein tieferes Verständnis des Verschweißverhaltens von ETPU als teilkristalliner Partikelschaum ist essenziell für die korrekte Evaluierung des Einflusses von Prozessinteraktionen mit den finalen Eigenschaften auf Bauteilevel. Bisher ist jedoch keine Messmethode zur direkten Evaluierung der Verschweißfestigkeit auf der Partikel-Ebene etabliert.

Hypothese #2: Die Verschweißqualität zwischen Schaumpartikeln basiert auf deren thermischen Eigenschaften und korreliert direkt mit der Temperatur.

Zur Prüfung der Hypothese wird ein prozessnahe Messverfahren benötigt. Dieses muss eine Trennung sowie ein gezieltes Einstellen der unterschiedlichen Einflussgrößen ermöglichen, um Korrelationen herausarbeiten zu können.

Unterziel #2.1: Konzipierung und Validierung eines Messverfahrens zur Messung der Verschweißfestigkeit zwischen einzelnen Schaumpartikeln anhand von ETPU.

Unterziel #2.2: Evaluation der direkten Abhängigkeit der Verschweißfestigkeit von der Temperatur auf Basis der thermischen Eigenschaften der Schaumpartikel.

Im RF-Prozess dient die dielektrische Erwärmung als grundlegender Mechanismus der Temperaturentwicklung. Diese Wechselwirkung zwischen Material und Prozess ist entscheidend für die erfolgreiche Verschweißung zwischen den Schaumpartikeln und äußert sich messbar an unterschiedlichen Stellen im Prozess.

Hypothese #3: Die mechanischen Eigenschaften von im RF-Prozess verschweißten Prüfkörpern können durch die Prozessparameter gesteuert werden und stehen über die Temperaturentwicklung in direktem Zusammenhang mit den temperaturabhängigen dielektrischen Eigenschaften.

Zur Überprüfung der Hypothese werden Prüfkörper bei unterschiedlichen Prozessparametern mittels RF-Technologie hergestellt und deren mechanische Eigenschaften sowie Oberflächenqualität evaluiert. Die Leistungsaufnahme des Generators in der RF-Anlage sowie die Entwicklung der Temperatur im Bauteil liefern direktes Feedback zu den physikalischen Phänomenen.

Unterziel #3.1: Aufzeichnung der resultierenden Leistungskurven des RF-Generators bei unterschiedlichen Spannungskurven sowie volumetrischen Anteilen an Polymer im Werkzeug inklusive analytischem Vergleich mit den Materialeigenschaften.

Unterziel #3.2: Aufzeichnung der Temperaturentwicklung im Inneren der Partikelschaumbauteile mittels faseroptischem Temperatursensor zur Korrelation mit dem Leistungseintrag.

Unterziel #3.3: Untersuchung des Einflusses von Prozessparametern und daraus resultierender Temperaturentwicklung auf die mechanischen Eigenschaften von Formteilen unter Zugbeanspruchung sowie deren Oberflächenqualität.

Im Gegensatz zum konventionellen dampfbasierten Verschweißen unterliegt die dielektrische Erwärmung während des RF-Prozesses lokal spezifischen Wechselwirkungen mit dem elektromagnetischen Wechselfeld. Diese werden durch komplexe Interaktionen mit der Umgebung beeinflusst, wodurch eine rein analytische Betrachtung auf Grundlage von expliziten Formeln nicht möglich ist.

Hypothese #4: *Die Simulation ermöglicht eine ganzheitliche Nachbildung des RF-Prozesses, durch die sowohl thermischen Phänomene als auch die mechanischen Eigenschaften auf Prüfkörper-Ebene vorhergesagt werden können.*

Der Aufbau des digitalen Zwillings innerhalb des Programms COMSOL Multiphysics® erfolgt über das abgestimmte Zusammenspiel einzelner Elemente und physikalischer Module. Eine schrittweise Validierung der Teilergebnisse mit echten Messungen ist dabei essenziell, um die Robustheit und Resilienz des Simulationsmodells zu gewährleisten.

Unterziel #4.1: Erarbeitung der Materialmodelle für ETPU und den Werkzeugmaterialien sowie schrittweiser Aufbau einer elektro-thermischen gefolgt von einer mechanischen Simulation in COMSOL Multiphysics®.

Unterziel #4.2: Validierung der Ergebnisse der elektro-thermischen Simulation mittels Daten des faseroptischen Temperatursensors und der Leistungsaufnahme des Generators.

Unterziel #4.3: Vergleich der Ergebnisse der mechanischen Simulation anhand realer Zugversuche der im RF-Prozess verschweißten Prüfkörper sowie die Bewertung der Nutzbarkeit des Modells für die Vorhersage der mechanischen Eigenschaften.

Ein graphischer Überblick über die allgemeine Struktur der Arbeit mit den drei Arbeitspaketen und deren inhaltliche Korrelation zueinander ist in Abbildung 17 dargestellt.

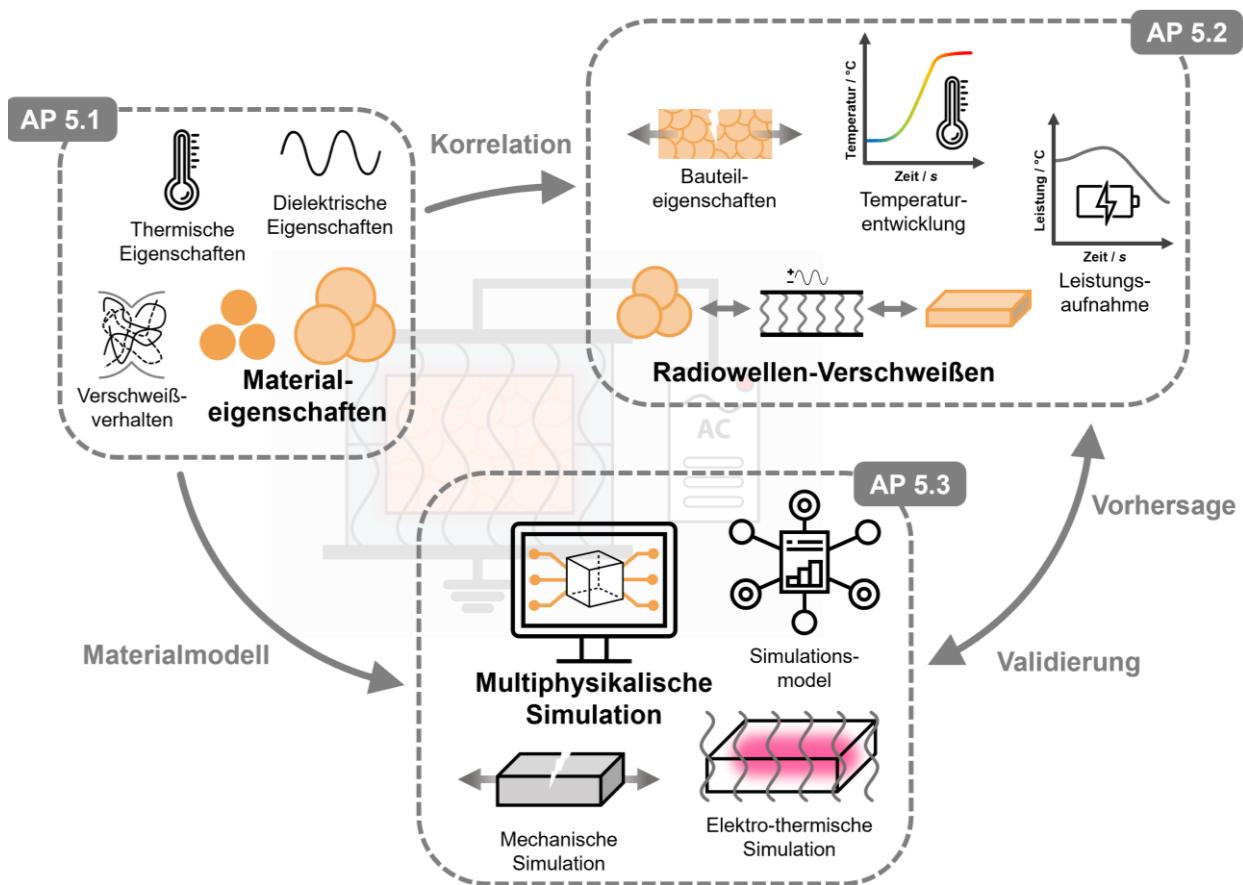


Abbildung 17: Überblick über die Struktur der Arbeit

4. Materialien und experimentelle Methoden

Im folgenden Kapitel werden die innerhalb der vorliegenden Arbeit genutzten Materialien und experimentellen Methoden dargestellt. Diese bilden die Grundlage der Ergebnisse im weiteren Verlauf. Die experimentellen Methoden teilen sich dabei in die allgemeine Analytik des Materials, die Prüfkörperherstellung mittels Radiowellen-Verschweißen sowie die mechanische Charakterisierung auf. Zudem werden die softwareseitigen Grundlagen der numerischen Simulation beschrieben.

4.1. Schaumpartikel

Im Zentrum der Arbeit stehen die genutzten Schaumpartikel. Hierbei fiel nach Vorversuchen die Wahl auf das kommerzielle expandierte thermoplastische Polyurethan Infinergy® 32-100 U10 (im Folgenden vereinfacht als ETPU bezeichnet) des Herstellers BASF SE (Ludwigshafen am Rhein, Deutschland). Im Vergleich zu anderen kommerziellen Materialien, wie EPS oder EPP, besitzt ETPU eine intrinsische Polarität durch den chemischen Aufbau, wodurch eine Verarbeitung im RF-Prozess auch ohne Hilfsstoffe möglich ist. Wie für viele thermoplastische Elastomere typisch, besitzt das Basis-Polymer eine komplexe chemische Struktur bestehend aus Hart- und Weichsegmenten. Die exakte Formulierung ist hierbei nicht bekannt. Auf Grundlage zweier Patente [25,185] sowie eines Fachvortrags [186] wird jedoch ein Hartsegment aus einem aromatischen Diisocyanat (genauer Methylendiphenylisocyanat (MDI)) mit einem Diol als Kettenverlängerer (genauer 1,4-Butandiol) vermutet (siehe Abbildung 18).

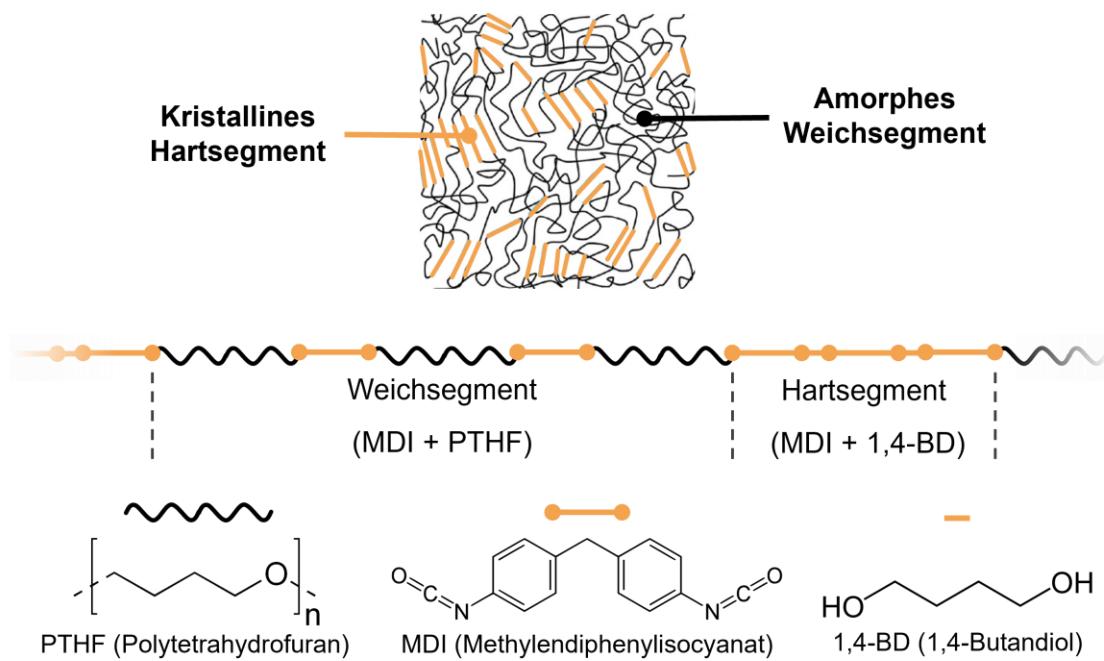


Abbildung 18: Molekularer Aufbau eines thermoplastischen Polyurethans mit Hart- und Weichsegment am konkreten Beispiel des Infinergy® 32-100 U10. Vermutung auf Grundlage von [25,185,186]

Das Weichsegment besteht dagegen mit hoher Wahrscheinlichkeit aus einem Polyetherdiol (genauer Polytetrahydrofuran (PTHF)) welches wieder durch MDI verknüpft ist. Die einzelnen Bestandteile besitzen jeweils verschiedenste Bereiche mit unterschiedlichen Elektronegativitäten, was ohne vorhandene Symmetrie zu permanenten Dipolen führt. Die ungleichmäßige Form der Partikel lässt wiederum auf den Autoklavprozess zur Herstellung zurück schließen. Die Schaumpartikel wurden ohne weitere Vorbehandlung genutzt.

4.2. Analytische Methoden

Im Laufe der Arbeit werden unterschiedliche analytische Methoden genutzt, um die Materialien sowohl vor als auch nach der Verarbeitung zu untersuchen. Dies liefert auch einen Großteil der benötigten Eigenschaften für die Materialmodelle der numerischen Simulation.

4.2.1. Dynamische Differenzkalorimetrie

Die thermischen Eigenschaften der Werkstoffe hinsichtlich des Glasübergangs sowie des Schmelzverhaltens wurden mittels dynamischer Differenzkalorimetrie („*differential scanning calorimetry*“, kurz DSC) in einem Bereich von -20 bis 200 °C untersucht. Der Großteil der Versuche wurde hierbei an einer DSC1 der Firma Mettler Toledo (Columbus, USA) durchgeführt. Die Proben wurden auf eine Masse von 5 bis 10 mg eingewogen und in Tiegeln aus Aluminium

gegen eine leere Referenz gemessen. Während der Messung wurde die Kammer für eine inerte Atmosphäre konstant mit 50 ml/min Stickstoff gespült und die Probe unter einer Heizrate von 10 K/min erhitzt.

Die Analyse der Wärmekapazität wurde gegen eine definierte Saphir-Referenz und mit einem leeren Aluminium-Tiegel an einer Q 1000 des Herstellers TA Instruments (New Castle, USA) durchgeführt. Die Messung erfolgte an einzelnen Messpunkten von 20 bis 200 °C mit einer Schrittweite von 20 K. Das Analysegerät wurde zudem für modulierte DSC-Messungen verwendet, um für einzelnen Analysen dessen erhöhte Signalqualität zu nutzen. Zur Evaluation des Schmelzeverhaltens wurde hier eine lineare Heizrate von 5 K/min mit einer Amplitude von ±0,796 K und einer Periode von 60 s gewählt, um ein Temperaturprofil ohne zwischenzeitliche Abkühlung zu schaffen [187,188]. Die Messungen wurden ebenfalls unter einem inerten Gasstrom von 50 ml/min Stickstoff durchgeführt. Die Probenmasse lag hierbei, bedingt durch einzelne Prüfkörper, zwischen 3 und 10 mg.

Für alle Messungen wurden jeweils drei Wiederholungen durchgeführt. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden die Ergebnisse der beiden DSC-Varianten jeweils nur untereinander verglichen.

4.2.2. Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit des Partikelschaums ist entscheidend für die Temperaturverteilung während der Prozessierung und ein wichtiger Parameter für die Simulation. Hierzu wurde zunächst die Wärmeleitfähigkeit an verschweißten Schaumplatten mit einer Dichte von 238 kg/m³ mittels des HFM 446 des Herstellers Erich NETZSCH B.V. & Co. KG (Selb, Deutschland) ermittelt. Die Messung wurde dabei in fünf Schritten von 20 bis 85 °C durchgeführt, wobei die Wärmeleitfähigkeit mit hoher Übereinstimmung (R^2 von 0,9996) einem linearen Trend über die Temperatur folgt. Zur Bestimmung der dichteunabhängigen Eigenschaften wurde anschließend auf die Wärmeleitfähigkeit des Polymers zurückgerechnet. Für Schäume mit moderaten Dichten ρ^* und vorwiegend geschlossenen und runden Zellen können die Beiträge durch Konvektion und Strahlung vernachlässigt und die Wärmeleitfähigkeit des Schaums λ^* über Gleichung (4.1) nach *Ashby* und *Gibson* [15] beschreiben werden.

$$\lambda^* = \frac{2}{3} \left(\frac{\rho^*}{\rho_{Polymer}} \right) \lambda_{Polymer} + \left(1 - \frac{\rho^*}{\rho_{Polymer}} \right) \lambda_{Zellgas} \quad (4.1)$$

Neben der Dichte des Polymers $\rho_{Polymer}$ wird zudem die Wärmeleitfähigkeit des Zellgases $\lambda_{Zellgas}$ benötigt. Bei den meisten Schaumstoffen befindet sich Luft innerhalb der Zellen, wodurch der notwendige Wert in Abhängigkeit der Temperatur in der Literatur zu finden ist [189]. Diese Berechnung erlaubt somit eine von der Dichte unabhängige Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit über einen breiten Temperaturbereich.

4.2.3. Dichtebestimmung

Die Bestimmung der Dichte sowohl der Schaumstoffe ρ^* als auch des Polymers wurde nach dem archimedischen Prinzip durch Wasserverdrängung durchgeführt. Hierfür wurde die Dichtewaage AG245 des Herstellers Mettler Toledo (Columbus, USA) verwendet. Die Proben wurden dabei zunächst an Luft m_{Luft} und anschließend unter Wasser m_{Wasser} gewogen (Gleichung (4.2)).

$$\rho^* = \frac{m_{Luft}}{m_{Luft} - m_{Wasser}} \rho_{Wasser} \quad (4.2)$$

Zudem muss die temperaturabhängige Dichte des reinen Wassers ρ_{Wasser} als Auftriebsmedium berücksichtigt werden. Die Messung wurde jeweils an drei Prüfkörpern durchgeführt. Die Dichte der verschweißten Platten hingegen wurde rein geometrisch als idealer Quader über die durchschnittlichen Abmaße und über das Gewicht bestimmt.

4.2.4. Partikelgrößenbestimmung

Wie bereits zuvor beschreiben, besitzen die Schaumpartikel eine ungleichmäßige Geometrie. Um die Form sowie die Verteilung der Partikelgrößen zu bestimmen, wurde der CAMSIZER ONLINE des Herstellers Microtrac Retsch GmbH (Haan, Deutschland) genutzt. Die Partikel werden dabei durch ein Kamerasystem im freien Fall mehrfach abgebildet und daraus ein dreidimensionales Modell jedes Partikels erzeugt. Somit können neben der Partikelgröße auch die Sphärität und die jeweiligen Verteilungen analysiert werden. Die Messung wird dabei an mehreren tausend Partikeln automatisch durchgeführt und die Ergebnisse bilden die Grundlage für die realitätsnahe Tessellation der Bauteilgeometrie für die mechanische Simulation.

4.2.5. Mikroskopie

Die zelluläre Struktur eines Schaumstoffs ist entscheidend für eine Vielzahl der Eigenschaften. Die bildgebende Analyse auf mikroskopischer Ebene erfolgte dabei mittels Rasterelektronenmikroskop, genauer mit einem JSM-6510 des Herstellers JEOL Ltd. (Akishima, Japan) bei einer Beschleunigungsspannung von 1,5 kV. Die Präparation der Querschnitte erfolgte durch eine Rasierklinge. Alle Proben wurden durch das Beschichtungsgerät Cressington 108 Auto Sputter Coater der Firma Tescan GmbH (Dortmund, Deutschland) mit Platin besputtert.

Für großflächigere Analysen der Bauteiloberflächen oder Bruchbilder wurde auf das 3D-Profilometer VR 5000 des Herstellers Keyence Corporation (Osaka, Japan) mit integrierter Auswertesoftware zurückgegriffen.

4.2.6. Analyse der Verschweißung an einzelnen Partikeln

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde eine neuartige Methodik zur Analyse der Verschweißqualität von einzelnen Schaumpartikeln bei definierten Bedingungen entwickelt. Die Partikel wurden hierfür zunächst mit einer Rasierklinge halbiert und anschließend mittels des 2K-Epoxidklebers PLUS ENDFEST des Herstellers UHU GmbH & Co. KG (Bühl, Deutschland) auf Probenhaltern fixiert. Eine Aushärtung des Klebers bei 35 °C für 1 h führt zu einer optimalen Anhaftung. Die Probenhalter wurden eigens konstruiert und mittels DLP-Druck aus einem Hochtemperatur-Harz, dem xPEEK147-Black der Firma Nexa3D (Ventura, USA), gedruckt. Als vielseitiges Analysegerät wurde hierbei das Rotationsrheometer MCR 702 TwinDrive des Herstellers Anton Paar GmbH (Graz, Österreich) genutzt. Dieses besitzt den Vorteil, zusätzlich lineare Bewegungen in Richtung der Rotationsachse durchführen zu können. Die Messkammer besitzt neben einer akkurate Temperierung auf bis zu 450 °C auch die Möglichkeit der Kühlung mit flüssigem Stickstoff, was eine schnelle Reduktion der Temperatur ermöglicht. Die Entwicklung der Methodik mit detailliertem Ablauf wird in Kapitel 5.1.4 näher beschrieben.

4.2.7. Impedanzspektroskopie

Die dielektrischen Eigenschaften der Materialien sind ein zentraler Aspekt der Arbeit und essentiell sowohl für die Evaluation der RF-Verschweißung als auch in der Simulation. Zur Bestimmung dieser Parameter wurde der Impedanz-Analysator E4991A RF der Firma Keysight Technologies Inc. (Santa Rose, USA) verwendet. Dieser arbeitet nach der bereits beschriebenen RF I-V Methode und erlaubt eine Analyse von 1 MHz bis maximal 3 GHz. Innerhalb der Arbeit

wurde ein Amplitudenspannung von 500 mV genutzt und die maximale Frequenz auf 50 MHz begrenzt, da darüber intrinsische Fehler durch den aufgebauten Schwingkreis zu hoch wurden. Die entscheidende Frequenz von 27,12 MHz konnten jedoch gut aufgelöst werden. Um ungewünschte Störungen zu minimieren, wurde die in Kapitel 2.4.4 beschriebene OLS-Kompensation vor jeder Messreihe durchgeführt. Als Referenzmaterial wurde sich für ein PTFE entschieden, da dieses konstante dielektrische Eigenschaften über einen breiten Frequenz- und Temperaturbereich besitzt. Für die Berechnung wurde eine gleichbleibende Permittivität von $\epsilon_r^* = 2,1 - 0,00007i$ angenommen [190]. Pro Probe sowie für die Kompensationen wurden jeweils fünf Messungen durchgeführt.

Aufgrund der speziellen Prüfkörper und der Notwendigkeit der Messung von Partikelschüttungen wurden zwei Messzellen nach der Vorlage von *Bifano et al.* [107,149] selbst designt und gebaut. Beide Messzellen bestehen aus einer Ummantelung aus PTFE, um „fringing field“-Effekte durch die ähnliche Permittivität zu minimieren und ein konstantes Materialverhalten zu gewährleisten. Zudem bietet sich so die Möglichkeit Messungen bis über 200 °C durchzuführen (siehe Abbildung 19).

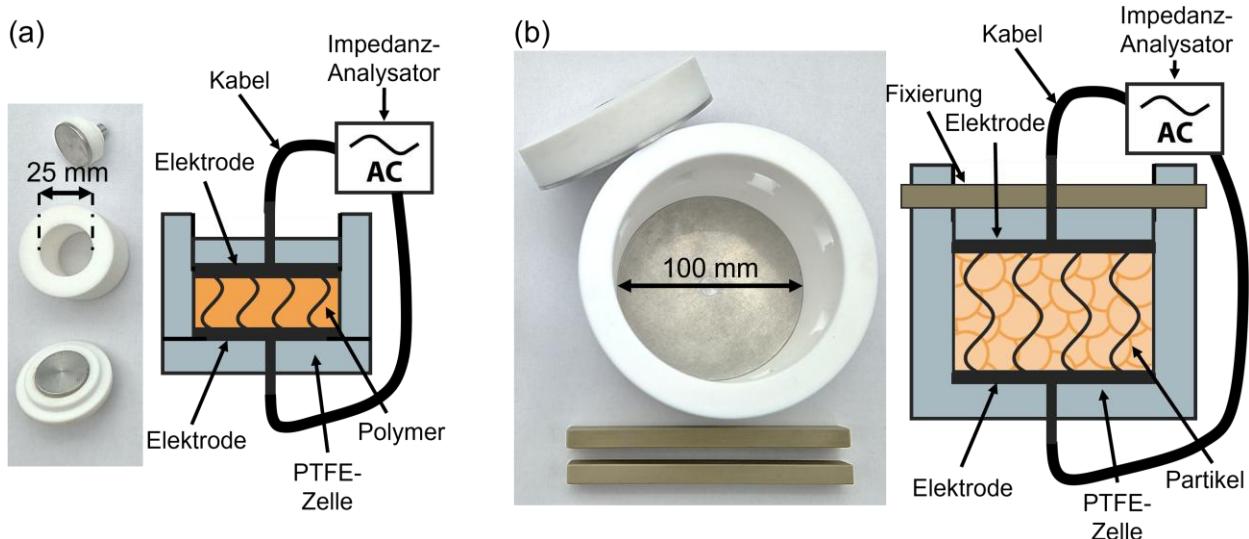


Abbildung 19: Reale Abbildung (links) und schematische Zeichnung des Querschnitts (rechts) der genutzten Messzellen für die Vollmaterialien (a) sowie für die Schüttungen der Schaumpartikel (b) mit beschrifteten Komponenten

Die Elektroden bestehend jeweils aus Aluminium, um Widerstände zu minimieren und liegen direkt an dem zu messenden Material auf. Die Analyse der Vollmaterialien findet in der kleineren Messzelle (Abbildung 19 (a)) an heißgepressten Prüfkörpern mit einem Durchmesser von 25 mm und einer Dicke von ca. 1 mm statt. Für die Schaumpartikel hingegen wurde eine etwas abgewandelte große Messzelle entwickelt. Diese besitzt einen inneren Durchmesser von 100 mm, wobei der Boden und die seitlichen Wänden aus einem Teil gefertigt wurden. Durch

Fixierungsstäbe aus Polyetheretherketon (PEEK) kann die Zelle so mit Schaumpartikeln gefüllt und nach der Komprimierung in einer externen Presse auf einen definierten Abstand festgestellt werden. Für alle Messungen wurde hierbei ein Abstand von 20 mm zwischen den Elektroden eingestellt und die Dichte volumetrisch über das Gewicht der Partikel bestimmt. Die Messzellen wurden mit dem Impedanz-Analysator über zwei Kabel verbunden. Zunächst wurde ein Koaxialkabel (Aircell 3 des Herstellers SSB-Electronics (Lippstadt, Deutschland)) außerhalb des Ofens benutzt, welches sich kurz von der Durchführung in zwei einzelne temperaturbeständige Kapton-Kabel (311-KAP50S-RAD des Herstellers Allectra GmbH (Berlin, Deutschland)) aufteilt. Der Messaufbau mit der kleinen Messzelle inklusive der Kabeldurchführung in den Ofen ist in Abbildung 20 zu sehen.

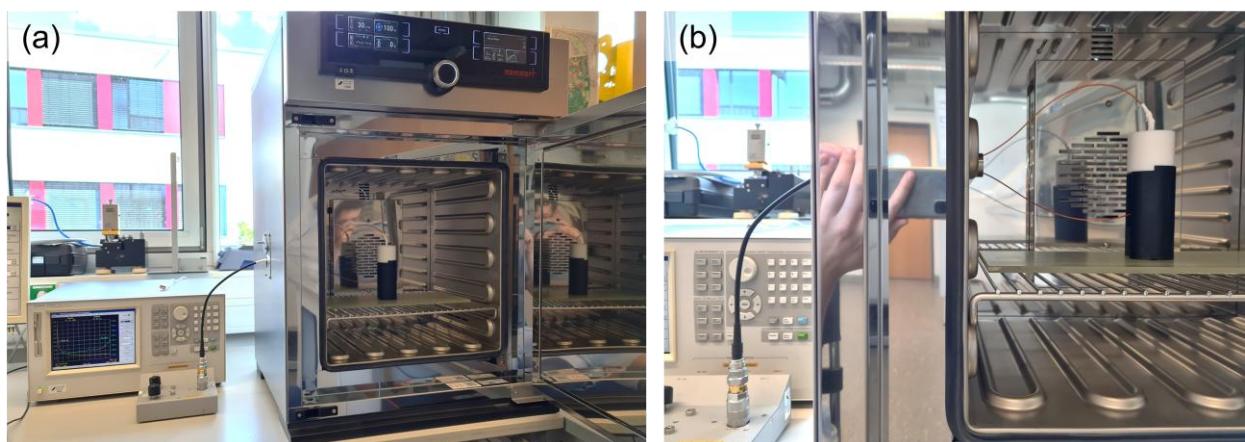


Abbildung 20: Überblick über den Aufbau der dielektrischen Messung mit Impedanz-Analysator und Umluftofen (a) sowie einer Detailaufnahme der in diesem Fall kleinen Messzelle inklusive Durchführung der Messkabel in den Innenraum (b)

Die Messzelle steht hierbei auf einer Halterung, um ein Abknicken der Kabel zu verhindern. Innerhalb der Durchführung wurden die Kabel in einer PTFE-Hülse geführt, um ungewünschte Interaktionen mit dem umliegenden Metall zu minimieren. Bei dem Ofen handelt es sich um den Universalofen UF55plus der Firma Memmert GmbH + Co. KG (Schwabach, Deutschland) mit Umluft zur homogenen Temperierung mit einer Genauigkeit von $\pm 0,5$ K. Vor jeder Messung wurden die Prüfkörper ausreichend im Ofen gelagert, um die gewünschte gleichmäßige Temperatur zu gewährleisten.

Auf Grundlage der ermittelten Werte der komplexen Permittivität aus Vollmaterial und Schaum in Abhängigkeit des volumetrischen Anteils werden unterschiedliche Mischmodelle zur Vorhersage evaluiert. Zur quantitativen Vergleichbarkeit der Genauigkeit der Modelle wurde der mittlere relative Fehler („*mean relative error*“ (MRE)) aus den vorhergesagten Werten des Modells $\varepsilon_{eff,Modell,i}$ und den gemessenen Ergebnissen $\varepsilon_{eff,gemessen,i}$ nach Gleichung (4.3) berechnet. [191,192]

$$MRE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{|\varepsilon_{eff,gemessen,i} - \varepsilon_{eff,Modell,i}|}{\varepsilon_{eff,gemessen,i}} \quad (4.3)$$

4.3. Radiowellen-Verschweißung

Die Verarbeitung der Schaumpartikel zu verschweißen Platten wurde an einem Wave Foamer C des Herstellers Kurtz GmbH (Kreuzwertheim, Deutschland) durchgeführt. Die Anlage besitzt einen 25 kW Generator, welcher bei einer Frequenz von 27,12 MHz eine maximale Spannung von 10 kV generieren kann. Innerhalb der Arbeit wurden Spannungskurven mit 6 und 9 kV gefahren. Um Kurzschlüsse zu vermeiden, wurde jeweils eine Rampe über 2 s bis hin zur maximalen Spannung eingestellt. Die tatsächlich anliegende Spannungskurve weicht hier gerade im Anfangsbereich leicht ab, wird jedoch zusammen mit der Leistungsaufnahme des Generators für jeden Versuch exportiert. Für eine bessere Vergleichbarkeit wurde vor jedem Zyklus die Temperatur der Schaumpartikel (27°C) ermittelt sowie das Werkzeug auf eine Oberflächentemperatur von 40°C abkühlen gelassen. Nach der Verschweißung wird stets eine Stabilisierungszeit von 200 s eingestellt, um die Platten nicht während der Entformung zu beschädigen. Die Dichte der resultierenden Platten wurde durch die vorherige Einwaage der Partikel und die Abmaße des Werkzeugs ($200 \times 200 \times 10 \text{ mm}^3$) kontrolliert. Der generelle Aufbau innerhalb der RF-Anlage mit den beiden Elektroden und dem PTFE-Werkzeug ist in Abbildung 21 (a) schematisch dargestellt. Das Werkzeug besitzt eine seitliche Wandstärke von 40 mm und eine untere und obere Isolationsschicht von jeweils 10 und 20 mm, um Überschläge zu vermeiden. Zur Überwachung der Erwärmung der Schaumpartikel während des Prozesses befindet sich mittig eine kleine Durchführung in der Werkzeugwand. Dies erlaubt die Nutzung eines faseroptischen Temperatursensors. Standardmäßige Thermoelement können hierbei nicht genutzt werden, da die metallischen Bestandteile mit dem elektromagnetischen Feld interagieren würden. Der Sensor wird vor der Befüllung mit den Schaumpartikeln mit einem kleinen Streifen Tape so an der unteren Isolationsschicht befestigt, dass er ungefähr im Zentrum der Platte liegt. Die tatsächliche Position kann leicht abweichen und wird für jeden Versuch nachträglich evaluiert. Als Temperatur-Messgerät wurde das FOTEMP-Modular mit dem Sensortyp TS3 des Herstellers Weidmann Technologies Deutschland GmbH (Dresden, Deutschland) genutzt. Der Sensor besitzt einen Außendurchmesser von 0,98 mm und wird von einer PTFE-Hülle mit einem Außendurchmesser von 1,78 mm geschützt. Das Sensormaterial ist dabei speziell für den Einsatz im Radiowellen-Bereich ausgelegt und zeigt keine Interaktion mit dem Feld.

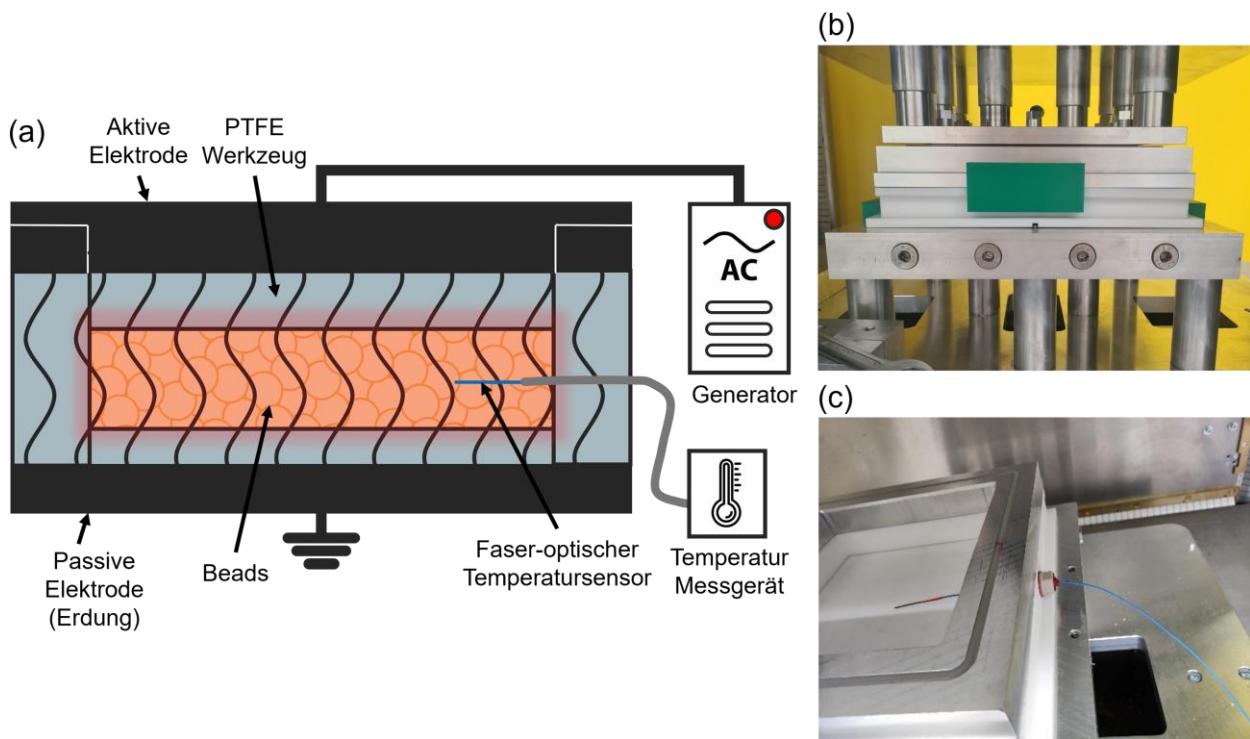


Abbildung 21: Schematische Darstellung des Querschnitts des Aufbaus (a), sowie die dazugehörige reale Abbildung (b) und eine Detailaufnahme des faseroptischen Temperatursensors (c)

4.4. Mechanische Charakterisierung

Die mechanische Charakterisierung der verschweißten Platten erfolgte über einen Zugversuch nach DIN EN ISO 1798 mit der Prüfkörpergeometrie 1A. Die Referenzplatten für die mechanische Simulation wurden dabei mittel Dampfverschweißung nach optimierten Parametern von der Neue Materialien Bayreuth GmbH bei vergleichbaren Dichten zur Verfügung gestellt. Diese wurden mittels Energy Foamer 5.0 der Firma Kurtz GmbH (Kreuzwertheim, Deutschland) hergestellt. Die präzise Probenpräparation erfolgte mittels Wasserstrahlschneideanlage Mach 2 der Firma Shape Technologies Group UK Ltd. (Hinckley, UK). Bei allen Prüfkörpern wurde ein Mindestabstand von 15 mm zum Rand der Platten eingehalten, um Randeffekte zu vermeiden. Nach einer Säuberung wurden alle Prüfkörper für mindestens 24 h bei 23 °C und 50 % relativer Feuchte konditioniert. Nach einer Vorkraft von 5 N wurde die Prüfung mit einer Streckrate von 500 mm/min durchgeführt. Die Aufnahme der Dehnung im mittleren parallelen Bereich des Zugstabs wurde mittels „*digital image correlation*“ (DIC) anhand eines virtuellen Dehmessstreifens mit einer Länge von 30 mm bestimmt. Wie in Abbildung 22 zu sehen ist, können so lokale Deformationsunterschiede und dadurch auch rissauslösende Bereiche analysiert werden.

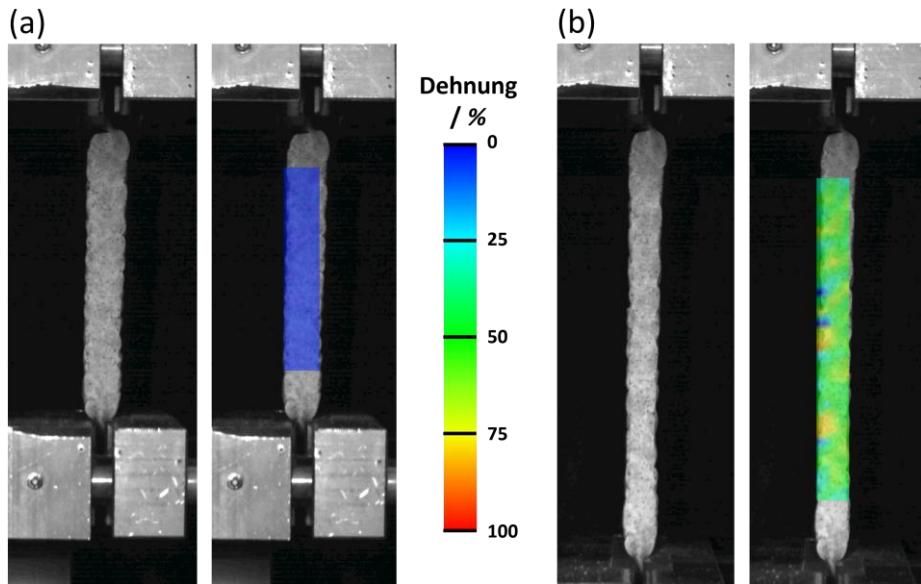


Abbildung 22: Beispielhafte Darstellung der seitlichen Ansicht des Prüfkörpers während der Zugprüfung am Anfang (a) und unter erhöhter Deformation (b) mit und ohne überlagerter farblich kodierter Dehnungsverteilung mittels DIC

Dieser ermöglicht zudem die Bestimmung der Querkontraktionszahl über das Verhältnis der Dehnung in Zugrichtung zu der senkrecht dazu stehenden Deformation. Die Bildrate von 10 Hz ermöglicht eine hohe Auflösung über die gesamte Prüfzeit. Pro Verarbeitungsparameter wurden mindestens fünf gültige Zugversuche durchgeführt, um eine Standardabweichung bestimmen zu können.

4.5. Software zur numerischen Simulation

Die numerische Simulation ist in zwei Bereiche unterteilt, welche beide durch die Software-Lösung COMSOL Multiphysics® Version 6.3 der Firma COMSOL Inc. (Burlington, USA) abgedeckt wurden. Für die primäre elektro-thermische Simulation wurde die komplette Geometrie der Elektroden, des Werkzeuges sowie des Partikelschaum-Bauteils nach realen Abmaßen innerhalb der Software modelliert. Die Grundlage der Simulation stellen die beiden physikalischen Pakete der elektrischen Ströme und des Wärmetransports dar, welche über die Multiphysik der elektromagnetischen Erwärmung verknüpft sind. Hieraus werden neben den Temperaturverläufen auch die Leistungsaufnahme simuliert. Die Wärmeübergänge zwischen den Feststoffen werden hierbei als ideal approximiert. Der mechanischen Simulation geht ebenfalls eine vereinfachte elektro-thermische Simulation voran, welche jedoch nur einen kleineren Bereich um den Prüfkörper simuliert. Die zufällige Tessellation des Partikelschaumbauteils erfolgt mit der Software NEPER des Entwicklers Roman Query auf Grundlage der vorherigen Partikelgrößenverteilung und Sphärität. Die Anfangswerte und Materialmodelle werden der

Software auf Grundlage von Messungen oder sonstiger Literatur übergeben. Der exportierte Spannungsverlauf aus dem RF-Prozess muss zudem als RMS-Wert erst in die Peak-Spannung für die Simulation umgerechnet werden. Die detaillierte Vorgehensweise in dem Aufbau der numerischen Simulation wird in Kapitel 5.3 aufgezeigt.

5. Ergebnisse und Diskussion

Wie im Stand der Technik deutlich zu erkennen ist, stellt das Radiowellen-Verschweißen von Partikelschäumen einen komplexen multiphysikalischen Prozess dar. Um diesen anhand eines beispielhaften Materialsystems ganzheitlich aufzuklären, sind die folgenden Ergebnisse in drei Abschnitte unterteilt. Zunächst werden die Schaumpartikel hinsichtlich prozessrelevanter Eigenschaften analysiert. Die Kennwerte sind essenziell für das Verarbeitungsverhalten mittels der RF-Technologie im zweiten Unterabschnitt. Hierbei liegt der Fokus auf dem Einfluss der Prozessführung auf die resultierenden Bauteileigenschaften. Im abschließenden Kapitel wird ein digitaler Zwilling mittels einer multiphysikalischen Simulation aufgebaut, um lokale Effekte besser zu evaluieren und die Grundlage für den einfachen Übertrag der Erkenntnisse auf neue Materialien sowie komplexeren Bauteilgeometrien zu ermöglichen. Die zuvor bestimmten Eigenschaften stellen dabei den Kern des dafür notwendigen Materialmodells dar. Die Validierung der numerischen Lösung erfolgt über reale Versuche.

5.1. Materialeigenschaften von Grundpolymer und Schaumpartikeln

Die umfassende Materialanalyse stellt die Basis für die Evaluation der Interaktion mit dem RF-Prozess dar. Hierfür wird neben den allgemeinen und strukturellen Eigenschaften auch das temperaturabhängige thermische Verhalten untersucht. Der Fokus liegt dabei auf den dielektrischen Eigenschaften, welche die Grundlage für die Erwärmung des Schaums im elektromagnetischen Feld sind. Dies ermöglicht die Verschweißung der individuellen Partikel zu einem dreidimensionalen Bauteil, was einen komplexen materialwissenschaftlichen Prozess darstellt und mittels einer eigens entwickelten Messmethodik untersucht wird.

5.1.1. Strukturelle Eigenschaften der Schaumpartikel

Die Eigenschaften eines Schaums setzen sich primär aus denen des Grundmaterials und dessen räumlicher Anordnung zusammen. Für den speziellen Fall der Partikelschäume muss zusätzlich noch die Anhaftung untereinander betrachtet werden. Unter Zugbelastung muss die angelegte Spannung durch die Partikelvolumina und über die Grenzfläche hinweg übertragen werden, wodurch es zu einer Limitierung der mechanischen Eigenschaften durch das Versagen an einer der beiden Positionen kommt. Die zelluläre Struktur eines repräsentativen ETPU-Schaumpartikels ist in Abbildung 23 zu sehen.

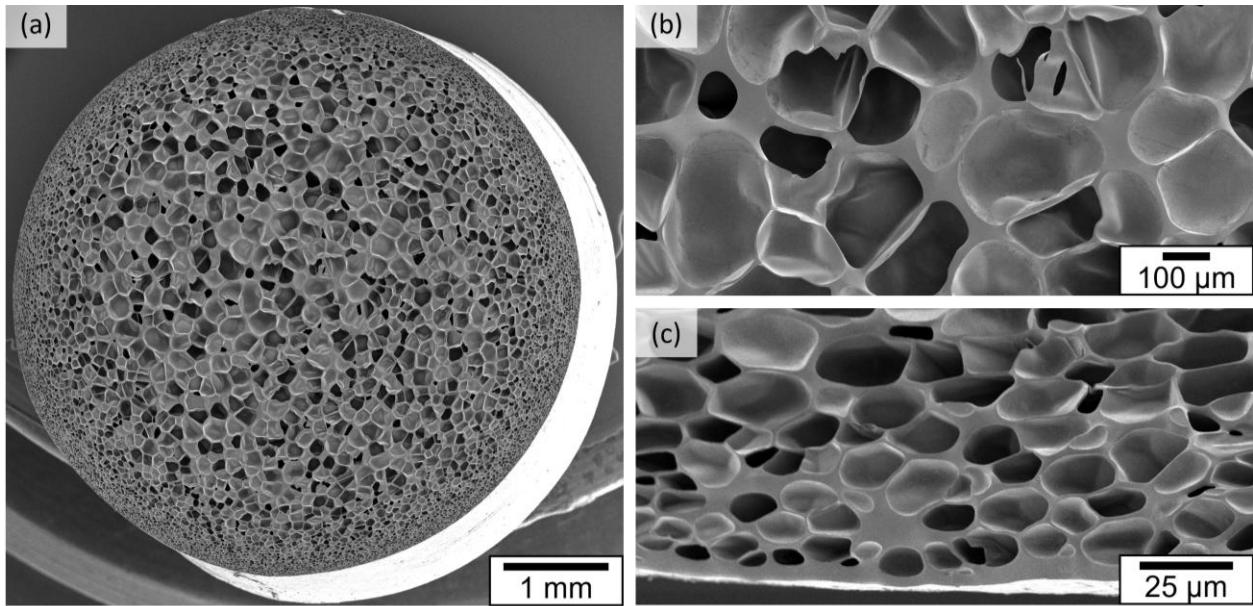


Abbildung 23: REM-Aufnahme des Querschnitts eines Schaumpartikels (a) und Detailaufnahmen des Kerns (b) sowie des Randbereichs (c)

Der Querschnitt des Partikels zeigt dabei eine feine Zellstruktur mit vorrangig geschlossenen Zellwänden. Dies ist gerade bei elastischen Schaumstoffen entscheidend für ein hohes Rückstellvermögen nach der Kompression, wie es z.B. bei Anwendungen in der Sportindustrie notwendig ist. Die Morphologie ist jedoch keineswegs über den Durchmesser homogen, sondern zeigt eine radialsymmetrische Veränderung der Zelldurchmesser auf. Im Kern sind deutlich größere Zellen (ca. 100 bis 300 μm) zu finden, welche zum Randbereich hin graduell kleiner (ca. 3 bis 20 μm) werden. Dieses Verhalten könnte durch eine inhomogene Beladung mit Treibmittel während der Herstellung der Schaumpartikel im Autoklaven oder einem graduellen Abkühlen ausgelöst worden sein. Durch ein unterschiedlich stark ausgeprägtes thermodynamisches Ungleichgewicht während des Druckabfalls kann so die homogene Nukleierungsdichte variieren. Auch thermische Effekte können einen Einfluss darauf haben. Neben der Zellgröße kann dadurch auch die Dichte lokal im Partikel leicht variieren. Die Inhomogenität des Materials kann dessen Eigenschaften zwar minimal verändern, jedoch wird kein messbar signifikanter Einfluss auf den Großteil der Eigenschaften erwartet. Zur vereinfachten Betrachtung wird die Schaumstruktur daher im Folgenden als homogen angesehen. Eine weitere relevante Erkenntnis ist am Rand des Partikels in Abbildung 23 (c) zu sehen. Die Oberfläche der Partikel besteht trotz der inneren Schaumstruktur, aus einer dünnen, ca. 4 μm starken, Schicht an Vollmaterial. Dies ist besonders für die Verschweißung entscheidend, da der Kontakt zwischen den Partikeln zueinander ausschließlich über diese äußere Schicht erfolgt.

Auf der Partikel-Ebene ist zunächst die Dichte von $182 \pm 3 \text{ kg/m}^3$ ein wichtiger Parameter für deren Eigenschaften. Gerade für die dielektrischen Eigenschaften ist der volumetrische Anteil an

Polymer entscheidend. Mit einer Dichte von 1105 kg/m^3 für das ungeschäumte Grundpolymer, bestehen die Partikel somit vor der Verarbeitung aus ca. 16,5 Vol.-% Polymer. Ein weiterer relevanter Parameter ist die Größe der Schaumpartikel und deren Verteilung (Abbildung 24).

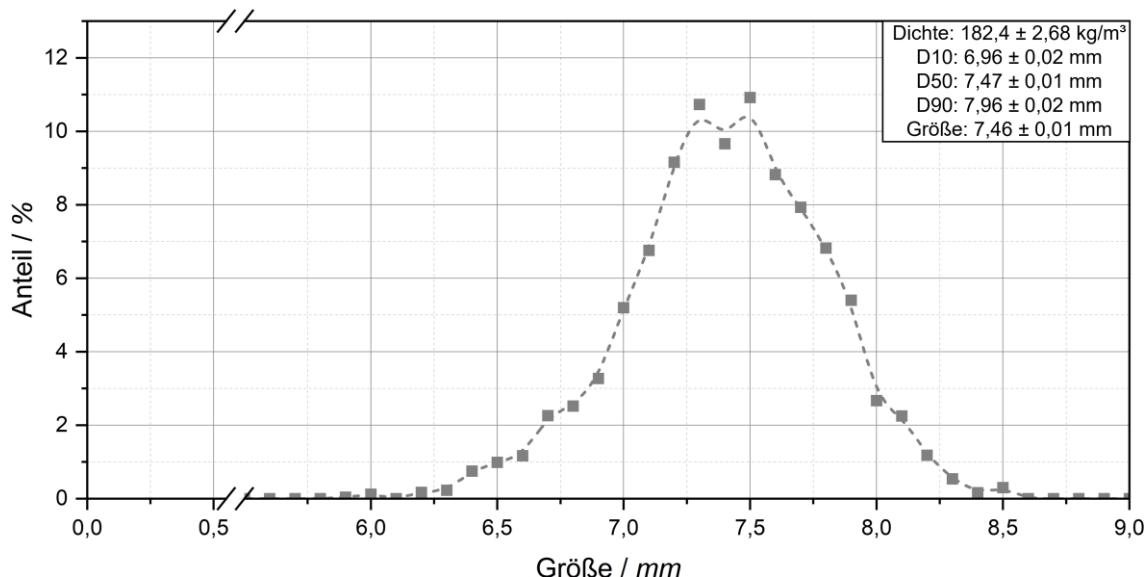


Abbildung 24: Größenverteilung der Partikel nach volumetrischem Anteil inklusive zusätzlicher Messergebnisse aus der Analyse mittels des CAMSIZER ONLINE

Die Größenverteilung ist gleich einer Normalverteilung um eine durchschnittliche Größe von $7,46 \pm 0,01 \text{ mm}$. Die Partikel besitzen somit eine enge Verteilung ohne signifikante Ausreißer, welche berücksichtigt werden müssten. Die leichte Variation könnte durch Unterschiede in der Größe des Ausgangsgranulats oder des Aufschäumverhaltens liegen. Dies ist neben der Befüllung des Werkzeugs besonders für die mechanischen Eigenschaften und deren Simulation im späteren Verlauf relevant.

5.1.2. Analyse der thermischen Eigenschaften

Die thermischen Eigenschaften des Materials sind entscheidend für dessen Verarbeitung. Daher werden im Folgenden neben dem Schmelzverhalten auch die Wärmekapazität sowie die thermische Leitfähigkeit des Schaums analysiert.

5.1.2.1. Schmelzverhalten mittels dynamischer Differenzkalorimetrie

Das Schmelzverhalten eines Polymers wird primär durch dessen molekularen Aufbau sowie der thermischen Historie beeinflusst. ETPU besitzt, wie zuvor bereits aufgezeigt, einen im Vergleich zu anderen Polymeren deutlich komplexeren Aufbau aus Hart- und Weichsegmenten. Erstere

können dabei je nach Abkühlgeschwindigkeit aus der Schmelze kristallisieren und fungieren als physikalische Vernetzungspunkte zwischen den amorphen Segmenten, welche für die weich-elastische Charakteristik zuständig sind. Wie in Abbildung 25 zu erkennen ist, besitzt das Grundpolymer einen breiten Schmelzbereich von ca. 40 bis 175 °C.

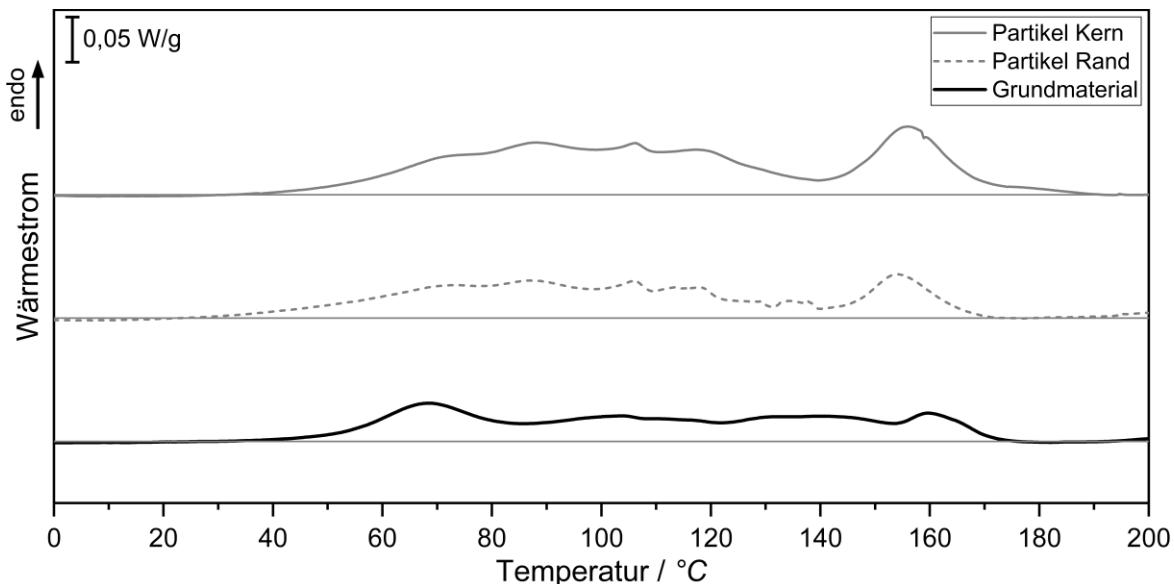


Abbildung 25: Thermisches Verhalten der Schaumpartikel im Kern und am Rand, sowie des Grundmaterials nach dem Aufschmelzen in der ersten Aufheizkurve mittels DSC bei 10 K/min

Dieses für andere Polymere eher untypische Verhalten wird durch die spezielle Struktur ausgelöst. Die Ketten können sich innerhalb der kristallinen Bereiche durch die sterische Hinderung infolge des segmentalen Aufbaus nicht perfekt zueinander anordnen [84,86]. Dadurch werden die Schmelztemperaturen lokal unterschiedlich stark herabgesetzt und es entsteht eine breite Verteilung [77]. Die Probe hierzu wurde durch Heißpressen aus den Schaumpartikeln hergestellt und besitzt somit eine veränderte thermische Historie. Die Analyse der ursprünglichen Partikel hingegen zeigt eine leichte Abweichung auf. Primär ist eine deutlich stärkere Ausprägung des Peaks bei ca. 155 °C zu erkennen. Dies deutet auf eine Perfektionierung eines Teils der kristallinen Bereiche hin während der ersten Phase des Herstellungsprozesses der Schaumpartikel im Autoklaven hin [71,76]. Das Granulat wird hierbei für längere Zeit bei erhöhter Temperatur gehalten, bis das Treibmittel homogen eindiffundiert ist. Anschließend kommt es zu einem beschleunigten Abkühlen der Partikel nach dem Druckabfall in einem Entspannungstank, wodurch die Rekristallisation gewisser Bereiche unterdrückt wird. Dies führt zur Unterdrückung des Schmelzpeaks bei ca. 68 °C im geschäumten Partikel. Das Auftreten dieses Peaks kann auch durch das Aufbrechen der durch eine Temperung bei Raumtemperatur induzierten Nahordnung beschrieben werden [86]. Generell sind keine signifikanten Unterschiede zwischen dem Kern und dem oberflächennahen Bereich des Schaumpartikels zu erkennen. Eine gesonderte Analyse der

dünnen äußeren Schicht aus Vollmaterial, welche für die Verschweißung zuständig ist, konnte aufgrund der Probenpräparation nicht durchgeführt werden. Die im Material so gespeicherte Information über dessen thermische Historie wird im Folgenden auch als hilfreiches Analysetool genutzt, um die maximal erreichten Temperaturen während der Verarbeitung zu bestimmen.

5.1.2.2. Wärmekapazität des Polymers

Die Erwärmung eines Werkstoffes hängt neben der eingebrachten Energie direkt linear von dessen Wärmekapazität ab. Diese Eigenschaft eines Polymers wird durch die Beweglichkeit der Ketten bestimmt und nimmt meist mit steigender Temperatur zu. Diese Tendenz ist auch für das untersuchte Material in Abbildung 26 zu erkennen.

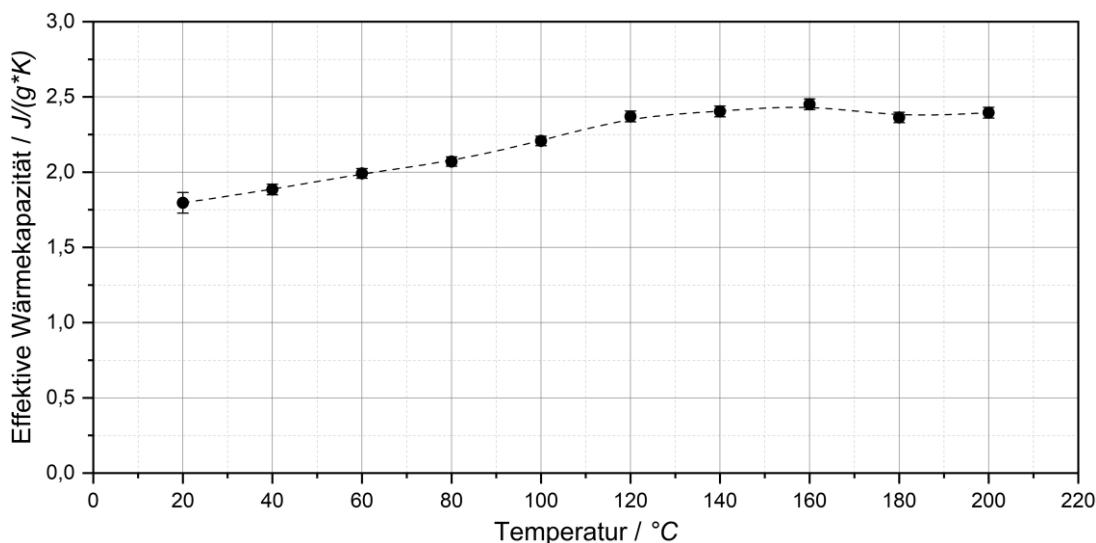


Abbildung 26: Verlauf der Wärmekapazität des Grundmaterials über die Temperatur

Die Wärmekapazität steigt dabei von 1,80 J/(g*K) bei 20 °C auf 2,40 J/(g*K) bei 200 °C an. Bei der hier gemessenen Größe handelt es sich jedoch nicht um die reine Wärmekapazität des Polymers, da über einen großen Bereich zusätzliche Energie zum Aufschmelzen der kristallinen Domänen benötigt wird. Somit handelt es sich in diesem Fall um die effektive Wärmekapazität inklusive der Schmelzenthalpie, welche die insgesamt zum Erwärmen des Materials notwendige Energie darstellt. Gerade für die spätere simulative Abbildung ist dies der relevante Wert, um ein möglichst realitätsnahe Materialmodell zu generieren.

5.1.2.3. Wärmeleitfähigkeit der Schaumproben in Abhängigkeit der Dichte

Während des RF-Prozesses kommt es zudem zu einer Umverteilung der entstandenen Wärmen innerhalb des Volumens. Ausschlaggebend hierfür ist die thermische Leitfähigkeit der zellulären

Struktur. Wie bereits in Kapitel 4.2.2 beschrieben, wurde hierfür zunächst die thermische Leitfähigkeit des Schaums bei einer gemessenen Dichte von 238 kg/m^3 als Referenz bestimmt (Abbildung 27).

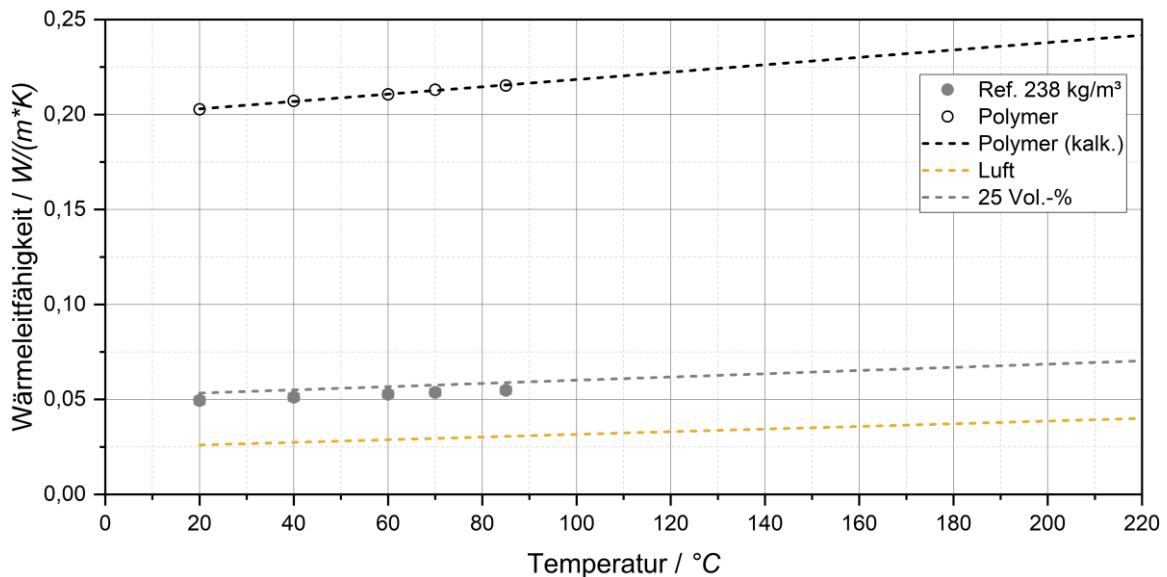


Abbildung 27: Wärmeleitfähigkeit über die Temperatur der gemessenen Referenz bei $237,6 \text{ kg/m}^3$, von Luft nach [189] und dem reinen Polymer inklusive den daraus kalkulierten und linear extrapolierten Werten eines Schaums mit 25 vol.-%

Die Werte zeigen hierbei einen typischen linearen Anstieg über die Temperatur auf [193]. Da die Dichte der Prüfkörper nach dem Entformen aus dem Werkzeug immer leicht variiert, muss für die Betrachtung des Schaums im Werkzeug unter konstanter Dichte ein variables Modell aufgestellt werden. Hierfür wird zunächst nach Gleichung (4.1) über die bekannte Leitfähigkeit von Luft auf den Wert des reinen Polymers zurück gerechnet. Die Wärmeleitfähigkeit skaliert linear mit der Temperatur (R^2 von 0,9966) und kann damit über eine einfache Formel approximiert werden. Mit diesen Werten kann anschließend über die bekannte Gleichung die thermische Leitfähigkeit der Schaumkörper bei allen gewünschten Dichten (z.B. bei 25 Vol.-%) kalkuliert werden. Dieses Vorgehen erlaubt einen einfachen Übertrag der Erkenntnisse auf andere Dichten und stellt einen essentiellen Datensatz für das Materialmodell der numerischen Simulation dar.

5.1.3. Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften

Die dielektrischen Eigenschaften des Materials sind entscheidend für die Erwärmung im elektromagnetischen Feld sowie für die Interaktion mit der Umgebung. Neben der Temperatur- und Frequenzabhängigkeit der komplexen Permittivität des Grundpolymers, liegt ein besonderer Fokus auf dem Übertrag auf die Schaumebene als Zwei-Phasen-System mit eingeschlossener Luft. Zur einfacheren Modellierung werden die Ergebnisse anschließend mit neuen und bekannten

Mischungsregeln zur Vorhersage der Eigenschaften bei verschiedenen volumetrischen Anteilen verglichen und deren Genauigkeit evaluiert.

5.1.3.1. Komplexe Permittivität des Grundpolymers

Die komplexe Permittivität von Polymeren basiert auf deren molekularer Struktur und der Interaktion zwischen den einzelnen Kettensegmenten. Der Realteil der komplexen Permittivität des kompakten TPU-Materials zeigt dabei zunächst bei 20 °C einen leicht abfallenden Trend über den gemessenen Frequenzbereich von 1 bis 50 MHz auf (Abbildung 28 (a)).

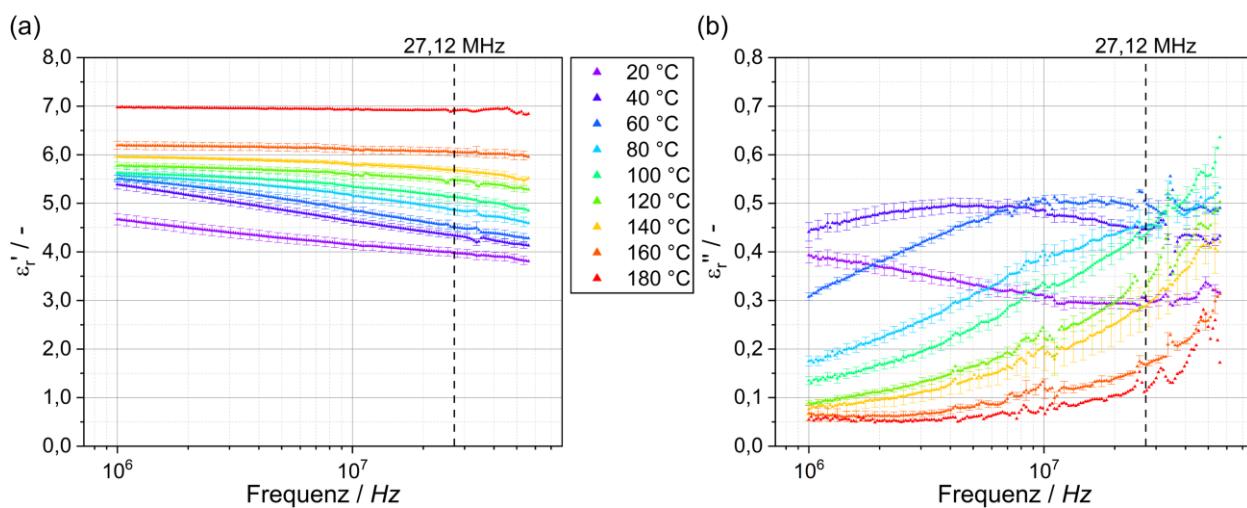


Abbildung 28: Real- ϵ'_r (a) und Imaginärteil ϵ''_r (b) der komplexen Permittivität über die Frequenz bei unterschiedlichen Temperaturen von 20 bis 180 °C in 20 K Schritten

Der sinkende Realteil deutet hierbei auf einen Relaxationsprozess hin, welcher in diesem Frequenzbereich die spezifische Relaxationszeit besitzt. Die Beweglichkeit der Dipole ist dabei nicht hoch genug für eine vollständige Orientierung innerhalb des durch die Frequenz des oszillierenden Feldes vorgegebenen Zeitraums. Dadurch kommt es zu dem Wegfall der Orientierung der beteiligten Dipole und dadurch ausgelöst zu einem Abfall des Realteils um die dielektrische Stärke des spezifischen Relaxationsphänomens. Dies spiegelt sich zudem in einem Peak des Imaginärteils wider, bei dem bei 20 °C jedoch nur die rechte Hälfte sichtbar ist. Die beiden Teile der komplexen Permittivität stehen über die Kramers-Kronig-Relation in Verbindung zueinander [90]. Diese beschreibt den Peak des Imaginärteils bei der Frequenz mit dem größten Abfall des Realteils. Die Fläche unterhalb des Peaks des Imaginärteils steht zudem in direkter Korrelation zur dielektrischen Stärke des Relaxationsphänomens. Der erhöhte Verlust in diesem Bereich kann auf interne Reibungen auf molekularer Ebene zurückgeführt werden. An der Relaxationsfrequenz führt die maximale Phasenverschiebung zwischen elektrischem Feld und Polarisation zu einer energetisch ineffizienten Umorientierung der Dipole, die sich in einem

dielektrischen Verlust manifestiert. Oberhalb des Frequenzbereichs ist eine vollständige Orientierung der Dipole mit dem Wechselfeld nicht mehr möglich. Wird die Messtemperatur angehoben, so erhöht sich die kinetische Energie der Molekülstruktur, wodurch die Mobilität der Kettensegmente des Polymers in den amorphen Bereichen ansteigt. Die kristallinen Domänen bleiben dabei unberührt, da die geordnete Struktur mit stärkeren Wechselwirkungen die Beweglichkeit signifikant limitiert. Der Peak des Imaginärteils sowie der stufenweise Abfall des Realteils schieben sich dadurch mit der steigenden Relaxationsfrequenz nach oben. Der Realteil wird somit bei konstanter Frequenz erhöht und das Plateau unterhalb der Relaxationsfrequenz schiebt sich von der linken Seite in den Messbereich. Bis zu 160 °C kommt es somit zu einem graduellen Übergang.

Der durchgehende leichte Anstieg und signifikante Sprung des Realteils bei 180 °C kann dem Aufschmelzen der kristallinen Bereiche zugeordnet werden, was ab ca. 40 °C zu beobachten ist. Diese geordneten Bereiche schränken die Beweglichkeit der Kettensegmente stark ein und können somit bei der Auflösung dieser Domänen zum Messsignal beitragen. Die segmentale Struktur des TPU spielt hierbei eine spezielle Rolle, da die kristallinen Bereiche einen abweichenden molekularen Aufbau mit eigenen Relaxationsphänomenen und -frequenzen besitzen. Durch das Aufschmelzen der Kristallite können neue Signale in Real- und Imaginärteil entstehen, welche sich mit den ursprünglichen Messwerten des amorphen Weichsegments überlagern können. Gerade bei höheren Temperaturen wäre eine Spektroskopie mit breiterem Messbereich interessant, um eine bessere Aussage über die Verschiebung und Neubildung der Phänomene geben zu können. Die Kurve bei 180 °C muss jedoch hier eher als Richtwert angesehen werden, da durch das Aufschmelzen die strukturelle Integrität verloren geht und eine konstante Dicke der Prüfkörper nicht sichergestellt werden kann. Die Messung kann dadurch bei erhöhten Temperaturen beeinflusst werden. Im Imaginärteil ist durch die zuvor genannte Korrelation eine ähnliche Tendenz zu erkennen. Der Peak schiebt sich hierbei bereits bei Temperaturen ab 80 °C aus dem Messbereich in Richtung höheren Frequenzen. Der sichtbare Verlauf deutet jedoch auf einen erhöhten Peak hin, was mit einer steigenden dielektrischen Stärke des Realteils in Einklang steht. Im Allgemeinen zeigt die dielektrische Analyse des Grundmaterials ein bekanntes Verhalten über Temperatur und Frequenz auf, welches durch ein komplexes Zusammenspiel aus molekularen und strukturellen Prozessen geprägt wird.

Die Superposition der beiden Einflussfaktoren erlaubt zudem eine Auftragung der komplexen Permittivität über die Temperatur bei definierten Messfrequenzen. In Abbildung 29 ist der Real- und Imaginärteil daher bei 1, 10 und 27,12 MHz abgebildet.

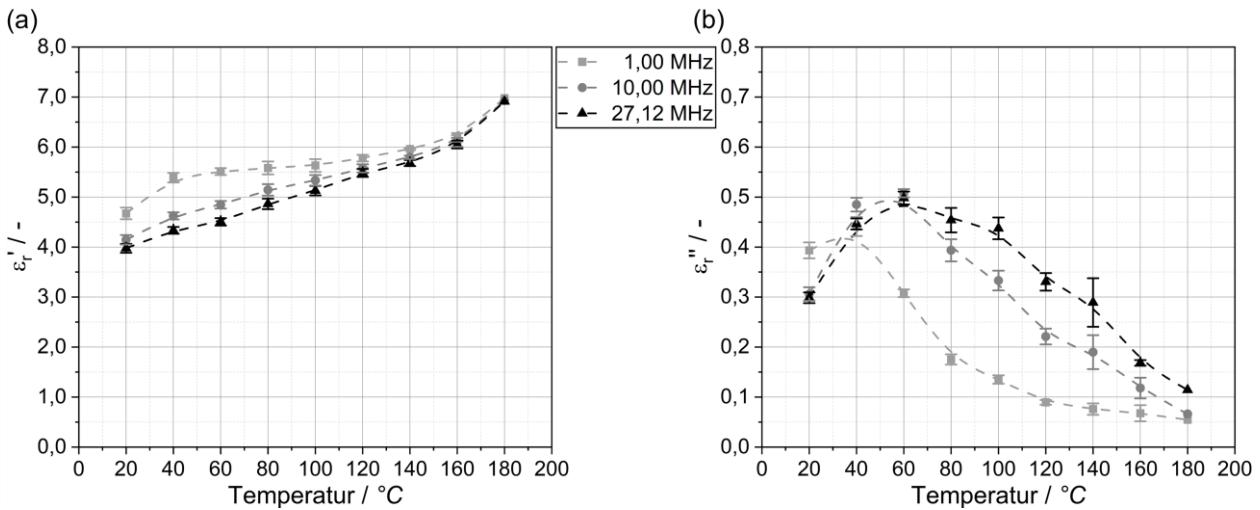


Abbildung 29: Real- ϵ_r' (a) und Imaginärteil ϵ_r'' (b) der komplexen Permittivität über die Temperatur bei den Frequenzen 1, 10 und 27,12 MHz

Im Gegensatz zu dem stufenweisen Abfall über die Frequenz zuvor, kommt es durch die Auftragung über die Temperatur zu einem umgekehrten Phänomen. Der Realteil der komplexen Permittivität steigt bei einer Messfrequenz von 1 MHz im Bereich niedriger Temperaturen zunächst stark an. Dies wird ebenfalls durch die Verschiebung der Relaxationsfrequenz ausgelöst. Der stufenweise Anstieg über die Temperatur ist jedoch bei den höheren Messfrequenzen deutlich weniger ausgeprägt und es entsteht eher eine konstante lineare Zunahme des Realteils. Wie zuvor in Kapitel 2.4.2 aufgezeigt wurde, widerspricht dies dem Verhalten anderer Polymere, welche einen Abfall des Realteils durch die Abnahme der dielektrischen Stärke bei höheren Temperaturen erfahren. Dieses Phänomen kann wieder durch den breiten Temperaturbereich, in dem es zum Auflösen kristalliner Bereiche kommt, erklärt werden, welche dann zur dielektrischen Stärke beitragen. Dies sorgt für einen konstanten Anstieg des Realteils bis hin zu einem größeren Sprung bei 180 °C durch den kompletten Übergang in die Schmelze. Die Veränderung der Relaxationszeit kann deutlich in Abbildung 29 im Verlauf des Imaginärteils beobachtet werden. Bei Erhöhung der Messfrequenz kommt es zunächst zu einer Verschiebung des Peaks hin zu höheren Temperaturen. Die unzureichende Orientierung der Dipole mit dem Wechselfeld erfolgt bei der höheren Messfrequenz somit, basierend auf der besseren Beweglichkeit, erst bei einer erhöhten Temperatur. Ein weiterer sichtbarer Effekt ist die leichte Erhöhung des Peaks sowie eine einseitige Verbreiterung des Peaks in Richtung erhöhter Temperaturen. Beide Verhalten können auf den Anstieg des Anteils an beweglichen Bereichen durch das Aufschmelzen von kristallinen Domänen zurückgeführt werden. Hierbei ist wiederum der direkte Zusammenhang zwischen der dielektrischen Stärke eines Relaxationsphänomens und der Fläche unterhalb der Kurve des Imaginärteils sichtbar. Durch den komplexen molekularen Aufbau des Polymers kann das Verhalten keinem eindeutigen Relaxationsphänomen zugeordnet werden. Im Vergleich zum

kalorimetrischen Glasübergangsbereich bei deutlich unter 0 °C, liegt das betrachtete Relaxationsphänomen signifikant darüber. Dies deutet entweder auf eine durch die hohe Messfrequenz verschobene α - oder eine β -Relaxation, ausgelöst durch die Elektronegativitätsunterschiede innerhalb der Kohlenstoff-Stickstoff-Bindung der Urethangruppe, hin [194]. Die Ergebnisse zeigen deutlich die Superposition zwischen der Temperatur und der Frequenz bei der Betrachtung der dielektrischen Eigenschaften von Polymeren auf. Die spezielle Struktur von TPU mit einem breiten Schmelzebereich liefert eine weitere Einflussebene, welche eine detaillierte Auflösung der betrachteten Relaxationsphänomene ausschließt. Im Hinblick auf die RF-Verarbeitung der Schaumpartikel liefern diese Erkenntnisse entscheidende Hinweise auf die Interaktion mit dem Prozess und den sich stark verändernden Eigenschaften über die Temperatur. Für eine nähere quantitative Betrachtung der Veränderung des Relaxationsphänomens über die Temperatur können die Messkurven des Real- und Imaginärteils der komplexen Permittivität mit bekannten Modellen gefittet werden. Da die Interaktion der Kettensegmente untereinander einen entscheidenden Parameter darstellt, wurde das Modell nach *Cole und Cole* verwendet, welches das Modell nach *Debye* um den Parameter α erweitert [103,108]. Dieser Faktor gibt die Breite der Relaxationszeitverteilung an, welche mit steigender molekularer Interaktion größer wird. Das Modell geht zudem von einer symmetrischen Verteilung über die Frequenz mit nur einer einzelnen Relaxationszeit aus. Trotz der möglichen leichten Abweichungen zum realen System wurde das Modell aufgrund der hohen Übereinstimmung und praktikablen Implementierung mit den vorhandenen Daten ausgewählt. Die so iterativ gefitteten Kurven zeigen ein Bestimmtheitsmaß (R^2) von über 0,99 für den Großteil der Temperaturen auf. Einer der wichtigsten Parameter in der Analyse eines Relaxationsphänomens ist dessen spezifische Relaxationszeit oder -frequenz. Letztere wird dabei direkt aus der Relaxationszeit berechnet und kann aus beiden Teilen der komplexen Permittivität durch den Fit generiert werden. Die Darstellung in Abbildung 30 über die Temperatur zeigt eine deutliche Abweichung zwischen dem Fit über den Real- und Imaginärteil auf.

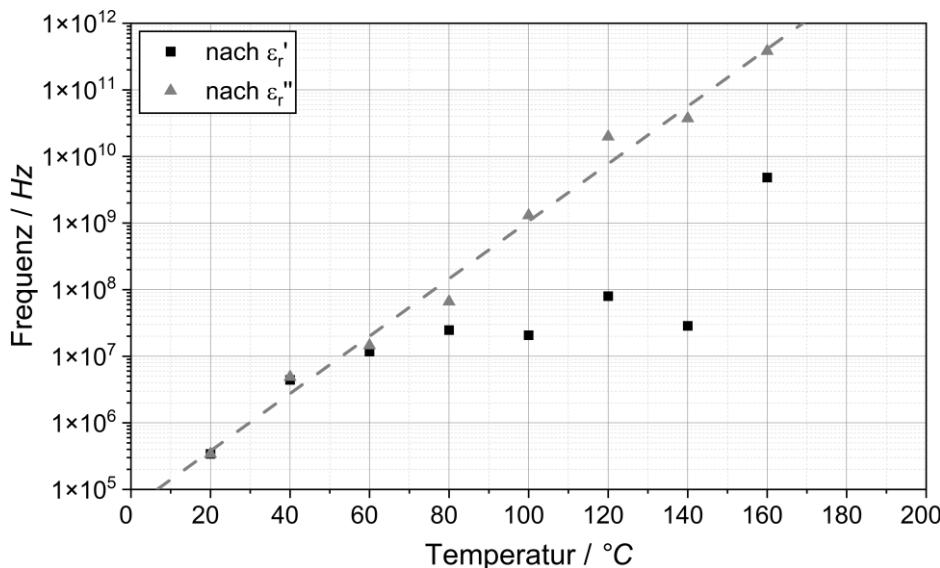


Abbildung 30: Relaxationsfrequenz über die Temperatur ermittelt jeweils aus dem Real- ϵ_r' und ϵ_r'' Imaginärteil

Die durch den Imaginärteil ermittelte Relaxationsfrequenz steigt über die logarithmische Auftragung nahezu linear (R^2 bei 0,987) über die Temperatur an. Diese Abhängigkeit der Relaxationsfrequenz von der Temperatur ist dabei konsistent mit der Literatur und wurde durch Jonscher et al. [128] bereits für PET aufgezeigt. Wie bereits zuvor beschrieben, wird dies hauptsächlich durch die erhöhte Beweglichkeit der Kettensegmente ausgelöst, welche dadurch bis hin zu höheren Frequenzen mit dem oszillierenden Feld schwingen können. Die Ergebnisse des Imaginärteils bieten hierbei eine gute Basis für die Analyse dieses Parameters. Über den Realteil ermittelt, zeigen die Ergebnisse zunächst bis 60 °C eine hohe Übereinstimmung und divergieren dann hin zu höheren Temperaturen. Bei diesen höheren Temperaturen hat sich die Stufe des Realteils nahezu komplett aus dem Messbereich herausgeschoben, wodurch die Informationsqualität zur Bildung der gefitteten Kurve nicht mehr ausreicht. Dies stellt somit eine Limitierung durch das genutzte Messsystem dar.

Neben der Relaxationsfrequenz kann so auch die dielektrische Stärke $\Delta\epsilon_x$ aus beiden Anteilen ermittelt werden. Über den Realteil erfolgt die Berechnung aus der Differenz der Permittivität unterhalb hin zu niedrigen Frequenzen ϵ_s und der oberhalb in Richtung einer unendlichen Frequenz ϵ_∞ . Erstere bleibt dabei über die Spanne von 20 bis 160 °C nahezu gleich um die 6,0, wie in Abbildung 31 (a) zu sehen.

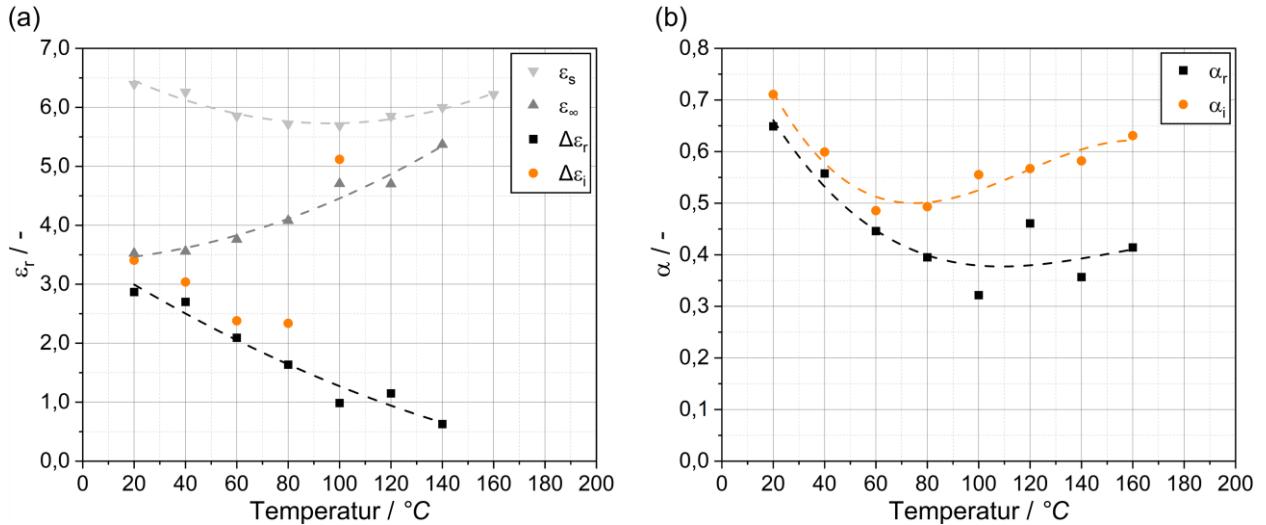


Abbildung 31: Permittivität unterhalb und oberhalb des Relaxationsmechanismus sowie dessen dielektrische Stärke (a) und Parameter α (b) ermittelt aus dem Real- ϵ'_r und Imaginärteil ϵ''_r über die Temperatur

Das Verhalten kann durch die Überlagerung zweier Effekte erklärt werden. Zum einen führt eine Erhöhung der Temperatur zu stärkeren thermischen Fluktuationen, welche die Perfektion der Orientierung der Dipole beeinträchtigen und so die Permittivität abschwächen [87,125]. Zum anderen kommt der Einfluss der aufgeschmolzenen Bereiche dazu, welche somit anteilig zur Polarisation stärker beitragen können. Zunächst kommt es durch die thermischen Fluktuationen zu einem Abfall der Permittivität ϵ_s bis zu einem Umkehrpunkt bei ca. 100 °C. Ab dieser Temperatur überwiegt der Effekt des Aufschmelzens der kristallinen Bereiche. Die Permittivität oberhalb der Polarisationsfrequenz ϵ_∞ zeigt einen durchgehenden Anstieg hin zu höheren Temperaturen, was auf weitere Relaxationsphänomene bei höheren Relaxationsfrequenzen hindeutet. Die Ursache hierfür kann die Polarisation des aufgeschmolzenen Hartsegments sein, welches im weniger geordneten Zustand eine deutlich gestiegene Beweglichkeit besitzt und dadurch eine möglicherweise hohe Relaxationsfrequenz aufweist. Eine finale Aussage hierüber kann jedoch aufgrund der eingeschränkten Messfrequenz nicht getroffen werden. Die aus deren Differenz berechnete dielektrische Stärke $\Delta\epsilon_r$ besitzt dadurch einen abfallenden Trend, welcher jedoch primär durch die steigende Permittivität hin zu höheren Frequenzen verursacht wird. Diese Reduktion ist dabei bekannt für viele Polymere und wird durch die thermischen Fluktuationen der Dipol-Orientierung ausgelöst [87]. Es scheint als kommt es bei einer zusätzlichen Erhöhung der Temperatur zu einer weiteren Reduktion und Annäherung an die x-Achse. Auch über den Imaginärteil kann die dielektrische Stärke $\Delta\epsilon_i$ ermittelt werden. Diese Herangehensweise zeigt bis zu 60 °C leicht höhere Werten bevor der Fit über 80 °C keine aussagekräftigen Werte über diesen Parameter liefern kann. Der Realteil ist somit der bevorzugte Bezugspunkt zur Bestimmung der dielektrischen Stärke für die vorhandenen Datensätze.

Als letzte Einflussgröße des Fits nach *Cole und Cole* wird der Parameter α betrachtet. Dieser gibt die Breite der Relaxationsverteilung, zwischen 0 und 1, an und kann wiederum über beide Anteile der komplexen Permittivität bestimmt werden. Ein Faktor von 0 steht dabei für ein ideales Verhalten nach *Debye* mit nur einer einzigen Relaxationszeit [90]. In beiden Fällen kann zunächst bei niedrigen Temperaturen ein Abfall beobachtet werden. Dies deutet auf eine eher untypische Zunahme der Homogenität des Relaxationsmechanismus mit einer kooperativen Dynamik durch eine möglicherweise thermische Aktivierung der Weichsegmente hin. Darüber hinaus kommt es zu einem erneuten Anstieg, was auf eine Verbreiterung des Relaxationsspektrums hinweist. Ein Grund dafür kann in der Aktivierung der Hartsegmente durch deren Aufschmelzen liegen, wodurch ein weiterer überlagerter Relaxationsmechanismus mit einer abweichenden Zeitkonstante dazu kommt. In Richtung höherer Temperaturen divergieren die Ergebnisse über die beiden Ansätze leicht. Der Trend bleibt jedoch ähnlich. Der Imaginärteil scheint dadurch den konsistenteren Verlauf der Werte zu liefern.

Wie in Kapitel 2.4.2 detaillierter beschrieben, beruht die Permittivität eines Polymers auf dem Dipolmoment der jeweiligen Molekülstruktur der Kette. Das Dipolmoment kann dabei durch den Abstand und der Stärke der Schwerpunkte der Partialladungen berechnet werden. Der Übertrag der makroskopischen messbaren Eigenschaften auf die molekulare Struktur erfolgt durch die Korrelation nach Kirkwood und Fröhlich durch die Gleichung (2.19) und die zuvor bestimmten Parameter [129]. Die Gleichung erlaubt die Berechnung des Dipolmoments der Wiederholungseinheit eines Polymers und ist für das untersuchte Material über die Temperatur in Abbildung 32 aufgetragen.

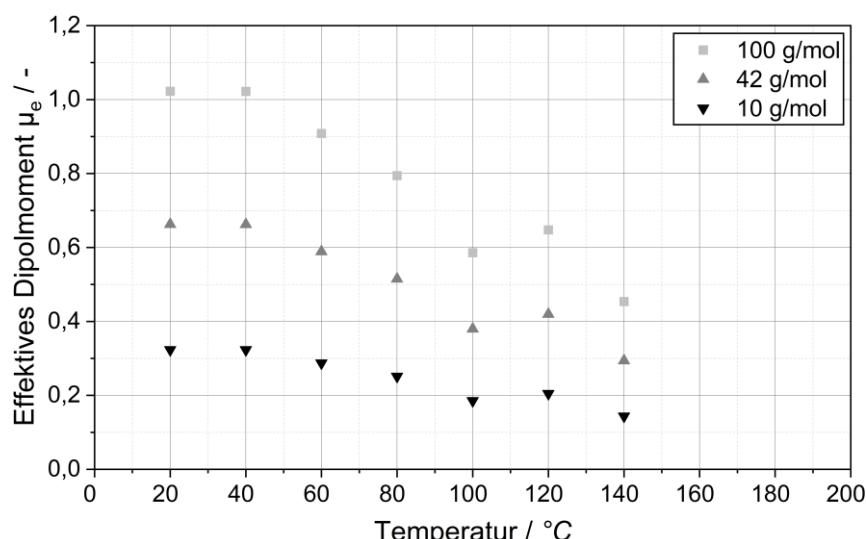


Abbildung 32: Effektives Dipolmoment μ_e über die Temperatur kalkuliert für eine Wiederholungseinheit mit 10, 42 und 100 g/mol

Das Dipolmoment ist dabei direkt abhängig von dem Molekulargewicht der Wiederholungseinheit, welches durch den komplexen Aufbau des TPU-Materials nicht genau bestimmt werden kann. Um dennoch den allgemeinen Trend sowie die Abhängigkeiten darstellen zu können, wurde das effektive Dipolmoment für ein Molekulargewicht von 10 und 100 g/mol berechnet. Als Vergleich zu einem bekannten Polymer wurde zudem eine Kalkulation bei 42 g/mol durchgeführt, was der Wiederholungseinheit von Polypropylen entspricht. In Anlehnung an die strukturverwandten Monomere Propan und Isobutan, wurde so ein Dipolmoment zwischen 0,081 und 0,132 D bestimmt. Vergleichend dazu liefert TPU signifikant höhere Werte durch die deutliche Polarität in dessen molekularer Struktur. Zusätzlich spielen Interaktionen zwischen den Ketten und den darin enthaltenen Dipolen einen entscheidenden Einfluss auf deren messbare Permittivität. Diese Wechselwirkungen, insbesondere Van-der-Waals-Kräfte sowie Wasserstoffbrückenbindungen, schränken die Beweglichkeit der Dipole ein und reduzieren deren Polarisierbarkeit deutlich, wodurch nur ein effektives Dipolmoment berechnet werden kann. Die dielektrische Stärke durch das Dipolmoment fällt hin zu höheren Temperaturen dadurch deutlich ab. Dieser Effekt wird wiederum durch die reduzierte Orientierung durch thermische Fluktuationen ausgelöst. Eine quantitative Bestimmung des Dipolmoments der Wiederholungseinheit des TPU ist durch die unbekannte Struktur jedoch nicht möglich.

5.1.3.2. Übertrag auf die Eigenschaften der Schaumpartikel

Die Analyse der dielektrischen Eigenschaften des Grundmaterials liefert wichtige Erkenntnisse für das Verhalten des Materials innerhalb des elektromagnetischen Feldes. Dadurch können Aufschlüsse über dessen molekulare Struktur und Interaktionen zwischen den Kettensegmenten gewonnen werden. Die Verarbeitung zu funktionalen Bauteilen erfolgt jedoch an den Schaumpartikeln, welche durch deren zelluläre Struktur ein Zweiphasensystem aus Polymer und Luft darstellen. Die Charakterisierung der Schaumpartikel erfolgt ebenfalls durch Impedanzspektroskopie. Die Analyse der komplexen Permittivität bei unterschiedlichen Dichten ist durch eine spezielle Messzelle möglich. Analog zum realen Prozess kann so die Dichte über die Kompression der Partikel in einer Form eingestellt werden. Der Real- und Imaginärteil der komplexen Permittivität der komprimierten Schüttung bei einer Messtemperatur von 20 °C ist in Abbildung 33 dargestellt.

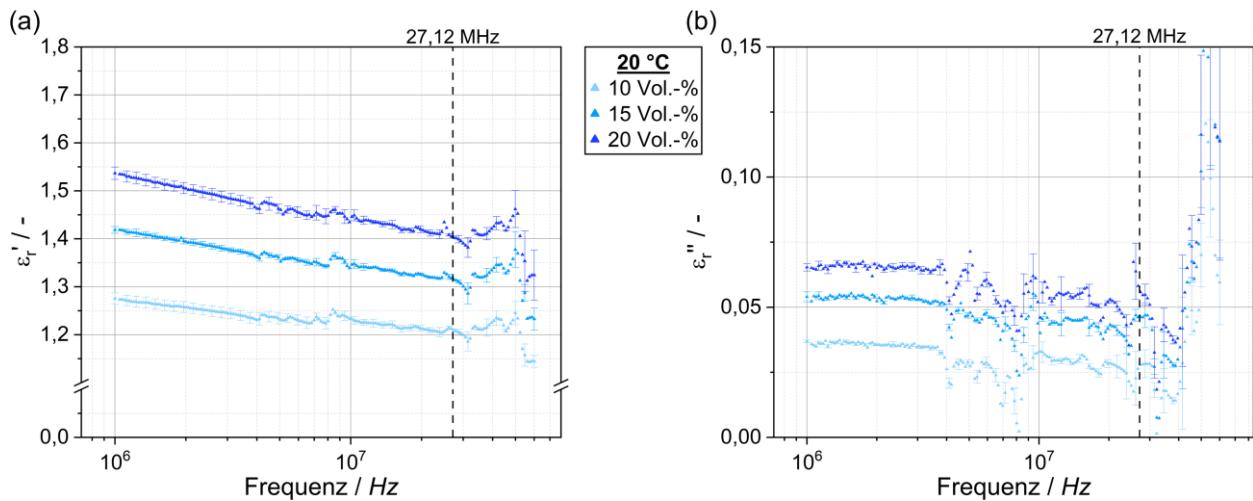


Abbildung 33: Real- ϵ'_r (a) und Imaginärteil ϵ''_r (b) der komplexen Permittivität über die Frequenz bei einer Temperatur 20°C für Polymeranteile von 10, 15 und 20 Vol.-%

Da es sich bei den dielektrischen Eigenschaften von Mehrphasenmodellen um eine volumetrische Abhängigkeit handelt, wurden die Dichten explizit gewählt, um volumetrische Anteile an Polymer von 10, 15 und 20 Vol.-% zu erreichen. Eine weitere Erhöhung war aus Gründen der strukturellen Integrität der Messzelle nicht möglich. Der Abfall des Realteils über die Frequenz folgt dabei dem gleichen Trend wie bei dem Grundpolymer bei 20°C (Abbildung 28) für alle Messungen. Mit steigendem volumetrischen Anteil erhöht sich das Messsignal, wodurch sich Werte zwischen denen des Grundpolymers und der Permittivität von Luft ($\epsilon_r^* = 1 - i0$) einstellen. Auch für den Realteil ergibt sich ein ähnlicher Trend im Vergleich zum Grundpolymer. Bei näherer Betrachtung ist eine leichte Verschiebung der Kurve zu höheren Frequenzen zu erkennen. Dieses Verhalten kann durch eine geringe Variation in der Temperatur ausgelöst werden, da das System zur Temperierung der Messzelle nur Heizen kann und somit bei Temperaturen nahe der Raumtemperatur geringe Abweichungen entstehen können. Auch hier steigen, wie zu erwarten, die gemessenen Werte mit erhöhtem volumetrischen Anteil an Polymer an. Wie in den Verläufen der Kurven zu sehen ist, kommt es jedoch im Vergleich zu den Messungen des Grundpolymers durch den Aufbau mit der größeren Zelle zu einer verstärkten Ungenauigkeit. Gerade in Richtung der höheren Frequenzen kommt es zu starken Ausschlägen. Diese können durch Interferenzen im Messaufbau durch Eigenschwingungen auftreten, welche durch die Kombination von Kapazitäten und Induktivitäten in Messzelle, Kabeln und Verbindungelementen verursacht werden. Die geänderte Kapazität der kleineren auf die größere Messzelle durch geometrische Faktoren führt zu einer Reduktion der Eigenschwingungsfrequenz, was gerade die Analyse des Imaginärteils im Bereich der RF-Frequenz von 27,12 MHz signifikant beeinflusst.

Neben dem Einfluss des volumetrischen Anteils wurden die Schaumpartikel bei unterschiedlichen Temperaturen von 20, 60 und 100 °C untersucht. Die Ergebnisse für den mittleren volumetrischen Anteil von 15 Vol.-% sind in Abbildung 34 dargestellt.

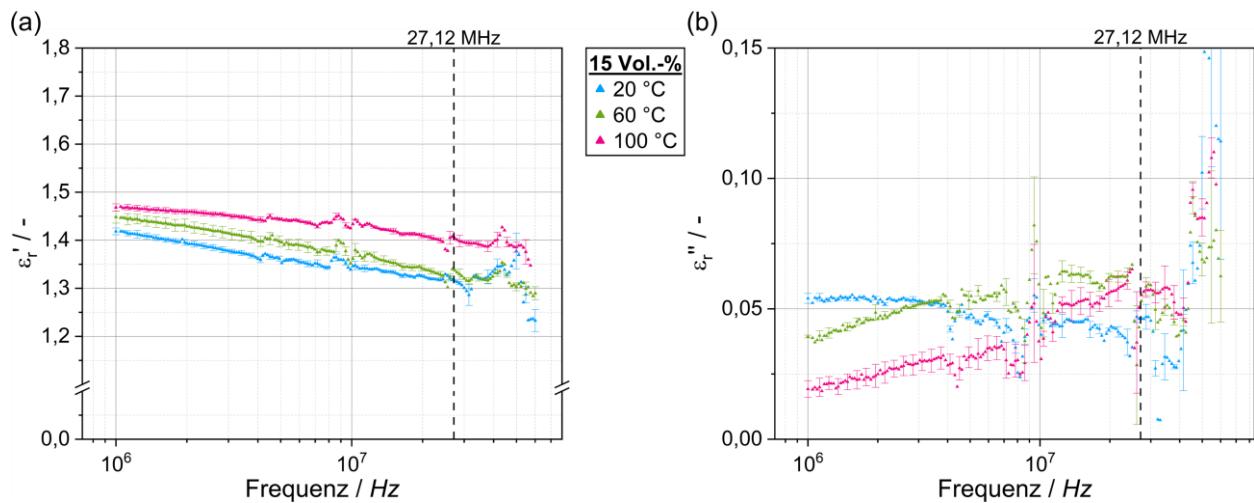


Abbildung 34: Real- ϵ_r' (a) und Imaginärteil ϵ_r'' (b) der komplexen Permittivität über die Frequenz bei einem Polymeranteil von 15 Vol.-% für Temperaturen von 20, 60 und 100 °C

Analog zu der vorherigen Messung sind die allgemeinen Werte im Vergleich zu dem Grundmaterial zwar niedriger, die allgemeinen Trends der Kurvenverläufe sind jedoch deutlich sichtbar. Im Realteil kommt es zu einem Anstieg der gemessenen Werte durch die Temperaturerhöhung und die Kurve flacht gerade bei niedrigen Frequenzen leicht ab. Der Einfluss auf den Imaginärteil ist dabei noch deutlicher. Wie zuvor beschrieben, kommt es durch die erhöhte Beweglichkeit der Dipole zu einer Verschiebung des Peaks in Richtung der höheren Frequenzen. Auch hier ist das Maximum der Kurve bei 100 °C nicht mehr im messbaren Frequenzbereich sichtbar. Diese Trends sind dabei bei allen volumetrischen Anteilen erkennbar.

Abschließend können zwei wichtige Erkenntnisse aus den Messungen der Schaumpartikel gezogen werden, welche essentiell für die weiteren Betrachtungen sind. Zunächst haben die Verhalten der Grundmaterialien über Temperatur und Frequenz einen direkten Einfluss auf die Schaumpartikel, deren Eigenschaften jedoch als Zweiphasensystem mit der eingeschlossenen Luft signifikant abweichen. Zudem zeigen sich deutlich erhöhte Messungenauigkeiten für die Schaumpartikel im Vergleich zum Grundmaterial, was eine genaue Analyse der Permittivität, gerade im Bereich der RF-Frequenz, verhindert. Diese Charakteristika in Kombination mit dem höheren Aufwand der Messungen der Schaumpartikel im Vergleich zu dem Grundmaterial zeigen die Signifikanz des Aufbaus eines Modells zur Vorhersage der komplexen Permittivität aus den Werten des Grundpolymers auf. Ein einfacher Übertrag ist entscheidend für ein schnelles Screening von neuen Materialien für den RF-Prozess und bildet die Grundlage für eine simulative Abbildung dessen.

5.1.3.3. Zwei-Phasen-Mischmodell für die komplexe Permittivität des Schaums

Die Abschätzung der dielektrischen Eigenschaften eines Gemisches mit mehreren Phasen stellt ein in der Literatur bekanntes und weitreichend erforschtes Themenfeld dar. Im Vergleich zu standardmäßigen Anwendungsfällen gibt es bei der Betrachtung von Polymerschäumen jedoch zwei Abweichungen. Zum einen stellt bei vielen Systemen der Einschluss die Minoritätsphase dar. In zellulären Strukturen jedoch umgibt die Polymermatrix die Lufteinschlüsse, welche je nach Dichte bis zu über 95 % ausmacht. Viele Mischmodelle sind daher nicht auf diese hohen volumetrischen Anteile der Einschlüsse ausgelegt. Die zweite Differenz wird durch das Verhältnis der Permittivität der beiden Phasen zueinander ausgelöst. Oftmals werden polare Füllstoffe in eine eher unpolare Matrix eingemischt, um die Eigenschaften des Systems gezielt anzupassen. Für Schäume herrscht jedoch ein umgedrehtes Verhältnis, wobei die Matrix immer die Phase mit der höheren Permittivität darstellt.

Trotz der möglichen Einschränkungen wurden alle gängigen Mischmodelle für zweiphasige Systeme betrachtet und auf ihre Eignung geprüft. Als Datengrundlage wurden die Messungen der Schaumpartikel bei einer Frequenz von 1 MHz herangezogen, um Störungen durch Interferenzen minimal zu halten. In Abbildung 35 sind die realen Messungen bei einer Temperatur von 60 °C beispielhaft dargestellt und mit den bekannten mathematischen Modellen aus Kapitel 2.4.3 zur Vorhersage der Eigenschaften von Zweiphasensystemen verglichen.

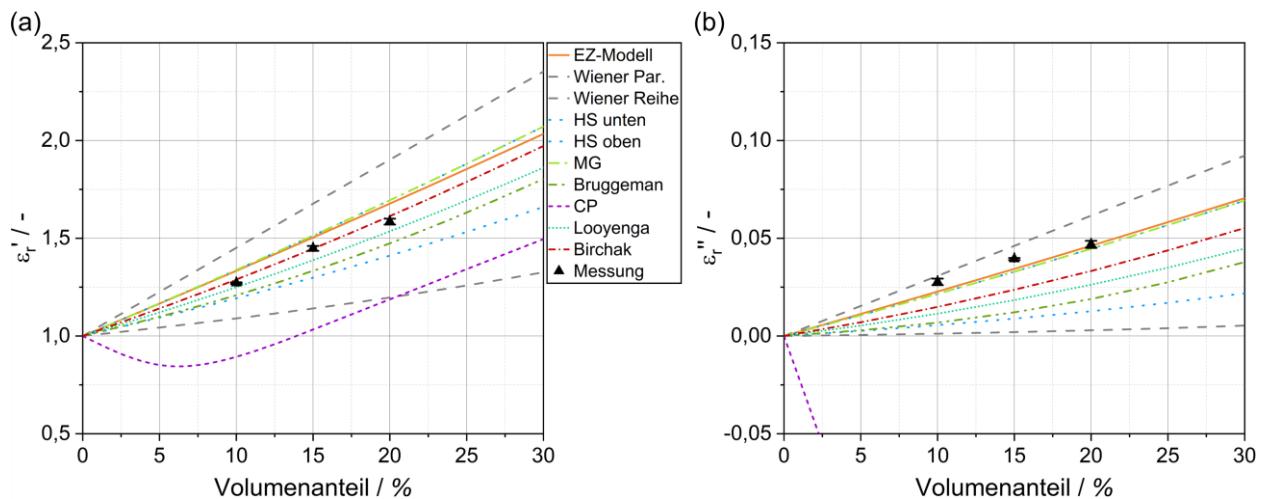


Abbildung 35: Real- ϵ'_r (a) und Imaginärteil ϵ''_r (b) der komplexen Permittivität bei 60 °C über den Volumenanteil an Polymer der realen Messungen sowie der jeweiligen Abschätzungen über die unterschiedlichen Mischmodelle

Die ersten beiden Modelle beschreiben dabei Grenzen innerhalb derer sich die jeweiligen Werte befinden. Die *Wiener* Grenzen stellen dabei die physikalischen Limits eines Mehrphasensystems dar. Die untere Grenze wird hierbei als reine Reihen- und die obere Grenze als reine

Parallelorschaltung berechnet. Nahezu alle anderen Modelle sowie die Messwerte liegen innerhalb dieser physikalischen Grenzen. Eine weitere Einschränkung erfolgt durch die Grenzen nach *Hashin und Shtrikman* (HS), welche speziell für sphärische Einschlüsse entwickelt wurden und einer reinen physikalischen Begründung folgen. Für den Realteil liegen die Messwerte des Schaums deutlich innerhalb des definierten Bereichs. Auf Seiten des Imaginärteils befinden sich die gemessenen Werte im Bereich der oberen Grenze, was durch die nicht homogene rein sphärische Geometrie der Zellen im untersuchten Material verursacht werden kann. Die obere Grenze nach HS ist dabei analog zur Näherung nach *Maxwell-Garnett*. Dieses Modell wurde für sphärische Einschlüsse mit ungleichmäßiger Größenverteilung entwickelt und liegt bereits für den Real- und Imaginärteil des Schaums nahe an den Werten. Hierbei wird einer der beiden Phasen eine klare Zuordnung als Einschluss gegeben. Die Berechnung nach *Bruggeman* hingegen benötigt keine Trennung der beiden Phasen, da es sich um ein symmetrisches Mischungsmodell mit gleichberechtigten Phasen handelt. Die Vorhersage zeigt jedoch deutlich abweichende Ergebnisse zu den Messwerten auf. Eine eigene Klasse der Mischungsregeln stellen die sogenannten „*power-law*“-Annäherungen dar. Sowohl das Modell nach *Looyenga* als auch nach *Birchak* gehören dazu und unterscheiden sich nur in dem Exponenten. Beide Regeln basieren auf empirischen Messungen. Beiden zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem Realteil auf, weichen jedoch im Imaginärteil weit von den Messwerten ab. Für eine ganzheitliche Beschreibung sind diese Modelle daher nicht brauchbar. Als letzte bekannte Regel wurde noch die „*Coherent potential*“ Formel evaluiert, welche starke Wechselwirkungen zwischen den Einschlüssen voraussetzt. Wie in Abbildung 35 zu sehen ist, ist das Modell jedoch für hohe Anteile an Einschlüssen nicht nutzbar und die Vorhersage des Imaginärteils geht dabei sogar zunächst in den negativen Bereich.

Im Allgemeinen scheint keine der bekannten Regeln aus der Literatur eine optimale Vorhersage der gemessenen Werte der Schaumschüttungen zu liefern. Daher wurde ein eigenes Mischmodell auf einem reinen geometrischen Ansatz entwickelt, welches eine Mischung aus einer Reihen- und Parallelorschaltung darstellt. Als Grundlage hierfür wurde eine vereinfachte Einheitszelle mit konstanter Kantenlänge aus einem inneren Luftein schluss und einer umschließenden Polymermatrix gebildet (Abbildung 36 (a und b)).

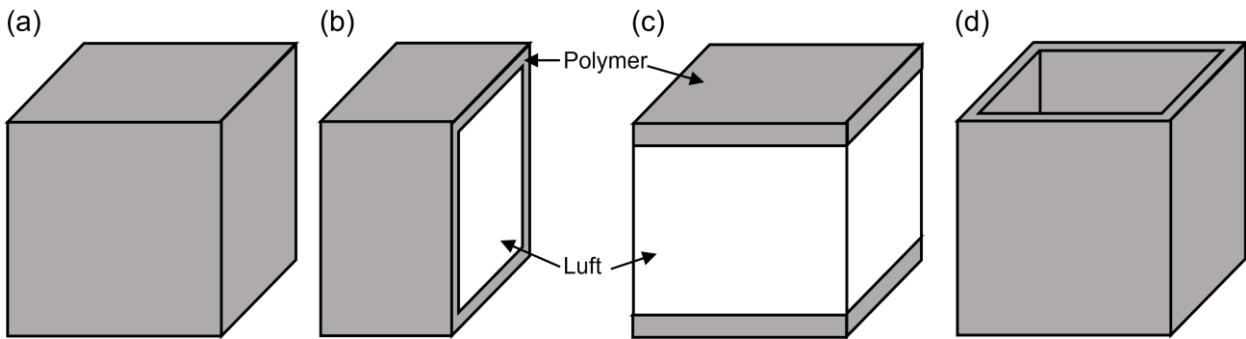


Abbildung 36: Schematische Darstellung der Einheitszelle (a) inklusive eines Querschnitts (b) sowie die Aufteilung in die innere Reihenschaltung (c) und äußere Parallelschaltung (d) für das mathematische Modell

Wird nun auf der oberen und unteren Seite der Zelle eine Potentialdifferenz angelegt, so kann ein einfaches Ersatzschaltbild aufgestellt werden. So wird der äußere Rand der Zelle aus Polymer (d) in eine Reihenschaltung mit dem zentralen Bereich (c) gebracht. Dieser innere Bereich kann anschließend als Reihenschaltung aus den beiden Zellwänden und dem dazwischenliegenden Lufteinschluss betrachtet werden. Je nach dem volumetrischen Anteil an Polymer werden die Abmaße der Zelle variiert, wobei die Zellwände an allen Seiten eine gleiche Dicke aufweisen. Das so generierte Einheitszellen-Mischungsmodell (EZ) besitzt eine Kombination aus den Charakteristika einer Reihen- und Parallelschaltung. Im Vergleich mit den realen Messwerten in Abbildung 35 liegt das EZ-Modell sowohl für den Real- als auch den Imaginärteil nahe an dem Verhalten der Schäume und kann den Trend über den steigenden volumetrischen Anteil gut abbilden.

Für einen quantitativen Vergleich der unterschiedlichen Mischmodelle wurde in Abbildung 37 der mittlere relative Fehler (MRE) für die Vorhersage des Real- und Imaginärteils berechnet. Insgesamt zeigt sich bei fast allen Modellen durch den geringeren Fehler eine bessere Übereinstimmung mit dem Realteil. Dieser kann neben dem EZ-Modell vor allem durch die Ansätze nach Maxwell-Garnett, der oberen HS-Grenze sowie durch die beiden „power-law“-Annäherungen mit einem mittleren relativen Fehler von unter 5 % vorhergesagt werden. Auf Seiten des Imaginärteils kann besonders durch das EZ-Modell und durch die obere Wiener Grenze (Parallelschaltung) ein Fehler von unter 20 % erzielt werden. Die größeren Schwankungen können hierbei durch mehrere Faktoren ausgelöst werden. Zum einen sind in den Messungen des Imaginärteils der Schaumpartikel größere Messungenauigkeiten erkennbar, welche die Ergebnisse beeinflussen. Zum anderen liegen die Werte allgemein niedriger, wodurch geringe Abweichungen in einem größeren relativen Fehler resultieren.

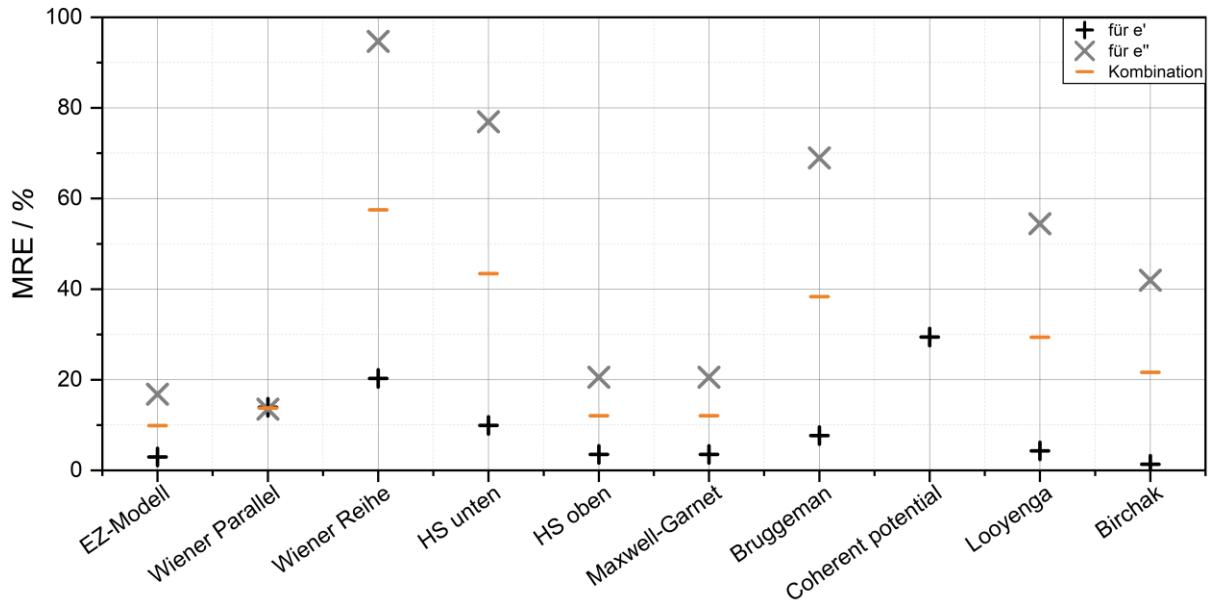


Abbildung 37: Mittlerer relativer Fehler (MRE) der Vorhersage der Messdaten durch die jeweiligen Mischmodelle für den separaten Real- ϵ'_r und Imaginärteil ϵ''_r sowie der Kombination

Da für die finale Betrachtung der Materialeigenschaften beide Anteile der komplexen Permittivität relevant sind, wurde der kombinierte Fehler evaluiert. Hierbei zeigt sich die höchste Übereinstimmung mit dem selbst erarbeiteten Einheitszellen-Modell auf einer reinen geometrischen Basis.

Zur besseren Visualisierung ist die Vorhersage der dielektrischen Eigenschaften in Abbildung 38 für 20, 60 und 100 °C über den volumetrischen Anteil an Polymer zusammen mit den realen Messungen der Schaumpartikel aufgetragen.

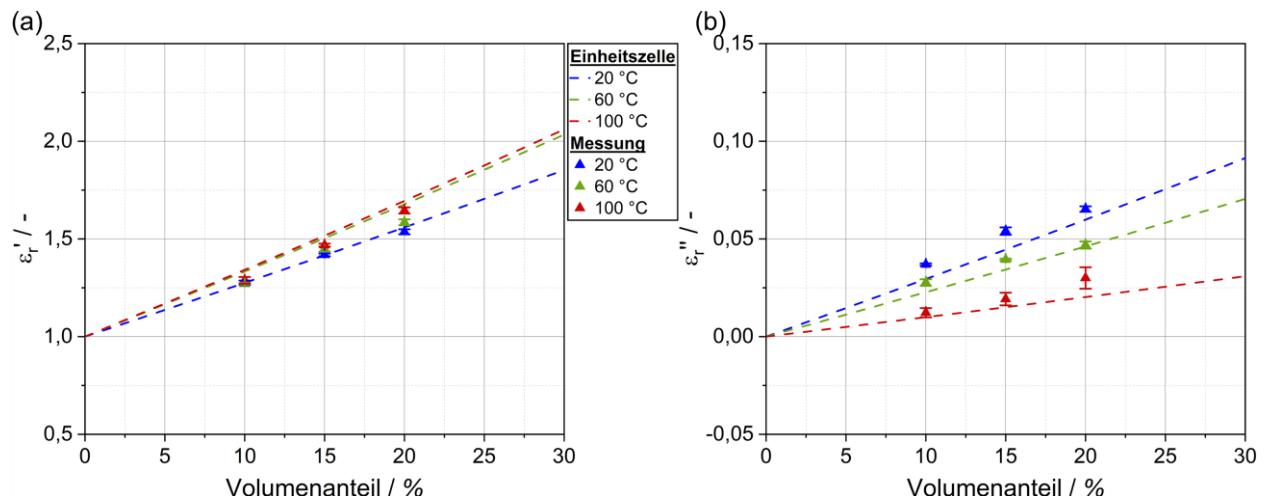


Abbildung 38: Real- ϵ'_r (a) und Imaginärteil ϵ''_r (b) der komplexen Permittivität über den Volumenanteil an Polymer der realen Messungen und der Abschätzung nach dem Einheitszellen-Modell bei 20, 60 und 100 °C

Der Realteil zeigt eine hohe Übereinstimmung mit den Messwerten über alle Temperaturen und Anteile auf. Die Abschätzung des Imaginärteils hingegen liefert stets eine leichte Unterschätzung

der Werte, was möglicherweise auf einem leicht erhöhten Feuchtigkeitsgehalt der Schaumpartikel im Vergleich zu den gepressten Prüfkörpern basiert. Die allgemeinen Tendenzen und Größenordnungen können jedoch gut abgebildet werden.

Die komplexe Permittivität eines Polymerschaums wird durch die Eigenschaften der beiden Phasen sowie durch deren geometrische Anordnung zueinander beeinflusst. Klassische Mischungsmodelle sind dabei nicht auf diese Art der Zweiphasenmodelle ausgelegt, wodurch die Eigenschaften der Mischung nicht ausreichend dadurch beschrieben werden können. Besonders der Imaginärteil zeigt größere Abweichungen bei nahezu allen bekannten Modellen auf. Das eigens erarbeitete Modell auf Basis der geometrischen Einheitszelle zeigt die beste Übereinstimmung und bietet die Möglichkeit die dielektrischen Eigenschaften eines Polymerschaums am genauesten darzustellen. Zudem kann die Permittivität des Schaums durch das Modell aus den Werten des Vollmaterials auch bei der für den RF-Prozess relevanten Frequenz von 27,12 MHz zu kalkuliert werden. Aufgrund der Interferenzen ist es sonst schwer diese direkt zu bestimmen. Die Werte können somit die Grundlage für die simulative Abbildung des Materials stellen. Das aufgezeigte Modell bietet jedoch noch Potenzial zur Optimierung. Zum einen kommt es durch die Kompression im Werkzeug und der Messzelle zu einer Deformation der Zellgeometrie und somit einer Abweichung vom idealisierten Modell. Zum anderen werden die Bereiche der Einheitszelle als abgetrennte Kondensatoren betrachtet und eine Feldverzerrung dazwischen nicht berücksichtigt. Durch eine Erweiterung des Modells könnten solche Effekte mit einbezogen und dadurch die Genauigkeit erhöht werden.

5.1.4. Direkte Analyse des Verschweißverhaltens

Die Verschweißung der Schaumpartikel zu einem dreidimensionalen Bauteil stellt das zentrale Ziel der Untersuchungen dar. Wie in der Literatur dargestellt, wird dieser Prozess primär durch die an der Grenzfläche anliegende Temperatur während der Verarbeitung beeinflusst. Für eine direkte Analyse des Verschweißverhaltens wird im folgenden Kapitel eine innovative Methodik entwickelt und auf das zu untersuchende Material angewandt.

5.1.4.1. Entwicklung einer neuartigen Messmethode

Die Temperaturabhängigkeit der Verschweißung von Schaumpartikeln wurde bisher in der Literatur nur indirekt über den im dampfbasierten Verfahren anliegenden Druck bestimmt. Diese Betrachtung bringt jedoch einige Ungenauigkeiten mit sich. Der eingestellte Dampfdruck wird im

konventionellen Prozess durch analoge Ventile gesteuert, welche durchgehend zwischen der geöffneten und geschlossenen Stellung wechseln. Der im Dampfspeicher eingestellte Druck ist jedoch meist deutlich darüber, wodurch kurzzeitig ein signifikant höherer Druck im Werkzeug auftreten kann. Eine direkte Übertragung des eingestellten Regeldrucks auf eine maximale Temperatur ist somit nicht oder nur bedingt möglich. Die Verschweißung von Polymeroberflächen stellt jedoch auch in anderen Bereichen eine relevante Thematik dar und ist in der Forschung ein breit untersuchtes Feld. Bousmina et al. [63] führten zur direkten Evaluation der Verschweißung zweier Vollmaterialien eine Methode zur Messung innerhalb eines Rheometers unter oszillierender Rotation ein. Durch die Veränderung des komplexen Moduls konnte so die sich ausbildende Anhaftung der beiden Oberflächen zueinander gemessen werden.

Inspiriert durch dieses Vorgehen für Vollmaterialien wurde eine innovative Messmethode für individuelle Schaumpartikel entwickelt, um deren Verschweißverhalten unter definierten Bedingungen zu untersuchen. Zunächst wurde ebenfalls eine rotatorische Messung getestet, welche jedoch aufgrund der Deformation der Schaumstruktur keine nutzbaren Ergebnisse lieferte. Somit wurde auf die Rotation während der Verschweißung verzichtet. Die finale Vorgehensweise der Bead-to-Bead Messung ist schematisch in Abbildung 39 schrittweise dargestellt.

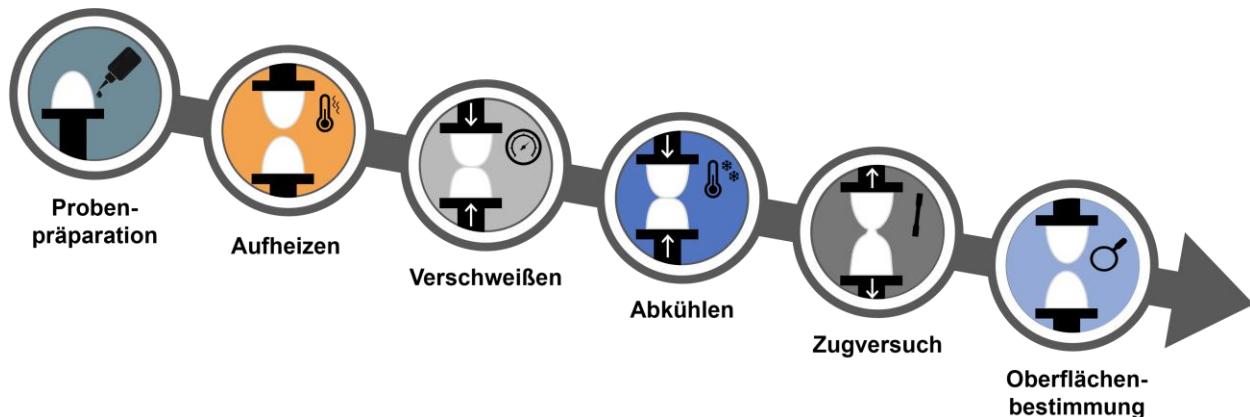


Abbildung 39: Schematischer Ablauf der Bead-to-Bead Messung zur Bestimmung der Verschweißqualität

Die einzelnen Schaumpartikel werden zunächst halbiert und mit einem speziellen Hochtemperatur-Kleber auf eigens designete Probehalter mittig aufgeklebt. Die Probenhalter bestehen dabei ebenfalls aus einem temperaturbeständigen Harzsystem, welches die anschließende Erwärmung aushält. Die so präparierten Prüfkörper werden in einem Rheometer mit Linearantrieb gegenüberliegend eingespannt und bis kurz vor einem Kontakt zusammengefahren. Dieser Zustand ist in Abbildung 40 (a) zu sehen.

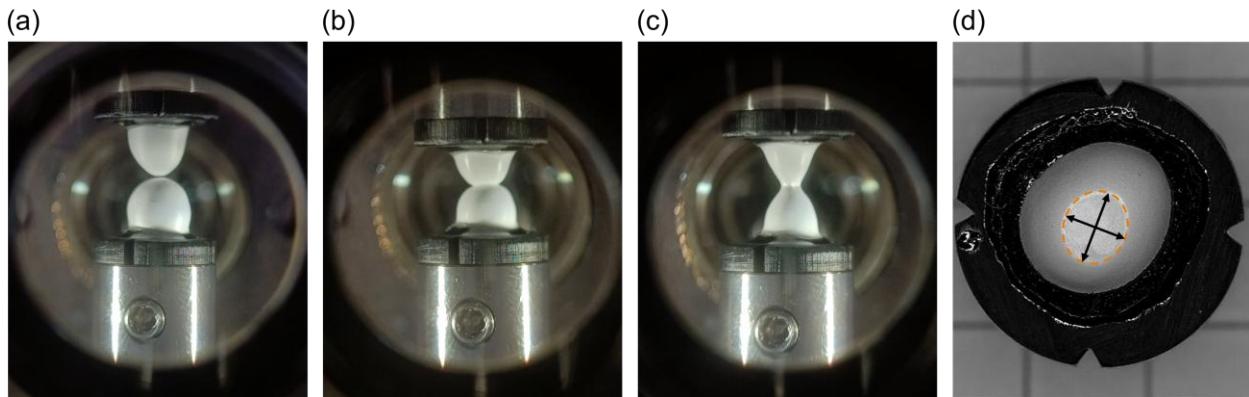


Abbildung 40: Einblick in den Ablauf der Bead-to-Bead Messung während des Aufheizens ohne Kontakt (a), der Verschweißung (b) und des Abkühlens (c) sowie die Analyse der verschweißten Kontaktfläche (d) zur Bestimmung der resultierenden Spannung

In dieser Position werden die Schaumpartikel nun ohne Kontakt auf eine definierte Temperatur innerhalb weniger Minuten aufgeheizt. Ist die gewünschte Temperatur erreicht, wird die Verschweißung initiiert. Dies geschieht durch die Annäherung der Partikelloberflächen bis eine definierte Kraft von 0,5 N erreicht ist. Dieser Wert wurde anhand von Vorversuchen definiert, um einen flächigen Kontakt der Oberflächen zu gewährleisten, ohne die Schaumstruktur zu stark zu komprimieren. Die Kraft muss jedoch für andere Materialien und Partikelgrößen angepasst werden. Wie in Abbildung 41 zu sehen ist, wird diese Anpresskraft anschließend für eine Verschweißzeit von 5 min bei konstanter Temperatur gehalten.

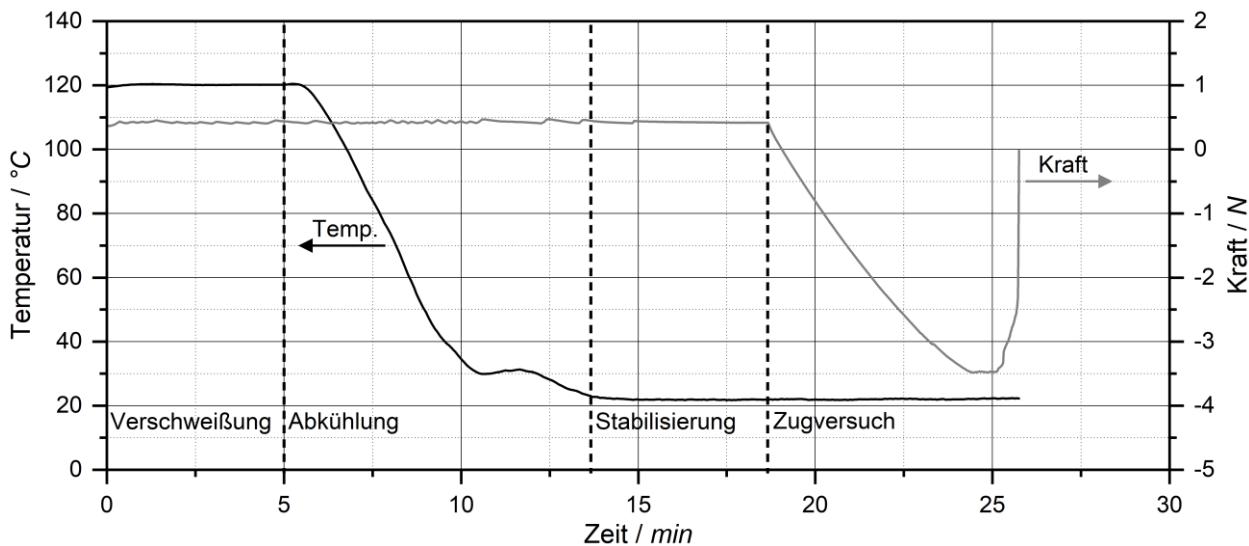


Abbildung 41: Temperatur in der Messkammer und anliegende Kraft an der Probe über die Zeit während der Bead-to-Bead Messung mit den gekennzeichneten Abschnitten der Verschweißung, dem Abkühlen, der Stabilisierung sowie dem darauffolgenden Zugversuch

Während dieses Schrittes kommt es, abhängig von der angelegten Temperatur, zur Verschweißung der beiden Partikelloberflächen. Anschließend wird die Kammer des Rheometers inklusive der Prüfkörper unter gleichbleibender Anpresskraft auf 23 °C Normtemperatur abgekühlt. Dieser

Vorgang dauert je nach Verschweißtemperatur ca. 5 bis 10 min und liegt damit in einer ähnlichen Größenordnung wie der Abkühlvorgang nach der Verarbeitung im RF-Prozess. Für eine homogene Temperierung der Prüfkörper wird zudem eine Stabilisierungszeit von 5 min eingehalten bevor die verschweißten Schaumpartikel mechanisch getestet werden. Dazu fahren die beiden Seiten des Rheometers mit einer konstanten Geschwindigkeit auseinander, wodurch eine negative Zugkraft auf die Prüfkörper ausgeübt wird. Die maximale Kraft vor dem Versagen wird aufgezeichnet und die Bruchflächen unter einem Digitalmikroskop untersucht. Über die so bestimmte Fläche der Verschweißung (siehe Abbildung 40 (d)) als Mittelwert beider Seiten kann anschließend die Zugfestigkeit der Partikeloberflächen bei der definierten Temperatur berechnet werden.

5.1.4.2. Verschweißverhalten in Abhängigkeit der Temperatur

Wie auch im konventionellen Verarbeitungsprozess, neigen einige Materialien zum Schrumpf unter erhöhten Temperaturen. Dieses Verhalten kann auch durch die sich verändernde Kontaktfläche über die Temperatur in Abbildung 42 für das vorliegende Material beobachtet werden.

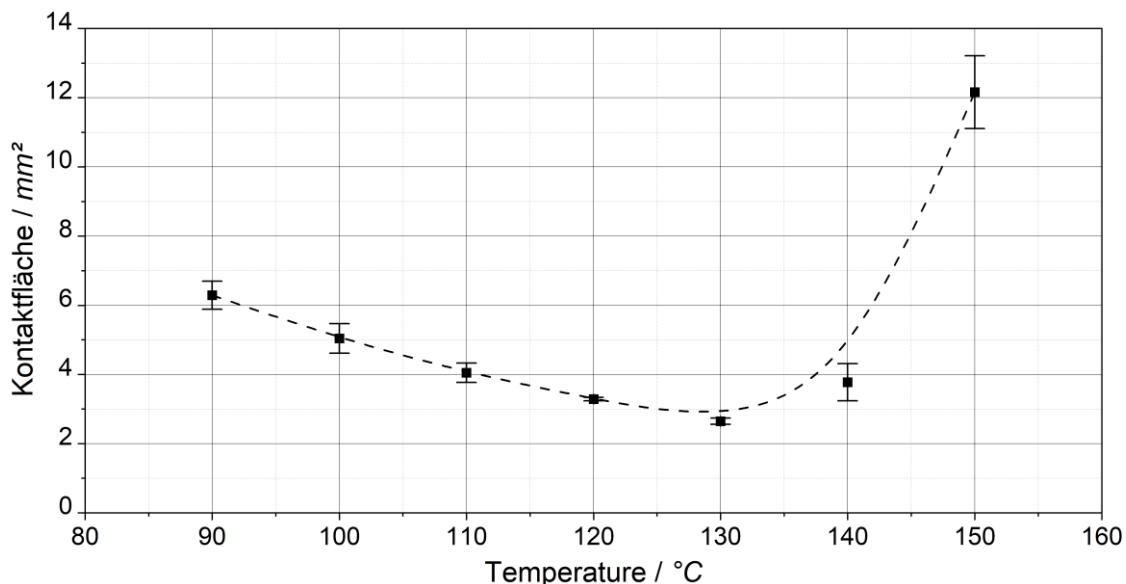


Abbildung 42: Kontaktfläche nach der Verschweißung und anschließendem Zugversuch der Prüfkörper bei unterschiedlichen Verschweißtemperaturen

Zunächst kommt es mit steigender Temperatur zu einer Reduktion der Kontaktfläche, was auf einen volumetrischen Schrumpf der Schaumpartikel zurückgeführt werden kann. Dieses Verhalten kann durch den Herstellungsprozess der Partikel erklärt werden. Während des Aufschäumens mittels der Autoklav-Technologie kommt es zu einer starken Verstreckung der Polymerketten innerhalb der Zellwände. Durch ein schnelles Abkühlen der Partikel zur Stabilisierung, sinkt die

Beweglichkeit der Ketten rapide ab und die restlichen Eigenspannungen bleiben in den Zellwänden eingefroren zurück. Unter einer erneuten Erwärmung der Schaumpartikel während der Verarbeitung oder in der Bead-to-Bead Messung kommt es zu einer erneuten Erhöhung der Beweglichkeit der Polymerketten, wodurch die eingefrorenen Eigenspannungen relaxieren können. Dieser Abbau führt zu einer Reduktion des Partikelvolumens und dadurch zu einem Schrumpf des gesamten Schaumpartikels. Oberhalb von 130 °C kehrt sich das Verhalten jedoch um und die Kontaktfläche steigt steil an. Verglichen mit den thermischen Eigenschaften der Schaumpartikel aus Abbildung 25, kommt es hier zum Aufschmelzen der kristallinen Domänen im Hochtemperatur-Bereich. Diese scheinen essentiell für die strukturelle Integrität der Schaumstruktur zu sein, wodurch ein Aufschmelzen dieser zu einem Kollabieren der Partikel unter der konstanten Anpresskraft führt. Dies resultiert in einer signifikanten Erhöhung der Kontaktfläche. Das Verhalten kann hierbei jedoch nur teilweise mit dem realen Prozess verglichen werden. Bei diesem wird durch die initiale Kompression der Schaumpartikel im Werkzeug ein anfänglicher Anpressdruck zwischen den Partikeln aufgebaut, welcher bei einem Schrumpf oder beim Kollabieren des Materials abgebaut wird. Diese gemessenen Effekte aus der Bead-to-Bead Messung hinsichtlich der volumetrischen Änderungen können so nur teilweise auf den realen Prozess übertragen werden, liefern jedoch wichtige Erkenntnisse über das Materialverhalten.

Neben den strukturellen Charakteristiken der Schaumpartikel, liegt der Fokus der Bead-to-Bead Messung auf der Analyse der Verschweißqualität. In Abbildung 43 ist daher die ermittelte Zugfestigkeit über die Verschweißtemperatur aufgetragen.

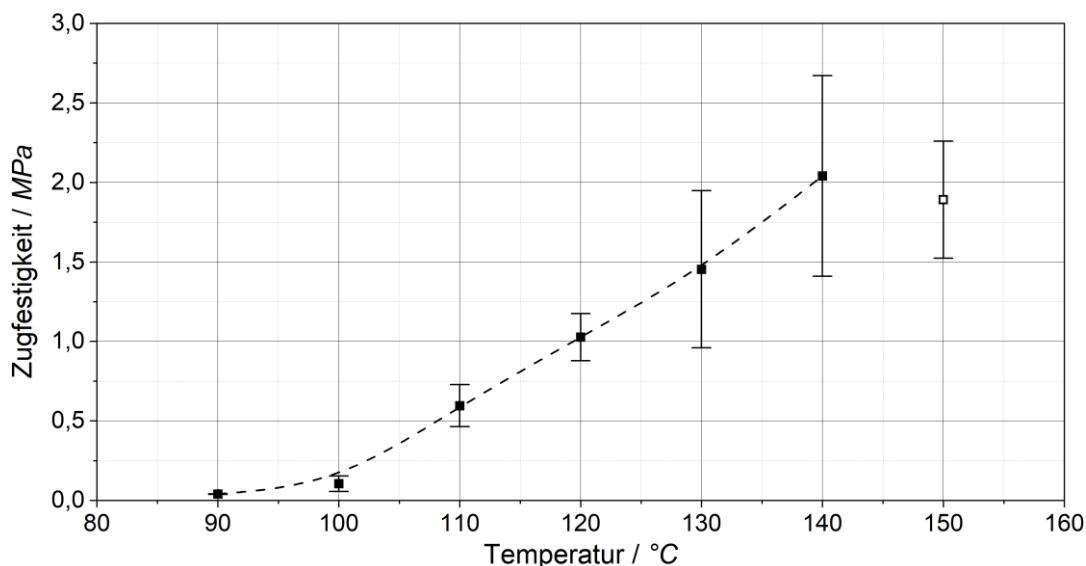


Abbildung 43: Zugfestigkeit der Prüfkörper verschweißt bei unterschiedlichen Temperaturen von 90 bis 150 °C mittels Bead-to-Bead Messung

Unterhalb von 90 °C kann keine Anhaftung der Oberflächen zueinander gemessen werden. Bei Erhöhung der Temperatur kommt es zu einem stetigen Anstieg der Zugfestigkeit bis zu einem Maximum bei 140 °C. Die gemessenen Werte von bis zu 2 MPa liegen dabei in einer vergleichbaren Größenordnung der im Datenblatt des Materials angegebenen Zugfestigkeit von verschweißten Prüfkörpern von 0,9 MPa bei einer Dichte von 220 kg/m³ [195]. Die Abweichung kann dabei durch mehrere Faktoren ausgelöst werden. Zunächst beschreibt die Festigkeit eines Partikelschaums die Eigenschaft des schwächsten Gliedes aus Schaumstruktur und der Anhaftung der Oberflächen. Ersteres ist dabei abhängig von der Dichte, welche im Bead-to-Bead Verfahren durch die konstante Anpresskraft nicht näher bestimmt werden kann und sich über die Temperatur ändert. Zusätzlich kommt es in einer verschweißten Platte zu einem anderen Kraftübertrag zwischen den Partikeln durch deren dreidimensionale Anordnung zueinander. Die ermittelten Festigkeitswerte können so nicht direkt auf die Bauteilebene übertragen werden, liefern jedoch wichtige Erkenntnisse über die Verschweißqualität von Schaumpartikeln bei klar definierten Temperaturen. Bei 150 °C kommt es zu keinem weiteren Anstieg der Festigkeit, was durch das Versagensbild in Abbildung 44 beschrieben werden kann.

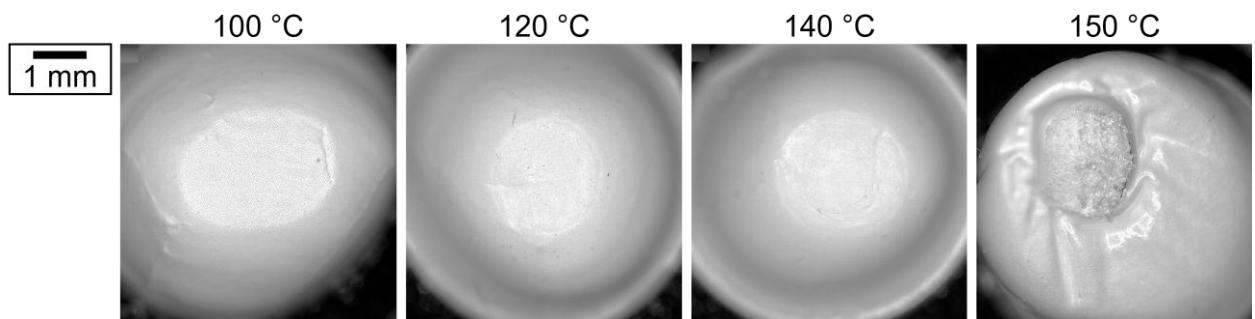


Abbildung 44: Optische Darstellung der verschweißten Prüfkörper bei 100, 120, 140 und 150 °C nach dem Zugversuch zur Auswertung der Kontaktfläche im Lichtmikroskop

Bei dieser erhöhten Temperatur kommt es zu dem Versagen der Schaumstruktur, wodurch die Festigkeit der Verschweißung nicht direkt bestimmt werden kann. Diese muss jedoch über dem gemessenen Wert liegen. Ab dieser Temperatur liegt die Festigkeit der Anhaftung über der Festigkeit der Schaumstruktur, was eine Untersuchung ersterer dadurch verhindert. Wie in Abbildung 23 zu erkennen ist, besteht die Oberfläche der Schaumpartikel aus einer dünnen Schicht an Vollmaterial. Zwischen diesen Schichten kommt es zum Prozess der Verschweißung. In der theoretischen Betrachtung sind daher deutlich höhere Festigkeiten bei weiterer Temperaturerhöhung zu erwarten. Nach vollständigem Aufschmelzen und anschließender Rekristallisation sind so Festigkeiten nahe des Grundpolymers im Bereich von über 20 MPa möglich.

Das entwickelte Messverfahren bietet somit die Möglichkeit erstmals die Verschweißung zwischen Schaumpartikeln unter definierten Bedingungen zu untersuchen. Neben einer Variation der Temperatur können so auch unterschiedliche Anpresskräfte, Verschweißzeiten oder Abkühlraten getestet werden, um einen tieferen Einblick in die Mechanismen zu erlangen.

5.1.4.3. Einfluss des Rekristallisationsverhaltens

Wie in Kapitel 2.3.2 beschrieben ist, hängt das Verschweißverhalten von teilkristallinen Thermoplasten mit mehreren Schmelzpeaks neben den klassischen diffusionsbasierten Vorgängen primär von den kristallinen Domänen ab [3]. Wie in zuvor beschrieben wird eine Temperatur von mindestens 90 °C für eine erste Anhaftung der Oberflächen benötigt. Verglichen mit dem Schmelzbereich der Partikel in Abbildung 45 muss somit für eine Verschweißung ein signifikanter Anteil der Kristallite zunächst aufgeschmolzen werden.

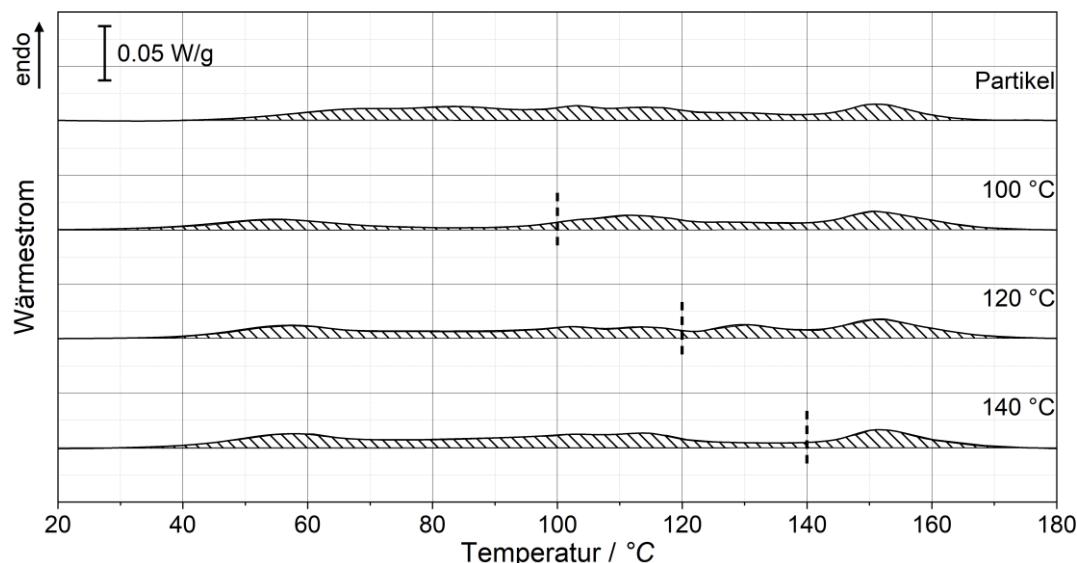


Abbildung 45: Vergleich der Schmelzbereiche der ursprünglichen Partikel und nach der Bead-to-Bead Messung bei 100, 120 und 140 °C mittels DSC

Um dieses Verhalten näher zu bestimmen, wurden zusätzlich Analysen der mittels Bead-to-Bead Messung getesteten Partikel bei 100, 120 und 140 °C Verschweißtemperatur mittels DSC getestet. Bei einer Temperatur von 100 °C wird zunächst ein signifikanter Anteil an kristallinen Bereichen aufgeschmolzen. Die Ausbildung eines Peaks etwas über dieser Temperatur deutet auf eine Perfektionierung des Kristallite durch das Temperiern hin [76]. Bei der anschließenden Abkühlung der Schaumpartikel kommt es jedoch nicht zur vollständigen Rekristallisation der aufgeschmolzenen Bereiche, was in einer geringen Verschweißfestigkeit resultiert. Lediglich bei ca. 55 °C ist ein leichter Peak zu erkennen, welcher sich im Vergleich zum ursprünglichen Partikel

zu niedrigeren Temperaturen verschoben hat. Dabei handelt es sich wohl um induzierte Kristallite mit lediglich geringer Nahordnung [86]. Bei 120 °C hingegen kommt es neben der Kristallperfektionierung auch zu einer erheblichen Rekristallisation der aufgeschmolzenen Bereiche während der Abkühlung des Materials. Die Neubildung der zuvor aufgeschmolzenen Bereiche des Hartsegments fungieren als Überbrückung über die Grenzflächen der Partikeloberflächen hinweg, wodurch die Zugfestigkeit in Abbildung 43 deutlich zunimmt [18,32,76]. Diese innovative Verschweißtheorie für ETPU ist schematisch in Abbildung 46 für die drei untersuchten Temperaturen dargestellt.

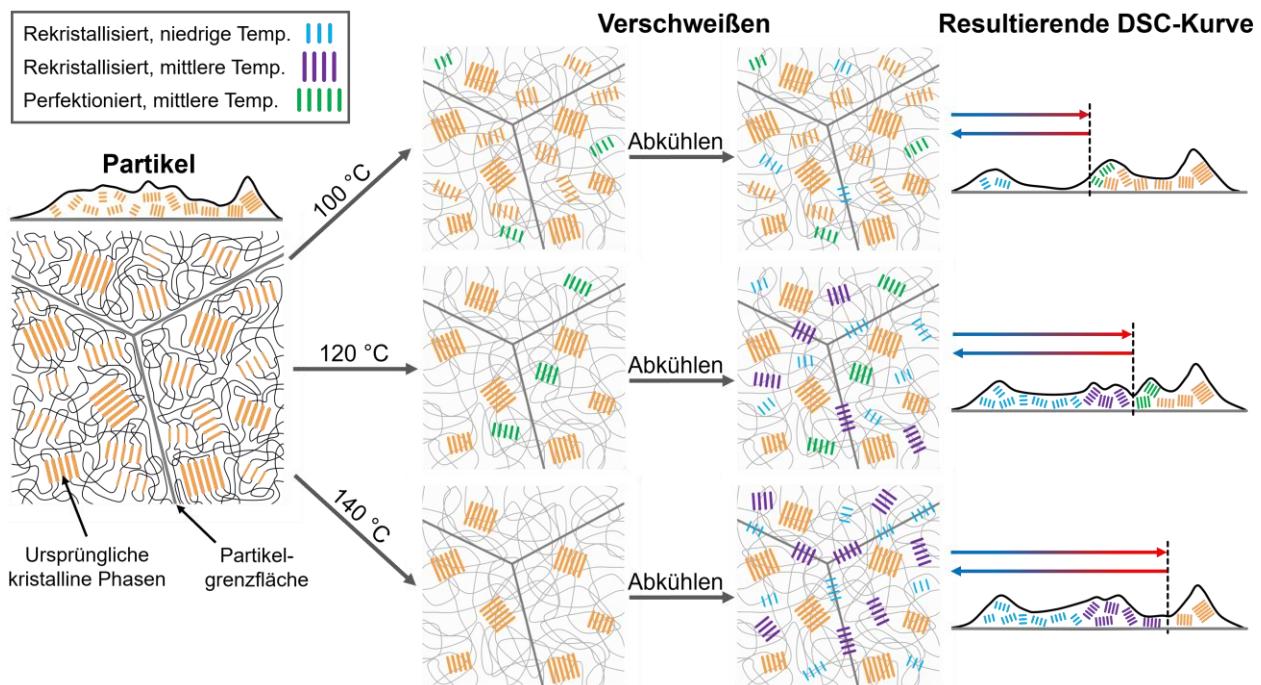


Abbildung 46: Schematische Darstellung des Verschweißmechanismus der Partikel anhand des partiellen Aufschmelzens und der Rekristallisation von kristallinen Bereichen bei unterschiedlichen Temperaturen an den Grenzflächen

Dieses Verhalten zeigt sich ebenfalls verstärkt bei 140 °C. Die Perfektionierung von Kristalliten ist hierbei jedoch nicht sichtbar oder wird durch den Hochtemperatur-Peak überlagert. Wird das Material weiter erwärmt, so beginnen die letzten kristallinen Bereiche aufzuschmelzen, wodurch die strukturelle Integrität des Polymers verloren geht und dadurch die Zellwände des Schaums nachgeben. Dies sollte für eine optimale Verschweißung vermieden werden, da so die zelluläre Struktur und dadurch die mechanischen Eigenschaften verändert werden.

Die hier entwickelte Methodik der Bead-to-Bead Messung ermöglicht erstmals das Verschweißverhalten von Schaumpartikeln unter definierten Bedingungen zu evaluieren. Die daraus abgeleitete Verschweißtheorie für das untersuchte Material liefert eine wichtige Grundlage in der Prozessoptimierung der Verarbeitung zu Bauteilen. Der direkte Zusammenhang zwischen

der erreichten Temperatur und der Verschweißfestigkeit stellt die Basis der anschließenden Evaluation der Prozess-Material-Interaktion dar. Zudem liefert es wichtigen Input in der simulativen Abbildung des RF-Prozesses für den Transfer von thermischen Ergebnissen in eine Vorhersage der mechanischen Eigenschaften.

5.2. Verarbeitung der Schaumpartikel mittels RF-Technologie

Nach der tiefgreifenden Analyse der ETPU-Schaumpartikel hinsichtlich deren thermischen und dielektrischen Eigenschaften sowie des Verschweißverhaltens, werden diese nun mittels RF-Technologie zu Prüfkörpern verarbeitet. Der Fokus hierbei liegt zunächst auf dem Korrelation der temperaturabhängigen dielektrischen Eigenschaften mit dem Prozessfeedback im Hinblick auf die Leistungsaufnahme und der Temperaturentwicklung. Anschließend wird der Einfluss der Prozessparameter auf die Oberflächenqualität und die resultierenden mechanischen Eigenschaften unter Zugbeanspruchung untersucht.

5.2.1. Korrelation der Leistungsaufnahme und der resultierenden Temperaturentwicklung mit den Prozessparametern und den dielektrischen Eigenschaften

Die Verarbeitung von Schaumpartikeln mittels der RF-Technologie basiert auf dem zunächst simplen physikalischen Grundprinzip der dielektrischen Erwärmung von Dipolen im elektromagnetischen Wechselfeld. Neben den Materialeigenschaften wird der Prozess hauptsächlich durch die eingestellte Spannungskurve über die Zeit gesteuert. Die vorgegebene Spannung an der oberen aktiven Elektrode wird dabei durch einen zweiten internen variablen Stellkondensator innerhalb der RF-Maschine gesteuert. Um Überschläge durch einen zu schnellen Spannungsanstieg zu verhindern, wurde eine initiale Rampe über 2 s bis zur Maximalspannung eingestellt. Wie in Abbildung 47 deutlich zu sehen ist, folgt der Spannungsanstieg in den ersten Sekunden jedoch aufgrund der Trägheit des Stellkondensators keinem linearen Trend, sondern benötigt eine gewisse Zeit, um die eingestellte Spannung von 6 bzw. 8 kV zu erreichen.

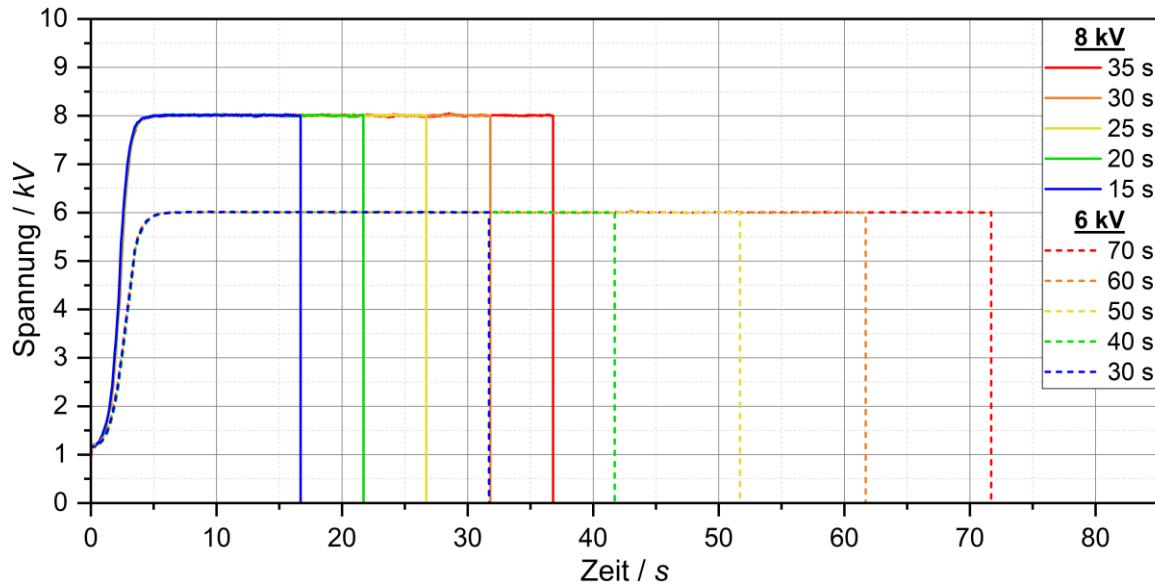


Abbildung 47: Angelegte Spannung über die Zeit bei 6 und 8 kV Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten

Die Maximalspannung liegt somit erst nach ca. 4 s an der oberen Elektrode an. Diese Verzögerung ist dabei unabhängig von der Spannung und kann für eine Optimierung des Prozesses durch die Einstellung des richtigen Startwerts für den Stellkondensator minimiert werden. Die jeweilige Spannung wird anschließend für die gewünschte Zeit gehalten, bevor es ohne Verzögerung zum Abschalten kommt und die Spannung auf Null fällt. Durch Veränderungen in der Permittivität des zu verschweißenden Materials muss über den Stellkondensator durchgehend nachgeregelt werden, um einen konstanten Spannungsabfall über das Werkzeug hinweg gewährleisten zu können. Die Spannung geht dabei direkt in die elektrische Feldstärke ein, welche durch Gleichung (2.1) linear mit der induzierten Leistung zur Erwärmung der Schaumpartikel zusammenhängt. Dadurch muss diese bei niedrigerer Spannung länger gehalten werden, um vergleichbare Temperaturen zu erhalten. Der Spannungsinput ist somit sehr konstant und berechenbar.

Das erste direkte Feedback des Prozesses wird über eine interne Messung der benötigten Generatorleistung (maximal 25 kW) zum Aufrechterhalten der eingestellten Spannung automatisch für jeden Versuch aufgezeichnet. Diese Leistung ist nach Gleichung (2.1), neben der Permittivität des Materials, abhängig von der angelegten Spannung. Dies führt zu einem steilen Anstieg der Leistungskurve innerhalb der ersten Sekunden, wie in Abbildung 48 zu sehen ist.

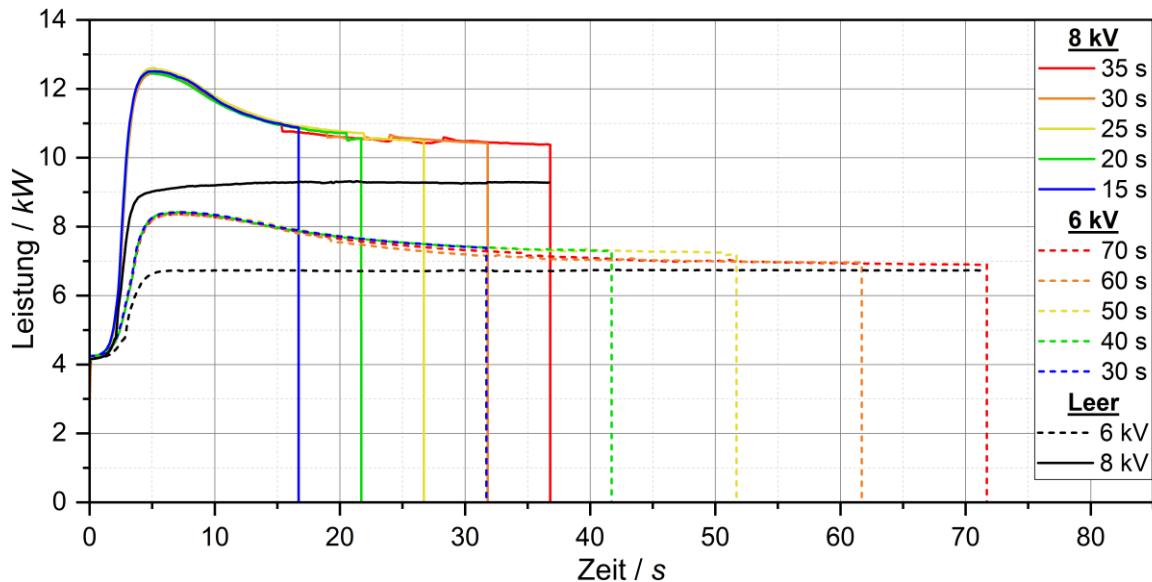


Abbildung 48: Leistung des RF-Generators über die Zeit bei 6 und 8 kV Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten inklusive der Leermessungen ohne eingefüllte Partikel

Allgemein zeigen die Versuche bei der Spannung von 8 kV ein höheres Leistungslevel als bei 6 kV auf. Wie zu erwarten, liegen die unterschiedlichen Zeiten bei der gleichen Spannung nahezu übereinander und unterscheiden sich nur minimal im späteren Verlauf. Die reine dielektrische Erwärmung der Schaumpartikel stellt jedoch nur einen Teil der benötigten Leistung des Generators dar, wie durch die beiden Leer-Messungen ohne eingefülltes Material sichtbar ist. Diese setzt sich aus einem Grundverbrauch des Generators, Verlusten in den Zuleitungen sowie der Energie zum Aufbau des elektromagnetischen Feldes zwischen den Elektroden zusammen. Diese Leer-Leistung steht dabei in direktem Zusammenhang mit der Spannung und nimmt einen Großteil der Gesamtkurve ein. Um diesen konstanten Anteil zu beseitigen, wurden die jeweiligen Leer-Messungen bei den entsprechenden Spannungen als Basislinie herangezogen und von den Messkurven abgezogen. Die so berechneten Werte entstehen durch die Interaktion des Materials mit dem Prozess und den daraus resultierenden Verlusten, welche direkt in die volumetrische Erwärmung eingehen. Die so normierten Leistungskurven über die Zeit sind in Abbildung 49 dargestellt. Wie auch bei den Ergebnissen zuvor, liegen die Leistungskurven bei gleicher Spannung zunächst nahe beieinander, was auf eine hohe Reproduzierbarkeit des Prozesses schließen lässt. Bei längeren Prozesszeiten kommt es jedoch zu unregelmäßigen Sprüngen in der Leistung, was auf Regelungseffekte des Generators oder Ungenauigkeiten in der internen Datenaufzeichnung schließen lässt. Innerhalb der ersten 4 s bis zum Erreichen der maximalen Spannung steigt die Leistung steil an.

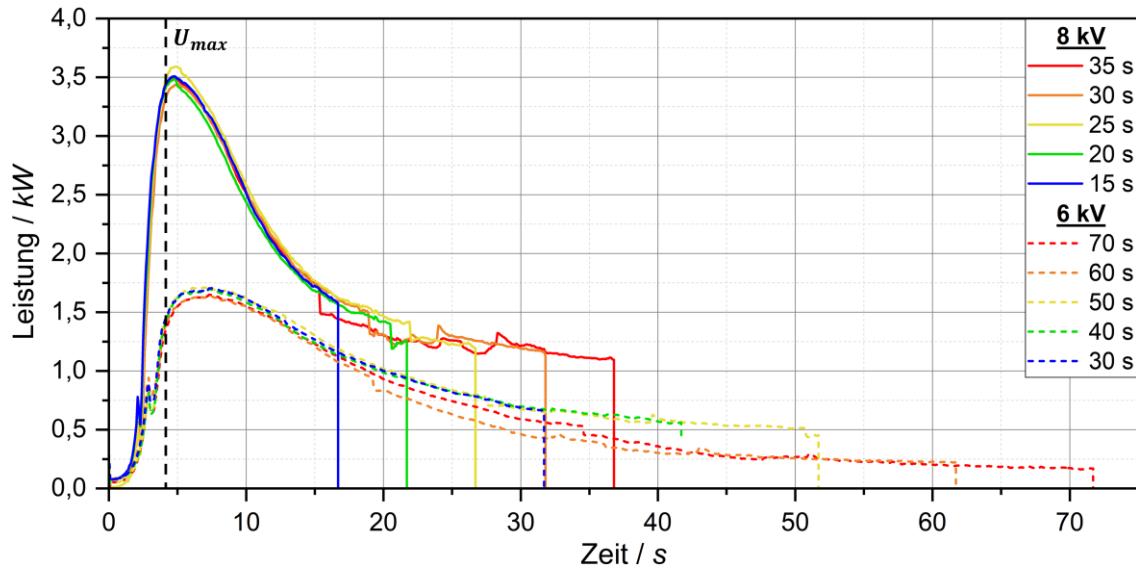


Abbildung 49: Normierte Leistung des RF-Generators über die Zeit bei 6 und 8 kV Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten

Anschließend kommt es zu einem weiteren leichten Anstieg, danach flacht die Kurve ab. Dieser Verlauf zeigt die direkte Abhängigkeit des Leistungseintrags von den dielektrischen Eigenschaften auf. Verglichen mit dem Imaginärteil der komplexen Permittivität in Abbildung 29 (b) kommt es hier ebenfalls zu einem initialen Anstieg bis 60 °C und zu einem anschließenden Abfall, welcher sich direkt in der Leistungskurve widerspiegelt. Der beschleunigte Abfall der Kurve bei 8 kV deutet somit auf die schnellere Erwärmung des Materials hin. Die Leistungskurve über die Zeit der Verschweißung liefert somit ein direktes Feedback des Prozesses und gibt Aufschluss über die dielektrischen Eigenschaften des Materials und dessen Temperaturabhängigkeit. Dieser direkte Zusammenhang ermöglicht es Ungleichmäßigkeiten in der Prozessführung sowie Schwankungen der zu verarbeitenden Schaumpartikel zu detektieren, welche sich negativ auf die Bauteileigenschaften auswirken können.

Neben der Leistung wurde zudem auch die direkte Erwärmung des Bauteils durch einen faseroptischen Temperatursensor ermittelt. Dieser befindet sich mit kleineren Schwankungen im Kern der 10 mm starken Schaumplatte und nimmt zusätzlich zur Verschweißung auch den Vorgang des Abkühlens auf. Wie in Abbildung 50 zu sehen ist, zeigen die Temperaturverläufe unabhängig von der eingestellten Zeit bei den jeweiligen Spannungen einen reproduzierbaren Trend in der Erwärmung. Die Bauteile bei 8 kV erfahren hierbei durch die höhere Feldstärke eine signifikant stärkere Erwärmung und die längeren Verschweißzeiten resultieren in erhöhten Maximaltemperaturen. Die Auswahl der getesteten Verschweißzeiten erfolgte über Vorversuche, um bei allen Parametern in sich stabile Prüfkörper ohne komplettes Kollabieren des Kerns herzustellen.

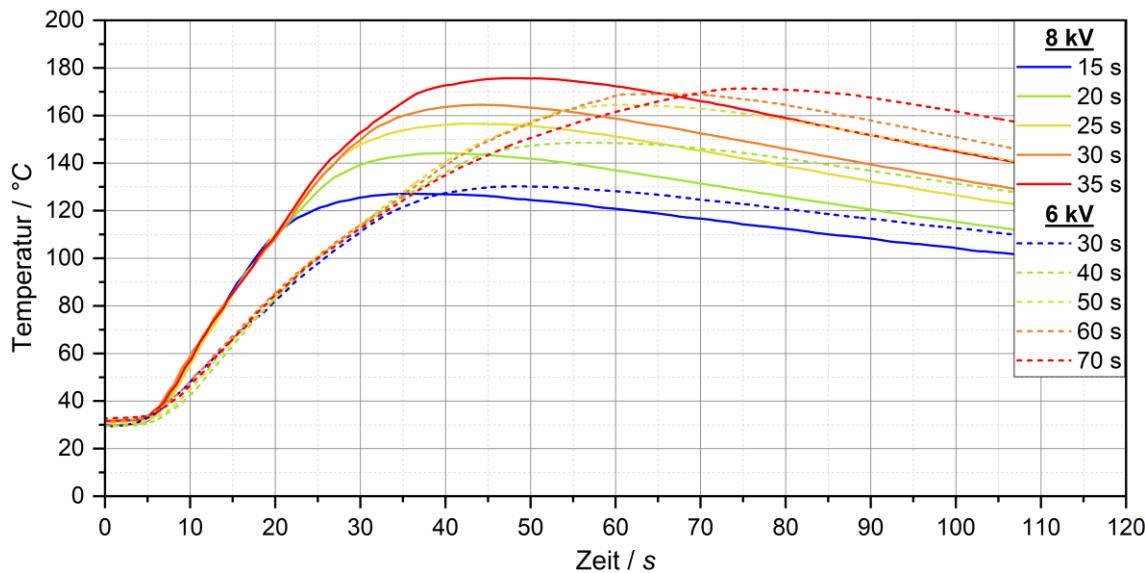


Abbildung 50: Temperatur über die Zeit bei 6 und 8 kV Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten ermittelt mittels faser-optischem Sensor im Zentrum der Schaumplatte

Die Kerntemperaturen befinden sich daher in einem Bereich von ca. 130 bis 175 °C. Bei näherer Betrachtung der Temperaturkurven im Vergleich zu der anliegenden Spannung ist eine Verzögerung der Erwärmung sichtbar. Zunächst ist erst nach einer gewissen Zeit eine Erwärmung messbar. Zusätzlich kommt es auch nach dem Wegfall der Spannung noch zu einem Anstieg der Temperatur, wodurch das Maximum eine Verzögerung um bis zu 10 s aufweist. Der Effekt ist besonders bei der höheren Spannung von 8 kV mit schnellerer Erwärmung sichtbar. Dies deutet auf eine signifikant verzögerte Temperaturnessung des Sensors durch dessen thermische Masse hin. Während der Verschweißung wird nur der Schaum um den Sensor herum erwärmt, welcher durch die geringe thermische Leitfähigkeit die Temperatur nur langsam übertragen kann. Neben der zeitlichen Abweichung wird dadurch auch die maximal gemessene Temperatur beeinflusst, welche dadurch deutlich herabgesetzt wird und entscheidend für die Verschweißung der Schaumpartikel ist. Trotz des eingesetzten dünnen Sensors ergibt sich somit eine signifikante Abweichung der gemessenen Temperaturverläufe von den tatsächlich im Schaum anliegenden Werten.

Der Temperaturverlauf über die Zeit erlaubt zudem die Berechnung der Heizrate über die Verschweißzeit und der anschließenden Abkühlung. Im Falle konstanter Wärmekapazität steht diese in einem direkten linearen Zusammenhang mit dem volumetrischen Leistungseintrag zur dielektrischen Erwärmung. Wie in Abbildung 51 zu sehen ist, steigt die Heizrate zunächst mit der initialen Spannungserhöhung an und folgt anschließend einem Trend analog zur Leistungskurve.

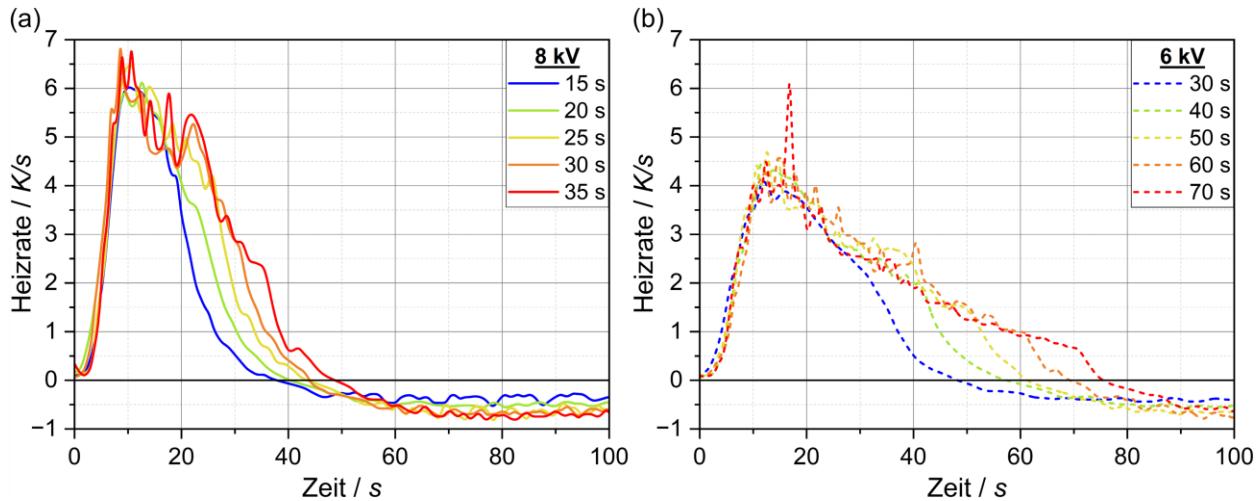


Abbildung 51: Berechnete Heizrate über die Zeit bei 8 (a) und 6 kV (b) Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten

Die höhere Maximalspannung resultiert wiederum in eine verstärkte Heizrate, wobei die unterschiedlichen Verschweißzeiten bis zum Abschalten der Spannung nahezu übereinander liegen. Die thermische Verzögerung in der Temperaturmessung ist ebenfalls durch den nur langsam Abfall der Heizrate nach dem Verschweißprozess erkennbar. Nach einer gewissen Zeit fallen die Heizraten in den negativen Bereich, was auf eine Kühlung des Sensors durch das umliegende Schaumvolumen deutet. Diese Reduktion der Temperatur wird durch Wärmeleitung in das kühle Werkzeug initiiert, welches nur oberflächennah durch das Bauteil aufgewärmt wird. Nach dem Entnehmen der verschweißten Prüfkörper sind am Werkzeug teilweise Temperaturen von über 50 °C messbar, welche den darauffolgenden Versuch beeinflussen können. Eine konstante Werkzeugtemperatur vor jedem Versuch von 40 °C wurde daher stets eingehalten, was essenziell für reproduzierbare Ergebnisse ist. Der größere Temperaturunterschied zwischen dem Bauteil und dem umliegenden Werkzeug führt daher tendenziell zu stärkeren Abkühlraten bei längeren Verschweißzeiten.

Um einen direkten Vergleich der dielektrischen Erwärmung mit dem Imaginärteil der komplexen Permittivität zu ermöglichen, wurde in Abbildung 52 die Heizrate über die jeweils anliegende Temperatur aufgetragen. Neben der allgemeinen Erhöhung der Heizrate durch die höhere Maximalspannung zeigen die Kurven einen vergleichbaren Verlauf über die Temperatur auf. Der direkte Zusammenhang zu dem Imaginärteil ist durch das Maximum der Heizrate bei ca. 60 °C deutlich zu erkennen. Anschließend kommt es wiederum zu einem Abfall der Heizrate hin zu höheren Temperaturen. Dies kann neben den Materialeigenschaften (Permittivität und effektive Wärmekapazität) auch trotz des isolierenden Charakters des Schaums durch die externe Kühlung des kalten Werkzeugs ausgelöst werden.

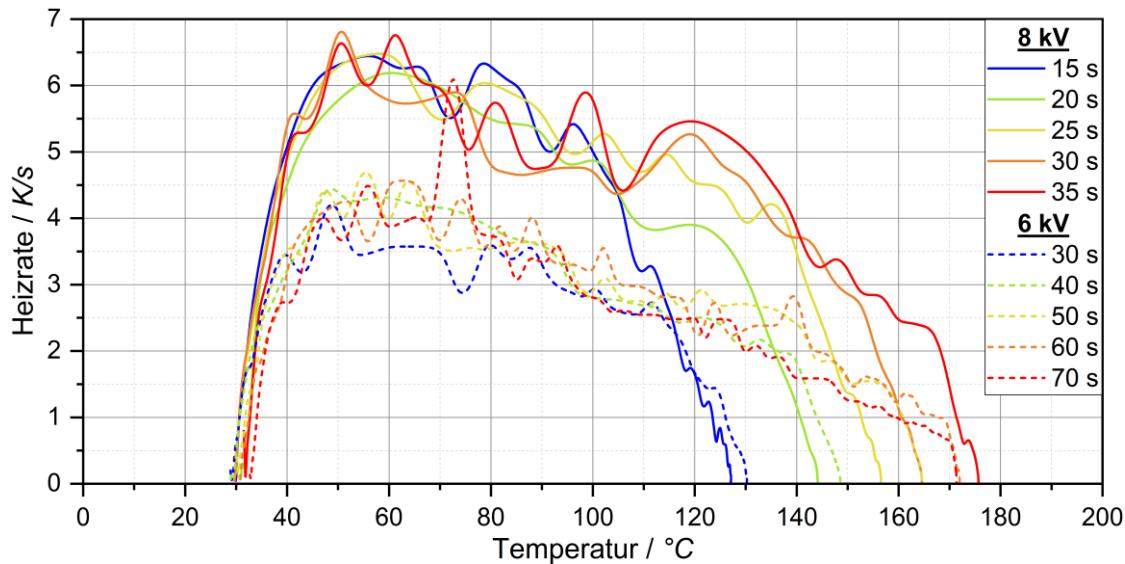


Abbildung 52: Berechnete Heizrate über die gemessene Temperatur bei 8 und 6 kV Maximalspannung für die unterschiedlichen Verschweißzeiten

Zusammenfassend zeigen die Ergebnisse, dass der RF-Prozess mit den temperaturabhängigen Eigenschaften des Materials korreliert. Sowohl die ermittelte Generatorleistung sowie die gemessenen Heizraten spiegeln den Verlauf des Imaginärteils dabei direkt wider und eignen sich dadurch als Parameter der Prozessüberwachung. Im Gegensatz dazu zeigen die Temperaturverläufe aufgrund der thermischen Trägheit des Sensors eine deutliche Verzögerung und Abweichung in der messbaren Maximaltemperatur auf. Für die Analyse der tatsächlichen Temperatur des Schaums muss somit eine alternative Methode betrachtet werden.

5.2.2. Einfluss der Prozessführung auf die Bauteileigenschaften

Nach der Betrachtung des Einflusses der Prozessparameter auf die Leistungsaufnahme und die gemessenen Temperaturentwicklung, werden im Folgenden die daraus resultierenden Prüfkörper untersucht. Dafür wird zunächst die Oberflächenqualität betrachtet und anschließend eine mechanische Charakterisierung unter Zugbelastung durchgeführt, welche eine Aussage über die Verschweißqualität liefern.

5.2.2.1. Einfluss auf die Oberflächenqualität

Die Qualität der Oberfläche von Partikelschaumbauten stellt einen wichtigen Qualitätsparameter für eine Vielzahl an Anwendungsfeldern dar. Diese wird primär durch die oberflächennahe Verschweißqualität bestimmt, was in einem direkten Zusammenhang mit der Temperaturverteilung über den Querschnitt des Schaums während der Verarbeitung steht. Zur

Evaluation der Oberflächenqualität wurden die produzierten Prüfkörper mittels 3D-Profilometer vermessen. Die so generierten topographischen Aufnahmen sind in Abbildung 53 für die jeweiligen Prozessparameter aufgezeigt.

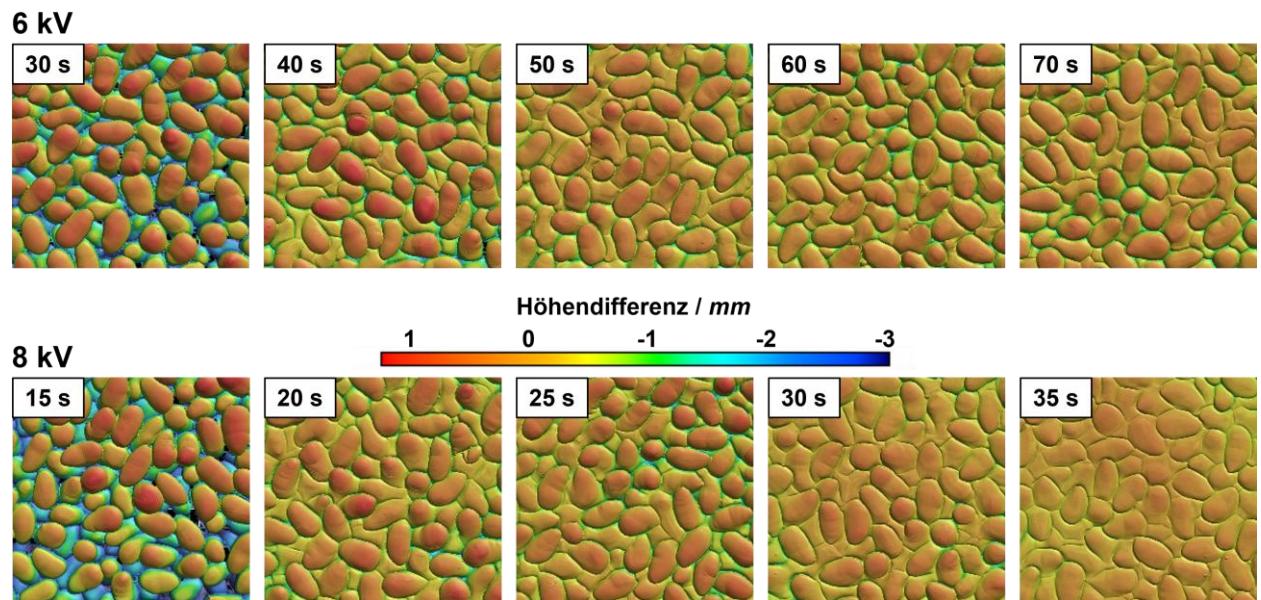


Abbildung 53: Topographische Darstellung der Oberflächenstruktur der mittels RF-Technologie verschweißten Platten bei unterschiedlichen Spannungen und Zeiten

Die dargestellte Höhendifferenz ist dabei in Relation zur durchschnittlichen Referenzebene angegeben, welche durch die Auswertesoftware automatisch generiert wird. Bei der jeweils niedrigsten Verschweißzeit zeigen die Bauteile bei beiden Spannungen eine ungleichmäßige Oberfläche auf. Durch die geringe Temperatur in der Nähe des kühleren Werkzeugs kommt es zu keiner ausreichenden Verschweißung der Partikel. Beim Öffnen des Werkzeuges kommt es dadurch zu einer Relaxation der zuvor komprimierten Schaumpartikel, was ohne die Anhaftung zueinander zu Fehlstellen zwischen den Partikeln führt. Diese Unebenheit der Oberfläche ist auch in der mittleren arithmetischen Höhe in Abbildung 54 quantitativ zu beobachten.

Mit höheren Verschweißzeiten ist neben dem Anstieg der gemessenen maximalen Kerntemperatur auch eine erhöhte Oberflächentemperatur zu erwarten, da es über die Zeit zu einer oberflächennahen Erwärmung des Werkzeugs kommt. Dies führt zu einer besseren Verschweißung der Partikelgrenzflächen an der Oberfläche, wodurch nach der Entformung aus dem Werkzeug weniger Fehlstellen zwischen den Schaumpartikeln entstehen. Dieser Effekt zeigt sich sowohl in der optischen Betrachtung der Oberflächenqualität also auch in der quantitativen Analyse. Die unzureichende Oberflächenqualität bei niedrigen Verschweißzeiten durch eine fehlende Anhaftung der Partikel zueinander ist auch in den Querschnitten der Prüfkörper in Abbildung 55 deutlich zu sehen.

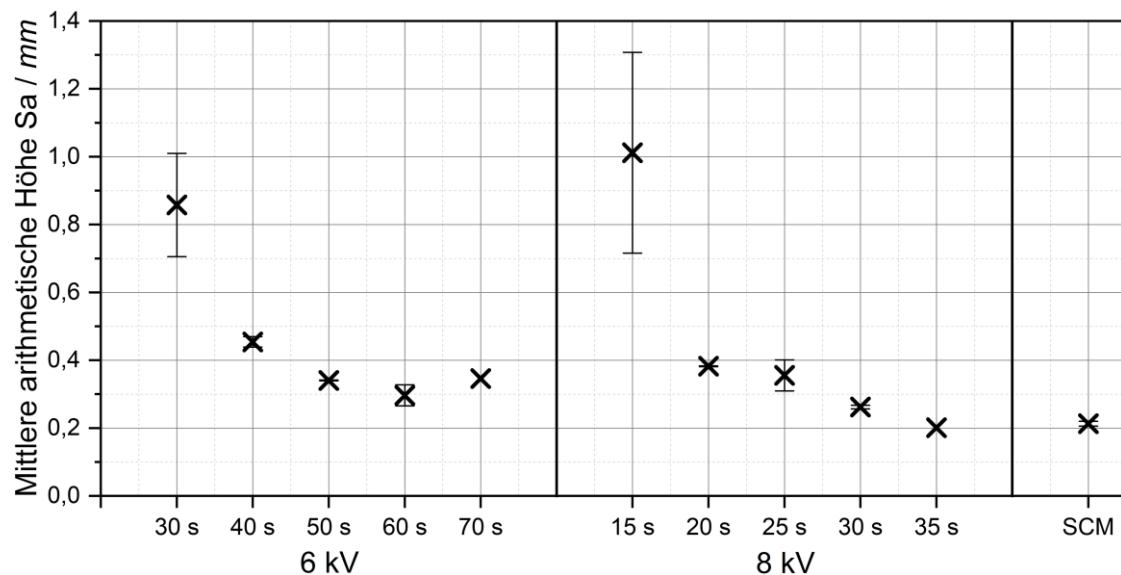


Abbildung 54: Mittlere arithmetische Höhe der mittels RF-Verfahren verschweißten Platten bei unterschiedlichen Spannungen und Zeiten sowie eine Referenz-Probe mittels SCM

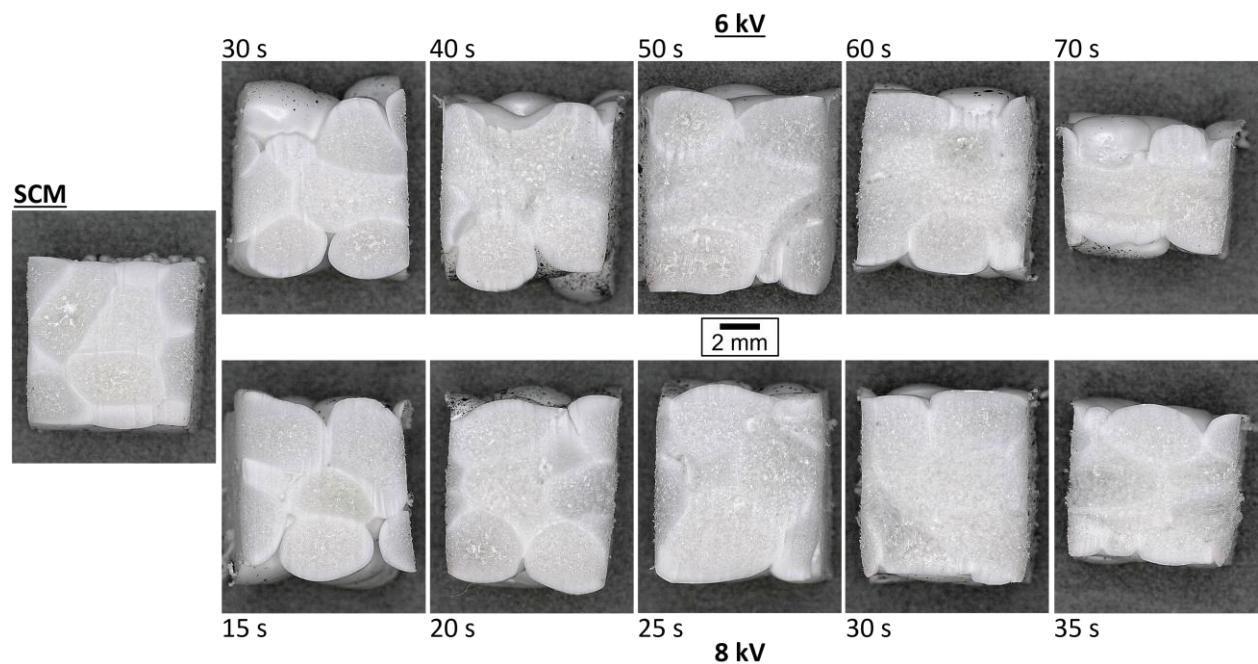


Abbildung 55: Darstellung der repräsentativen Querschnitte der Prüfkörper aus dem RF-Verfahren bei 6 und 8 kV bei unterschiedlichen Verschweißzeiten sowie der SCM-Referenz

Bei den längeren Verschweißzeiten werden dabei die besten Oberflächenqualitäten erzielt. Gerade bei 8 kV und 35 s zeigt das Bauteil eine homogene Struktur ohne sichtbare Fehlstellen auf. Das Bauteil weist ähnliche Werte wie eine Referenzplatte aus der dampfbasierten Verarbeitung (SCM) auf. Im Vergleich zu den verschweißten Platten bei 6 kV kommt es bei der höheren Spannung zu einer schnelleren Erwärmung der Schaumpartikel auf die Endtemperatur. Dadurch bleibt weniger Zeit für thermische Verluste in das Werkzeug und die Oberflächentemperatur erreicht höhere

Werte, was mit einer besseren Oberflächenqualität einhergeht. Wie in Abbildung 55 zu sehen ist, zeigen die beiden Prüfkörper bei der höchsten Verschweißzeit eine Reduktion der Dicke auf. Dies deutet auf ein Kollabieren der Schaumstruktur des Kerns durch zu hohe Temperaturen hin. Für diese beiden Parameter wurden gemessene Temperaturen von über 170 °C erreicht, was verglichen mit den thermischen Eigenschaften der Schaumstruktur zu einem vollständigen Aufschmelzen der kristallinen Bereiche führt. Die obere Grenze des Materials für die Prozessierung muss somit unterhalb dieser Temperatur liegen. Durch diese Schädigung des Materials im Inneren wird die ursprüngliche Schaumstruktur signifikant geändert, was die mechanischen Eigenschaften der Bauteile beeinflusst. Gerade auf Druckbeanspruchung wird dadurch ein negativer Effekt erwartet. Die Referenzprobe aus der dampfbasierten Verarbeitung zeigt eine homogene Verschweißung über den kompletten Querschnitt, da der Wasserdampf mit einer konstanten Temperatur in das Werkzeug geleitet wird. Im Vergleich zu den mittels RF-Technologie verarbeiteten Prüfkörpern sind hier die Grenzflächen zwischen den einzelnen Partikeln noch deutlich zu erkennen. Dies deutet auf kein vollständiges Aufschmelzen der kristallinen Bereiche hin, wodurch die ursprüngliche Schaumstruktur erhalten bleibt und optimale mechanische Eigenschaften zu erwarten sind.

Die Ergebnisse der Oberflächenqualität und des Querschnitts zeigen deutlich die Herausforderung der RF-Technologie durch die inhomogene Temperaturverteilung. Das optimale Temperaturfenster, welches durch eine unzureichende Verschweißung nach unten und ein Kollabieren des Schaumstruktur nach oben begrenzt ist, kann so nicht komplett eingehalten werden. Dies resultiert entweder in einer guten Kernverschweißung mit schlechter Oberflächenqualität oder in einer annehmbaren Oberfläche bei Schädigung der Kernzone.

5.2.2.2. Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften unter Zugbeanspruchung

Neben der Oberflächenqualität sind die mechanischen Eigenschaften entscheidend für die möglichen Anwendungen der mittels RF-Technologie hergestellten Bauteile. Wie zuvor erläutert wurde, werden diese durch das Zusammenspiel aus den Eigenschaften der zellulären Struktur und der Qualität der Anhaftung der einzelnen Partikel zueinander bestimmt. Um die Verschweißung zwischen den Grenzflächen zu untersuchen, wurden klassische Zugversuche durchgeführt. Pro Parametersatz wurden jeweils mindestens fünf gültige Prüfungen ausgewertet. Die Ergebnisse der bei 6 kV hergestellten Prüfkörper sind in Abbildung 56 zusammen mit der SCM-Referenz bei einer vergleichbaren Dichte dargestellt.

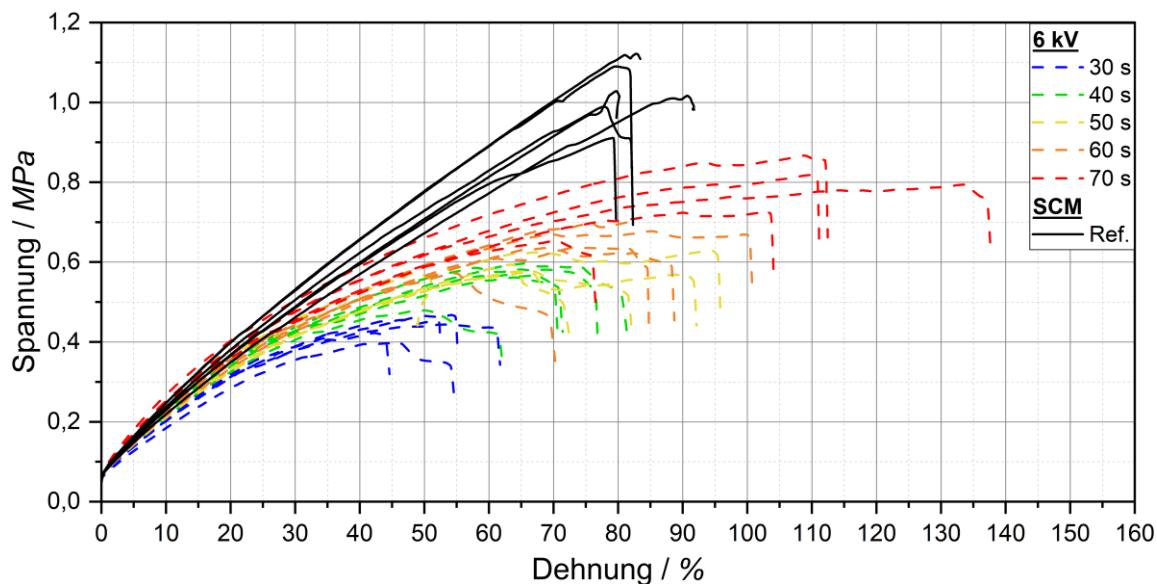


Abbildung 56: Spannungs-Dehnungs-Kurven der einzelnen Zugversuche der Proben bei 6 kV inklusive der Referenz aus dem SCM bei vergleichbarer Dichte

Trotz des konstant eingewogenen Gewichtes der Schaumpartikel weicht die Dichte der hergestellten Prüfkörper durch leichte Variationen der Plattendicke geringfügig ab. Die nachträgliche Umverteilung der Polymermatrix würde so durch die Normierung der Kraft auf die unterschiedlichen Querschnittsflächen zu Spannungswerten mit geringer Aussagekraft führen. Daher wurde die Spannung steht auf eine konstante Querschnittsfläche mit einer Dicke von 10 mm angepasst. Am Anfang des Zugversuchs ist zunächst die geringe Vorkraft auf den Prüfkörpern von 5 N zu erkennen. Danach kommt es mit steigender Dehnung zu einem stetigen Anstieg der Spannung durch den Widerstand des Materials gegen die Deformation. Bei geringen Dehnungen ist ein vergleichbarer Verlauf der Spannung bei allen Prüfkörpern zu erkennen. Oberhalb von ca. 20 % Dehnung flachen die Kurven der mittels RF-Technologie hergestellten Prüfkörper jedoch deutlich ab. Ein ähnliches Verhalten ist auch bei den Prüfkörpern bei 8 kV in Abbildung 57 zu erkennen.

Diese abweichende Charakteristik in der Spannungs-Dehnungs-Kurve kann entweder durch geometrische Effekte oder durch eine Veränderung des Grundmaterials ausgelöst werden. Während der Deformation der Partikelschaum-Bauteile kommt es gerade bei niedrigen Zeiten und dadurch unzureichender Oberflächenqualität zu einer oberflächennahen Ablösung der Grenzflächen (Abbildung 58).

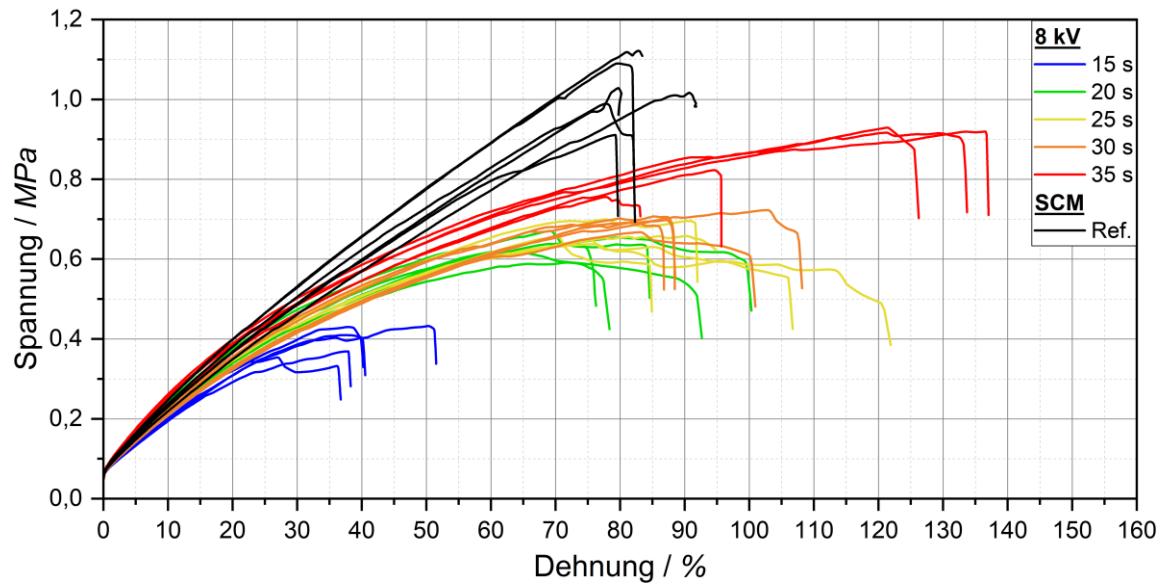


Abbildung 57: Spannungs-Dehnungs-Kurven der einzelnen Zugversuche der Proben bei 8 kV inklusive der Referenz aus dem SCM bei vergleichbarer Dichte

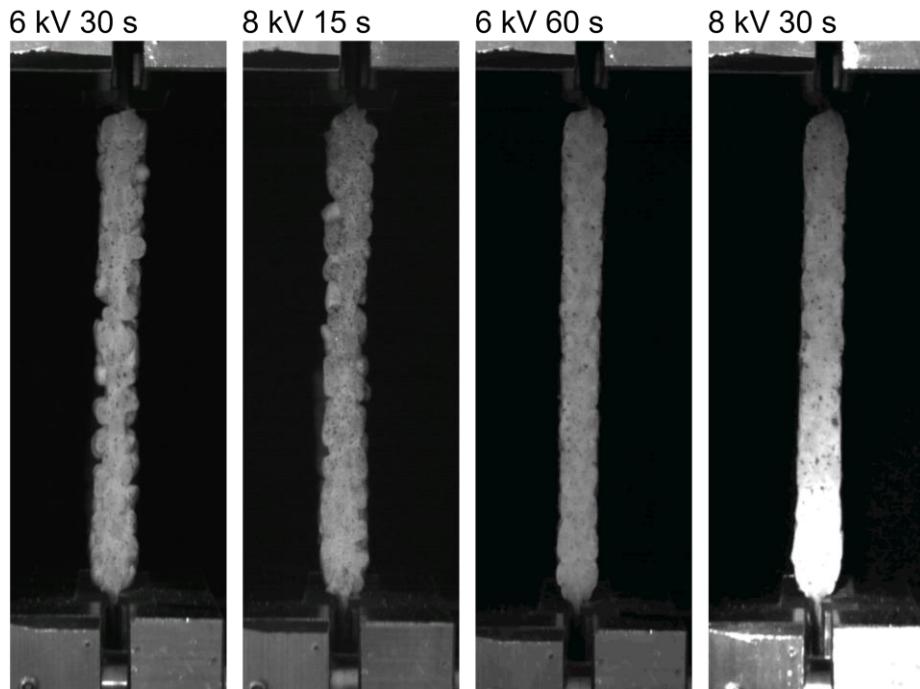


Abbildung 58: Vergleich der seitlichen Ansicht von Prüfkörpern hergestellt unter verschiedenen Verschweiß-Parametern bei gleicher Dehnung

Die deutlich sichtbaren Risse reduzieren die effektive Dicke der Probe, welche Last unter der Verstreckung aufnehmen kann, deutlich. Diese Abnahme der Querschnittsfläche führt zu einer Reduktion der scheinbaren Spannung und somit zum Abflachen der Kurve. Die tatsächliche Spannung in den restlichen Bereichen des Prüfkörpers liegt dabei deutlich höher als die gemessenen Werte. Die bessere Oberflächenqualität der Prüfkörper bei längeren Zeiten der Verschweißung kann diesen Effekt teilweise verhindern, wodurch erste Risse erst später auftreten

und der Abfall der Spannungskurve hin zu höheren Dehnungen verschoben ist. Die schlechte Verschweißung der oberflächennahen Bereiche lässt sich zudem in den Bruchflächen der geprüften Zugstäbe erkennen. Bei niedrigen Verschweißzeiten wird die notwendige Temperatur für ein Aufschmelzen und Rekristallisieren der Bereiche in den Grenzflächen zwischen den Schaumpartikeln nicht erreicht. Die Anhaftung ist somit niedriger als die Festigkeit der inneren Schaumstruktur, wodurch es zu einem Versagen zwischen den Partikeln kommt (Abbildung 59).

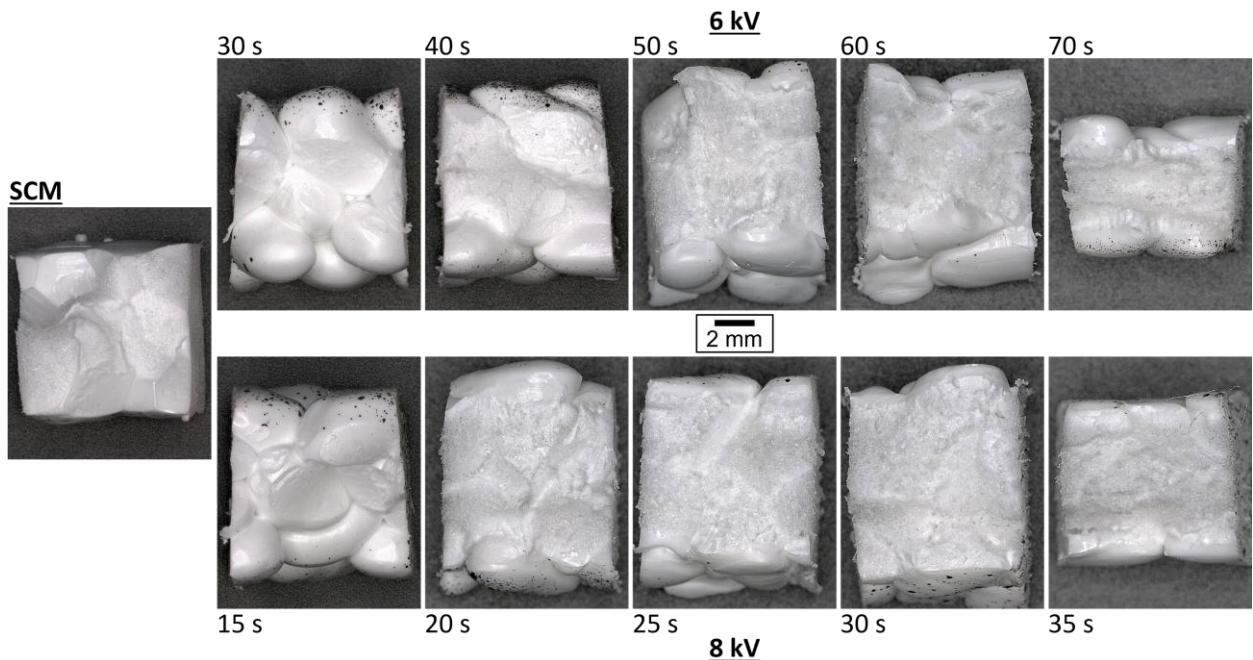


Abbildung 59: Darstellung der repräsentativen Bruchflächen der Prüfkörper aus dem RF-Verfahren bei 6 und 8 kV bei unterschiedlichen Verschweißzeiten sowie der SCM-Referenz

Mit steigender Zeit nimmt dieser Bereich nahe der Oberfläche immer weiter ab, was auf die höheren Temperaturen und die dadurch bessere Verschweißung hindeutet. Auch bei den längsten Zeiten ist ein oberflächennahes Versagen zwischen den Partikeln trotz des Kollabierens des Kerns noch zu erkennen. Dies zeigt wieder die Herausforderung der RF-Technologie, ausgelöst durch die inhomogene Temperaturverteilung, auf. Im Vergleich dazu kommt es in der SCM-Referenz zu einem hauptsächlichen Versagen innerhalb der Schaumstruktur, wodurch die maximale Festigkeit dieser ausgenutzt werden kann. Lediglich in kleineren Bereichen ist ein Versagen der Grenzfläche sichtbar, was auf eine Auswahl der Dampfparameter nahe dem Optimum hindeutet. Die Charakteristik der Bruchflächen ist zudem in den erreichten Zugfestigkeiten in Abbildung 60 erkennbar.

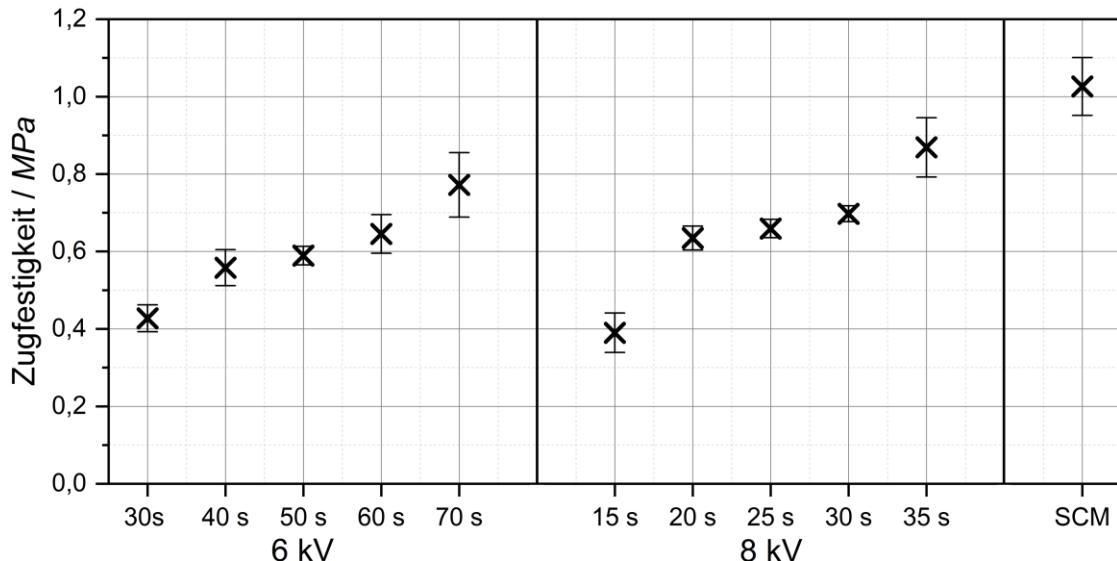


Abbildung 60: Zugfestigkeit der mittels RF verschweißten Prüfkörper und einer Referenz aus SCM bei einer vergleichbaren Dichte

Die unzureichende Verschweißung über die komplette Dicke der Prüfkörper bei den jeweils niedrigsten Zeiten führt zu einer deutlich reduzierten Zugfestigkeit. Ab 40 s für 6 kV und 20 s für 8 kV bildet sich im Kern der Bauteile ein deutlicher Bereich mit einem Veränderung der Schaumstruktur aus. Die generell höheren Temperaturen führen zu einem Anstieg der Zugfestigkeit, welche anschließend für die mittleren Zeiten nur noch leicht ansteigt. Dieser Anstieg geht wiederum einher mit einer Verbreiterung der inneren Zone und einer Verbesserung der Oberflächenqualität, was die Rissinitiierung vermindert. Für beide Maximalspannungen wird daher bei der längsten Zeit von 70 und 35 s der höchste Wert der Zugfestigkeit erreicht. In beiden Fällen kommt es jedoch zum Kollabieren der inneren Schaumstruktur. Trotz der hohen Zugfestigkeit kann diese Veränderung der Schaumstruktur einen negativen Einfluss auf andere mechanische Eigenschaften oder die Wärmeleitfähigkeit haben. Die homogenere Verschweißung der Probe bei 8 kV durch das reduzierte Abfließen von Temperatur in das Werkzeug führt hier ebenso zu der höchsten Zugfestigkeit aller RF-Prüfkörper. Allgemein zeigen die Ergebnisse geringe Standardabweichungen, was die Reproduzierbarkeit des Verfahrens und die Homogenität über die Fläche der hergestellten Platten herausstellt. Im Vergleich zu den Referenzplatten aus der dampfbasierten Herstellung können jedoch auch bei den optimierten Parametern keine vergleichbaren Zugfestigkeiten erzielt werden. Neben der zuvor bereits beschriebenen Thematik der unzureichenden Oberflächenverschweißung, kann die hohe Temperatur im Kern der Platte zu einer Veränderung des Materials führen. Um dies zu evaluieren, wurden neben den ursprünglichen Schaumpartikeln auch DSC-Messungen der mittels RF-Technologie verschweißten Platten und der SCM-Referenz durchgeführt. Die ursprünglichen Schaumpartikel zeigen dabei einen breiten Schmelzbereich mit vier charakteristischen Peaks auf, wie in Abbildung 61 zu sehen ist.

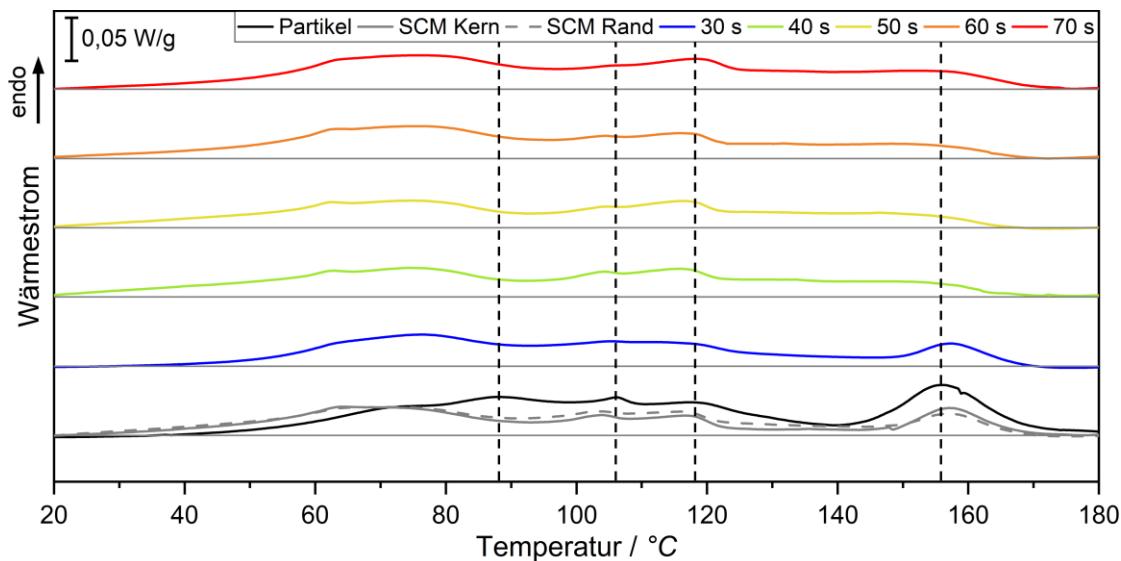


Abbildung 61: DSC-Kurven der ursprünglichen Partikel, des Kerns und des Rands der SCM-Referenz sowie der mittels RF verschweißten Platten bei 6 kV

Die Messungen des Kerns und des Randbereichs der SCM-Referenz zeigen zunächst ein vergleichbares Bild, was wiederum auf die gleichmäßige Temperaturverteilung hindeutet. Verglichen mit den ursprünglichen Partikeln, kommt es zu einer deutlichen Veränderung der Kurve durch die neue thermische Historie bei der Verarbeitung zum dreidimensionalen Bauteil. Die drei Peaks bei den niedrigeren Temperaturen verändern sich dabei deutlich, was auf ein Aufschmelzen dieser mit geänderter Rekristallisation während der Abkühlung hindeutet. Die beiden mittleren Peaks scheinen sich in leicht abgeänderter Form wieder während des Abkühlvorgangs zu bilden. Zudem entsteht ein neuer Peak bei niedrigen Temperaturen knapp oberhalb von 60 °C. Die Veränderungen deuten darauf hin, dass die Temperatur während der Verarbeitung oberhalb des veränderten Bereichs liegen muss. Der letzte Hochtemperatur-Peak bei ca. 155 °C, welcher für die strukturelle Integrität der Schaumstruktur relevant ist, findet sich auch nach der Verarbeitung wieder. Bei einer näheren Betrachtung ist jedoch eine geringe Verschiebung des Peaks hin zu höheren Temperaturen zu erkennen. Dies kann entweder durch ein teilweises Aufschmelzen des unteren Bereichs oder durch eine Kristallperfektionierung ausgelöst werden. Unabhängig von dem zugrundeliegenden Effekt werden hierfür Temperaturen nahe des verschobenen Peaks benötigt, wodurch die maximal erreichte Temperatur während der Verarbeitung eingeschätzt werden kann. Wie in Kapitel 5.1.4 bereits evaluiert wurde, wird das Temperaturfenster zur optimalen Verschweißung der Schaumpartikel durch diesen ausgeprägten Schmelze-Peak bei ca. 155 °C nach oben hin limitiert. Die homogene Temperaturlösung in der dampfbasierten Verarbeitung erlaubt eine vereinfachte Annäherung an diesen Schwellenwert ohne ein lokales Überschreiten. Bei den mittels RF-Technologie hergestellten Prüfkörpern wurde auf die Darstellung der Analyse der Randschicht verzichtet, da die lokal signifikant abweichenden Temperaturen im oberflächennahen

Bereich während der Verarbeitung zu einem starken Einfluss der Probenpräparation führen. Für den Kern hingegen ist sowohl bei 6 als auch bei 8 kV (Abbildung 62) eine ähnliche thermische Charakteristik bei der jeweils niedrigsten Verschweißzeit erkennbar.

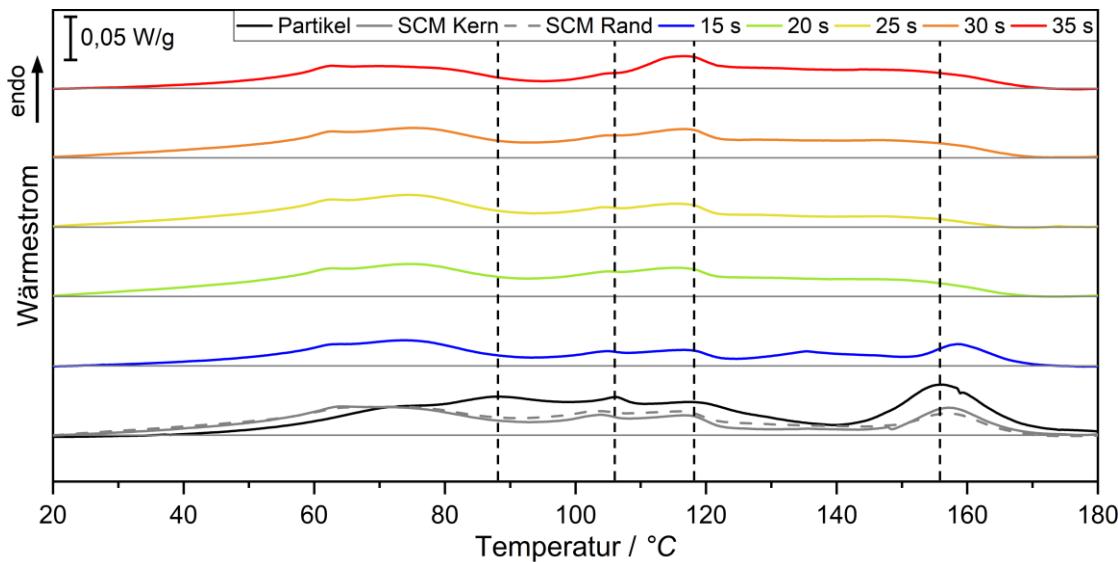


Abbildung 62: DSC-Kurven der ursprünglichen Partikel, des Kerns und des Rands der SCM-Referenz sowie der mittels RF verschweißten Platten bei 8 kV

Analog zu den SCM-Prüfkörpern kommt es zu einer deutlichen Veränderung des Schmelzbereichs bei niedrigeren Temperaturen und zur Ausbildung des neuen Peaks bei ca. 63 °C. In beiden Fällen ist der Hochtemperatur-Peak weiterhin zu erkennen und leicht hin zu höheren Temperaturen verschoben. Im Kern des Bauteils wurde somit eine Temperatur im Bereich der 150 °C erreicht. Verglichen mit den gemessenen Temperaturen aus Abbildung 50 liegt der Wert dadurch signifikant höher, was erneut auf die thermische Trägheit des Temperatursensors hindeutet. Bei diesen Parametern ist somit lediglich für das Zentrum eine gute Verschweißqualität zu erwarten, welche in Richtung der Oberfläche deutlich abnimmt. Bei einer Erhöhung der Zeit bleibt der untere Bereich der DSC-Messungen nahezu unverändert. Die Rekristallisation scheint daher durch einen weiteren Temperaturanstieg nicht verändert zu werden. Der zuvor verschobene Peak am oberen Ende des Schmelzbereichs ist nun jedoch nicht mehr detektierbar. Dies deutet auf eine Maximaltemperatur während der Verarbeitung von über 160 °C hin, was wiederum signifikant über den gemessenen Werten liegt. Für beide Spannungen sind bei weiterer Erhöhung der Zeit nur noch minimale Änderungen sichtbar. Die Analyse der thermischen Historie der verarbeiteten Prüfkörper mittels DSC bietet somit die Möglichkeit eine Aussage über die mindestens erreichten Temperaturen während der vorangegangenen Verarbeitung zu treffen.

Die mechanischen Eigenschaften der mittels RF-Technologie verarbeiteten Prüfkörper werden somit eindeutig von zwei temperaturabhängigen Faktoren limitiert. Zum einen führt das kühle

Werkzeug zu einer unzureichenden Verschweißung der oberflächennahen Schaumpartikel, wodurch der lasttragende Querschnitt der Probe verringert wird und erste Risse initiiert werden. Des Weiteren kommt es bereits bei geringen Verschweißzeiten zu einem vollständigen Aufschmelzen der kristallinen Bereiche des Materials im Kernbereich. Dies führt neben der Veränderung der zellulären Struktur zu einer neuen Kristallstruktur, welche sich in den mechanischen Eigenschaften zum Ursprungsmaterial unterscheiden kann. Für die Herstellung von hochqualitativen Bauteilen sind somit Maßnahmen zur Optimierung der Temperaturhomogenität erforderlich, um mit der dampfbasierten Technologie in Konkurrenz zu treten.

5.3. Aufbau eines digitalen Zwillings mittels multiphysikalischer Simulation

Wie in den vorherigen Kapiteln aufgezeigt wurde, kann die Interaktion des RF-Prozesses mit dem Material direkten über die grundlegenden physikalischen Prinzipien der dielektrischen Erwärmung und der Wärmeleitung korreliert werden. Die dadurch generierte Temperaturverteilung über das Bauteil hinweg ist ausschlaggebend für die resultierende Verschweißung zwischen den Schaumpartikeln, welche wiederum die mechanischen Eigenschaften des Bauteils bestimmt. Die im Schaum anliegende Temperatur ist jedoch aufgrund der thermischen Trägheit des faseroptischen Sensors nicht direkt ermittelbar, was eine detaillierte Korrelation mit dem Verschweißverhalten der Schaumpartikel erschwert. Um eine tiefgreifende Evaluation der Material-Prozess-Interaktion zu ermöglichen und zukünftige Entwicklungsprozesse zu beschleunigen, wurde ein digitaler Zwilling auf Grundlage einer numerischen multiphysikalischen Simulation aufgebaut. Die Validierung des Modells erfolgt anschließend über den Vergleich mit den im realen Prozess ermittelten Kenngrößen.

5.3.1. Erarbeitung der grundlegenden Simulations-Umgebung

Für eine simulative Abbildung des RF-Prozesses bis hin zur Vorhersage der mechanischen Eigenschaften müssen mehrere physikalische Modelle verknüpft werden. Das Vorgehen kann primär in zwei Abschnitte unterteilt werden. Zunächst erfolgt die Simulation des Verschweißprozesses innerhalb der RF-Anlage durch die Koppelung eines elektrischen mit einem thermischen Modell. Diese Kombination ermöglicht die dielektrische Erwärmung des Materials im elektromagnetischen Feld sowie die Wärmeentwicklung und dessen Verteilung über die Zeit zu betrachten. In Abhängigkeit der lokal erreichten Maximaltemperatur wird die Verschweißqualität

einbezogen, welche in anschließenden Zugversuchen eine Vorhersage der mechanischen Eigenschaften erlaubt.

5.3.1.1. Elektro-thermische Simulation

Der erste Schritt der simulativen Abbildung des RF-Prozesses ist das elektro-thermische Modell, welches die Vorgänge während der Verarbeitung der Schaumpartikel innerhalb der RF-Anlage darstellt. Für eine realitätsnahe Darstellung werden zunächst die geometrischen Aspekte des realen Aufbaus in das Modell eingepflegt. Das dadurch generierte dreidimensionale Modell ist in Abbildung 63 zu sehen.

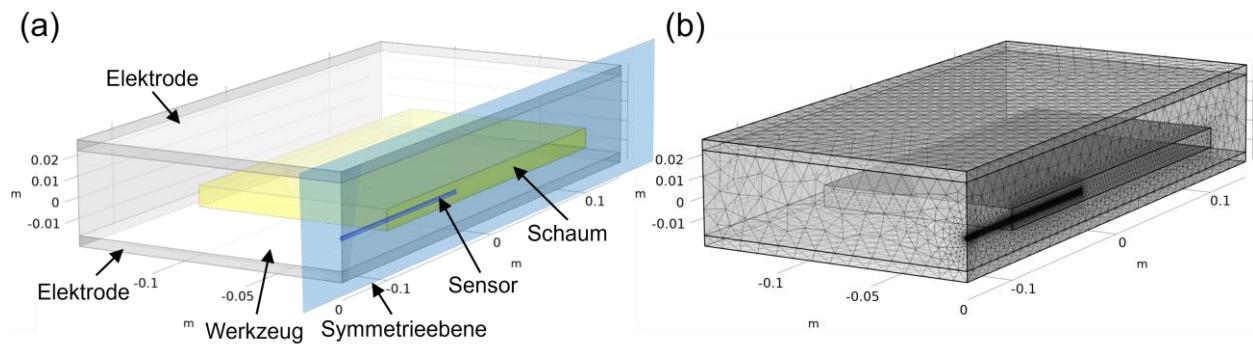


Abbildung 63: Dreidimensionales Modell der elektro-thermischen Simulation mit den individuellen Bereichen und der genutzten Symmetrieebene (a) und Modell nach dem Schritt der Vernetzung (b)

Wie in Abbildung 21 bereits dargestellt wurde, besteht der allgemeine Aufbau hauptsächlich aus den beiden Elektroden, dem Werkzeug und dem Schaum darin. Die Abmaße wurden dabei identisch zu den realen Geometrien gewählt. Sowohl das Werkzeug als auch die obere Elektrode wird in der Simulation jedoch zur Vereinfachung als ein jeweils zusammenhängendes Volumen angenommen, welches den Zustand bei geschlossenem Werkzeug während des kompletten Verschweißprozesses darstellt. Der faseroptische Temperatursensor wird, analog zum realen Pendant, durch eine mittige Öffnung im Werkzeug auf halber Höhe des Schaums modelliert. Der Sensor wird zur Vereinfachung nach den realen Abmaßen als PTFE-Zylinder mit einem Durchmesser von 1,78 mm abgebildet. In der Spitze des Sensors befindet sich ein Kern aus Gallium-Arsenid, dessen Lichtreflektion sich über die Temperatur ändert. Dieser Kern wurde ebenfalls modelliert und zur Temperaturmessung über den Durchschnitt des Volumens herangezogen. Da die benötigte Rechenzeit in direktem Zusammenhang mit der Anzahl an finiten Elementen steht, wurde das Modell durch die Symmetrieebene entlang des Sensors halbiert. Dies beschleunigt die Lösung des Modells, ohne die Genauigkeit zu beeinflussen. Als elektrische Randbedingungen wurde neben der Symmetrieebene eine elektrische Isolation rund um das

Werkzeug angenommen. Zur Erzeugung des Wechselfeldes wird die untere Elektrode als Erdung definiert und der obere aktive Gegenspieler mit einer vorgegebenen Spannung beaufschlagt. Die Spannungskurve über die Zeit wird dabei direkt von den realen Versuchen importiert. Auf Seiten der thermischen Simulation wurde ebenfalls eine Isolation als Randbedingung des Modells gewählt. Dies vernachlässigt die in der Realität auftretenden konvektiven Verluste an den Oberflächen des Werkzeugs und der Elektroden. Dies ist jedoch aufgrund der deutlich höheren thermischen Masse im Vergleich zum Schaumvolumen nicht relevant, da es nur zu einer minimalen Erwärmung der äußeren Oberfläche kommt. Die Anfangstemperaturen wurden ebenfalls anhand der gemessenen Werte vor den Versuchen auf 27 °C für den Schaum und den Sensor sowie auf 40 °C für das Werkzeug und die Elektroden festgelegt.

Zur Bestimmung der adäquaten Elementgröße wurde eine vorgelagerte Vernetzungs-Studie mit tetraedrischen Elementen durchgeführt bis keine Änderungen der Ergebnisse durch eine weitere Verfeinerung erkennbar waren. Die finale Diskretisierung ist in Abbildung 63 (b) zu erkennen. Entscheidend sind hierbei das feinere Netz des Sensors sowie des Schaumvolumens, um eine möglichst hohe Qualität der Simulation ohne eine Inflation des Berechnungsaufwandes zu erreichen. Um lokale Verzerrungen durch eine inhomogene Vernetzung zu verhindern, wurde der Schaum mit einer konstanten Elementgröße von 2 bis 3 mm diskretisiert. Dies resultiert in einem Modell bestehend aus 283.296 individuellen Elementen. Über die Simulationsdauer des Prozesses von 100 s wurden so Berechnungszeiten von ca. 1,5 Stunden pro Simulation erzielt. Dieses Vorgehen ermöglicht somit bei der längsten Verschweißzeit von 70 s eine Betrachtung des initialen Abkühlungsverhaltens.

Als Materialmodelle wurden für das Aluminium der Elektroden und das Gallium-Arsenid des Sensors bereits implementierte Modelle innerhalb der Software genutzt. Für PTFE wurde die Dichte sowie die temperaturabhängige Wärmeleitfähigkeit gemessen und das Modell mit den restlichen Werten aus einem Datenblatt aufgefüllt [190]. Die Eigenschaften des ETPU-Schaums bei der definierten Dichte nach Kompression innerhalb des Werkzeugs wurden hauptsächlich durch die in den vorherigen Kapiteln beschriebenen Ergebnissen ermittelt. Lediglich die elektrische Leitfähigkeit, welche durch den isolierenden Charakter des Polymers nahezu vernachlässigbar ist, wurde anhand eines Datenblatts ermittelt [196].

Als numerische Aufgabenstellung wurde ein vordefinierter frequenz-transienter Typ ausgewählt. Dieser erlaubt die Betrachtung unter einer definierten Frequenz des Wechselfeldes von 27,12 MHz sowie die zeitabhängige Entwicklung. Zum Lösen der mathematischen Gleichungen wurde ein impliziter, zeitabhängiger „solver“ auf Basis der BDF-Methode („backward differentiation

“formula”) ausgewählt, welcher gerade für multiphysikalische Simulationen verwendet wird. Die zeitliche Schrittweite wurde auf maximal 0,5 s festgelegt, um zeitliche Änderungen der Input-Parameter und Materialeigenschaften bestmöglich zu berücksichtigen. Die Koppelung der elektrischen und thermischen Teilmodelle erfolgt über einen segregierten Lösungsansatz mit einer Aufteilung in die beiden getrennten Simulationen. Diese wurden jeweils für jedes Zeitintervall individuell gelöst, wodurch das elektromagnetische Feld über die dielektrische Erwärmung als Hitzequelle für die thermische Analyse fungiert und die Materialeigenschaften daraufhin temperaturabhängig angepasst werden können.

Zur Bestimmung der Leistung wird das Integral der volumetrischen, dielektrischen Verlustdichte über das Volumen des Aufbaus herangezogen. Die Temperaturen werden über den Durchschnitt des Gallium-Arsenid Kerns sowie durch direkt im Schaum platzierte Messpunkte vom Zentrum (0 mm) bis hin zur Oberfläche (5 mm) in 1 mm Schritten ermittelt.

5.3.1.2. Mechanische Simulation

Der zweite Teil des digitalen Zwillings ist die Vorhersage der mechanischen Eigenschaften auf Grundlage der Verschweißqualität. Das Verhalten eines Partikelschaums unter Zugbeanspruchung wird dabei durch die Eigenschaften des Schaumvolumens innerhalb der Partikel und deren Anhaftung zueinander bestimmt. Für eine realitätsnahe Abbildung dieser Phänomene wird zunächst eine Tessellation anhand der zuvor ermittelten Größenverteilung und anhand der Form der ETPU-Partikel durchgeführt. Die so zufällig entstandene Aufteilung eines Prüfkörpers anhand der realen Grundlage ist in Abbildung 64 (a) zu sehen.

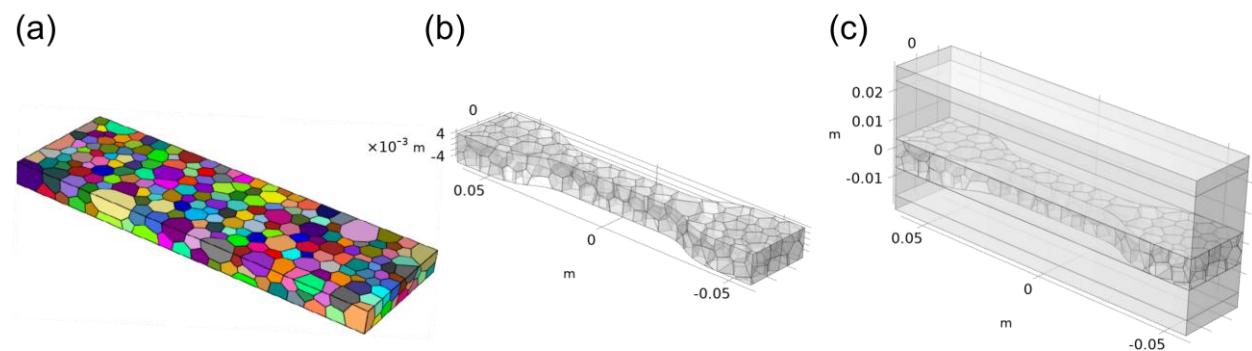


Abbildung 64: Tessellierte Partikelschaum-Platte (a), ausgeschnittener Zugprüfkörper (b) und kompletter Simulationsaufbau mit Werkzeug und Elektroden (c)

Diese tessellierte Geometrie wird anschließend in die Simulations-Software importiert. In Anlehnung an die Norm DIN EN ISO 1798 wird ein Zugstab aus der Platte mit der Prüfkörpergeometrie 1A, analog zu den realen Zugversuchen, virtuell ausgeschnitten. Eine

Übertragung der generierten Temperaturen aus der vorherigen elektro-thermischen Simulation des gesamten Aufbaus ist jedoch nicht möglich. Deswegen wird ein Ausschnitt aus dem kompletten Aufbau der Elektroden, des Werkzeugs und des Schaums erneut modelliert. Zur geometrischen Vereinfachung werden die herausgeschnittenen Volumen neben dem mittleren Bereich des Zugstabs für das elektro-thermische Modell wieder zu einem vollständigen Quader aufgefüllt. Da die Tessellation hier keinen Einfluss auf die Ergebnisse hat, wird diese Aufteilung für die Füllstücke nicht durchgeführt. Vor der mechanischen Simulation wird so zunächst erneut eine elektro-thermische Simulation für den Ausschnitt des Werkzeugs mit den exakt gleichen Bedingungen wie zuvor für den kompletten Aufbau durchgeführt. Auftretende Effekte im Randbereich der Platten werden so nicht berücksichtigt. Die Elementgröße wurde für den tessellierten Zugstab auf 1,3 bis 2,0 mm festgelegt, was gerade für die Rissausbreitung zwischen den Partikeln in der späteren mechanischen Simulation entscheidend ist. Das linear-elastische Materialmodell der Schaumpartikel wurde um den dehnungsabhängigen Elastizitätsmodul, die maximale Zugfestigkeit und die Querkontraktionszahl erweitert. Diese Parameter werden aus den zuvor aufgezeigten realen Zugversuchen der mittels Dampf verschweißten Prüfkörper unter der Annahme einer nahezu optimalen Verschweißung ermittelt.

Die Implementierung der lokal unterschiedlichen Anhaftungen der Partikeloberflächen zueinander erfolgt durch ein sogenanntes „*thin layer*“-Modell als Grenzfläche der Partikel zueinander. In Anbetracht der ungeschäumten Außenhaut der Partikel wurde eine Dicke von 8 µm pro Partikel festgelegt. Der Elastizitätsmodul des TPU-Vollmaterials und dessen Querkontraktionszahl wird anhand eines Datenblatts sowie mittels einer Literaturquelle bestimmt [197,198]. Die Verschweißqualität wird mit den erreichten maximalen lokalen Temperatur während der Verarbeitung der Partikel in der elektro-thermischen Simulation korreliert. Dies erfolgt über die temperaturabhängige Festigkeit dieser Grenzfläche. Diese Festigkeit kann bis zu einer Temperatur von 140 °C mittels des Bead-to-Bead Verfahrens bestimmt werden, bevor es zum Versagen der Schaumstruktur kommt. Unter komplettem Aufschmelzen der kristallinen Bereiche und anschließender Kristallisation ist jedoch eine vollständige Heilung der Grenzfläche zu erwarten. Bei Temperaturen von über 170 °C wird so von einem kompletten Aufschmelzen und dadurch einer Vollständigen Heilung der Grenzfläche ausgegangen. Die Festigkeit der verschweißten Volumen besitzt somit die Werte des Vollmaterials des Polymers. Der Anstieg der Festigkeit zwischen 140 und 170 °C wurde dadurch direkt mit dem Anteil an aufgeschmolzenen Kristalliten korreliert. Für eine quantitative Kurve wurde der Festigkeitsanstieg mit dem Integral der Schmelzenthalpie über die Temperatur in einen linearen Zusammenhang gebracht.

Die maximale Festigkeit der beiden Phasen wurde durch ein aktives Schadensmodell in der Simulation berücksichtigt. Der virtuelle Zugversuch erfolgt über das Fixieren eines Endes des Zugstabs und dem Aufbringen einer definierten Deformation auf der gegenüberliegenden Seite bis zum Versagen des Prüfkörpers. Hierfür wird eine stationäre Parameterstudie bis zu einer maximalen Deformation von 80 mm in Schritten von 2 mm genutzt. Die relative Toleranz der Studie ist auf 0,01 festgelegt.

Die Bestimmung der Dehnung wird innerhalb des mittleren linearen Bereichs des Zugstabs über die Verschiebung zweier definierter Punkte im Abstand von 40 mm bestimmt. Für die Ermittlung der Kraft wird das Integral des Spannungstensors in Zugrichtung über der Fläche ermittelt, über welche die Deformation aufgebracht wird. Die technische Spannung wird anschließend durch die Normierung auf die Querschnittsfläche des Ausgangszustandes von 10 mm^2 berechnet.

5.3.2. Ergebnisse der elektro-thermischen Simulation

Im ersten Abschnitt des digitalen Zwillings erfolgt die Simulation der Material-Prozess-Interaktion während der Verschweißung innerhalb der RF-Anlage. Die Potentialdifferenz zwischen der oberen aktiven und der unteren passiven Elektrode führt zur Ausbildung eines elektromagnetischen Wechselfeldes. In der Simulation wird jedoch nur das relevante elektrische Feld berechnet, welches zur vereinfachten Kalkulation als statisches Feld angesehen wird. Die Verteilung des elektrischen Feldes innerhalb eines Mehrphasensystems ist jedoch nicht homogen, sondern wird durch geometrische Aspekte und durch die relative Permittivität der Volumina beeinflusst. Wie in Abbildung 65 (a) am Anfang des Prozesses nach 5 s zu sehen ist, weicht die Feldstärke dabei lokal in beiden Richtungen von dem theoretischen Wert ($2,83 \times 10^5 \text{ kV/m}$) ab. Im Bereich des ETPU-Bauteils ist eine deutlich erhöhte Feldstärke zu erkennen. Dieser mittlere Bereich kann dabei analog einer Serienschaltung von Kondensatoren angesehen werden. Die abfallende Spannung und dadurch die Feldstärke wird durch die Permittivität der einzelnen Bereiche in Relation zueinander beeinflusst. Zu Beginn der Erwärmung liegt die Permittivität der Schaumpartikel deutlich unterhalb der Permittivität des PTFE-Werkzeugs von ca. 2,1. Dies führt zu einem verstärkten Spannungsabfall über den Bereich des Partikelschaums und dadurch zu einer Reduktion der Feldstärke im Werkzeug im Vergleich zum theoretisch kalkulierten Wert. An den Rändern des Bauteils kommt es zu einer Verzerrung des Feldes in Richtung des Werkzeuges durch die relativ betrachtet höhere Permittivität. Die Feldstärke im Randbereich des Schaums wird somit reduziert. Nach 30 s ist durch die dielektrische Erwärmung eine deutliche Erhöhung der Temperatur in Abbildung 66 (b) sichtbar.

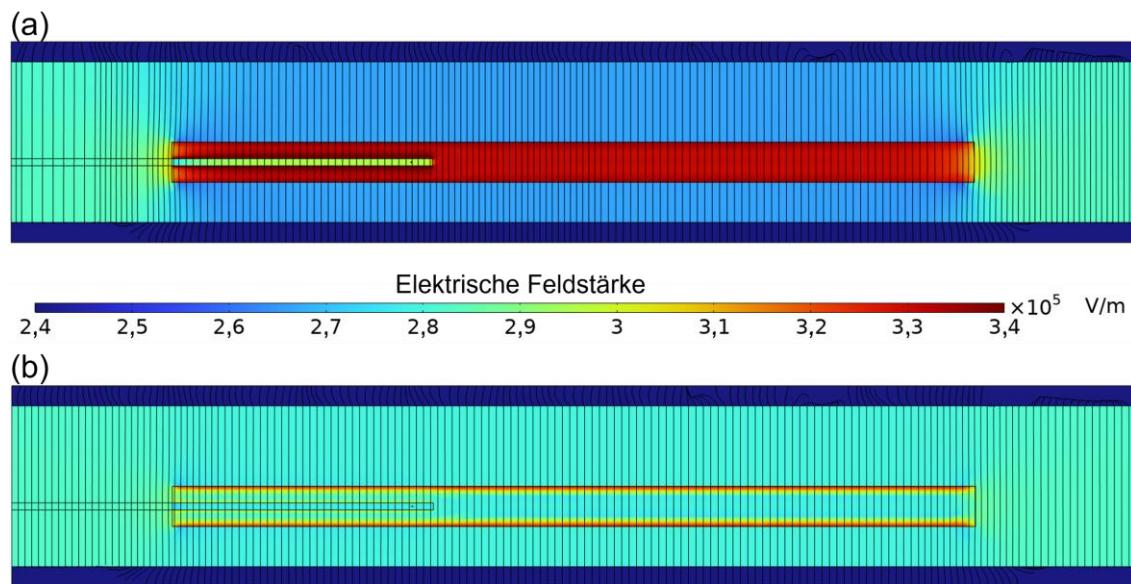


Abbildung 65: Verteilung der elektrischen Feldstärke inklusive Feldlinien nach 5 s (a) und 30 s (b) über den Querschnitt für den Versuch bei 8 kV und 35 s

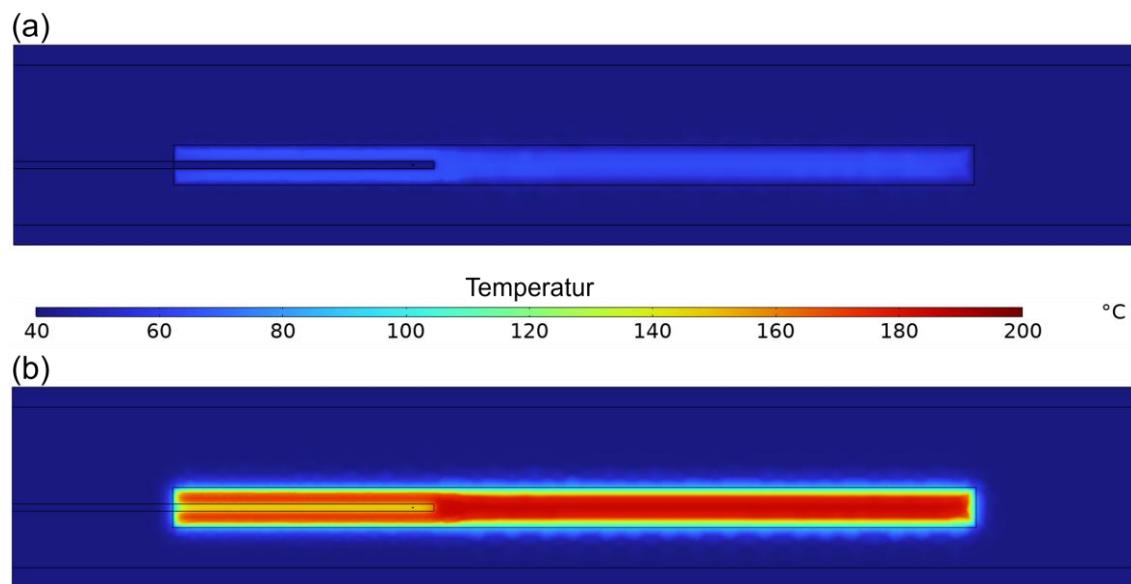


Abbildung 66: Verteilung der Temperatur nach 5 s (a) und 30 s (b) über den Querschnitt für den Versuch bei 8 kV und 35 s

Durch die Erwärmung steigt die Permittivität des Schaumkerns an und erreicht bei Temperaturen von ca. 180 °C die Permittivität des PTFE-Werkzeugs. Dieses Angleichen der Eigenschaften führt zu einem ähnlichen Spannungsabfall über den Bereichen und somit annähernd gleichen Feldstärken, wie in Abbildung 65 (b) zu erkennen ist. Die abweichenden Eigenschaften des Bauteils resultieren somit direkt in einer veränderten Feldstärke des Werkzeugs. Lediglich die Oberfläche des Bauteils, welche durch das Werkzeug gekühlt wird, besitzt noch eine niedrigere Permittivität, wodurch die Feldstärke hier immer noch erhöht bleibt. Die Erhöhung der Feldstärke

im Zusammenspiel mit dem über die Temperatur abfallenden Imaginärteil, wirkt somit als eine Art selbstregulierender Effekt des Materials. Bereiche mit niedrigeren Temperaturen werden somit stärker erwärmt, was die Homogenität fördert. Trotz dieses selbstregulierenden Effektes ist eine signifikante Inhomogenität in der Temperaturverteilung über die Dicke des Bauteils zu erkennen, was die vorherigen Ergebnisse unterstützt. Auch die thermische Trägheit des Sensors kann deutlich in der Simulation beobachtet werden. Am Rand des Bauteils kommt es bei den höheren Temperaturen des Kerns zu einer leichten Verzerrung des Feldes, welche durch die vergleichbare Permittivität jedoch deutlich geringer ausfällt.

Zur Validierung der Simulationsergebnisse anhand der realen Messdaten wird zunächst die Leistungskurve über die Zeit betrachtet. Wie bereits beschrieben, liefern diese ein direktes Feedback des Prozesses auf die Materialeigenschaften und deren Änderungen über die Zeit. In Abbildung 67 sind die mittels Simulation ermittelten Kurven zusammen mit den realen Ergebnissen dargestellt.

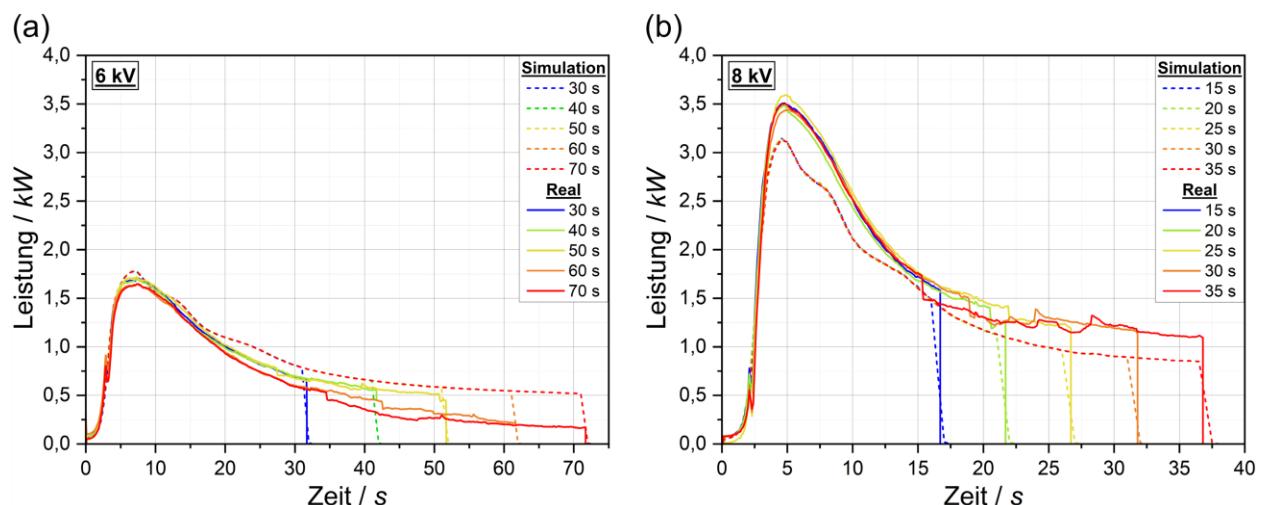


Abbildung 67: Vergleich der Leistung des Generators im realen Versuch mit der Simulation bei unterschiedlichen Verschweißzeiten für 6 kV (a) und 8 kV (b)

Die simulierten Leistungskurven liegen unabhängig von der Verschweißzeit bis zum Abschalten der Spannung direkt übereinander. Für beide Maximalspannungen ist der Verlauf der Kurven mit einem anfänglichen Peak und dem anschließenden Abfall über die Zeit gleich mit den realen Messungen. Auch die erhöhten Werte bei 8 kV im Vergleich zu 6 kV werden korrekt vorhergesagt. Für 6 kV liegen die simulierten Kurven anfangs nahezu gleich mit den realen Versuchen und weichen erst bei längeren Zeiten leicht ab. Diese Abweichung kann durch mehrere Phänomene erklärt werden. Zum einen kommt es hier zu den bereits angesprochenen spontanen Abfällen in den Kurven der realen RF-Versuche, was einen Vergleich erschwert. Auch thermische Effekte innerhalb des Generators über die Zeit können eine Veränderung der Leistung verursachen. Des

Weiteren konnten die dielektrischen Eigenschaften nur bis zu einer Temperatur von 180 °C gemessen werden, was gerade gegen Ende der Erwärmung bei längeren Zeiten überschritten werden kann. Die Extrapolation der Werte hin zu höheren Temperaturen kann hierbei geringe Abweichungen erzeugen.

Die simulierten Leistungen der Versuche bei 8 kV in Abbildung 67 (b) liegen nur etwas unterhalb der realen Messwerte und können den Verlauf der Kurven über die Zeit gut widerspiegeln. Das leicht abweichende Verhalten des digitalen Zwillings zwischen den beiden Maximalspannungen kann durch die Normierung mittels der Leerkurven aufgrund von anlagenspezifischen Effekten erklärt werden. Im Allgemeinen können die Leistungskurven und deren Verläufe über die Zeit unabhängig von den Parametern gut durch die numerische Lösung vorhergesagt werden. Diese Verlustleistung liefert dabei über die dielektrische Erwärmung die direkte Grundlage als Hitzequelle für die thermische Simulation.

Die direkte Validierung der Temperaturentwicklung innerhalb des Schaums ist nur über den modellierten Temperatursensor möglich. Im Vergleich mit den real gemessenen Temperaturkurven weisen die simulierten Daten in Abbildung 68 für eine Maximalspannung von 6 kV einen ähnlichen Verlauf über die Zeit auf.

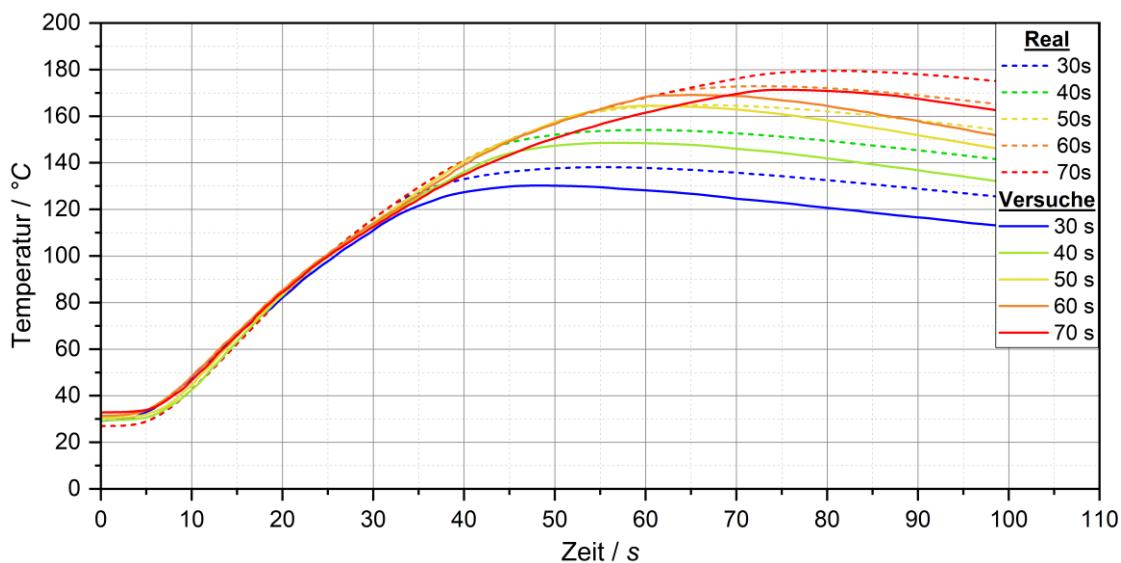


Abbildung 68: Vergleich der gemessenen Temperatur über die Zeit im realen Prozess mit dem simulierten faser-optischen Temperatursensor bei 6 kV

Die Kurven liegen dabei zunächst sehr nahe beieinander und zeigen demnach eine hohe Übereinstimmung während der Erwärmung auf. Die Starttemperatur ist bei den realen Messungen teilweise leicht erhöht. Durch die manuelle Befüllung des Werkzeugs mit den Schaumpartikeln kann die Zeit bis zum Start des Verschweißprozesses leicht abweichen, wodurch die Partikel unterschiedlich lange durch das Werkzeug vorgewärmt werden. Analog zu den realen Versuchen

ist auch in der Simulation die thermische Trägheit des Sensors durch ein verzögertes Erreichen der Maximaltemperatur sichtbar. Die am Höhepunkt erreichten Temperaturen liegen dabei in der Realität meist leicht über den simulierten Werten. Ein Grund hierfür kann die Positionierung des Sensors in der Realität sein, da dieser nie exakt im Zentrum des Schaums liegt und somit mehr oder weniger stark durch das kalte Werkzeug beeinflusst wird. Zudem erfolgt die vereinfachte Modellierung des faseroptischen Sensors anhand optischer Messungen und durch die Abschätzungen der genutzten Materialien, was ebenfalls zu Abweichungen führen kann.

Auch für die Versuche bei 8 kV zeigt sich ein ähnliches Verhalten. Wie in Abbildung 69 zu erkennen ist, kann die Erwärmung des Sensors während der Verschweißung und die anschließende Verzögerung gut vorhergesagt werden.

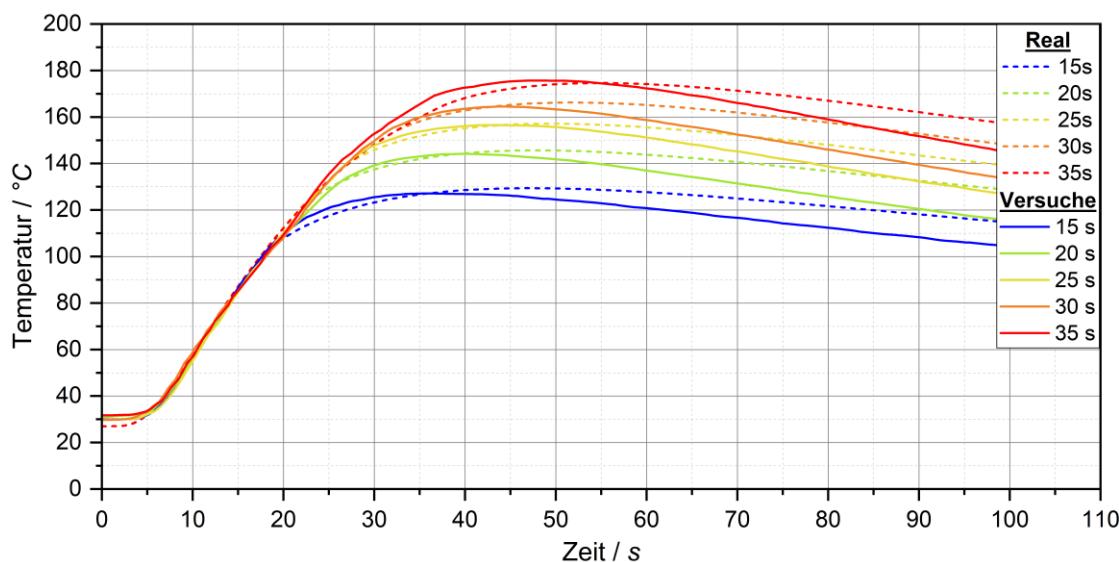


Abbildung 69: Vergleich der gemessenen Temperatur über die Zeit im realen Prozess mit dem simulierten faser-optischen Temperatursensor bei 8 kV

Die simulierten maximalen Temperaturen liegen bei 8 kV sehr nahe an den realen Messungen, jedoch ist die Verzögerung etwas geringer. Dieses Verhalten kann durch Abweichungen in der Wärmeleitfähigkeit des Sensors oder des Wärmeübertrags vom Schaum resultieren, was wiederum durch die Geometrie oder durch die Materialparameter ausgelöst werden kann. Unabhängig von der Spannung und Verschweißzeit kann die Temperaturentwicklung im Schaum über den Sensor und dessen thermische Trägheit gut vorhergesagt werden.

Im Vergleich zur realen Messung kann die tatsächlich im Schaum anliegenden Temperatur durch den digitalen Zwilling direkt ohne Störungen durch virtuelle Temperatursonden ermittelt werden. Diese Erkenntnisse sind dabei essenziell, um die Phänomene während der Verschweißung und mögliche thermische Schädigungen zu untersuchen. Die virtuellen Sonden in unterschiedlichen

Positionen von der Mitte bei 0 mm bis hin zur Oberfläche bei 5 mm zeigen zunächst durch die fehlende Trägheit in Abbildung 70 eine signifikant beschleunigte Erwärmung auf.

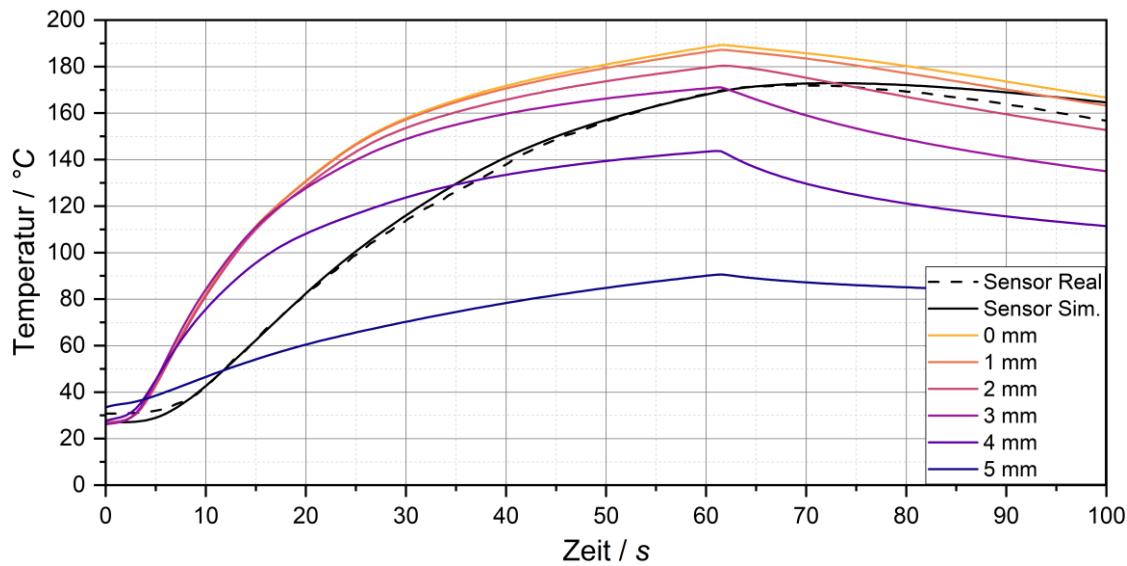


Abbildung 70: Vergleich der Temperatur über die Zeit des realen und simulierten Sensors sowie der direkt im Schaum aus der Simulation ermittelten Verläufe in unterschiedlichen Abständen zum Zentrum der Platte für den Versuch bei 6 kV und 60 s

Die oberflächennahe Messung zeigt dabei zunächst eine höhere Starttemperatur durch das vorgewärmte Werkzeug, bleibt jedoch anschließend deutlich unterhalb der erreichten Temperaturen weiter im Inneren. Dieses Verhalten ist auch für die schnellere Erwärmung bei 8 kV zu beobachten und in Abbildung 71 dargestellt.

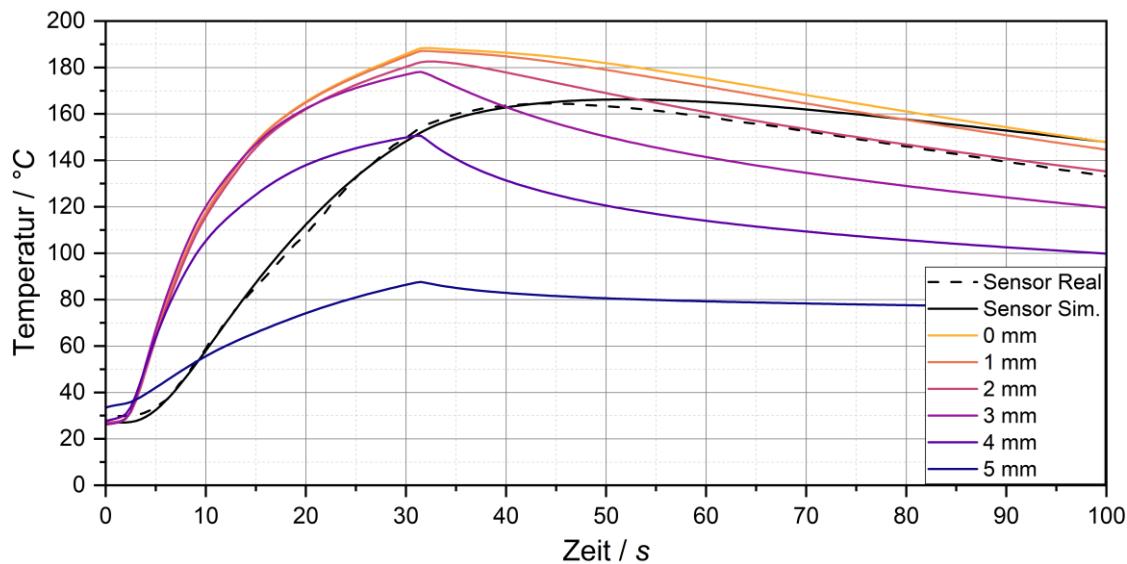


Abbildung 71: Vergleich der Temperatur über die Zeit des realen und simulierten Sensors sowie der direkt im Schaum aus der Simulation ermittelten Verläufe in unterschiedlichen Abständen zum Zentrum der Platte für den Versuch bei 8 kV und 30 s

Die Temperaturen von ca. 90 °C reichen dabei nicht für eine Verschweißung der Partikeloberflächen aus, was die vorherigen Erkenntnisse unterstützt. In Richtung des Zentrums nimmt die Beeinflussung des Werkzeugs immer weiter ab und es werden höhere Temperaturen erreicht. Im Vergleich zu 6 kV kommt es durch die schnellere Erwärmung des Schaums bei 8 kV zu einem reduzierten Temperaturverlust durch Wärmeleitung in das Werkzeug. Dies führt zu einer homogeneren Temperaturverteilung innerhalb des Schaums, was die in Kapitel 5.2.2 aufgezeigten Ergebnisse unterstützt.

Diese Inhomogenität stellt die wohl entscheidendste Herausforderung in der Herstellung von hochqualitativen Bauteilen mittels der RF-Technologie dar. Zusammen mit den detaillierten Analysen des Materials hinsichtlich dessen Verschweißverhaltens und thermischen Schädigung stellt der digitale Zwilling ein essenzielles Werkzeug für ein tieferes Prozessverständnis und zukünftige Optimierungen dar. Der kühlende Effekt während der Verschweißung kann zudem durch ein Temperaturprofil über die Dicke des Bauteils und des Werkzeugs in Abbildung 72 evaluiert werden.

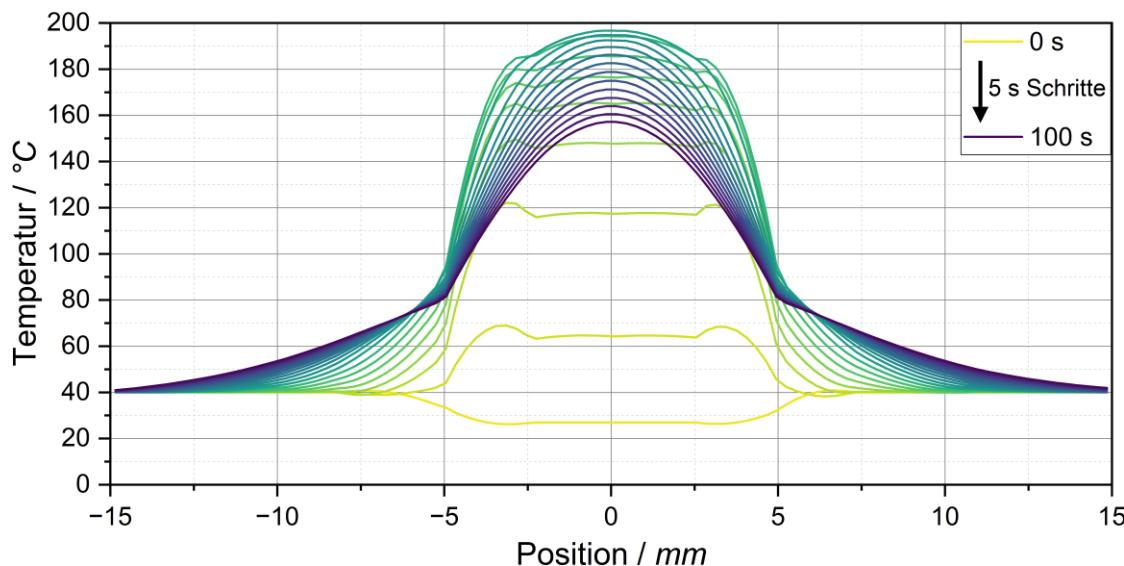


Abbildung 72: Temperaturprofil über die Dicke der Schaumplatte inklusive des Werkzeugs von 0 bis 100 s in 5 s Schritten für den Versuch bei 8 kV und 35 s

Trotz der höheren Spannung und der dadurch beschleunigten Erwärmung bleibt ein signifikanter Temperaturunterschied zwischen dem Kern und der Oberfläche bestehen. Nach dem Erreichen der Maximaltemperatur im Inneren des Schaums nach ca. 35 s kommt es zum langsamen Abkühlen durch das Werkzeug, welches durch das Bauteil weiter erwärmt wird. Die hohe thermische Masse des Werkzeugs aus PTFE-Vollmaterial führt dabei nur zu einer geringen Erwärmung der Oberfläche und zu einem leichten Temperaturanstieg innerhalb der Werkzeugwand. Diese Effekte müssen jedoch für eine Serienfertigung berücksichtigt werden, da eine steigende Erwärmung über

mehrere Zyklen zunächst einen positiven Einfluss auf die Oberflächenqualität haben kann. Auf der anderen Seite müssen die sonstigen Parameter dadurch angepasst werden, um gleichbleibende Eigenschaften des Produktes zu garantieren.

Der Vergleich der Maximaltemperaturen der Sensoren aus der Simulation und aus den realen Messungen sowie den simulierten Temperaturen im Schaum sind nochmals in Abbildung 73 aufgetragen.

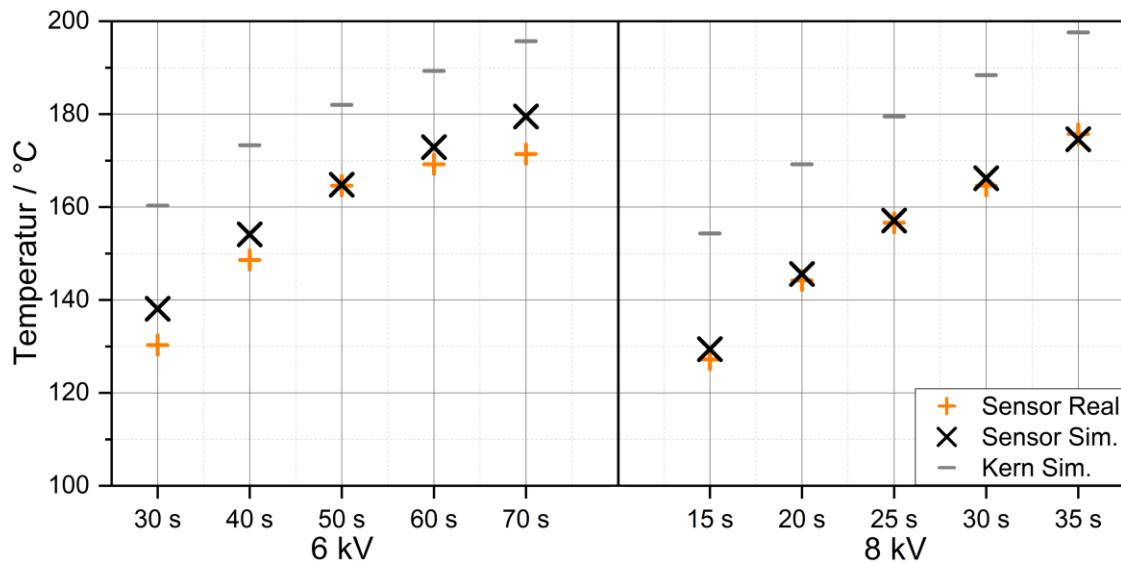


Abbildung 73: Vergleich der Maximaltemperaturen des realen Sensors sowie der Simulation mit virtuellem Sensor und direkt im Kern des Schaums

Die geringen Abweichungen zwischen der numerischen Lösung mit den real gemessenen Werten des Sensors verdeutlicht wiederum die Genauigkeit des digitalen Zwillings. Zuvor konnte lediglich über die Auswertung der thermischen Historie aus den DSC-Messungen (Abbildung 61 und Abbildung 62) eine indirekte Aussage über die erreichten Temperaturen getroffen werden. Die Verschiebung der Peaks ohne komplettes Aufschmelzen deutete hierbei auf maximale Werte von ca. 150 bis 160 °C für die kürzesten Verschweißzeiten bei der Spannungen hin. Dieser Temperaturbereich wurde auch in der Simulation für den Kern vorhergesagt. Die Simulation stellt somit eine validierte Methode dar, um die Temperaturen während der Verarbeitung der Schaumpartikel mittels RF-Technologie vorherzusagen. Die erheblichen Abweichungen der messbaren Temperaturen mittels des faseroptischen Sensors von den tatsächlich erreichten Werten erweisen sich dadurch als signifikant. Ohne eine simulative Abbildung des Prozesses würden fehlerhafte Korrelationen der Prozesstemperaturen mit dem sonstigen Verhalten der Schaumpartikel aufgestellt werden.

5.3.3. Ergebnisse der mechanischen Simulation

Die erreichten Temperaturen während des RF-Prozesses bieten die Grundlage für die Verschweißung der Partikeloberflächen miteinander. Nach der Validierung des ersten Abschnittes zur Vorhersage der dielektrischen Erwärmung werden die Erkenntnisse nun in mechanische Eigenschaften des finalen Bauteils über die temperaturabhängige Verschweißfestigkeit überführt. Die virtuellen Prüfkörper werden dafür unter Zugbeanspruchung getestet. Wie in Abbildung 74 zu sehen ist, befindet sich der Zugstab zunächst ohne Deformation in einem spannungsfreien Zustand.

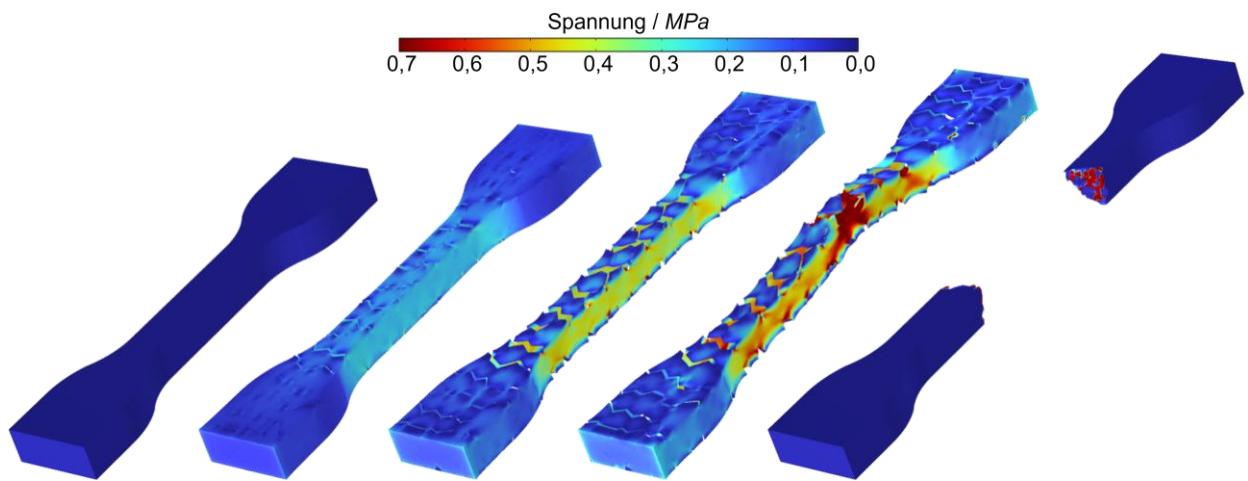


Abbildung 74: Graphische Darstellung des virtuellen Zugversuchs bei unterschiedlichen Stadien der Dehnung bis zum Versagen einer Probe verschweißt bei 6 kV für 30 s

Die aufgebrachte Verschiebung am oberen Ende führt zu einer Verstreckung des gesamten Prüfkörpers. Im planparallelen Bereich gleichen Querschnitts wird durch den kleineren Querschnitt die größte Dehnung induziert, welche eine erhöhte Spannung als Antwort des Systems zufolge hat. Die Belastung innerhalb der Einspannungen bleibt dabei signifikant niedriger. Im Kern des Zugstabs erfährt das Volumen zunächst eine konstante Belastung. Bereits bei geringen Deformationen sind auf der Oberfläche erste Ablösungen zwischen den Schaumpartikeln erkennbar. Dieses Verhalten lässt sich direkt auf die erreichten Temperaturen während der Verschweißung zurückführen. Wie in Abbildung 72 zu sehen ist, fällt das Temperaturprofil in der Nähe der Werkzeugoberfläche deutlich ab, wodurch keine ausreichende Anhaftung der Partikel in diesem Bereich erreicht wird. Die so entstandenen Risse in der Oberfläche des Prüfkörpers unterbrechen dort die Kraftübertragung und führen zu einer Umverteilung der Spannung in den anliegenden Volumen. Der effektive Querschnitt, welcher zu den messbaren mechanischen Eigenschaften beiträgt, nimmt so ab. Diese oberflächennahe Initiierung der ersten Risse ist in Abbildung 75 detaillierter zu sehen.

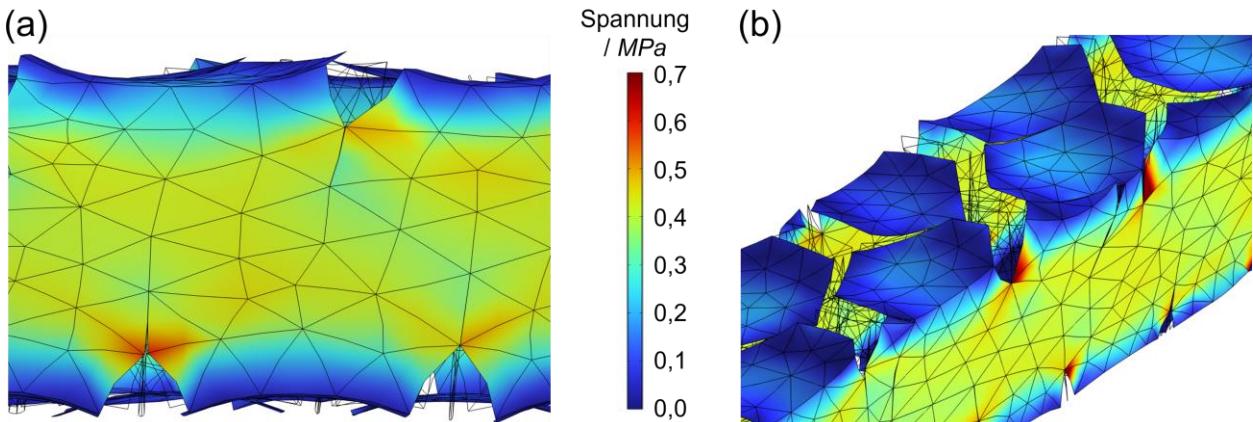


Abbildung 75: Detaillierte Ansicht inklusive Elementnetz des mittleren Bereichs des Prüfkörpers (6 kV für 30 s) mit beginnender Rissinitiierung durch eine unzureichende Verschweißung der Oberfläche

Neben dem Ablösen der äußeren Elemente der vernetzten Geometrie entstehen durch die resultierenden Kerben auch Spannungskonzentrationen. Diese lokal erhöhten Belastungen führen im weiteren Verlauf des virtuellen Zugversuchs zu einem kompletten Versagen des Prüfkörpers unterhalb der eigentlichen Festigkeit des Materials. Die zufällige Generierung der Partikelvolumina führt zu lokalen Abweichungen in der Ausrichtung der Grenzflächen zur Zugrichtung. Analog zu den realen Prüfkörpern wird dadurch die Rissinitiierung und somit die mechanischen Eigenschaften beeinflusst. Dieser Zufallsaspekt bietet die Möglichkeit auch innerhalb der Simulation eine gewisse Standardabweichung der Ergebnisse zu erzeugen. Das Versagen des Bauteils erfolgt nach der oberflächennahen Rissausbildung innerhalb der Grenzflächen oftmals auch durch das Volumen der Partikel. Trotz der ausreichend hohen Verschweißfestigkeit im Kern des Bauteils wird das Versagen so durch die Oberfläche des Bauteils signifikant geprägt. Nach der Schädigung des Prüfkörpers kann keine Kraft mehr zwischen den beiden Seiten übertragen werden und die Spannung innerhalb des Prüfkörpers sinkt.

Die Ergebnisse des simulierten Zugversuchs können zunächst rein optisch mit den realen Versuchen in Korrelation gebracht werden. Abbildung 76 zeigt dazu die Seitenansicht der realen und virtuellen Prüfkörper bei 6 kV mit unterschiedlichen Verschweißzeiten unter vergleichbarer Deformation.

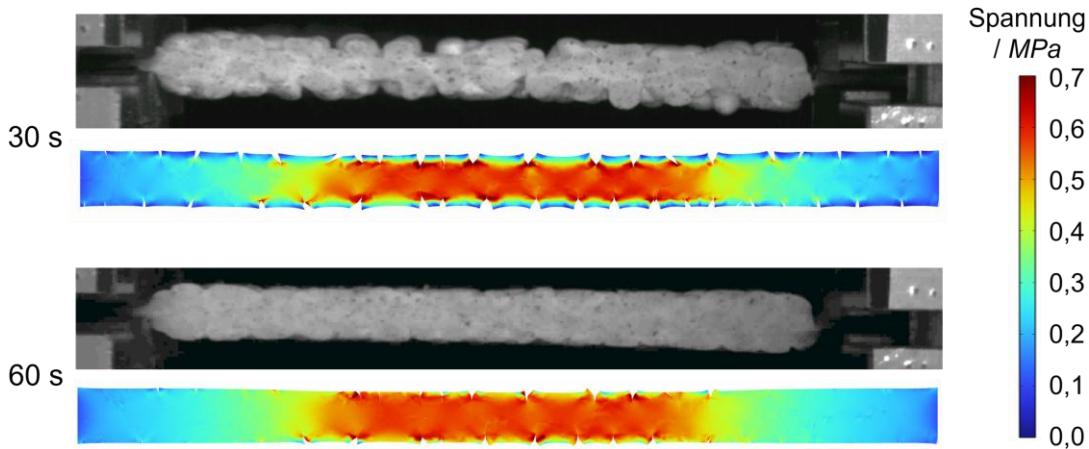


Abbildung 76: Vergleich der seitlichen Ansicht der Prüfkörper bei 6 kV für 30 und 60 s im realen und virtuellen Test unter vergleichbarer Deformation

Bei der niedrigen Verschweißzeit von 30 s ist zunächst die unzureichende Anhaftung der oberflächennahen Schaumpartikel zueinander sichtbar. Dieses Phänomen kann durch die mechanische Simulation ebenfalls abgebildet werden, ist jedoch geringer ausgeprägt. Das Rückstellverhalten der Schaumpartikel während des Öffnens des Werkzeugs bei unzureichender Verschweißung nahe der Oberfläche führt zu einer ungleichmäßigen Struktur. Die dadurch veränderte Geometrie hat dabei einen Einfluss auf die Spannungsverteilung und kann so das Verhalten im Zugversuch verändern. Dieser geometrische Effekt kann durch den hier aufgebauten digitalen Zwilling nicht berücksichtigt werden. Eine steigende Verschweißzeit von 60 s und dadurch allgemein höhere Temperaturen verbessern die Oberflächenqualität. Dies führt zu einer Reduktion der oberflächennahen Rissinitiierung. Im Vergleich zu den oberen Prüfkörpern bei 30 s ist das veränderte Verhalten gut durch das Simulationsmodell abbildbar.

Neben der optischen Validierung werden innerhalb des digitalen Zwillings auch die klassischen Spannungs-Dehnungs-Kurven als Ergebnisse generiert. Abbildung 77 zeigt den Vergleich der Kurven bei 6 kV für die unterschiedlichen Verschweißzeiten zwischen den bereits beschriebenen realen und den simulierten Ergebnissen. Zunächst ist ein deutlicher Einfluss der Verschweißzeit und dadurch der Temperaturverteilung sichtbar. Die Festigkeit der Prüfkörper steigt analog zu den realen Versuchen mit längeren Verschweißzeiten immer weiter an. Bei einer Verschweißzeit von 20 s konnte kein zusammenhängendes Bauteil in den realen Versuchen hergestellt werden. Auch in der Simulation zeigt die Probe eine unzureichende Festigkeit auf. Bei 30 s wird die Festigkeit der Prüfkörper durch die Simulation etwas überschätzt. Grund hierfür kann wiederum die geometrische Veränderung der Probe durch die Rückstelleffekte an der Oberfläche sein. Der Verlauf der Spannung über die Dehnung ist dabei zunächst bei geringen Deformationen für alle Kurven gleich.

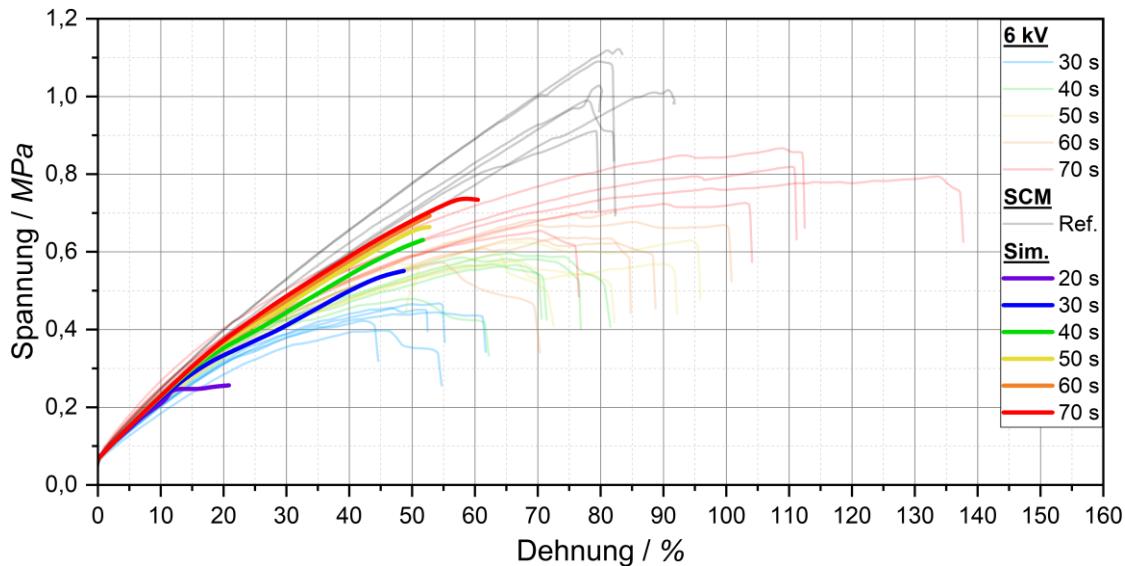


Abbildung 77: Vergleich der Spannungs-Dehnungs-Kurven der realen und virtuellen Zugversuche bei 6 kV mit unterschiedlichen Zeiten inklusive der SCM-Referenz

Die oberflächennahe Rissinitiierung führt jedoch durch den reduzierten Querschnitt der Proben zu einem leichten Abfall der Kurve im Vergleich zu der SCM-Referenz mit homogener Verschweißung. Auch die Simulationen der Prüfkörper, welche bei der höheren Spannung von 8 kV hergestellt wurden, zeigen ein ähnliches Verhalten (Abbildung 78).

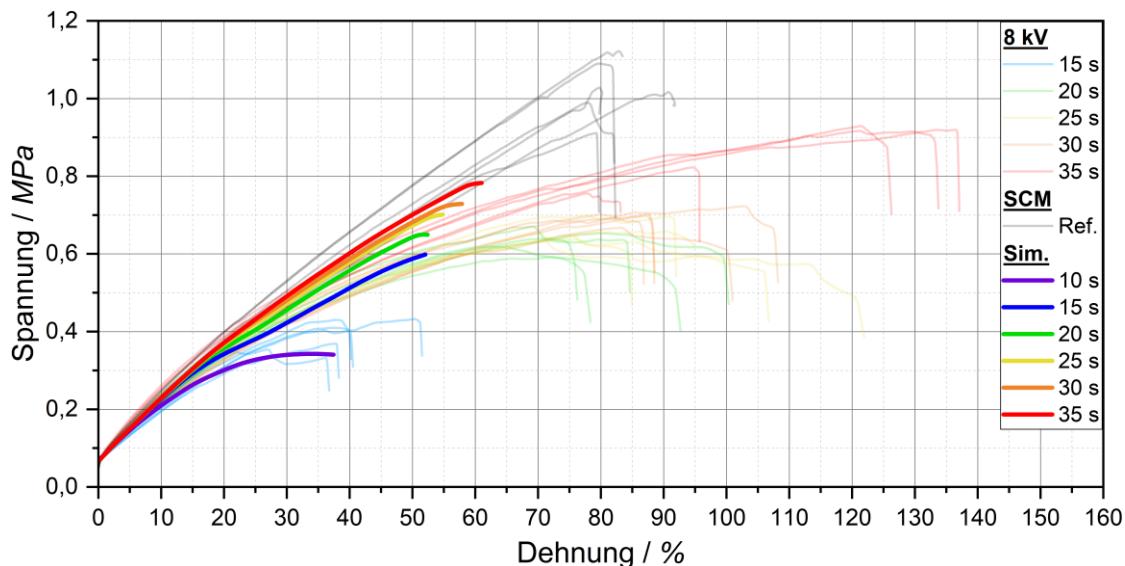


Abbildung 78: Vergleich der Spannungs-Dehnungs-Kurven der realen und virtuellen Zugversuche bei 8 kV mit unterschiedlichen Zeiten inklusive der SCM-Referenz

Im Vergleich zu den vorherigen Prüfkörpern resultiert die niedrigste Verschweißzeit von 10 s in einer leicht erhöhte Festigkeit. Dies kann auf die homogenere Temperaturverteilung aufgrund der schnelleren Erwärmung zurückgeführt werden.

Neben dem Kurvenverlauf über die Dehnung können auch die maximalen Spannungen vor dem Versagen als Vergleich herangezogen werden. Die so ermittelten Zugfestigkeiten zeigen für nahezu alle Verarbeitungsparameter eine gute Übereinstimmung mit den realen Versuchen auf. Dieser Kennwert ist in Abbildung 79 für die unterschiedlichen Parameter dargestellt.

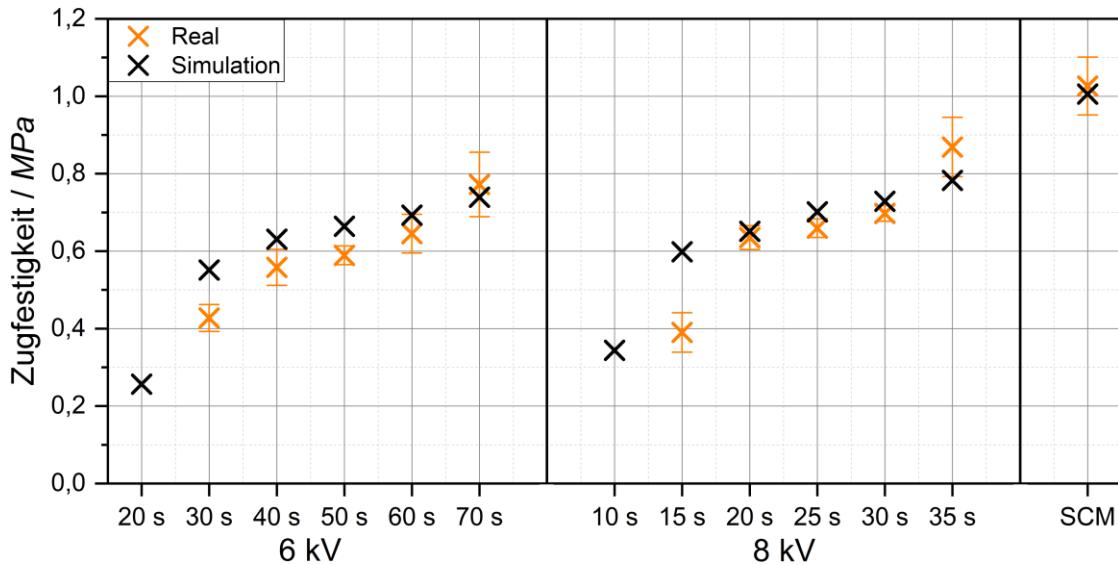


Abbildung 79: Vergleich der Zugfestigkeiten der realen und virtuellen Zugversuche für die unterschiedlichen RF-Parameter inklusive der SCM-Referenz

Sowohl der Trend über die Verschweißzeiten als auch die absoluten Zugfestigkeiten können gut vorhergesagt werden. Lediglich bei geringen Verschweißzeiten mit stark reduzierter Qualität der Bauteile werden die Eigenschaften etwas überschätzt. Der digitale Zwilling wurde ebenfalls durch eine Simulation der SCM-Prüfkörper mit optimaler Verschweißung zwischen den Partikeln getestet. Die Ergebnisse zeigen auch hier die gute Abbildung der Realität durch die numerische Lösung auf.

Die größte Abweichung der simulierten Ergebnisse liegt in der maximal erreichten Dehnung der Prüfkörper bei Versagen. Gerade bei längeren Verschweißzeiten und dadurch hohen Temperaturen des Kerns kommt es in der Realität zu einem leichten Abflachen der Spannungskurve. Dieses Verhalten ist gut durch die Veränderung der Bruchdehnung in Abbildung 80 zu erkennen. Wie in Kapitel 5.2.2.2 bereits beschrieben wurde, kommt es durch das komplett Aufschmelzen der kristallinen Bereiche im Kern des RF-Prüfkörpers zu einer Veränderung der mechanischen Eigenschaften. Die Grundlage des Materialmodells des Schaumvolumens wurde jedoch über die Ergebnisse der SCM-Referenz gebildet. Diese thermische Schädigung des Schaumvolumens der Partikel kann so nicht berücksichtigt werden. Die Spannungskurven gleichen daher eher dem steileren Anstieg der SCM-Prüfkörper, wodurch bei vergleichbarer Festigkeit die Bruchdehnung teilweise signifikant unterschätzt wird. Für eine weitere Optimierung des Modells müsste die

Veränderung der Eigenschaften des Schaumvolumens abhängig von der erreichten Temperatur mit möglichen thermischen Schädigungen implementiert werden.

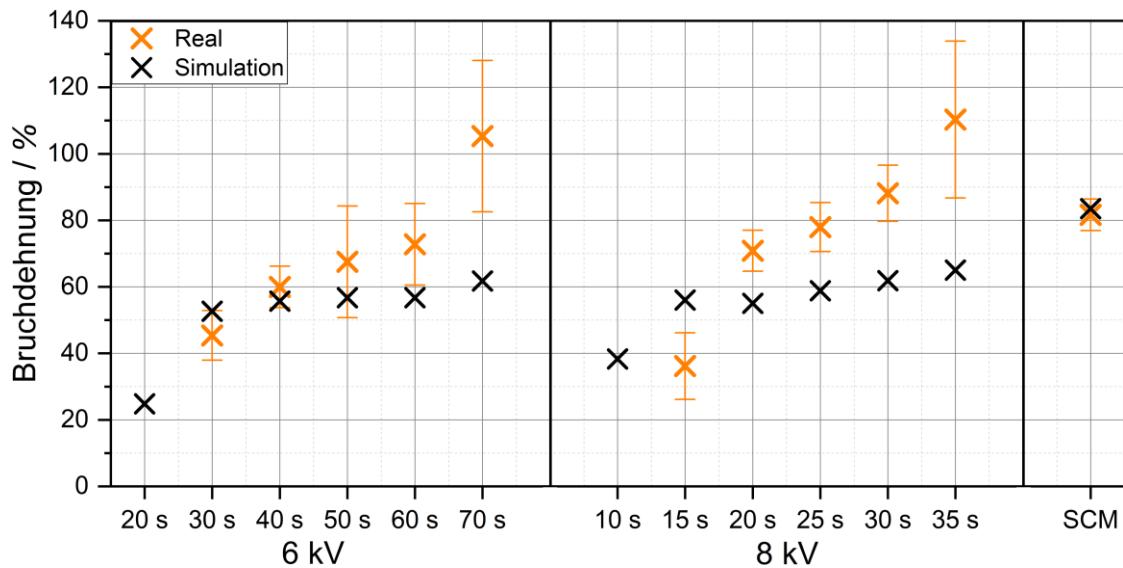


Abbildung 80: Vergleich der Bruchdehnung der realen und virtuellen Zugversuche für die unterschiedlichen RF-Parameter inklusive der SCM-Referenz

Für eine abschließende Bewertung des erarbeiteten digitalen Zwillings wurde die Übertragbarkeit auf den klassischen dampfbasierten Prozess untersucht. Hierbei kann in einer vereinfachten Betrachtung von homogenen Temperaturen über das Schaumvolumen ausgegangen werden. Die Ergebnisse in Abbildung 81 zeigen zunächst im Bereich von 140 °C und darüber keinen Einfluss auf die Spannungskurve.

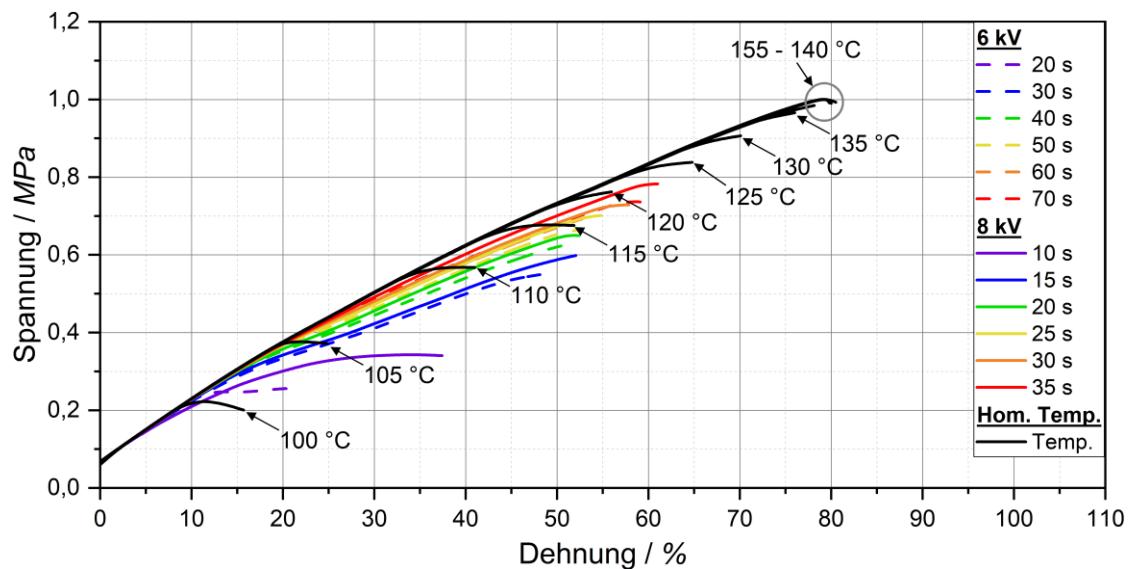


Abbildung 81: Vergleich der Spannungs-Dehnungs-Kurven der virtuellen Zugversuche aus der RF-Technologie sowie bei homogenen Temperaturen verschweißte Prüfkörper

Die Verschweißqualität ist bei diesen Temperaturen hoch genug, damit die Festigkeit des Schaumvolumens als schwächstes Glied und somit limitierend wirkt. Erst bei einer weiteren

Reduktion der Temperatur kommt es zum Versagen der Verschweißung und die Festigkeit des simulierten Partikelschaumbauteils sinkt. Auch hier zeigt sich im Vergleich für die simulierten RF-Prüfkörper die Abnahme des effektiven Querschnitts durch die oberflächennahen Risse und dadurch eine abflachende Spannungskurve. Die Herausforderung des RF-Prozesses durch die unzureichende Verschweißung der Oberfläche ist ebenfalls erkennbar. Der Prüfkörper bei einer homogenen Temperatur von lediglich 120 °C zeigt dabei ähnliche Festigkeiten wie die RF-Prüfkörper mit den höchsten Verschweißzeiten auf. Verglichen mit den zuvor simulierten Temperaturprofilen der RF-Prüfkörper zeigt sich der signifikante Einfluss der kühleren äußeren Bereiche trotz deutlich höheren Temperaturen des Kerns.

Das aufgebaute Simulationsmodell zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der realen Zugversuche auf. Für eine weitere Optimierung und eine dadurch noch akkurate Abbildung der Realität liegen zwei Bereiche im Fokus. Zum einen muss die Veränderung der Geometrie der Prüfkörper durch oberflächennahe Rückstelleffekte der Schaumpartikel berücksichtigt werden. Diese treten jedoch nur bei einer unzureichenden Verschweißung der Oberfläche auf und sind für optimierte Prozessparameter weniger relevant. Zum anderen kann es unter hohen Temperaturen zu einer thermischen Veränderung des Materials gerade im Kern des Bauteils kommen. Neben der Verschweißfestigkeit müsste daher auch die Temperaturabhängigkeit der mechanischen Eigenschaften des Schaumvolumens der Partikel mit in das Modell implementiert werden. Diese Charakteristiken sind jedoch ebenfalls stark vom Abkühlverhalten und der dadurch vorgegebenen Kristallisation aufgeschmolzenen Domänen abhängig. Zudem kann das Simulationsmodell auch in einer vereinfachten Form ohne die erste elektro-thermische Lösung zur Vorhersage der mechanischen Eigenschaften von Prüfkörpern aus der dampfbasierten Verarbeitung genutzt werden. Eine tiefere Validierung hierfür ist noch ausstehend.

6. Zusammenfassung und Ausblick

Die Radiowellen-Technologie zur Verschweißung von Schaumpartikeln bietet enormes Potential für eine ressourcenschonende Herstellung von Bauteilen für ein breites Spektrum an Anwendungen. Im **Hauptziel** dieser Arbeit wurde daher ein erster signifikanter Beitrag zur Aufklärung der grundlegenden physikalischen Interaktionen zwischen dem Material und dem innovativen Prozess geleistet. Unter diesem Hauptziel sind im Folgenden die technischen und wissenschaftlichen Erkenntnisse der Arbeit auf Grundlage der herausgestellten Zusammenhänge systematisch aufgezeigt.

Im ersten Abschnitt erfolgte eine tiefgreifende Analyse der verwendeten Schaumpartikel und des Ausgangspolymers. Neben den strukturellen und thermischen Eigenschaften lag der Fokus zunächst zur Untersuchung der **Hypothese #1** auf dem dielektrischen Verhalten. Die relative komplexe Permittivität beruht auf den Relaxationsphänomenen der Dipole auf molekularem Level. Das Verhalten wird primär durch die Beweglichkeit der Kettensegmente bestimmt, was eine Abhängigkeit von der Temperatur und von der angelegten Frequenz des elektromagnetischen Wechselfeldes (Superposition) zur Folge hat. Diese Phänomene konnten unter anderem anhand der Veränderung der Relaxationsfrequenz und der dielektrischen Stärke bestimmt werden. Letztere wird direkt durch das Aufschmelzen von kristallinen Bereichen und der dadurch erhöhten Beweglichkeit beeinflusst. Die Schaumpartikel müssen zur Evaluation der dielektrischen Eigenschaften als Zweiphasensystem mit einem variablen Anteil aus Polymer und Luft und dadurch in Abhängigkeit der Dichte des Schaums betrachtet werden. Der Einfluss der Dichte auf die dielektrischen Eigenschaften konnte durch eine speziell entworfene Messzelle bestimmt werden. Mit sinkendem Anteil an Polymer kommt es zu einer Verschiebung der Permittivität in Richtung der Majoritätsphase Luft. Das Verhalten der Schaumpartikel zeigt dabei keine lineare Abhängigkeit von der Dichte auf, sondern wird durch komplexe Interaktionen der beiden Phasen bestimmt. Zur Vorhersage der dielektrischen Eigenschaften der Schaumpartikel aus den Messungen des Grundpolymers wurde ein eigenes Mischmodell auf Basis der geometrischen Anordnung der Zellwände und des eingeschlossenen Zellgases entwickelt und validiert. Wie in Hypothese 1# angenommen, konnte eine eindeutige Abhängigkeit von Temperatur und Frequenz auf die dielektrischen Eigenschaften aufgezeigt werden. Ein neu entwickeltes Mischungsmodell ermöglichte zudem die Vorhersage der Permittivität der Schaumpartikel aus den Messungen des Grundpolymers.

Im zweiten Teil des Abschnittes wurde zur Evaluation von **Hypothese #2** eine neuartige Methode zur direkten Bestimmung der Verschweißfestigkeit von Schaumpartikeln erarbeitet. Die sogenannte Bead-to-Bead Messung ermöglicht die quantitative Analyse der Anhaftung zwischen zwei Schaumpartikeln unter definierten Bedingungen. Auf der Grundlage der Messung konnte der Mechanismus zur Verschweißung der ETPU-Partikel aufgeklärt werden. Die Ausbildung der Verschweißung zwischen den Oberflächen beruht auf der Kristallisation der zuvor aufgeschmolzenen Bereiche und ist, wie in Hypothese #2 aufgeführt, bei einem gleichbleibenden Abkühlverhalten primär von der maximal erreichten Temperatur im Prozess abhängig.

Im dritten Abschnitt wurde die Verarbeitung der ETPU-Partikel mittels der RF-Technologie umfassend zur Prüfung der **Hypothese #3** untersucht. Während der Verschweißung liefert die Leistungsaufnahme der RF-Generators ein direktes Prozessfeedback. Der Verlauf der Leistung über die Zeit stellt eine direkte Korrelation mit dem Imaginärteil der komplexen relativen Permittivität des Materials dar. Der dielektrische Verlust ist die Quelle der Erwärmung des Schaums und kann über die Temperaturentwicklung beobachtet werden. Die Messung erfolgt über einen dünnen faseroptischen Sensor. Die geringe Wärmeleitfähigkeit des Schaums und die thermische Masse des Sensors führen zu einer signifikanten Trägheit des Messsystems. Dadurch kommt es zu einer Verzögerung der gemessenen Erwärmung und zu einer deutlichen Unterschätzung der maximal erreichten Temperaturen. Die tatsächlichen Temperaturen konnten durch einen Vergleich zwischen der thermischen Historie der Partikel mit den verschweißten Bauteilen abgeschätzt werden. Die Oberflächenqualität der Prüfkörper kann durch längere Verschweißzeiten verbessert werden. Eine schnelle Erwärmung bei erhöhter Spannung führt dabei zu einer Reduktion der thermischen Verluste in das kühle Werkzeug und somit zu einer homogeneren Verschweißung über die Dicke des Bauteils hinweg. Die Abhängigkeit der Anhaftung der Schaumpartikel von der Temperatur ist auch in den mechanischen Eigenschaften unter Zugbeanspruchung sichtbar. Sowohl die maximale Festigkeit der Prüfkörper als auch die Dehnung bis zum Versagen kann durch eine stärkere Erwärmung erhöht werden. Trotz hoher Temperaturen im Kern der Bauteile können die Eigenschaften der Referenz aus der dampfbasierten Verarbeitung nicht erreicht werden. Zunächst löst die stets unzureichende Verschweißung an der Oberfläche der RF-Prüfkörper eine Rissinitiierung aus. Zusätzlich kann eine thermische Schädigung der Schaumstruktur und teilweise ein Kollabieren des Kerns bei langen Verschweißzeiten beobachtet werden. Die inhomogene Temperaturverteilung über die Bauteildicke durch das kühlende Werkzeug verhindert somit eine gleichmäßige Anhaftung der Grenzflächen ohne eine Schädigung des Zentrums. Die aufgezeigten Erkenntnisse bestätigen somit die in Hypothese #3 dargestellten Zusammenhänge zwischen den dielektrischen

Eigenschaften der Schaumpartikel und deren Erwärmung im RF-Prozess. Auch der direkte Einfluss der erreichten Temperatur und deren Verteilung auf die mechanische Festigkeit unter Zugbeanspruchung konnte bestätigt werden. Eine Ausweitung der Hypothese auf zusätzliche mechanische Eigenschaften würde weitere Untersuchungen benötigen.

Abschließend wurde im letzten Abschnitt im Rahmen der Untersuchung von **Hypothese #4** ein digitaler Zwilling des RF-Prozesses aufgebaut und validiert. Die zuvor gewonnenen Kennwerte der Schaumpartikel lieferten zunächst die Grundlage eines temperaturabhängigen Materialmodells. Die numerische Lösung ist dabei in zwei getrennte Abschnitte unterteilt. Zunächst wird eine elektro-thermische Simulation durchgeführt. Die numerische Abbildung des Prozesses bietet die Möglichkeit die Material-Prozess-Interaktion wie die Verteilung des elektrischen Feldes und der Temperatur auf lokaler Ebene zu untersuchen. Die hohe Genauigkeit des Modells konnte zunächst über den Vergleich der simulierten Leistungskurven mit den realen Versuchen überprüft werden. Zudem wurde die Temperaturentwicklung über einen modellierten Sensor verglichen. Die Ergebnisse unterstützen die vorangegangenen Vermutungen über die thermische Trägheit des Sensors und liefern eine erste Möglichkeit, die tatsächlichen Temperaturen im Schaum zu evaluieren. Aufbauend auf der elektro-thermischen Simulation wurde ein weiteres Modell zur Vorhersage der mechanischen Eigenschaften erarbeitet. Die zuvor ermittelte temperaturabhängige Verschweißfestigkeit aus der Bead-to-Bead Messung bietet dabei die Grundlage der Verknüpfung der beiden Bereiche. Der virtuelle Zugversuch zeigt eine hohe Übereinstimmung mit den realen Tests auf. Der Einfluss der oberflächennahen Rissinitiierung durch die niedrigeren Temperaturen kann durch die Simulation direkt vorhergesagt werden. Auch der Einfluss der Prozessparameter und die reduzierte Festigkeit im Vergleich zur Referenz aus der dampfbasierten Verarbeitung wurde erfolgreich simuliert. Der zentrale Aspekt der Hypothese #4 konnte somit durch die Koppelung der elektro-thermischen mit der mechanischen Simulation unterstützt werden. Lediglich die Veränderung der mechanischen Eigenschaften durch eine thermische Schädigung der Schaumstruktur wurde in den dargestellten Modell nicht berücksichtigt und erfordert eine tiefere Untersuchung der zugrundeliegenden Ursache dahinter.

Die gewonnenen Erkenntnisse stellen eine entscheidende Grundlage für den Aufbau eines Prozessverständnisses und für die weitere Optimierung der RF-Technologie in der Zukunft dar. Das erarbeitete Simulationsmodell kann durch wenige Messungen auf neue Materialsysteme übertragen werden und dadurch wesentlich Ressourcen in der Prozess- und Materialoptimierung einsparen.

Auf Seiten der dielektrischen Untersuchung des Grundpolymers war es aufgrund des eingeschränkten Frequenzbereichs nicht eindeutig möglich, die Effekte einem definierten Relaxationsphänomen zuzuordnen. Ein optimierter Messaufbau mit einem breiteren Messbereich im Zusammenspiel mit einer simulativen Betrachtung der Molekülbewegungen wären hierbei hilfreich, um diese weiter evaluieren zu können. Dafür wären weitere Vorarbeiten zur Aufklärung der exakten chemischen Struktur des Polymers notwendig.

Die Arbeit zeigt eindeutig die primäre Herausforderung der RF-Technologie aufgrund der inhomogenen Temperaturverteilung durch das kühle Werkzeug auf. Neben der Anpassung der Schaumpartikel hinsichtlich eines breiteren Verarbeitungsfensters gibt es auch einige Ansätze auf der Prozesseite. Eine simple Lösung besteht in der Temperierung des Werkzeuges z.B. durch eine Ölheizung. Dies ist jedoch energieintensiv und würde so einen signifikanten Vorteil der Technologie eliminieren. Eine effektiverer Ansatz ist die simulationsgestützte Anpassung der Elektroden und des Werkzeugs. Gerade bei komplexeren dreidimensionalen Bauteilen muss die Geometrie der Elektroden iterativ auf ein homogenes elektrisches Feld optimiert werden. Das aufgebaute Simulations- und Materialmodell bietet dafür die ideale Grundlage. Auch im Bereich des Werkzeugdesigns gibt es bereits erste Ansätze. Durch den gezielten Einsatz von sich intrinsisch im Wechselfeld erwärmenden Werkstoffen im Werkzeug kann das Partikelschaumbauteil oberflächennah geheizt werden. Die dadurch verbesserte Homogenität der Temperaturverteilung resultiert in verbesserten mechanischen Eigenschaften und einer optimierten Oberflächenqualität. Ein weiterer Ansatz ist die Isolation des Schaums in Richtung des Werkzeuges. Beispielsweise kann durch den Einsatz eines Hochtemperaturschaums an der Oberfläche des Werkzeuges der thermische Verlust verringert und das Temperaturprofil dadurch homogenisiert werden. Diese Lösung verlangt jedoch eine exakte simulative Abbildung des Prozesses. Auch die Zugabe von weiteren Hilfsmitteln wie z.B. Wasser kann einen positiven Einfluss auf die Verarbeitung haben. Durch die gezielte Anpassung der Leitfähigkeit von Wasser kann der zusätzliche Energieeintrag variiert werden. Zudem kann die endotherme Verdunstung über den anliegenden Druck im Werkzeug lokale Temperaturspitzen abfedern und über die Verteilung des Dampfes zur Homogenität beitragen. Dies öffnet zudem den Weg zur Verarbeitung von unpolaren Materialien wie EPS oder EPP.

7. Literatur- und Quellenverzeichnis

- [1] L.J. Gibson, M.F. Ashby, H.A. Brendan, Cellular materials in nature and medicine, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2010.
- [2] S.T. Lee, N.S. Ramesh, Polymeric foams: mechanisms and materials, CRC Press LLC, 2004.
- [3] D. Raps, N. Hossieny, C.B. Park, V. Altstädt, Past and present developments in polymer bead foams and bead foaming technology, *Polymer (Guildf)*. 56 (2015) 5–19. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2014.10.078>.
- [4] J. Kuhnigk, T. Standau, D. Dörr, C. Brütting, V. Altstädt, H. Ruckdäschel, Progress in the development of bead foams – A review, *J. Cell. Plast.* 58 (2022) 707–735. <https://doi.org/10.1177/0021955X221087603>.
- [5] M. Nofar, A. Ameli, C.B. Park, A novel technology to manufacture biodegradable polylactide bead foam products, *Mater. Des.* 83 (2015) 413–421. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2015.06.052>.
- [6] G.L. Siparsky, K.J. Voorhees, F. Miao, Hydrolysis of polylactic acid (PLA) and polycaprolactone (PCL) in aqueous acetonitrile solutions: Autocatalysis, *J. Environ. Polym. Degrad.* 6 (1998) 31–41.
- [7] J. Dreier, C. Brütting, H. Ruckdäschel, V. Altstädt, C. Bonten, Investigation of the Thermal and Hydrolytic Degradation of Polylactide during Autoclave Foaming, *Polymers (Basel)*. 13 (2021) 2624. <https://doi.org/10.3390/polym13162624>.
- [8] F.V. Leimann, M.H. Biz, A. Musyanovych, C. Sayer, K. Landfester, P.H. Hermes de Araújo, Hydrolysis of poly(hydroxybutyrate- co -hydroxyvalerate) nanoparticles, *J. Appl. Polym. Sci.* 128 (2013) 3093–3098. <https://doi.org/10.1002/app.38506>.
- [9] V. Romanov, Device and method for producing a particle foam part, WO 2017/125412 A1, 2017.
- [10] J. Beck, S. Hofmann, G. Hofmann, J. Vetter, M. Lucht, Verfahren zur Herstellung eines Verbundstrukturbauenteils, EP3566845A1, 2019.
- [11] G. Niemeyer, H. Wörthwein, W. Teubert, Verfahren zur Herstellung von Formteilen aus Partikelschäumen, DE 10 2019 119 488 A1, 2021.
- [12] Kurtz Ersa, Revolutionäre RF-Technologie: Verschweißen ohne Dampf – innovativ & zukunftsweisend, (n.d.) 1–4. <https://www.kurtzersa.de/produkte/protective-solutions/formteilautomaten/wave-foamer> (accessed November 2, 2024).
- [13] Statista Inc., Production capacity of expandable polystyrene worldwide from 2018 to 2021, (2024). <https://www.statista.com/statistics/1063653/expandable-polystyrene-production-capacity-globally/> (accessed November 2, 2024).
- [14] United Nations, Transforming our world: the 2030 Agenda for Sustainable Development, 2015. <https://sdgs.un.org/2030agenda>.
- [15] L.J. Gibson, M.F. Ashby, Cellular Solids, Cambridge University Press, 1997. <https://doi.org/10.1017/CBO9781139878326>.
- [16] F.M. de Souza, Y. Desai, R.K. Gupta, Introduction to Polymeric Foams, in: ACS Symp.

- Ser., American Chemical Society, 2023: pp. 1–23. <https://doi.org/10.1021/bk-2023-1439.ch001>.
- [17] R. Gendron, Thermoplastic Foam Processing, 1st Editio, CRC Press, Boca Raton, 2004. <https://doi.org/10.1201/9780203502167>.
- [18] J. Jiang, L. Wang, F. Tian, Y. Li, W. Zhai, Polymer Bead Foams: A Review on Foam Preparation, Molding, and Interbead Bonding Mechanism, *Macromol.* 3 (2023) 782–804. <https://doi.org/10.3390/macromol3040045>.
- [19] T. Standau, C. Zhao, S.M. Castellón, C. Bonten, V. Altstädt, Chemical modification and foam processing of polylactide (PLA), *Polymers (Basel)*. 11 (2019). <https://doi.org/10.3390/polym11020306>.
- [20] T. Osswald, J.P. Hernández-Ortiz, Polymer processing: modeling and simulation, 1st editio, Hanser Gardner Publications, Inc., Cinncinati, 2006.
- [21] E. Baur, D. Drummer, T.A. Osswald, N. Rudolph, Saechting Kunststoff-Handbuch, Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, München, 2022. <https://doi.org/10.3139/9783446473614>.
- [22] J. Schellenberg, Dependence of Thermal Properties of Expandable Polystyrene Particle Foam on Cell Size and Density, *J. Cell. Plast.* 46 (2010) 209–222. <https://doi.org/10.1177/0021955X09350803>.
- [23] I. Beverte, Deformation of polypropylene foam Neopolen® P in compression, *J. Cell. Plast.* 40 (2004) 191–204. <https://doi.org/10.1177/0021955X04043718>.
- [24] J. Meuchelböck, I. Koch, B. Grüber, M. Müller-Pabel, M. Gude, H. Ruckdäschel, Compression testing of EPP bead foams in a vacuum chamber: Experimental investigation on the influence of the cell gas, *Polym. Test.* 132 (2024) 108388. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2024.108388>.
- [25] F. Prissok, F. Braun, Foams based on thermoplastic polyurethanes, US20100222442A1, 2010. <https://patents.google.com/patent/US20100222442A1/en>.
- [26] J. Meuchelböck, C. Peiffer, L. Walter, M. Dippold, P. Munro, H. Ruckdäschel, Influence of temperature on the compression properties of expanded thermoplastic polyurethane (ETPU), *J. Mater. Sci. Mater. Eng.* 19 (2024). <https://doi.org/10.1186/s40712-024-00149-9>.
- [27] R. Gaeth, F. Stastny, Verfahren zur Herstellung poröser Massen aus Polymerisaten, DE845264C, 1950.
- [28] F. Stastny, Production of porous shaped articles from thermoplastic substances, US2787809A, 1951.
- [29] G. Mennig, K. Stoeckhert, Mold-Making Handbook, Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, München, 2013. <https://doi.org/10.3139/9781569905500>.
- [30] Bosch Industriekessel GmbH, Steam boilers, (n.d.). <https://www.bosch-industrial.com/global/en/ocs/commercial-industrial/steam-boilers-669471-c/> (accessed November 3, 2024).
- [31] Jumag Dampferzeuger GmbH, JUMAG steam boiler oil- or gas-fired, (n.d.). <https://jumag.de/en/produkte/oil-gas-steam-boilers/> (accessed November 3, 2024).
- [32] C. Ge, Q. Ren, S. Wang, W. Zheng, W. Zhai, C.B. Park, Steam-chest molding of expanded thermoplastic polyurethane bead foams and their mechanical properties, *Chem. Eng. Sci.*

- 174 (2017) 337–346. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2017.09.011>.
- [33] W. Zhai, Y.-W. Kim, D.W. Jung, C.B. Park, Steam-Chest Molding of Expanded Polypropylene Foams. 2. Mechanism of Interbead Bonding, *Ind. Eng. Chem. Res.* 50 (2011) 5523–5531. <https://doi.org/10.1021/ie101753w>.
- [34] J. Bruning, Method and device for producing molded parts from particle foams, WO 2010/079212 A2, 2010.
- [35] S. Handtke, J. Hain, F. Fischer, T. Ossowski, K. Dröder, Comparison of Mechanical Properties of Steam-Free and Steam-Based Specimens Made of Expanded Polypropylene Beads, *Polymers (Basel)*. 16 (2024) 400. <https://doi.org/10.3390/polym16030400>.
- [36] Teubert Maschinenbau GmbH, ACECARMA Homepage, (n.d.). <https://atecarma.de/de/> (accessed November 5, 2024).
- [37] J. Yang, Z. Chen, D. Xu, P. Liu, L. Li, Enhanced Interfacial Adhesion of Polystyrene Bead Foams by Microwave Sintering for Microplastics Reduction, *Ind. Eng. Chem. Res.* 60 (2021) 8812–8820. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.1c01468>.
- [38] D. Feng, P. Liu, Q. Wang, Carbon nanotubes in microwave-assisted foaming and sinter molding of high performance polyetherimide bead foam products, *Mater. Sci. Eng. B*. 262 (2020) 114727. <https://doi.org/10.1016/j.mseb.2020.114727>.
- [39] D. Feng, P. Liu, Q. Wang, Selective Microwave Sintering to Prepare Multifunctional Poly(ether imide) Bead Foams Based on Segregated Carbon Nanotube Conductive Network, *Ind. Eng. Chem. Res.* 59 (2020) 5838–5847. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.0c00090>.
- [40] D. Xu, P. Liu, Q. Wang, Interfacial flame retardance of Poly(vinyl alcohol) bead foams through surface plasticizing and microwave selective sintering, *Appl. Surf. Sci.* 551 (2021) 149416. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.149416>.
- [41] J. Jiang, B. Chen, M. Zhou, H. Liu, Y. Li, F. Tian, Z. Wang, L. Wang, W. Zhai, A convenient and efficient path to bead foam parts: Restricted cell growth and simultaneous inter-bead welding, *J. Supercrit. Fluids*. 194 (2023) 105852. <https://doi.org/10.1016/j.supflu.2023.105852>.
- [42] W. Cai, P. Liu, S. Bai, S. Li, A one-step method to manufacture biodegradable poly(butylene adipate-co-terephthalate) bead foam parts, *Polym. Adv. Technol.* 32 (2021) 2007–2019. <https://doi.org/10.1002/pat.5219>.
- [43] D. Feng, L. Li, Q. Wang, Fabrication of three-dimensional polyetherimide bead foams via supercritical CO₂/ethanol co-foaming technology, *RSC Adv.* 9 (2019) 4072–4081. <https://doi.org/10.1039/C8RA09706B>.
- [44] C. Ge, G. Wang, G. Zhao, C. Wei, X. Li, Lightweight and flexible poly(ether-block-amide)/multiwalled carbon nanotube composites with porous structure and segregated conductive networks for electromagnetic shielding applications, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 144 (2021) 106356. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2021.106356>.
- [45] Z. Ma, A. Wei, Y. Li, L. Shao, H. Zhang, X. Xiang, J. Wang, Q. Ren, S. Kang, D. Dong, J. Ma, G. Zhang, Lightweight, flexible and highly sensitive segregated microcellular nanocomposite piezoresistive sensors for human motion detection, *Compos. Sci. Technol.* 203 (2021) 108571. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2020.108571>.
- [46] J. Jiang, W. Feng, D. Zhao, W. Zhai, Poly(ether imide)/Epoxy Foam Composites with a

- Microcellular Structure and Ultralow Density: Bead Foam Fabrication, Compression Molding, Mechanical Properties, Thermal Stability, and Flame-Retardant Properties, ACS Omega. 5 (2020) 25784–25797. <https://doi.org/10.1021/acsomega.0c03072>.
- [47] K. Schneider, T. Kleffel, D. Drummer, RF Welding of Dielectric Lossless Foam Particles by the Application of a Dielectric Heatable Coating with High Recycling Potential, Polymers (Basel). 15 (2023). <https://doi.org/10.3390/polym15193950>.
- [48] K. Schneider, C. Ott, D. Drummer, Simulative study of polymeric core–shell foam particles for the enlargement of the material portfolio in 3D high-frequency welding, Polym. Eng. Sci. 62 (2022) 486–496. <https://doi.org/10.1002/pen.25861>.
- [49] K. Schneider, B. Gothe, M. Drexler, J. Siltamaeki, H. Weiger, A. Seefried, D. Drummer, The effect of dielectric and thermal properties of plastic mold materials on the high frequency welding of three-dimensional foam components, Polym. Eng. Sci. 62 (2022) 3400–3411. <https://doi.org/10.1002/pen.26112>.
- [50] D.M.P. Mingos, D.R. Baghurst, Applications of microwave dielectric heating effects to synthetic problems in chemistry, Chem. Soc. Rev. 20 (1991) 1–47. <https://doi.org/10.1039/CS9912000001>.
- [51] M. Mehdizadeh, Microwave/RF Applicators and Probes for Material Heating, Sensing, and Plasma Generation: Second Edition, 2015. <https://doi.org/10.1016/C2014-0-00010-X>.
- [52] H.J. Yeh, Radio frequency (RF)/dielectric welding of medical plastics, in: Join. Assem. Med. Mater. Devices, Elsevier, 2013: pp. 323-344e. <https://doi.org/10.1533/9780857096425.3.323>.
- [53] M. Dippold, C. Töpfer, H. Ruckdäschel, Influence of dielectric properties of polybutylene terephthalate and respective foam beads on process behavior in radio-frequency welding, J. Appl. Polym. Sci. 141 (2024) 1–12. <https://doi.org/10.1002/app.54988>.
- [54] Zhou Y.; Breyen M., Joining and assembly of medical materials and devices, Woodhead Publishing Limited, 2013.
- [55] H. Sussner, D.E. Horne, D.Y. Yoon, A new method for determining the pyroelectric coefficient of thin polymer films using dielectric heating, Appl. Phys. Lett. 32 (1978) 137–139. <https://doi.org/10.1063/1.89974>.
- [56] R.P. Wool, Polymer Entanglements, Macromolecules. 26 (1993) 1564–1569. <https://doi.org/10.1021/ma00059a012>.
- [57] S. Wu, Entanglement between dissimilar chains in compatible polymer blends: poly(methyl methacrylate) and poly(vinylidene fluoride), J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys. 25 (1987) 557–566. <https://doi.org/10.1002/polb.1987.090250308>.
- [58] P.G. de Gennes, Reptation of a Polymer Chain in the Presence of Fixed Obstacles, J. Chem. Phys. 55 (1971) 572–579. <https://doi.org/10.1063/1.1675789>.
- [59] R.P. Wool, B. -L. Yuan, O.J. McGarel, Welding of polymer interfaces, Polym. Eng. Sci. 29 (1989) 1340–1367. <https://doi.org/10.1002/pen.760291906>.
- [60] C.A. Butler, R.L. McCullough, R. Pitchumani, J.W. Gillespie, An Analysis of Mechanisms Governing Fusion Bonding of Thermoplastic Composites, J. Thermoplast. Compos. Mater. 11 (1998) 338–363. <https://doi.org/10.1177/089270579801100404>.
- [61] R.P. Wool, K.M. O'Connor, A theory crack healing in polymers, J. Appl. Phys. 52 (1981) 5953–5963. <https://doi.org/10.1063/1.328526>.

- [62] F. Yang, R. Pitchumani, Healing of Thermoplastic Polymers at an Interface under Nonisothermal Conditions, *Macromolecules.* 35 (2002) 3213–3224. <https://doi.org/10.1021/ma010858o>.
- [63] M. Bousmina, H. Qiu, M. Grmela, J.E. Klemborg-Sapieha, Diffusion at polymer/polymer interfaces probed by rheological tools, *Macromolecules.* 31 (1998) 8273–8280. <https://doi.org/10.1021/ma980562r>.
- [64] M. Doi, S.F. Edwards, Dynamics of concentrated polymer systems. Part 1.—Brownian motion in the equilibrium state, *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 2.* 74 (1978) 1789–1801. <https://doi.org/10.1039/F29787401789>.
- [65] C. Reynolds, R. Thompson, T. McLeish, Pressure and shear rate dependence of the viscosity and stress relaxation of polymer melts, *J. Rheol. (N. Y. N. Y).* 62 (2018) 631–642. <https://doi.org/10.1122/1.5012969>.
- [66] J. Rossacci, S. Shivkumar, Bead fusion in polystyrene foams, *J. Mater. Sci.* 38 (2003) 201–206. <https://doi.org/10.1023/A:1021180608531>.
- [67] P.R. Stupak, W.O. Frye, J.A. Donovan, The Effect of Bead Fusion on the Energy Absorption of Polystyrene Foam. Part I: Fracture Toughness, *J. Cell. Plast.* 27 (1991) 484–505. <https://doi.org/10.1177/0021955X9102700503>.
- [68] J. Rossacci, S. Shivkumar, Influence of EPS bead fusion on pattern degradation and casting formation in the lost foam process, *J. Mater. Sci.* 38 (2003) 2321–2330. <https://doi.org/10.1023/A:1023924211663>.
- [69] N. Weingart, D. Raps, J. Kuhnigk, A. Klein, V. Altstädt, Expanded Polycarbonate (EPC)—A New Generation of High-Temperature Engineering Bead Foams, *Polymers (Basel).* 12 (2020) 2314. <https://doi.org/10.3390/polym12102314>.
- [70] N. Weingart, D. Raps, M. Lamka, M. Demleitner, V. Altstädt, H. Ruckdäschel, Influence of thermo-oxidative aging on the mechanical properties of the bead foams made of polycarbonate and polypropylene, *J. Polym. Sci.* 61 (2023) 2742–2757. <https://doi.org/10.1002/pol.20230267>.
- [71] C. Brütting, T. Standau, J. Meuchelböck, P. Schreier, H. Ruckdäschel, A review on semi-crystalline polymer bead foams from stirring autoclave: Processing and properties, *E-Polymers.* 23 (2023). <https://doi.org/10.1515/epoly-2023-0092>.
- [72] G. Reiter, G.R. Strobl, eds., *Progress in Understanding of Polymer Crystallization*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2007. <https://doi.org/10.1007/3-540-47307-6>.
- [73] R. Hingmann, J. Rieger, M. Kersting, Rheological Properties of a Partially Molten Polypropylene Random Copolymer during Annealing, *Macromolecules.* 28 (1995) 3801–3806. <https://doi.org/10.1021/ma00115a008>.
- [74] P. Guo, Y. Liu, Y. Xu, M. Lu, S. Zhang, T. Liu, Effects of saturation temperature/pressure on melting behavior and cell structure of expanded polypropylene bead, *J. Cell. Plast.* 50 (2014) 321–335. <https://doi.org/10.1177/0021955X14525798>.
- [75] J. Kuhnigk, D. Raps, T. Standau, M. Luik, V. Altstädt, H. Ruckdäschel, Insights into the bead fusion mechanism of expanded polybutylene terephthalate (E-pbt), *Polymers (Basel).* 13 (2021) 1–20. <https://doi.org/10.3390/polym13040582>.
- [76] J. Jiang, F. Liu, X. Yang, Z. Xiong, H. Liu, D. Xu, W. Zhai, Evolution of ordered structure of TPU in high-elastic state and their influences on the autoclave foaming of TPU and inter-

- bead bonding of expanded TPU beads, *Polymer* (Guildf). 228 (2021) 123872. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2021.123872>.
- [77] J. Jiang, F. Liu, B. Chen, Y. Li, X. Yang, F. Tian, D. Xu, W. Zhai, Microstructure development of PEBA and its impact on autoclave foaming behavior and inter-bead bonding of EPEBA beads, *Polymer* (Guildf). 256 (2022) 125244. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2022.125244>.
- [78] J. Gensel, C. Pawelski, V. Altstädt, Welding quality in polymer bead foams: An in situ SEM study, in: AIP Conf. Proc., 2017: p. 060001. <https://doi.org/10.1063/1.5016721>.
- [79] D. Tammaro, A. Ballesteros, C. Walker, N. Reichelt, U. Trommsdorff, Expanded Beads of High Melt Strength Polypropylene Moldable at Low Steam Pressure by Foam Extrusion, *Polymers* (Basel). 14 (2022) 205. <https://doi.org/10.3390/polym14010205>.
- [80] P. Huang, Y. Su, H. Luo, X. Lan, Y. Chong, F. Wu, W. Zheng, Facile one-step method to manufacture polypropylene bead foams with outstanding thermal insulation and mechanical properties via supercritical CO₂ extrusion foaming, *J. CO₂ Util.* 64 (2022) 102167. <https://doi.org/10.1016/j.jcou.2022.102167>.
- [81] D. Dörr, D. Raps, D. Kirupanantham, C. Holmes, V. Altstädt, Expanded polyamide 12 bead foams (ePA) thermo-mechanical properties of molded parts, in: AIP Conf. Proc., 2020: p. 020037. <https://doi.org/10.1063/1.5142952>.
- [82] J. Kuhnigk, N. Krebs, C. Mielke, T. Standau, D. Pospiech, H. Ruckdäschel, Influence of Molecular Weight on the Bead Foaming and Bead Fusion Behavior of Poly(butylene terephthalate) (PBT), *Ind. Eng. Chem. Res.* 61 (2022) 17904–17914. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.2c03233>.
- [83] T. Standau, B. Hädelt, P. Schreier, V. Altstädt, Development of a Bead Foam from an Engineering Polymer with Addition of Chain Extender: Expanded Polybutylene Terephthalate, *Ind. Eng. Chem. Res.* 57 (2018) 17170–17176. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.8b04799>.
- [84] X. Tong, W. Peng, M. Zhang, X. Wang, G. Zhang, S. Long, J. Yang, A new class of poly(ether- block -amide)s based on semi-aromatic polyamide: synthesis, characterization and structure–property relations, *Polym. Int.* 70 (2021) 230–241. <https://doi.org/10.1002/pi.6119>.
- [85] DIN Deutsches Institut für Normung e. V., DIN EN ISO 18064, 2022.
- [86] T.R. Hesketh, J.W.C. Van Bogart, S.L. Cooper, Differential scanning calorimetry analysis of morphological changes in segmented elastomers, *Polym. Eng. Sci.* 20 (1980) 190–197. <https://doi.org/10.1002/pen.760200304>.
- [87] A. Küchler, *High Voltage Engineering*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2018. <https://doi.org/10.1007/978-3-642-11993-4>.
- [88] K.C. Kao, *Dielectric Phenomena in Solids*, Elsevier Ltd, 2004.
- [89] M.-S. Kao, C.-F. Chang, *Understanding Electromagnetic Waves*, Springer International Publishing, Cham, 2020. <https://doi.org/10.1007/978-3-030-45708-2>.
- [90] F.S.A. Kremer, *Broadband Dielectric Spectroscopy*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2003. <https://doi.org/10.1007/978-3-642-56120-7>.
- [91] S. Bonardd, V. Moreno-Serna, G. Kortaberria, D.D. Díaz, A. Leiva, C. Saldías, Dipolar glass polymers containing polarizable groups as dielectric materials for energy storage

- applications. A minireview, Polymers (Basel). 11 (2019) 1–10. <https://doi.org/10.3390/polym11020317>.
- [92] M. Chen, E.J. Siochi, T.C. Ward, J.E. McGrath, Basic ideas of microwave processing of polymers, *Polym. Eng. Sci.* 33 (1993) 1092–1109. <https://doi.org/10.1002/pen.760331703>.
- [93] A. Sihvola, Electromagnetic Mixing Formulas and Applications, 1999. https://doi.org/10.1049/pbew047e_ch9.
- [94] F. Chen, R. Balieu, A state-of-the-art review of intrinsic and enhanced electrical properties of asphalt materials: Theories, analyses and applications, *Mater. Des.* 195 (2020) 109067. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2020.109067>.
- [95] P. Mehrotra, B. Chatterjee, S. Sen, EM-Wave Biosensors: A Review of RF, Microwave, mm-Wave and Optical Sensing, Sensors. 19 (2019) 1013. <https://doi.org/10.3390/s19051013>.
- [96] T. Sabu, T. Raju, K.Z. Ajesh, K.M. Raghvendra, Spectroscopy methods for nanomaterials characterization, Volume 2, Elsevier Inc., Amsterdam, 2017.
- [97] J.K. Gregory, D.C. Clary, K. Liu, M.G. Brown, R.J. Saykally, The Water Dipole Moment in Water Clusters, *Science* (80-). 275 (1997) 814–817. <https://doi.org/10.1126/science.275.5301.814>.
- [98] H.O. Pritchard, H.A. Skinner, The concept of electronegativity, *Chem. Rev.* 55 (1955) 745–786.
- [99] P. Debye, Dielectric Properties of Pure Liquids, *Chem. Rev.* (1936) 171–182.
- [100] L. Onsager, Electric moments of molecules in liquids, *J. Am. Chem. Soc.* 58 (1936) 1486–1493.
- [101] P. Debye, Part I. Dielectric constant. Energy absorption in dielectrics with polar molecules, *Trans. Faraday Soc.* 30 (1934) 679. <https://doi.org/10.1039/tf9343000679>.
- [102] J.G. Kirkwood, R.M. Fuoss, Anomalous dispersion and dielectric loss in polar polymers, *J. Chem. Phys.* 9 (1941) 329–340. <https://doi.org/10.1063/1.1750905>.
- [103] K.S. Cole, R.H. Cole, Dispersion and Absorption in Dielectrics I. Alternating Current Characteristics, *J. Chem. Phys.* 9 (1941) 341–351. <https://doi.org/10.1063/1.1750906>.
- [104] P. Debye, Polar Molecules, Chem. Cat. Company, New York. (1929).
- [105] E. Schlosser, A. Schönhals, Recent development in dielectric relaxation spectroscopy of polymers, *Colloid Polym. Sci.* 267 (1989) 963–969. <https://doi.org/10.1007/BF01410156>.
- [106] A. Schönhals, Dielectric spectroscopy on the dynamics of amorphous polymeric systems, (1998) 1–17.
- [107] L. Bifano, A. Fischerauer, A. Liedtke, G. Fischerauer, Characterization of sand and sand-binder systems from the foundry industry with electrical impedance spectroscopy, *J. Sensors Sens. Syst.* 10 (2021) 43–51. <https://doi.org/10.5194/jsss-10-43-2021>.
- [108] K.S. Cole, R.H. Cole, Dispersion and Absorption in Dielectrics II. Direct Current Characteristics, *J. Chem. Phys.* 10 (1942) 98–105. <https://doi.org/10.1063/1.1723677>.
- [109] W.H. Stockmayer, Dielectric dispersion in solutions of flexible polymers, *Pure Appl. Chem.* 15 (1967) 539–554. <https://doi.org/10.1351/pac196715030539>.

- [110] A. Schonhals, E. Schlosser, Relationship between segmental and chain dynamics in polymer melts as studied by dielectric spectroscopy, *Phys. Scr.* 1993 (1993) 233–236. <https://doi.org/10.1088/0031-8949/1993/T49A/039>.
- [111] K. Adachi, T. Kotaka, Influence of Entanglement on the Dielectric Normal Mode Process of Cis-Polyisoprene, *Macromolecules*. 17 (1984) 120–122. <https://doi.org/10.1021/ma00131a023>.
- [112] K. Adachi, T. Kotaka, Dielectric normal mode relaxation, *Prog. Polym. Sci.* 18 (1993) 585–622. [https://doi.org/10.1016/0079-6700\(93\)90018-8](https://doi.org/10.1016/0079-6700(93)90018-8).
- [113] J. Majszczyk, J. Ślonecki, A. Kozłowska, Dielectric relaxation of poly(ester-block-amide) multiblock copolymers, *Macromol. Chem. Phys.* 202 (2001) 1207–1212. [https://doi.org/10.1002/1521-3935\(20010401\)202:7<1207::AID-MACP1207>3.0.CO;2-7](https://doi.org/10.1002/1521-3935(20010401)202:7<1207::AID-MACP1207>3.0.CO;2-7).
- [114] Y.H. Roos, Glass transition temperature and its relevance in food processing, *Annu. Rev. Food Sci. Technol.* 1 (2010) 469–496. <https://doi.org/10.1146/annurev.food.102308.124139>.
- [115] H. Yin, B. Dittrich, M. Farooq, S. Kerling, K.A. Wartig, D. Hofmann, C. Huth, C. Okolieocha, V. Altstädt, A. Schönhals, B. Schartel, Carbon-based nanofillers/Poly(butylene terephthalate): thermal, dielectric, electrical and rheological properties, *J. Polym. Res.* 22 (2015). <https://doi.org/10.1007/s10965-015-0785-4>.
- [116] F. Kremer, Dielectric spectroscopy - Yesterday, today and tomorrow, *J. Non. Cryst. Solids.* 305 (2002) 1–9. [https://doi.org/10.1016/S0022-3093\(02\)01083-9](https://doi.org/10.1016/S0022-3093(02)01083-9).
- [117] S. Havriliak, S. Negami, A complex plane analysis of α -dispersions in some polymer systems, *J. Polym. Sci. Part C Polym. Symp.* 14 (1966) 99–117. <https://doi.org/10.1002/polc.5070140111>.
- [118] S. Havriliak, S. Negami, A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers, *Polymer (Guildf).* 8 (1967) 161–210. [https://doi.org/10.1016/0032-3861\(67\)90021-3](https://doi.org/10.1016/0032-3861(67)90021-3).
- [119] A. Jonscher, The measurement and interpretation of dielectric properties, *Thin Solid Films.* 100 (1983) 329–334. [https://doi.org/10.1016/0040-6090\(83\)90157-8](https://doi.org/10.1016/0040-6090(83)90157-8).
- [120] A. Schönhals, F. Kremer, A. Hofmann, E.W. Fischer, E. Schlosser, Anomalies in the scaling of the dielectric α -relaxation, *Phys. Rev. Lett.* 70 (1993) 3459–3462. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.70.3459>.
- [121] C.P. Johari, M. Goidstein, Viscous liquids and the glass transition. II. Secondary relaxations in glasses of rigid molecules, *J. Chem. Phys.* 53 (1970) 2372–2388. <https://doi.org/10.1063/1.1674335>.
- [122] R.H. Boyd, Relaxation processes in crystalline polymers: molecular interpretation — a review, *Polymer (Guildf).* 26 (1985) 1123–1133. [https://doi.org/10.1016/0032-3861\(85\)90240-X](https://doi.org/10.1016/0032-3861(85)90240-X).
- [123] R.H. Boyd, Relaxation processes in crystalline polymers: experimental behaviour — a review, *Polymer (Guildf).* 26 (1985) 323–347. [https://doi.org/10.1016/0032-3861\(85\)90192-2](https://doi.org/10.1016/0032-3861(85)90192-2).
- [124] T. Kakudate, M. Kakizaki, T. Hidemitsu, Comparative study of dielectric, mechanical, and nuclear magnetic relaxations of linear polyethylene. I. Broad-line NMR investigation of the fine structure of the α and γ loss bands observed by dielectric and mechanical

- measurements, J. Polym. Sci. Polym. Phys. Ed. 23 (1985) 787–808. <https://doi.org/10.1002/pol.1985.180230413>.
- [125] D.C. Campos, Dielectric properties of polyols, at frequency range 0.2–3 GHz and temperature range 293–473 K: an analysis in the frequency and temperature domain, J. Microw. Power Electromagn. Energy. 54 (2020) 125–160. <https://doi.org/10.1080/08327823.2020.1755482>.
- [126] M. Arous, A. Kallel, Z. Fakhfakh, G. Perrier, Maxwell - wagner - sillars relaxations in surface-modified glass-bead polystyrene-based composites, Compos. Interfaces. 5 (1997) 137–153. <https://doi.org/10.1163/156855497X00118>.
- [127] R.N. Work, R.D. Mccammon, R.G. Saba, Effective dipole moment of polypropylene, J. Chem. Phys. 41 (1964) 2950–2951. <https://doi.org/10.1063/1.1726384>.
- [128] A. Jonscher, A new model of dielectric loss in polymers, Colloid Polym. Sci. 253 (1975) 231–250. <https://doi.org/10.1007/BF01470233>.
- [129] A.J. Curtis, Dielectric Loss in "Nonpolar" Polymers, J. Chem. Phys. 36 (1962) 3500–3501. <https://doi.org/10.1063/1.1732491>.
- [130] A.J. Bur, Dielectric properties of polymers at microwave frequencies: a review, Polymer (Guildf). 26 (1985) 963–977. [https://doi.org/10.1016/0032-3861\(85\)90216-2](https://doi.org/10.1016/0032-3861(85)90216-2).
- [131] H. Looyenga, Dielectric constants of heterogeneous mixtures, Physica. 31 (1965) 401–406. [https://doi.org/10.1016/0031-8914\(65\)90045-5](https://doi.org/10.1016/0031-8914(65)90045-5).
- [132] A.H. Sihvola, J.A. Kong, Effective permittivity of dielectric mixtures, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 26.4 (1988) 420–429.
- [133] M. Strååt, I. Chmutin, A. Boldizar, Dielectric Properties of Polyethylene Foams at Medium and High Frequencies, Trans. Nord. Rheol. Soc. 18 (2010) 107–116.
- [134] D.E. Aspnes, Local-field effects and effective-medium theory: A microscopic perspective, J. Phys. 50 (1982) 704–709.
- [135] G.P. De Loor, Dielectric properties of heterogeneous mixtures with a polar constituent, Appl. Sci. Res. 11 (1965) 310–320. <https://doi.org/10.1007/BF00384034>.
- [136] G. Perrier, A. Bergeret, Polystyrene – Glass Bead Composites: Maxwell – Wagner – Sillars Relaxations and Percolation, (1997) 1349–1359.
- [137] A. Sihvola, Mixing rules with complex dielectric coefficients, Subsurf. Sens. Technol. Appl. 1 (2000) 393–415. <https://doi.org/10.1023/A:1026511515005>.
- [138] L.S. Taylor, Dielectric Properties of Mixtures, IEEE Trans. Antennas Propag. 13 (1965) 943–947. <https://doi.org/10.1109/TAP.1965.1138567>.
- [139] Z. Hashin, S. Shtrikman, A Variational Approach to the Theory of the Effective Magnetic Permeability of Multiphase Materials, J. Appl. Phys. 33 (1962) 3125–3131. <https://doi.org/10.1063/1.1728579>.
- [140] A.H. Sihvola, How strict are theoretical bounds for dielectric properties of mixtures?, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 40 (2002) 880–886. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2002.1006369>.
- [141] D. Polder, J.H. van Santeen, The effective permeability of mixtures of solids, Physica. 12 (1946) 257–271. [https://doi.org/10.1016/S0031-8914\(46\)80066-1](https://doi.org/10.1016/S0031-8914(46)80066-1).

- [142] G.P. de Loor, Dielectric Properties of Heterogeneous Mixtures Containing Water *, J. Microw. Power. 3 (1968) 67–73. <https://doi.org/10.1080/00222739.1968.11688670>.
- [143] J.R. Birchak, C.G. Gardner, J.E. Hipp, J.M. Victor, High dielectric constant microwave probes for sensing soil moisture, Proc. IEEE. 62 (1974) 93–98. <https://doi.org/10.1109/PROC.1974.9388>.
- [144] L. Wang, X. Liu, C. Liu, X. Zhou, C. Liu, M. Cheng, R. Wei, X. Liu, Ultralow dielectric constant polyarylene ether nitrile foam with excellent mechanical properties, Chem. Eng. J. 384 (2020) 123231. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2019.123231>.
- [145] B. Zhao, C. Zhao, C. Wang, C.B. Park, Poly(vinylidene fluoride) foams: a promising low-k dielectric and heat-insulating material, J. Mater. Chem. C. 6 (2018) 3065–3073. <https://doi.org/10.1039/C8TC00547H>.
- [146] P.C. Bandyopadhyay, T.K. Chaki, S. Srivastava, G.S. Sanyal, Dielectric behavior of polystyrene foam at microwave frequency, Polym. Eng. Sci. 20 (1980) 441–446. <https://doi.org/10.1002/pen.760200610>.
- [147] X. Chen, Y. Chong, H. Luo, F. Wu, J. Chen, X. Lan, B. Shen, W. Zheng, Lightweight polypropylene/BaTiO₃ composite foams with tunable dielectric constant, Compos. Commun. 47 (2024) 101876. <https://doi.org/10.1016/j.coco.2024.101876>.
- [148] E. Barsoukov, J.R. Macdonald, Impedance Spectroscopy: Theory, Experiment, and Applications, John Wiley & Sons, Inc., New Jersy, 2018. <https://doi.org/10.1002/9781119381860>.
- [149] L. Bifano, A. Fischerauer, G. Fischerauer, Investigation of complex permittivity spectra of foundry sands, Tm - Tech. Mess. 87 (2020) 372–380. <https://doi.org/10.1515/teme-2019-0121>.
- [150] Keysight Technologies, Impedance Measurement Handbook, Agilent. (2009) 140. www.keysight.com.
- [151] Deutsches Institut für Normung, DIN EN IEC 62631-2-1: Dielektrische und resistive Eigenschaften fester Elektroisolierstoffe – Teil 21: Relative Permittivität und Verlustfaktor – Technische Frequenzen (0,1 Hz bis 10 MHz) – Wechselspannungsverfahren, 2018.
- [152] Y. Lyu, Finite Element Method, Springer Nature Singapore, Singapore, 2022. <https://doi.org/10.1007/978-981-19-3363-9>.
- [153] S. Unnikrishnan Nair, S. Somanath, Introduction to Finite Element Analysis, Springer Nature Singapore, Singapore, 2024. <https://doi.org/10.1007/978-981-19-7989-7>.
- [154] B. Klein, FEM Grundlagen und Anwendungen der Finite-Element-Methode im Maschinen- und Fahrzeugbau, 2015.
- [155] O.. Zienkiewicz, R.. Taylor, J.. Zhu, The Finite Element Method: Its Basis and Fundamentals, Elsevier Butterworth Heinemann, Oxford, 2005.
- [156] K. Knothe, H. Wessels, Finite Elemente, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2017. <https://doi.org/10.1007/978-3-662-49352-6>.
- [157] T. Bulenda, Finite-Element-Modellierung 1, Springer Fachmedien Wiesbaden, Wiesbaden, 2024. <https://doi.org/10.1007/978-3-658-42204-2>.
- [158] S. Vajna, C. Weber, K. Zeman, P. Hehenberger, D. Gerhard, S. Wartzack, CAx für Ingenieure, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2018.

<https://doi.org/10.1007/978-3-662-54624-6>.

- [159] M. Wagner, Lineare und nichtlineare FEM, 2022. <https://doi.org/10.1007/978-3-658-36522-6>.
- [160] P. Plaza-Gonzalez, J. Monzo-Cabrera, J.M. Catala-Civera, D. Sanchez-Hernandez, Effect of mode-stirrer configurations on dielectric heating performance in multimode microwave applicators, *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 53 (2005) 1699–1706. <https://doi.org/10.1109/TMTT.2005.847066>.
- [161] D. Dinkler, U. Kowalsky, Introduction to Finite Element Methods, Springer Fachmedien Wiesbaden, Wiesbaden, 2024. <https://doi.org/10.1007/978-3-658-42742-9>.
- [162] M. Behr, T.E. Tezduyar, Finite element solution strategies for large-scale flow simulations, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 112 (1994) 3–24. [https://doi.org/10.1016/0045-7825\(94\)90016-7](https://doi.org/10.1016/0045-7825(94)90016-7).
- [163] M. Paszyński, D. Pardo, C. Torres-Verdín, L. Demkowicz, V. Calo, A parallel direct solver for the self-adaptive hp Finite Element Method, *J. Parallel Distrib. Comput.* 70 (2010) 270–281. <https://doi.org/10.1016/j.jpdc.2009.09.007>.
- [164] Y. ZHAO, B. FLUGSTAD, E. KOLBE, J.W. PARK, J.H. WELLS, USING CAPACITIVE (RADIO FREQUENCY) DIELECTRIC HEATING IN FOOD PROCESSING AND PRESERVATION – A REVIEW, *J. Food Process Eng.* 23 (2000) 25–55. <https://doi.org/10.1111/j.1745-4530.2000.tb00502.x>.
- [165] J. YANG, Y. ZHAO, J.H. WELLS, COMPUTER SIMULATION of CAPACITIVE RADIO FREQUENCY (RF) DIELECTRIC HEATING ON VEGETABLE SPROUT SEEDS, *J. Food Process Eng.* 26 (2003) 239–263. <https://doi.org/10.1111/j.1745-4530.2003.tb00600.x>.
- [166] S. Grabmaier, M. Jüttner, D. Vögeli, W.M. Rucker, P. Göhner, Numerical framework for the simulation of dielectric heating using finite and boundary element method, *Int. J. Numer. Model. Electron. Networks, Devices Fields.* 31 (2018) 1–8. <https://doi.org/10.1002/jnm.2273>.
- [167] R.-J. Chen, N. Qiao, M. Arowo, H.-K. Zou, G.-W. Chu, Y. Luo, B.-C. Sun, J.-F. Chen, Modeling for Temperature Distribution of Water in a Multiwaveguide Microwave Reactor, *Ind. Eng. Chem. Res.* 59 (2020) 4762–4774. <https://doi.org/10.1021/acs.iecr.9b04748>.
- [168] Y. Alpert, E. Jerby, Coupled thermal-electromagnetic model for microwave heating of temperature-dependent dielectric media, *IEEE Trans. Plasma Sci.* 27 (1999) 555–562. <https://doi.org/10.1109/27.772285>.
- [169] K. Liu, X. Xu, B. Zhang, Characterization and simulation of the nonlinear thermal field of the aramid/bismaleimide composites caused by the dielectric heating effects of the microwave radiations, *Polym. Compos.* 42 (2021) 2565–2573. <https://doi.org/10.1002/pc.26002>.
- [170] H. Chen, T. Li, Z. Wang, R. Ye, Q. Li, Effect of dielectric properties on heat transfer characteristics of rubber materials via microwave heating, *Int. J. Therm. Sci.* 148 (2020) 106162. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2019.106162>.
- [171] J. Su, J. Lin, Y. Cao, W. Xu, M. Weng, J. Huang, H. Zhang, Y. Min, Experimental investigation and numerical simulation on microwave thermal conversion storage properties of multi-level conductive porous phase change materials and its multifunctional

- applications, Appl. Therm. Eng. 253 (2024) 123774. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2024.123774>.
- [172] D. Feng, P. Liu, Microwave-assisted rapid fabrication of robust polyetherimide bead foam parts, J. Appl. Polym. Sci. 138 (2021). <https://doi.org/10.1002/app.49960>.
- [173] C.A. Calles-Arriaga, J. López-Hernández, M. Hernández-Ordoñez, R.A. Echavarría-Solís, V.M. Ovando-Medina, Thermal Characterization of Microwave Assisted Foaming of Expandable Polystyrene, Ing. Investig. y Tecnol. 17 (2016) 15–21. <https://doi.org/10.1016/j.riit.2016.01.002>.
- [174] J. Baumgartner, T. Bruder, An efficient meshing approach for the calculation of notch stresses, Weld. World. 57 (2013) 137–145. <https://doi.org/10.1007/s40194-012-0005-3>.
- [175] X. Jia, W. Zhong, Y. Chen, D. Hu, J. Sun, Y. Peng, J. Yu, X. Jiang, L. Zhao, Density gradient structure foams prepared by novel two-step foaming strategy: Performance, simulation and optimization, Compos. Part B Eng. 288 (2025) 111890. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2024.111890>.
- [176] B. Grüber, I. Koch, M. Müller-Pabel, J. Meuchelböck, M. Gude, H. Ruckdäschel, Numerical study on the influence of cell gas on the compression behavior of expanded polypropylene, J. Appl. Polym. Sci. 141 (2024) 1–13. <https://doi.org/10.1002/app.55962>.
- [177] T.M.J. Gebhart, D. Jehnichen, R. Koschichow, M. Müller, M. Göbel, V. Geske, M. Stegelmann, M. Gude, Multi-scale modelling approach to homogenise the mechanical properties of polymeric closed-cell bead foams, Int. J. Eng. Sci. 145 (2019) 103168. <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2019.103168>.
- [178] C. Petit, Study of mechanical properties of cellular materials by X-ray tomography and finite element modelling, (2016) 216. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01368510/>.
- [179] P. Viot, R. Bouix, I. Iordanoff, J.L. Lataillade, Deformation localisation modelling of polymer foam microstructure under compression: A new approach by discrete element modelling, Compos. Struct. 92 (2010) 585–592. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2009.09.008>.
- [180] J. Park, S.H. Yang, K.S. Minn, C. Bin Yu, S.Y. Pak, Y.S. Song, J.R. Youn, Design and numerical analysis of syntactic hybrid foam for superior sound absorption, Mater. Des. 142 (2018) 212–220. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2018.01.040>.
- [181] G. Luo, Y. Zhu, R. Zhang, P. Cao, Q. Liu, J. Zhang, Y. Sun, H. Yuan, W. Guo, Q. Shen, L. Zhang, A Review on Mechanical Models for Cellular Media: Investigation on Material Characterization and Numerical Simulation, Polymers (Basel). 13 (2021) 3283. <https://doi.org/10.3390/polym13193283>.
- [182] W. Gong, D. Zhang, C. Zhang, X. Zeng, L. He, T. Jiang, Deformation and Simulation of the Cellular Structure of Foamed Polypropylene Composites, Polymers (Basel). 14 (2022) 5103. <https://doi.org/10.3390/polym14235103>.
- [183] P. Gahlen, M. Stommel, Modeling of the local anisotropic mechanical foam properties in polyisocyanurate metal panels using mesoscale FEM simulations, Int. J. Solids Struct. 244–245 (2022) 111595. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2022.111595>.
- [184] R. Quey, P.R. Dawson, F. Barbe, Large-scale 3D random polycrystals for the finite element method: Generation, meshing and remeshing, Comput. Methods Appl. Mech. Eng. 200 (2011) 1729–1745. <https://doi.org/10.1016/j.cma.2011.01.002>.

- [185] F. Prissok, J. Ahlers, Hohlpartikel aus thermoplastischen elastomeren und poröse formkörper, WO2017202782A1, 2017.
- [186] F. Prissok, Partikelschäume auf der Basis von thermoplastischem Polyurethan, in: Int. Fachtagung Schaumkunststoffe Und Polyurethane, 2016.
- [187] E. Verdonck, K. Schaap, L.C. Thomas, A discussion of the principles and applications of Modulated Temperature DSC (MTDSC), Int. J. Pharm. 192 (1999) 3–20. [https://doi.org/10.1016/S0378-5173\(99\)00267-7](https://doi.org/10.1016/S0378-5173(99)00267-7).
- [188] Choosing Conditions in Modulated DSC, n.d. <https://www.tainstruments.com/pdf/literature/TN45.pdf>.
- [189] K. Stephan, A. Laesecke, The Thermal Conductivity of Fluid Air, J. Phys. Chem. Ref. Data. 14 (1985) 227–234. <https://doi.org/10.1063/1.555749>.
- [190] Kern GmbH, Datenblatt PTFE, (2025) 1–4. <https://www.kern.de/de/technical-datasheet/polytetrafluoroethylene-ptf> (accessed February 7, 2025).
- [191] S. Jain, P.K. Mishra, V.V. Thakare, J. Mishra, Design of microstrip moisture sensor for determination of moisture content in rice with improved mean relative error, Microw. Opt. Technol. Lett. 61 (2019) 1764–1768. <https://doi.org/10.1002/mop.31763>.
- [192] C. Chen, J. Twycross, J.M. Garibaldi, A new accuracy measure based on bounded relative error for time series forecasting, PLoS One. 12 (2017) 1–23. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0174202>.
- [193] A.C. Anderson, Thermal Conductivity, in: 1981: pp. 65–80. https://doi.org/10.1007/978-3-642-81534-8_5.
- [194] X. He, J. Zhou, L. Jin, X. Long, H. Wu, L. Xu, Y. Gong, W. Zhou, Improved Dielectric Properties of Thermoplastic Polyurethane Elastomer Filled with Core–Shell Structured PDA@TiC Particles, Materials (Basel). 13 (2020) 3341. <https://doi.org/10.3390/ma13153341>.
- [195] BASF SE, Thermoplastische Polyurethan-Elastomere (TPU), (n.d.). https://download.bASF.com/p1/8a8082587fd4b608017fd6411cdd6d63/de/Elastollan%3Cs%3E®%3Cs%3E_Thermoplastic_Polyurethane_Elastomers_%28TPU%29_-Product_Range_Chart_German.pdf?view#page=36 (accessed April 20, 2025).
- [196] Kern GmbH, Datenblatt TPU 80A, (2025) 1–4. https://www.kern.de/de/technisches-datenblatt/pur-elastomer-tpu-80a?n=2636_1 (accessed February 7, 2025).
- [197] BASF SE, Thermoplastische Polyurethan-Elastomere (TPU), (2025) 1–40. https://plastics-rubber.bASF.com/emea/de/performance_polymer/products/elastollan (accessed February 7, 2025).
- [198] Y.-X. Xu, J.-Y. Juang, Measurement of Nonlinear Poisson's Ratio of Thermoplastic Polyurethanes under Cyclic Softening Using 2D Digital Image Correlation, Polymers (Basel). 13 (2021) 1498. <https://doi.org/10.3390/polym13091498>.

Lebenslauf

Persönliche Daten: Marcel Raimond Dippold

Geboren am 24.08.1995 in Kulmbach

Familienstand: verheiratet

Nationalität: Deutsch

Schulbildung: 2001 - 2005 Friedrich-von-Ellrodt-Grundschule Neudrossenfeld

2005 - 2013 Markgraf-Georg-Friedrich-Gymnasium Kulmbach

Studium: 2013 - 2017 B. Sc. Materialwissenschaft und Werkstofftechnik
Universität Bayreuth

2017 - 2019 M. Sc. Materialwissenschaft und Werkstofftechnik
Universität Bayreuth

Beruf: 2019 - 2021 Wissenschaftlicher Mitarbeiter
Neue Materialien Bayreuth GmbH
Bereich Additive Fertigung

2021 - 2023 Wissenschaftlicher Mitarbeiter
Universität Bayreuth, Lehrstuhl für Polymere Werkstoffe
Bereich Polymerschäume

2024 - Jetzt Teamleiter
Universität Bayreuth, Lehrstuhl für Polymere Werkstoffe
Bereich Polymerschäume

Publikationen

- 2022 Justus Kuhnigk, Niko Krebs, Tobias Standau, **Marcel Dippold**, Holger Ruckdäschel
“Evaluation of the Fusion Quality of Bead Foams Made from Polybutylene Terephthalate (E-PBT) Depending on the Processing Temperature”
Macromolecular Materials and Engineering 2022, doi.org/10.1002/mame.202200419
- Marcel Dippold** and Holger Ruckdäschel
“Influence of pressure-induced temperature drop on the foaming behavior of amorphous polylactide (PLA) during autoclave foaming with supercritical CO₂”
The Journal of Supercritical Fluids 2022, doi.org/10.1016/j.supflu.2022.105734
- 2023 Andressa Seefeldt, **Marcel Dippold**, Julia Gensel, Thomas Neumeyer, Volker Altstädt
“Direct printing of high-performance thermoplastic connection and stiffening elements by fused filament fabrication”
AIP Conference Proceedings 2023, doi.org/10.1063/5.0136137
- 2024 **Marcel Dippold**, Alexander Himsel, Justus Kuhnigk, Makrina Chairopoulou, Maximilian Drexler, Holger Ruckdäschel
“Bead-to-Bead Analysis: Introducing an Innovative Methodology for Accelerated Quantitative Analysis of the Welding Behavior of Bead Foams”
Journal of Polymer Science 2024, doi.org/10.1002/pol.20240830
- Marcel Dippold**, Makrina A Chairopoulou, Maximilian Drexler, Michael Scheiber, Holger Ruckdäschel
“From vibrating molecules to a running shoe: connecting dielectric properties with process feedback in radio-frequency welding of TPU bead foams”
Proceedings of the 39th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-39) 2024, doi.org/10.51573/Andes.PPS39.GS.PFM.1
- Marcel Dippold**, Christian Töpfer, Holger Ruckdäschel

“Influence of dielectric properties of polybutylene terephthalate and respective foam beads on process behavior in radio-frequency welding”

Journal of Applied Polymer Science 2024, doi.org/10.1002/app.54988

Johannes Meuchelböck, Carlo Peiffer, Lena Walter, **Marcel Dippold**, Peter Munro, Holger Ruckdäschel

“Influence of temperature on the compression properties of expanded thermoplastic polyurethane (ETPU)”

Journal of Materials Science: Materials in Engineering 2024, doi.org/10.1186/s40712-024-00149-9

- 2025 Karim Ali Shah, Rodrigo Q Albuquerque, Christian Brütting, **Marcel Dippold**, Holger Ruckdäschel
“Low-density polyamide 12 foams using bayesian optimization and inverse design”
Polymer 2025, doi.org/10.1016/j.polymer.2025.128096

Annalena Pongratz, **Marcel Dippold**, Svenja Reimer, Oliver Heß, Holger Ruckdäschel
“Low Tg PLA-Based Copolymer Foams for Tissue Engineering Applications: Influence of Supercritical CO₂ and N₂ Mixtures on Open-Cell Content, Morphology, and Storage Stability”

Journal of Polymer Science 2025, doi.org/10.1002/pol.20241061