



Lehrstuhl für Werkstoffkunde und Prüfung der Kunststoffe

Masterarbeit

Einfluss des Rezyklat-Anteils und des  
Spannungsverhältnisses auf das  
Risswachstumsverhalten eines HDPE  
Blasform Typs

Benjamin Schulhofer, BSc

Juli 2024



## EIDESSTATTLICHE ERKLÄRUNG

Ich erkläre an Eides statt, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst, andere als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel nicht benutzt, den Einsatz von generativen Methoden und Modellen der künstlichen Intelligenz vollständig und wahrheitsgetreu ausgewiesen habe, und mich auch sonst keiner unerlaubten Hilfsmittel bedient habe.

Ich erkläre, dass ich den Satzungsteil „Gute wissenschaftliche Praxis“ der Montanuniversität Leoben gelesen, verstanden und befolgt habe.

Weiters erkläre ich, dass die elektronische und gedruckte Version der eingereichten wissenschaftlichen Abschlussarbeit formal und inhaltlich identisch sind.

Datum 16.07.2024

Unterschrift Verfasser/in

Benjamin Schulhofer

## DANKSAGUNG

Die vorliegende Masterarbeit wurde durch Zusammenarbeit der Montanuniversität Leoben und der Polymer Competence Center Leoben GmbH im Rahmen des strategischen Projekts „StratRec“ (Projektnummer: VII-3.S5) innerhalb des COMET-Projekts erstellt. Das COMET-Projekt wird vom Bundesministerium für Digitalisierung und vom Bundesministerium für Klimaschutz, Umwelt, Energie, Mobilität, Innovation und Technologie unter Beteiligung der Montanuniversität, dem Transfercenter für Kunststofftechnik GmbH, vom Bund und den Ländern Steiermark, Niederösterreich und Oberösterreich, gefördert.

Zu Beginn möchte ich mich bei Herrn Univ.-Prof. Dipl.-Ing. Dr. mont. Gerald Pinter, Leiter des Lehrstuhls Werkstoffkunde und Prüfung der Kunststoffe, für die Ermöglichung dieser Arbeit und den uneingeschränkten Zugang zu allen Prüfmitteln bedanken.

Ganz besonders bedanke ich mich bei dem Betreuer dieser Arbeit, Herrn Priv.-Doz. Dipl.-Ing. Dr. mont. Florian Arbeiter, der mir stets mit Rat und Tat zur Seite stand und mit seinem umfassenden Fachwissen mir jederzeit zu helfen vermochte. Sein Wissen verhalf mir die theoretischen Prinzipien besser zu verstehen und die praktischen Aufgaben umzusetzen. Weiters bedanke ich mich bei all meinen Kollegen am Lehrstuhl Werkstoffkunde und Prüfung der Kunststoffe für das äußerst angenehme Arbeitsklima. Mein Dank gilt vor allem auch Herrn Jürgen Grosser, der mich bei meinen Versuchen im Labor unterstützte.

Mein Dank gilt außerdem allen beteiligten Ländern und Firmen für das Interesse und die Unterstützung dieses Projekts.

Abschließend bedanke ich mich ganz herzlich bei meiner Familie für die Ermöglichung des Studiums, sowie für ihre bedingungslose Unterstützung. Für die moralische Unterstützung bedanke ich mich außerdem bei meinen engsten Freunden und meiner Partnerin, die mich in anstrengenden Zeiten während des Studiums jederzeit motivierten.

## KURZFASSUNG

Die weltweite Kunststoffproduktion nimmt aufgrund ihrer gebotenen Vielseitigkeit in unterschiedlichsten Anwendungsbereichen wie Bauwesen, Automobilindustrie oder Verpackungen stetig zu. Die steigende Nachfrage an Produkte mit immer besseren Eigenschaften treibt die Innovation neuer Kunststofftechnologien weiter voran. Allerdings trägt die Herstellung von Kunststoffbauteilen erheblich zur Abfallproblematik unserer Generation bei. Kunststoffe sind grundsätzlich nicht biologisch abbaubar und verbleiben jahrhundertlang in der Umwelt, was zur Verschmutzung und zur Notwendigkeit von Abfalldeponien führt. Eine Lösung bietet das Recyceln von Kunststoffen, so kann die entstehende Abfallmenge reduziert und die Kreislaufwirtschaft gefördert werden, bei der vorhandene Ressourcen effizient genützt werden. Recycelter Kunststoff wird mittlerweile in etlichen Bereichen verwendet. Bei Verpackungen wie Flaschen oder im Bauwesen bei Rohren finden sogenannte Rezyklate, zum Beispiel aus Polyethylen, immer häufiger Anwendung. Der große Nachteil bei der Verwendung von recyceltem Kunststoff ist die geringere Lebensdauer im Vergleich zu Neumaterialien. Produkte in diesen Anwendungsbereichen versagen typischerweise unter der Ausbildung und dem anschließend langsamen Wachstum eines Risses. Der Widerstand gegen die Initiierung und das Wachstum eines Risses bestimmen das Langzeitverhalten der Werkstoffe in diesen Einsatzgebieten.

Im Rahmen dieser Masterarbeit wird das Langzeitverhalten eines Polyethylen-Werkstoffs mit hoher Dichte und eines Polyethylen-Rezyklats untersucht. Da beide Werkstoffe für die Herstellung mit Blasformen geeignet sind, könnten die Materialien für die Produktion von beispielsweise Flaschen verwendet werden. Zusätzlich werden drei Werkstoffe mit unterschiedlichem Rezyklat-Anteil (50 %, 25 % und 10 %) im Neumaterial analysiert, um den Einfluss des Rezyklats auf das Langzeitverhalten beurteilen zu können. Es wird davon ausgegangen, dass mit steigendem Rezyklat-Anteil die Lebensdauer durch Veränderungen in der molekularen Struktur abnimmt. Diese Werkstoffe wurden ausgewählt, da ein reiner Polyethylen-Rohrwerkstoff für die Untersuchungen bei dieser Masterarbeit einen zu hohen Risswiderstand aufweisen würde. Aufgrund dessen würden die Versuchszeiten um einiges länger sein als bei den verwendeten Blasform-Typen. Die Standardmethode zur

Charakterisierung der Lebensdauer ist der statische Zeitstandinnendruckversuch. Ein negativer Aspekt dieses Experiments ist die lange Versuchszeit von mehreren Monaten oder Jahren. Daher ist das Ziel dieser Arbeit zu überprüfen, ob mithilfe zyklischer Versuche bei unterschiedlichen Spannungsverhältnissen eine schnellere Abschätzung der Lebensdauer unter statischen Bedingungen und anschließender Extrapolation stattfinden kann. Dabei wurden an den Werkstoffen unter Anwendung der linear-elastischen Bruchmechanik zyklische Ermüdungsversuche an Kompaktzugprüfkörpern durchgeführt und anschließend auf den statischen Lastfall extrapoliert. Um zu überprüfen, ob die Extrapolation gültig ist, wurden an den gleichen Werkstoffen auch statische Versuche durchgeführt und mit den zyklischen Ergebnissen verglichen. Dabei wird erwartet, dass mit abnehmender Zähigkeit und zunehmender Sprödigkeit (mehr Rezyklat-Anteil) die Unterschiede der statischen und zyklischen quasi-spröde Rissausbreitung und Versagenszeiten geringer werden. Um die Versuchszeiten weiter zu verringern, wurden die Experimente bei einer erhöhten Temperatur von 80 °C durchgeführt.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Langzeitbeständigkeit mit zunehmendem Anteil an Rezyklat stark abnimmt und die Zeit bis zum Versagen unabhängig vom Spannungsverhältnis wird. Außerdem ist die Extrapolation bei den verwendeten Materialien nur bei der Neuware und der Materialmischung mit 10% Rezyklat zulässig, indem die vorausgesagten und tatsächlichen Ergebnisse keine großen Unterschiede zeigen.

Ein weiterer Aspekt dieser Arbeit war die Untersuchung der Bruchflächen mit einem Rasterelektronenmikroskop. Für die Analyse der unterschiedlichen Morphologien wurden die, während des Rissfortschritts entstehenden, Crazes von jedem Werkstoff und Spannungsverhältnis nach dem Versagen analysiert. Je größer das Spannungsverhältnis ist, desto größer sollten die Crazes gemäß Theorie aufgrund von Kriech- und Relaxationsvorgängen werden.

Die Ergebnisse der Untersuchung der Bruchflächen machen deutlich, dass die Form und die Größe der Crazes stark vom Rezyklat-Anteil abhängt. So sind die Crazes vor allem bei der Neuware bei den statischen Versuchen hochorientiert und lang. Mit zunehmendem Rezyklat-Anteil und geringerem Spannungsverhältnis versagen die Crazes früher und die

Ketten gleiten schneller aneinander ab. Dadurch sind die Crazes kleiner und weniger orientiert.

## ABSTRACT

Global plastic production is steadily increasing due to the versatility offered in a wide variety of application areas such as construction, the automotive industry or packaging. The increasing demand for products with even better properties continues to drive the innovation of new polymer technologies. However, the production of polymer components contributes significantly to the waste problem of our generation. Polymers are in principle non-biodegradable and can remain in the environment for centuries, leading to pollution and the need for landfills. By recycling polymers, the amount of generated waste can be reduced and the circular economy, in which existing resources are used efficiently, can be encouraged. Nowadays recycled polymers are used in quite a number of areas. So-called recyclates, for example made of polyethylene, are increasingly used for packaging such as bottles or pipes in the construction industry. The major disadvantage of using recycled polymers is their shorter lifespan compared to virgin materials. Products in these applications typically fail under the formation and subsequent slow growth of a crack. The resistance to the initiation and growth of a crack determines the long-term behavior and subsequently the lifetime of the materials in these areas of application.

This Master's Thesis investigates the long-term behavior of a high-density polyethylene material and a polyethylene recyclate. Both materials are suitable for production with blow molding, meaning these could be used for the production of plastic bottles for instance. In addition, three materials with different recycled content (50 %, 25 % and 10 %) mixed with the virgin material are analysed in order to assess the influence of the recyclate on the long-term performance. It is assumed that as the proportion of recycled materials increases, the service life decreases due to changes in the molecular structure as well as the introduction of foreign particles. These materials were selected because a pure polyethylene pipe material would show a too high crack resistance for the investigations in this master thesis. As a result, the test times would be much longer than with the blow molding types used. The standard method for characterizing the service life is the static creep internal pressure test. A negative aspect of this experiment is the long trial period of several months or years. Therefore, the aim of this thesis is to test whether a faster estimation of the service life under static conditions can be carried out by the means of cyclic tests at different stress

ratios and subsequent extrapolation. Cyclic fatigue tests were carried out on the materials with compact tension specimen using linear-elastic fracture mechanics. Afterwards the results were extrapolated to the static load case. In order to prove whether the extrapolation is valid, static tests were also carried out on the same materials and compared with the cyclic results. It is expected that with decreasing toughness and increasing brittleness (more recycled content) the differences between static and cyclic quasi-brittle crack propagation and failure times become smaller. In order to further reduce the test times, the experiments were carried out at an elevated temperature of 80 °C.

The results show that the long-term resistance decreases strongly with increasing content of recycled material and that the time to failure becomes practically independent of the stress ratio. It also proves that the extrapolation with the tested materials is only permissible for the virgin material and the material mixture with 10% recycled material, showing hardly any differences between anticipated and actual results.

Another aspect of this work was the investigation of the fracture surfaces with a scanning electron microscope. For the analysis of the different morphologies, the crazes that are formed during the crack growth of each material and stress ratio were analyzed after failure. The greater the stress ratio, the larger the crazes should become due to creep and relaxation processes.

The results of the examination of the fracture surfaces make it clear that the shape and size of the crazes depend heavily on the content of the recycled material. In the static experiments, the crazes are highly oriented and long, especially in the virgin material. As the content of the recycled material increases and the stress ratio decreases, the crazes fail earlier and the chains slide off against each other more quickly. As a result, the crazes are smaller and less oriented.

# INHALTSVERZEICHNIS

<b>SYMBOLS UND ABKÜRZUNGEN .....</b>	<b>1</b>
<b>BILDERVERZEICHNIS .....</b>	<b>4</b>
<b>1 EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG.....</b>	<b>9</b>
<b>2 GRUNDLAGEN.....</b>	<b>12</b>
2.1    Langsames Risswachstum bei Polyethylen .....	12
2.2    Linear-elastische Bruchmechanik.....	16
2.2.1    K-Konzept.....	18
2.3    Beschleunigte Prüfmethode für die Lebensdauer.....	19
2.3.1    Risswachstumskinetik.....	19
2.3.2    R-Verhältnis Abhängigkeit zur beschleunigten Prüfung.....	21
2.3.3    Berechnung der Lebensdauer .....	24
2.4    Mechanisches Recycling von PE .....	25
2.4.1    Chemische Eigenschaften .....	27
2.4.2    Studien über mechanische Eigenschaften von Rezyklaten .....	29
2.4.3    Morphologie .....	34
<b>3 EXPERIMENTELLES .....</b>	<b>36</b>
3.1    Werkstoffe .....	36
3.2    Prüfkörperherstellung und Verarbeitung.....	37
3.3    Versuchsdurchführung .....	38
3.3.1    Bruchmechanische Versuche .....	39
3.3.2    Mikroskopie .....	41
3.3.3    Auswertung der Ergebnisse.....	41
3.3.4    Untersuchung der Bruchflächen.....	43
<b>4 ERGEBNISSE .....</b>	<b>45</b>

4.1	Bruchmechanische Versagenskurven.....	45
4.1.1	Einfluss des R-Verhältnisses auf die Versagenskurven von HDPE und PEr1.....	45
4.1.2	Einfluss des R-Verhältnisses auf die Versagenskurven der Werkstoffmischungen .....	51
4.1.3	Einfluss des Rezyklat-Anteils auf die Versagenszeit .....	53
4.2	Risswachstumskinetik.....	58
4.2.1	Einfluss des R-Verhältnisses bei HDv2 und PEr1 .....	59
4.2.2	Einfluss des R-Verhältnisses bei den Werkstoffmischungen.....	62
4.2.3	Bestimmung der Risskinetikparameter .....	64
4.3	Untersuchung der Bruchflächen.....	72
4.3.1	Crazes unter gleichem Spannungsintensitätsfaktor.....	74
4.3.2	Crazes unter gleicher Rissausbreitungsgeschwindigkeit.....	77
<b>5</b>	<b>ZUSAMMENFASSUNG, SCHLUSSFOLGERUNGEN UND AUSBLICK .....</b>	<b>81</b>
<b>6</b>	<b>LITERATUR.....</b>	<b>85</b>

**SYMBOLE UND ABKÜRZUNGEN**

A	Materialspezifischer Parameter 1
a	Risslänge
a <sub>1</sub>	Risslänge bei $K_{I,max,ini} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$
a <sub>2</sub>	Risslänge bei $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$
a <sub>ini</sub>	Ursprüngliche Risslänge
a <sub>f</sub>	Risslänge bei Versagen
B	Probenbreite
B <sub>t</sub>	Materialspezifischer Parameter 3
BM	Blasformen
CRB	Cracked-Round-Bar
CT	Compact-Tension
CCG	Langsames Risswachstum unter statischer Last
da/dt	Risslängenänderung pro Zeit bei statischen Versuchen
da/dN	Risslängenänderung pro Zyklus bei zyklischen Versuchen
F	Kraft auf CT-Prüfkörper
F <sub>max</sub>	Höchste Last während eines Belastungszyklus
F <sub>min</sub>	Geringste Last während eines Belastungszyklus
FCG	Langsames Risswachstum unter zyklischer Last
g	Erdanziehungskraft
Gew.-%	Gewichtsprozent
HDPE	Polyethylen hoher Dichte
HDv2	HDPE BB2581
HQ	High Quality

---

$K_I$	Spannungsintensität
$K_{IC}$	Bruchzähigkeit
$K_{I,max}$	Maximale Spannungsintensität
$K_{I,max,ini}$	Maximaler $K_I$ -Faktor bei Versuchsbeginn
$K_{I,min}$	Minimale Spannungsintensität
$K_{I,th}$	Threshold bei statischen Versuchen
LEBM	Linear-elastische Bruchmechanik
m	Materialspezifischer Parameter 2
$m_g$	Masse
n	Materialspezifischer Parameter 4
O	Sauerstoff
PE	Polyethylen
PEr1	PE Recyclingmaterial
PET	Polyethylenterephthalat
PP	Polypropylen
REM	Rasterelektronenmikroskop
R-Verhältnis	Spannungsverhältnis
SCG	Langsames Risswachstum
$t_{ini}$	Rissinitiierungszeit
$t_f$	Versagenszeit bis zum Bruch
$T_{oben}$	Temperatur der oberen Pressplatte
$T_{unten}$	Temperatur der unteren Pressplatte
$t_{SGC}$	Risswachstumszeit während SCG
W	Probenweite

$\Delta K_I$	Differenz der Spannungsintensitätsfaktoren
$\Delta K_{I,th}$	Threshold bei zyklischen Versuchen
$\Delta T$	Abkühlgeschwindigkeit der Presse
$\sigma_I$	Globale Spannung
$\sigma_s$	Fließgrenze

**BILDERVERZEICHNIS**

<b>Abbildung 2.1:</b> Versagensfälle von PE-Druckrohren. (Pinter et al., 2007).....	13
<b>Abbildung 2.2:</b> Darstellung des bei SCG stattfindenden Sprödbruchs. (Fawaz et al., 2016) .....	15
<b>Abbildung 2.3:</b> REM-Aufnahme der Bruchfläche eines PE mit mittlerer Dichte. (Parsons et al., 2000) .....	15
<b>Abbildung 2.4:</b> Rissöffnungsarten unter verschiedener Belastungsmodi. (Gross and Seelig, 2016).....	17
<b>Abbildung 2.5:</b> Gültigkeit des K-Konzepts. (Gross and Seelig, 2016).....	17
<b>Abbildung 2.6:</b> Spannungsverteilung an der Rissspitze bei linear-elastischem und linear-elastisch-plastischem Werkstoffverhalten abhängig vom Abstand $r$ zur Rissspitze. (Pinter, 1999).....	19
<b>Abbildung 2.7:</b> Risswachstumskinetik unter statischer Last. (Pinter, 1999).....	20
<b>Abbildung 2.8:</b> Vergleich zweier Belastungszyklen bei unterschiedlichen R-Verhältnissen und gleicher Maximalkraft. (Pinter et al., 2002) .....	22
<b>Abbildung 2.9:</b> Bruchflächen bei $R = 0,1$ (a), $R = 0,3$ (b), $R = 0,5$ (c) und bei $R = 1$ (d). (Pinter et al., 2002).....	22
<b>Abbildung 2.10:</b> Extrapolation auf statische Beanspruchung durch Variation von R. (Frank et al., 2008).....	23
<b>Abbildung 2.11:</b> Entstehung synthetischer Risswachstumskurven. (Pinter et al., 2014) ...	23
<b>Abbildung 2.12:</b> Darstellung einer CT-Probe mit den charakteristischen Abmessungen, der Kraftangriffslinie und der Prozesszone vor dem Riss. (Balika et al., 2007) .....	24
<b>Abbildung 2.13:</b> Molekulares Gewicht (links) und Kristallinität (rechts) einer PP Probe als Funktion von der Anzahl an Extrusionsprozessen. (La Mantia, 1999) .....	29
<b>Abbildung 2.14:</b> Dimensionsloser Modul (links) und dimensionslose Bruchdehnung (rechts) von PP ( $\square$ ) und HDPE ( $\diamond$ ) als Funktion von der Anzahl an Extrusionsprozessen. (La Mantia, 1999).....	31

<b>Abbildung 2.15:</b> Bruchdehnung über Anzahl an Extrusionsprozessen von stabilisierten (○) und nicht stabilisierten (□) PP. (La Mantia, 1999).....	31
<b>Abbildung 2.16:</b> Bruchdehnung (◇) und Schlagfestigkeit (□) eines 50/50 PET/PP Blends als Funktion des Gehalts an Kautschuk. (La Mantia, 1999) .....	32
<b>Abbildung 2.17:</b> Kriechnachgiebigkeit von HDPE als Neumaterial a) und recyceltem HDPE d). (Alzerreca et al., 2015) .....	33
<b>Abbildung 2.18:</b> Spannungsamplitude über der Anzahl von Zyklen bis Versagen bei unterschiedlichen HDPE-Typen (Neuware – rot a); Neuware-Rezyklat-Mischung – blau); Wiederaufbereitetes HDPE – grün c); Rezyklat – schwarz d)). (Alzerreca et al., 2015) .....	34
<b>Abbildung 2.19:</b> Hochauflösende REM-Aufnahme einer HDPE-Neuware (oben links), einer Mischung aus 50/50 Gew.-% HDPE-Neuware/recyceltes HDPE (oben rechts) und reinem recycelten HDPE (unten). (Zeng et al., 2023) .....	35
<b>Abbildung 2.20:</b> REM-Aufnahmen von 100 % HDPE-Neuware ((a) und (d)), Mischung aus 60 Gew.-% HDPE-Neuware und 40 Gew.-% Recyceltes HDPE ((b) und (e)) und 100 % HDPE-Rezyklat. Die Materialien der Proben der oberen Reihe sind mit Pulvermischer und die der unteren Reihe mit Extruder vermischt. (Zhang et al., 2023).....	35
<b>Abbildung 3.1:</b> CT-Probe mit charakteristischen Abmessungen in Millimeter. (Pinter, 1999) .....	38
<b>Abbildung 3.2:</b> Kriechprüfstand mit Temperierkammer. ....	40
<b>Abbildung 3.3:</b> Vollelektrodynamischen Prüfmaschine ElectroPuls E3000.....	41
<b>Abbildung 3.4:</b> Messen der Risslänge, an der die Crazes untersucht werden. ....	43
<b>Abbildung 4.1:</b> Versagenskurven des Werkstoffs HDv2. ....	47
<b>Abbildung 4.2:</b> Versagenskurven des Werkstoffs PEr1.....	48
<b>Abbildung 4.3:</b> Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit des Werkstoffs HDv2.....	50
<b>Abbildung 4.4:</b> Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit der verschiedenen Werkstoffe. ....	50

<b>Abbildung 4.5:</b> Versagenskurven des Werkstoffs HDv2_PEr1_90/10. ....	51
<b>Abbildung 4.6:</b> Versagenskurven des Werkstoffs HDv2_PEr1_75/25. ....	52
<b>Abbildung 4.7:</b> Versagenskurven des Werkstoffs HDv2_PEr1_50/50. ....	52
<b>Abbildung 4.8:</b> Versagenskurven der Werkstoffe bei $R = 0,1$ . ....	54
<b>Abbildung 4.9:</b> Versagenskurven der Werkstoffe bei $R = 0,3$ . ....	54
<b>Abbildung 4.10:</b> Versagenskurven der Werkstoffe bei $R = 0,5$ . ....	55
<b>Abbildung 4.11:</b> Versagenskurven der Werkstoffe bei $R = 1$ . ....	55
<b>Abbildung 4.12:</b> Versagenszeit abhängig vom Rezyklat-Anteil bei $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$ und unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	57
<b>Abbildung 4.13:</b> Versagenszeiten der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis bei $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$ .....	58
<b>Abbildung 4.14:</b> Risswachstumskinetik der HDv2-Prüfkörper bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	59
<b>Abbildung 4.15:</b> Risswachstumskinetik von HDv2 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	61
<b>Abbildung 4.16:</b> Risswachstumskinetik von PEr1 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	61
<b>Abbildung 4.17:</b> Risswachstumskinetik von HDv2_PEr1_90/10 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	63
<b>Abbildung 4.18:</b> Risswachstumskinetik von HDv2_PEr1_75/25 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	63
<b>Abbildung 4.19:</b> Risswachstumskinetik von HDv2_PEr1_50/50 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen. ....	64
<b>Abbildung 4.20:</b> Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei $R = 0,1$ . ....	65
<b>Abbildung 4.21:</b> Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei $R = 0,3$ . ....	65

<b>Abbildung 4.22:</b> Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei $R = 0,5$ .	66
<b>Abbildung 4.23:</b> Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei $R = 1$ .	66
<b>Abbildung 4.24:</b> Parameter A der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis und extrapoliert auf $R = 1$ (weiß gefüllt).	68
<b>Abbildung 4.25:</b> Parameter m der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis und extrapoliert auf $R = 1$ (weiß gefüllt).	69
<b>Abbildung 4.26:</b> Materialparameter A abhängig vom Rezyklat-Anteil bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.	71
<b>Abbildung 4.27:</b> Materialparameter m abhängig vom Rezyklat-Anteil bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.	71
<b>Abbildung 4.28:</b> Risswachstumskurven der am REM zu untersuchenden Proben.	73
<b>Abbildung 4.29:</b> Crazes bei $K_{I\max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$ und $R = 0,1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2_PEr1_90/10, unten links HDv2_PEr1_75/25, unten Mitte HDv2_PEr1_50/50, unten rechts PEr1.	75
<b>Abbildung 4.30:</b> Crazes bei $K_{I\max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$ und $R = 0,3$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2_PEr1_90/10, unten links HDv2_PEr1_75/25, unten Mitte HDv2_PEr1_50/50, unten rechts PEr1.	76
<b>Abbildung 4.31:</b> Crazes bei $K_{I\max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$ und $R = 0,5$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2_PEr1_90/10, unten links HDv2_PEr1_75/25, unten Mitte HDv2_PEr1_50/50, unten rechts PEr1.	76
<b>Abbildung 4.32:</b> Crazes bei $K_{I\max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$ und $R = 1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2_PEr1_90/10, unten links HDv2_PEr1_75/25, unten Mitte HDv2_PEr1_50/50, unten rechts PEr1.	77
<b>Abbildung 4.33:</b> Crazes bei $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$ und $R = 0,1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2_PEr1_90/10, unten links HDv2_PEr1_75/25, unten Mitte HDv2_PEr1_50/50, unten rechts PEr1.	78

**Abbildung 4.34:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4}$  mm/s und  $R = 0,3$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1..... 78

**Abbildung 4.35:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4}$  mm/s und  $R = 0,5$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1..... 79

**Abbildung 4.36:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4}$  mm/s und  $R = 1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1..... 79

## 1 EINLEITUNG UND ZIELSETZUNG

Seit mehreren Jahrzehnten werden Rohre aus Polyethylen (PE) verwendet. Bei Rohren ist eine lange Lebensdauer von entscheidender Bedeutung, da die Instandsetzung beschädigter Bauteile mit enormen Kosten verbunden ist. Durch die Entwicklung der Rohrwerkstoffe werden diese Materialien zunehmend beständiger gegenüber Beschädigungen und Versagen, wodurch die Lebensdauer ansteigt. Aufgrund des weltweiten Anstiegs an Kunststoffabfällen entstehen immer neuere Initiativen, Produkte aus recycelten Polymeren herzustellen. Mit der Verwendung von recycelten Werkstoffen, entweder in Produkten aus reinen recycelten Polymeren oder in Mischungen von Neuwaren mit Rezyklaten, wird die Lebensdauer der jeweiligen Produkte oftmals reduziert. Aufgrund von Alterung und Polymerabbau haben die Rezyklate häufig Veränderungen in der Polymerstruktur und daher ein geringeres Eigenschaftsniveau. Außerdem können Rezyklate Fremdpartikel enthalten, die als Spannungskonzentratoren wirken und somit das Eigenschaftsniveau weiter verschlechtern. Zusätzlich können sich die Grundzustände wie die Molmassenverteilung bei Rezyklaten und Neumaterialien unterscheiden, da die Werkstoffe für verschiedene Verwendungszwecke hergestellt werden.

Der charakteristische Versuch für die Vorhersage der Lebensdauer von PE-Rohren ist der Zeitstandinnendruckversuch (Hessel and Bühler, 1981). Während diesem Versuch wird das für PE-Rohre typische Langzeit-Versagensverhalten analysiert. PE-Rohre versagen zumeist quasi-spröde nach den Merkmalen einer langen Rissinitiierungszeit und anschließendem langsamen Risswachstum („Slow Crack Growth“ (SCG)) (Choi et al., 2009). Da dieser statische Zeitstandinnendruckversuch mehrere Monate dauern würde, untersucht diese Masterarbeit, ob eine beschleunigte Methode zur Vorhersage der Lebensdauer von einem PE mit Recycling-Anteilen zulässig ist. Häufig sind Rezyklate durch Fremdpartikel verunreinigt, wodurch ihr Verhalten unter mechanischer Beanspruchung variieren könnte, sodass diese Methode nicht gültig sein könnte. Reale Rohrwerkstoffe sind so duktil, dass die Versuchszeiten vor allem bei hohen Spannungsverhältnissen (R-Verhältnisse) mehrere Jahre dauern könnte. Zusätzlich sind Experimente aufgrund der Duktilität auf runde gekerbte Prüfkörper („Cracked-Round-Bar“ (CRB) – Proben) begrenzt. Zur Überprüfung der Zulässigkeit des beschleunigten Konzepts werden im Rahmen dieser Masterarbeit daher

Blasform (BM) – Werkstoffe verwendet, da diese spröder sind und daher schneller versagen, sowie die Verwendung von Kompaktzugprüfkörpern („Compact-Tension“ (CT) – Proben) ermöglichen, was die Bestimmung der Risswachstumskurven vereinfacht. Außerdem analysiert diese Arbeit den Einfluss des Recycling-Anteils auf das Versagensverhalten. Dafür werden zyklische Versuche mit unterschiedlichen R-Verhältnissen an CT-Prüfkörper eines PEs hoher Dichte (HDPE) unter einer erhöhten Temperatur von 80 °C durchgeführt. Um den Einfluss von Rezyklaten auf die Lebensdauer abschätzen zu können, werden diesem HDPE unterschiedliche Anteile von PE-Rezyklat zugemischt. Zusätzlich wird auch das reine Recyclingmaterial analysiert. Durch Anwendung der linear-elastischen Bruchmechanik (LEBM) werden die Widerstände gegen die Rissausbreitung abhängig vom Rezyklat-Anteil untersucht. Die Ergebnisse der Ermüdungsversuche werden auf den statischen Lastfall extrapoliert und mit durchgeführten statischen Versuchen verglichen. (Pinter et al., 2014) Es kann davon ausgegangen werden, dass die Lebensdauer mit steigendem Rezyklat-Anteil zunehmend sinkt. Durch Veränderung in der Struktur und der Morphologie während des Betriebs und der Wiederaufbereitung, sowie durch eingeschlossene Fremdstoffe, sollte die Risszähigkeit des Recyclingmaterials deutlich unter der des Neumaterials liegen und das Versagen früher eintreten.

Darüber hinaus sollen im Rahmen dieser Masterarbeit die Bruchflächen der Prüfkörper mithilfe eines Rasterelektronenmikroskop (REM) untersucht werden. Dabei werden die beim Risswachstum entstehenden Crazes abhängig vom Lastfall und Werkstoff untersucht. Aufgrund der unterschiedlichen Lastbedingungen und verschiedenen Morphologien durch das Zumischen des Rezyklats könnten die Formen und Dimensionen der Crazes voneinander zu differenzieren sein. Bei einem größeren R-Verhältnis ist die mittlere Kraft höher und es könnte eine größere plastische Zone ausgebildet werden, als bei geringeren R-Verhältnissen. Die unterschiedlichen plastischen Zonen könnten für verschieden starke Kriech- und Relaxationsvorgänge der Polymerketten verantwortlich sein, wodurch die Craze-Fibrillen vor dem Riss nicht gleichmäßig gedehnt werden. Dadurch dürften sich die Dimensionen der Crazes bei verschiedenen R-Verhältnissen differenzieren.

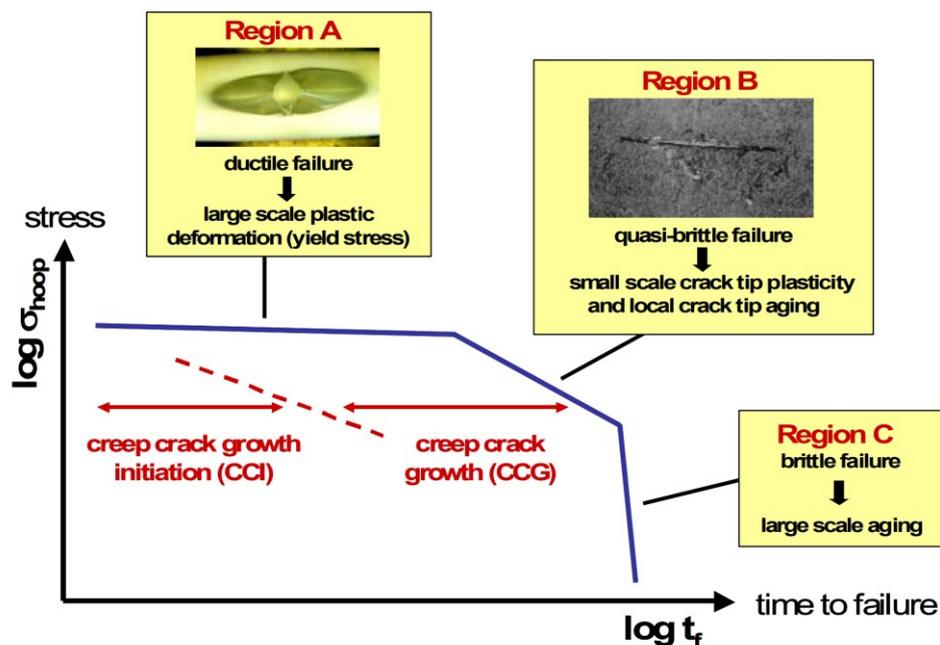
Momentan sind in der Rohrindustrie Werkstoffe aus reinem Recyclingmaterial nur für die Verwendung bei drucklosen Anwendungen zulässig (Poduška et al., 2019). Durch

Weiterentwicklung der Werkstoffe und durch Zugabe von Füllstoffen könnten in Zukunft recycelte Polymere auch für immer anspruchsvollere Anwendungen, wie unter Druck stehende Rohrleitungen verwendet werden. Zusätzlich können Rezyklate mit Neumaterialien gemischt werden, um das schlechtere Eigenschaftsniveau der recycelten Polymere auszugleichen. Mit dieser Masterarbeit soll durch die beschriebene Vorgehensweise ein wertvoller Beitrag zum besseren Verständnis über das Langzeitverhalten von recyceltem Kunststoff beigetragen werden.

## 2 GRUNDLAGEN

### 2.1 Langsames Risswachstum bei Polyethylen

Seit etwa 70 Jahren werden Rohre aus PE verwendet. Heutzutage haben moderne Rohre aufgrund hoher Steifigkeit bei gleichzeitig hohem Widerstand gegen Rissausbreitung ein stark verbessertes Langzeitverhalten bei einer typischen Mindestlebensdauer von 50 Jahren (Cazenave et al., 2006; Frank et al., 2009). Es zeigt sich, dass Schädigungen an den Rohren hauptsächlich nach sehr langer Einsatzzeit durch eine zusätzliche lokale Last, die etwa durch Fehler bei der Installation auftreten kann, entstehen. Zusätzlich sind entstehende Schrammen während der Montage an der Rohroberfläche fast unvermeidlich, auch wenn PE bei der grabenlosen Rohrverlegung weniger empfindlich gegenüber Schädigungen als andere Materialien ist (Fawaz et al., 2016). Häufig hat dies die Initiierung und das Wachstum von quasi-spröden Rissen in der Rohrwand zur Folge. Zur Vorhersage der Lebensdauer von Rohren, die zur Beförderung von Gas oder Wasser benutzt werden, werden grundsätzlich Zeitstandinnendruckversuche durchgeführt (Hessel and Bühler, 1981; Hutař et al., 2011). Dabei wird in einem doppeltlogarithmischen Diagramm die Umfangsspannung über der Versagenszeit aufgetragen. Die entstehende Versagenskurve kann dabei in drei Bereiche unterteilt werden. Bei hohen Spannungen kommt es zu großen plastischen Deformationen und duktilem Versagen bei einer kurzen Lebensdauer (Bereich A). In Bereich B entsteht, ausgehend von einem inhärenten Defekt, ein einzelner Riss, der durch die Rohrwand wächst. Die plastische Deformation ist geringer und nur lokal an der Risspitze vorhanden. Diese Versagensart wird daher oft als „quasi-spröd“ oder SCG bezeichnet. Die Lebensdauer ist höher als in Bereich A. Der Bereich C ist durch geringe Spannung und lange Lebenszeit gekennzeichnet. Dabei bedingt globales chemisches Altern ein fast gänzlich sprödes, spannungsunabhängiges Versagen. In Abbildung 2.1 sind die unterschiedlichen Versagensfälle von PE-Druckrohren dargestellt. PE-Rohre versagen am ehesten quasi-spröde nach den Merkmalen des Bereichs B, der durch Rissinitiierung und langsames Risswachstum gekennzeichnet ist. (Hutař et al., 2011; Pinter et al., 2007)



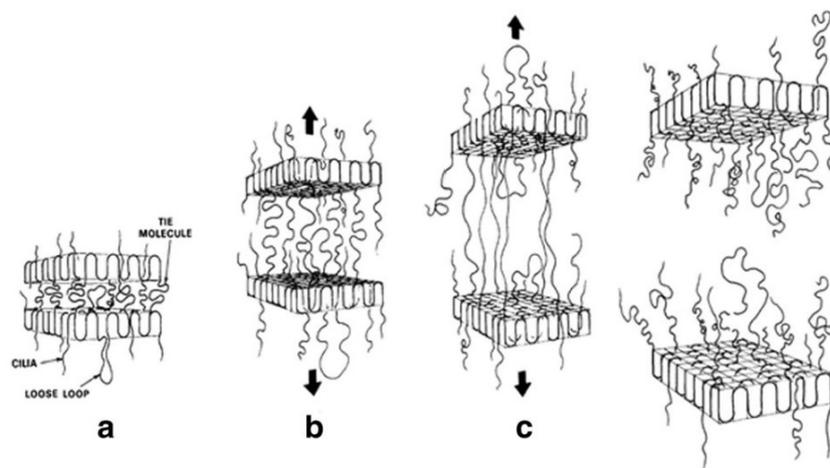
**Abbildung 2.1:** Versagensfälle von PE-Druckrohren. (Pinter et al., 2007)

Es wird angenommen, dass SCG das Ergebnis der Wechselwirkung des Risses, der bildenden Prozesszone des Risses vor dem Riss, des Rests des Körpers und des Materialabbaus in der Prozesszone ist. SCG kann in langsames Risswachstum unter statischer Last („Creep Crack Growth“ (CCG)) und langsames Risswachstum unter zyklischer Last („Fatigue Crack Growth“ (FCG)) unterteilt werden. Studien an HDPE haben gezeigt, dass trotz der verschiedenen Belastungssituationen, Daten aus Versuchen mit CCG und FCG miteinander verglichen werden können. Vor allem bei erhöhter Temperatur ähneln sich die für die Rissausbreitung dominierenden Ursachen. (Choi et al., 2009; Pinter et al., 2002)

PE wird häufig bei Rohren für die Wasser- und Gaszufuhr verwendet. Aufgrund der semikristallinen Struktur besitzt dieser Werkstoff Vorteile, wie etwa höhere Chemikalienbeständigkeit, bessere Korrosionsbeständigkeit oder höhere Zähigkeit, gegenüber anderen Materialien. Die typische Versagensart für ein Material dieser Art ist das SCG. Bei geringer Belastung tritt SCG ein und kann dabei Langzeitversagen bei technischen Bauteilen verursachen. In PE treten bei einer anliegenden Spannung unterhalb der Fließgrenze nach einer entsprechenden Initiierungszeit wachsende Risse und schlussendlich spröde Brüche auf. Während dieser Inkubationsperiode kommt es zu Schädigungen im Material, die zu wachsen beginnen. Dies ist ein diskontinuierlicher Prozess, bei dem abwechselnd sprunghafter Rissfortschritt und plötzliches Abstoppen des

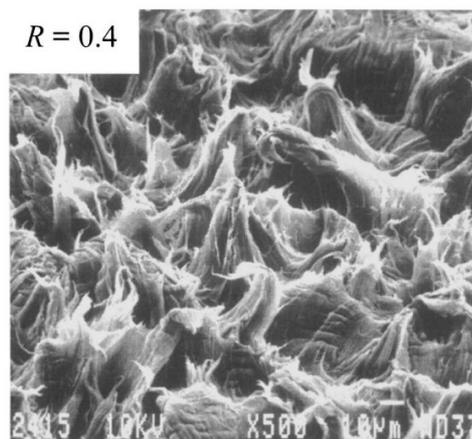
Risses (durch die Bildung von crazes) auftreten. Anschließend wächst der Riss diskontinuierlich weiter und letztendlich tritt sprödes Versagen ein. Dieser SCG-Prozess wird auch „Stick-Slip“ genannt und ist die Ursache für das Abstumpfen von Rissen. (Fawaz et al., 2016; Hamouda et al., 2001)

Chemische oder physikalische Inhomogenitäten wie katalytische Rückstände, Rußagglomerationen, Mikrohohlräume oder Kratzer können lokale Stresskonzentrationen bedingen. Die lokalen Stresskonzentrationen verursachen Fließen und vereinzelte Bildung von Hohlräumen in der amorphen Region benachbarter Lamellen des semikristallinen Polymers. Dadurch wird das SCG zu Beginn initiiert. Im nächsten Schritt werden die kristallinen Lamellen zerteilt und die Ketten des Polymers teilweise voneinander gefaltet. Entstehen Ansammlungen von hochorientierten Molekülen und Zwischenhohlräume, dann werden Fibrillen gebildet. Die Schadenszone entwickelt sich dabei zu einer crazing-Zone. Anschließend versagen die Fibrillen unter Last aufgrund von Entschlafungen von interlamellaren Tie-Molekülen. Es folgt eine diskontinuierliche Rissausbreitung, bei der der anfängliche Schaden allmählich in die crazing-Zone wächst. An der Risspitze entstehen neue Fibrillen aufgrund der hohen Belastung an der Spitze der crazing-Zone (Redhead et al., 2012). Dadurch beginnt der Prozess erneut und es kommt zum quasi-spröden Materialversagen mit dem Fortschreiten des Risses. In Abbildung 2.2 ist der spröde Bruch bei SCG von PE innerhalb eines Sphäroliten dargestellt. Während in (a) noch keine Kraft angreift, so werden die Tie-Moleküle bei Lasteinwirkung senkrecht zu den Lamellen gestreckt (b). Bei lang andauernder Beanspruchung durch eine konstante Last relaxieren und entwirren die gedehnten Ketten (c). Der Spröbruch entsteht, wenn die letzten Ketten voneinander abgleiten (d). Die Geschwindigkeit der Crazebildung (diese hängt von der Streckgrenze ab) und die Geschwindigkeit der Rissinitiierung (diese hängt von der Geschwindigkeit der Fibrillen-Entflechtung ab, die durch die Tie-Moleküle bestimmt wird) steuern die Geschwindigkeit des SCG. Der Rissfortschritt und somit der Widerstand gegenüber SCG hängt von der Widerstandsfähigkeit der Fibrillen gegenüber Deformation und Bruch ab. (Cazenave et al., 2006; Fawaz et al., 2016)



**Abbildung 2.2:** Darstellung des bei SCG stattfindenden Sprödbruchs. (Fawaz et al., 2016)

In Abbildung 2.3 ist die Aufnahme einer Bruchfläche mittels REM eines PE mit mittlerer Dichte beispielhaft abgebildet. Dabei sind die entstandenen Crazes gut zu erkennen, die fast senkrecht zur Bruchfläche stehen. (Parsons et al., 2000)



**Abbildung 2.3:** REM-Aufnahme der Bruchfläche eines PE mit mittlerer Dichte. (Parsons et al., 2000)

Die mechanische Widerstandsfähigkeit der Craze-Fibrillen hängt von den Dichten der Tie-Moleküle und der Verschlaufungen ab. Die Verschlaufungen sind über Van-der-Waals-Kräfte gekoppelt, während die Tie-Moleküle durch kovalente Bindungen verbunden sind. Die Spannungsrisssbeständigkeit steigt mit größeren Bindungsmolekülen und höherer Dichte an Verschlaufungen, da die anliegende Belastung auf mehr Tie-Moleküle aufgeteilt wird (Cazenave et al., 2006; Redhead et al., 2012). Die Eigenschaften dieser Komponenten werden stark durch Unterschiede in den molekularen und morphologischen Parametern wie Verzweigungsdichte, molekulares Gewicht, Verteilung des molekularen Gewichts und Kristallinität beeinflusst. (Fawaz et al., 2016) Eine hohe mittlere Molmasse, eine breite

Verteilung des molekularen Gewichts, eine hohe Konzentration an kurzen Seitenketten und eine geringe Kristallinität haben ebenso einen positiven Einfluss auf die Versagenszeit. (Pinter, 1999; Redhead et al., 2012) Kurzkettenverzweigungen beeinträchtigen die Kristallisation und verringern die Lamellendicken, wodurch die Dichte an Tie-Moleküle zunimmt und die Fließspannung geringer wird. Aufgrund des dadurch erhöhten Widerstands gegenüber Entschlaufungsvorgängen können die Fibrillen mehr gedehnt werden und beim Risswachstum kann dadurch mehr Energie absorbiert werden. (Pinter, 1999)

PE mit einer bimodalen Verteilung des molekularen Gewichts hat den Vorteil, dass durch die Anteile des hohen Molekulargewichts die mechanischen Eigenschaften und durch die Anteile des geringen Molekulargewichts die Fließfähigkeit verbessert werden. Die bimodale Verteilung bedingt eine Erhöhung der Bruchzähigkeit ( $K_{IC}$ ) durch perfektere Kristallisation. Denn dünnere Kristalle haben zum Beispiel mehr Tie-Moleküle in den Zwischenräumen, wodurch die Verschlaufungsdichte ansteigt und der Werkstoff ist widerstandsfähiger gegenüber Rissausbreitung (Gholami et al., 2019). Aufgrund der Verbesserung der Kristallisation wird während der Deformation vor dem Bruch mehr Energie dissipiert. (Sun et al., 2011)

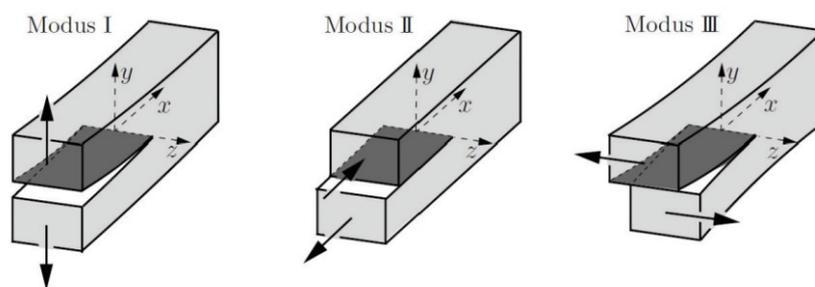
## 2.2 Linear-elastische Bruchmechanik

Mit der LEBM kann das Spannungsfeld um einen Riss und somit das Rissinitiierungs- und Risswachstumsverhalten von linear-elastischen Werkstoffen charakterisiert werden. Für die Anwendung der LEBM bei Polymeren bedarf es der Erweiterung gewisser Annahmen. Voraussetzung für die Verwendung ist etwa, dass die Abmessungen der, sich vor dem Riss bildenden, plastischen Zone vernachlässigbar klein gegenüber den restlichen Abmessungen sind. (Haager, 2006; Pinter, 1999) Dies ist bei kleinen Deformationen und Sprödbrüchen der Fall. Dabei beschränkt sich das viskoelastischen Verhalten der Kunststoffe auf die direkte Umgebung der Rissspitze und die Anwendung der LEBM auf Kunststoffe ist gültig. (Bargel and Schulze, 2011; Pinter, 1999)

Es können drei unterschiedliche Rissöffnungsarten je nach Deformation des Risses in einem Körper bei der Rissdeformation auftreten:

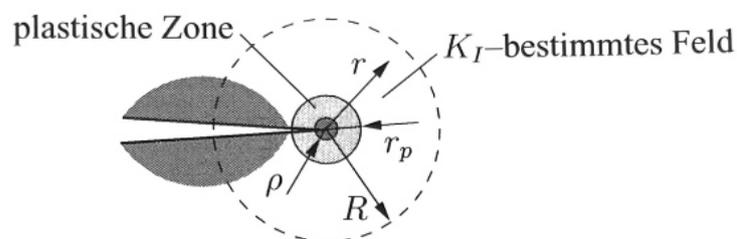
- Mode I: Zugbelastung normal zur Rissebene
- Mode II: Scherung in der Rissebene
- Mode III: Scherung aus der Rissebene

In rissbehafteten Bauteilen tritt zumeist eine Überlagerung von mehreren Modi bei Bauteilen auf. Allerdings wird Mode I die technisch größte Bedeutung zugeschrieben, da die Belastungssituation von Mode I in überwiegender Mehrzahl auftritt. Das liegt daran, dass sich der Riss bei Möglichkeit immer auf Mode I dreht (Broek, 1988). Die verschiedenen Modi sind in Abbildung 2.4 dargestellt. (Gross and Seelig, 2016; Hertzberg, 1996)



**Abbildung 2.4:** Rissöffnungsarten unter verschiedener Belastungsmodi. (Gross and Seelig, 2016)

Das Rissspitzenfeld kann mithilfe des Spannungsintensitätsfaktors ( $K_I$ -Faktor) konkret beschrieben werden. Das  $K$ -Konzept charakterisiert dabei die Spannungsverteilung um die Risspitze und kontrolliert das Risswachstumsverhalten, das innerhalb der plastischen Zone stattfindet. In Abbildung 2.5 ist die  $K_I$ -Region und die plastische Zone abgebildet. Im dunkelgrauen Feld wächst der Riss. Grundsätzlich ist die Analyse des Rissverhaltens mit  $K_I$  bei monotonen, statischen und zyklischen Beanspruchungen möglich. (Gross and Seelig, 2016; Haager, 2006)



**Abbildung 2.5:** Gültigkeit des  $K$ -Konzepts. (Gross and Seelig, 2016)

### 2.2.1 K-Konzept

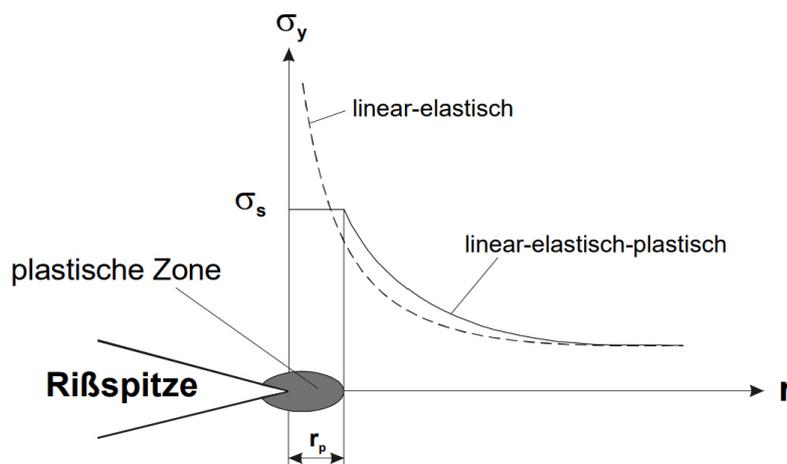
Unter der Annahme, dass das von  $K_I$ -bestimmte Feld groß ist im Vergleich zur Prozesszone, in welcher der Riss wächst, ist die  $K_I$ -Region die alleinige treibende Kraft für Risswachstum in der plastischen Zone. Daher kann das Risswachstumsverhalten in der Prozesszone indirekt durch  $K_I$  bestimmt werden. Allgemein wird der Faktor  $K_I$  mit der Gleichung (2.1) bestimmt. Der Parameter  $\sigma_I$  steht für die globale Spannung,  $a$  für die Risslänge und  $W$  für die Probenweite.  $f\left(\frac{a}{W}\right)$  ist ein dimensionsloser Korrekturfaktor, der von der Prüfkörpergeometrie abhängig ist. Der Spannungsintensitätsfaktor ist eine Zustandsgröße und gibt somit die Höhe der Belastung im Rissspitzenbereich wieder. (Gross and Seelig, 2016; Haager, 2006)

$$K_I = \sigma_I \cdot \sqrt{\pi \cdot a} \cdot f\left(\frac{a}{W}\right) \quad (2.1)$$

Durch die Einführung einer kritischen materialspezifischen Größe, der Bruchzähigkeit, entsteht folgendes Bruchkriterium: Versagen (Bruch) findet statt, sobald der Spannungsintensitätsfaktor den Wert  $K_{IC}$  erreicht. Bei diesem Kriterium wird angenommen, dass der Zustand der Risswachstumszone nur von der aktuellen Größe  $K_I$  abhängt und die Belastungsvorgeschichte der Rissspitze keinen Einfluss hat. (Gross and Seelig, 2016; Haager, 2006)

Die lokale Spannung steigt mit abnehmendem Abstand zur Rissspitze stark an. Allerdings wird dieser Umstand mit dem Beginn der plastischen Deformation in der Nähe der Rissspitze ausgesetzt, da kein Material unbeschränkt hohe Spannungen aufnehmen kann. Das Limit der höchsten aufzunehmenden Spannung stellt die Fließgrenze dar. (Broek, 1988; Stern, 1995) Bei elastisch-plastischen Materialien kommt es bei der Überschreitung der Fließgrenze zu irreversiblen Verformungen und somit wird eine plastische Zone gebildet. Dadurch wird auch der Rissspitzenradius begrenzt. Somit ist die Fließspannung die maximal mögliche Spannung, die direkt an der Rissspitze anliegen kann. Sofern die entstehende plastische Zone eine bestimmte Größe nicht überschreitet, ist die Anwendung des K-Konzeptes dennoch gültig. (Pinter, 1999) Es treten dieselben Spannungen in den plastischen Zonen auf, wenn Risse von den gleichen plastischen Zonen umgeben werden und der gleiche  $K_I$ -Faktor im Grenzbereich wirkt. Daher ist das lokale Spannungsfeld

durchgehend von  $K_I$  charakterisiert. Außerdem bestimmt  $K_I$  bei diesen Umständen nicht nur die elastischen Rissspitzenspannungen, Dehnungen und Verschiebungen, sondern steuert auch die Vorgänge innerhalb der plastischen Zone. (Stern, 1995) In Abbildung 2.6 ist die starke Zunahme der Spannung mit abnehmendem Abstand zur Rissspitze von linear-elastischem und linear-elastisch-plastischem Materialverhalten abgebildet. Zusätzlich ist die Fließgrenze ( $\sigma_s$ ) und die plastische Zone zu erkennen, die unter den zuvor beschriebenen Gegebenheiten die gleiche Form beibehält. (Pinter, 1999)



**Abbildung 2.6:** Spannungsverteilung an der Rissspitze bei linear-elastischem und linear-elastisch-plastischem Werkstoffverhalten abhängig vom Abstand  $r$  zur Rissspitze. (Pinter, 1999)

## 2.3 Beschleunigte Prüfmethode für die Lebensdauer

### 2.3.1 Risswachstumskinetik

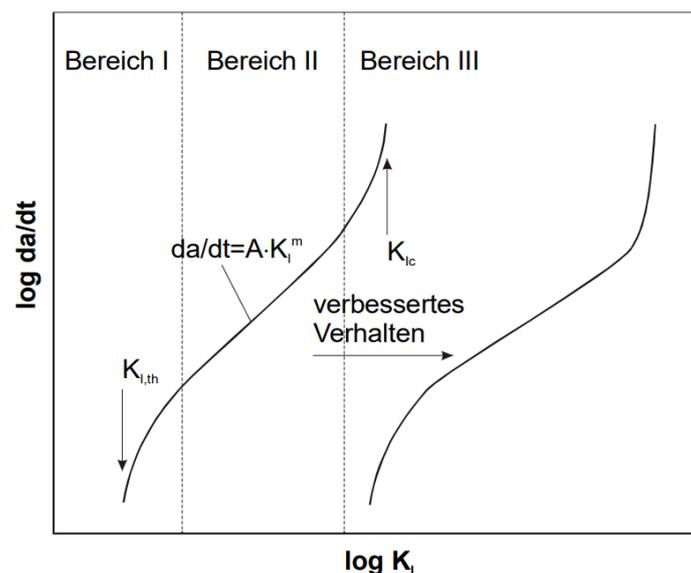
Die Risswachstumskinetik wird grundsätzlich durch Bestimmung der Risswachstumsgeschwindigkeit (Risslängenänderung pro Zeit bei statischen Versuchen ( $da/dt$ ) oder Risslängenänderung pro Zyklus bei zyklischen Versuchen ( $da/dN$ )) beim jeweiligen Spannungsintensitätsfaktors ermittelt. Bei zyklischen Versuchen bestimmt die Differenz der Spannungsintensitätsfaktoren ( $\Delta K_I$ ), die durch Subtraktion der minimalen Spannungsintensität ( $K_{I,min}$ ) von der maximalen Spannungsintensität ( $K_{I,max}$ ) während der Zyklen gebildet wird, die Rissausbreitungsgeschwindigkeit (Anderson, 2005). Anschließend erfolgt die Darstellung in einem doppeltlogarithmischen Diagramm mit  $da/dt$  über  $K_I$  bzw.  $da/dN$  über  $\Delta K_I$ . Im Diagramm der Risswachstumskinetik lassen sich drei Bereiche eindeutig voneinander differenzieren. In Bereich I sinkt die Rissausbreitungsgeschwindigkeit mit

abnehmenden  $K_I$  bzw.  $\Delta K_I$  in kurzer Zeit bis zu einem Grenzwert („Threshold“ bei statischen Versuchen ( $K_{I,th}$ ) bzw. „Threshold“ bei zyklischen Versuchen ( $\Delta K_{I,th}$ )), unter dem der Riss nicht weiterwächst. In Bereich II findet das stabile Risswachstum statt, das häufig durch einen linearen Zusammenhang im doppeltlogarithmischen Diagramm gekennzeichnet ist. Dieser Bereich kann mit den folgenden Exponentialgleichungen (Gleichung (2.2) bei statischen Versuchen und Gleichung (2.3) bei zyklischen Versuchen) definiert werden (Paris and Erdogan, 1963):

$$\frac{da}{dt} = A \cdot K_I^m \quad (2.2)$$

$$\frac{da}{dN} = A \cdot \Delta K_I^m \quad (2.3)$$

Die Faktoren  $A$  und  $m$  sind materialspezifische Parameter und sind somit von Werkstoff und Prüfparameter wie Temperatur und R-Verhältnis abhängig. Im Risswachstumsdiagramm verschieben sich die Kurven von Materialien mit höherem Widerstand gegen Rissausbreitung nach rechts. Da mit den Parametern  $A$  und  $m$  die Lebensdauer berechnet wird (siehe Abschnitt 2.3.3), kann der lineare Bereich II für den Vergleich von Materialien verwendet werden. In Bereich III steigt die Rissgeschwindigkeit deutlich an, der Spannungsintensitätsfaktor nähert sich der Bruchzähigkeit, das Risswachstum wird instabil und das Material versagt unkontrolliert (siehe Abbildung 2.7). (Frank et al., 2008; Haager, 2006; Pinter et al., 2002)



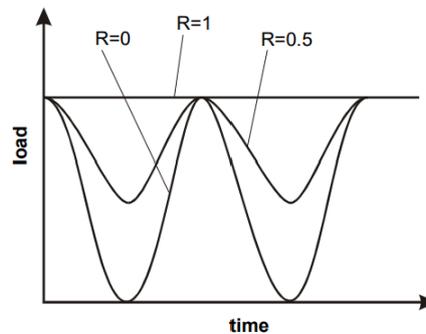
**Abbildung 2.7:** Risswachstumskinetik unter statischer Last. (Pinter, 1999)

### 2.3.2 R-Verhältnis Abhängigkeit zur beschleunigten Prüfung

Die standardisierten Zeitstandinnendruckversuche an PE-Rohren haben den großen Nachteil, dass aufgrund Verbesserungen in der chemischen Struktur der Materialien die Widerstandsfähigkeit gegenüber SCG so hoch ist, dass Untersuchungen der Spannungsrisssbeständigkeit für die Lebensdauer mehrere Jahre dauern würde. Daher sind schnellere Charakterisierungsmethoden hilfreich, auch um die Anwendbarkeit neuer Materialien zu überprüfen. Während davon ausgegangen wird, dass die maximale Größe der plastischen Zone von  $K_{I,max}$  bestimmt wird, nimmt die tatsächliche Größe der plastischen Zone mit steigendem R-Verhältnis zu. Es entstehen also bei größeren R-Verhältnissen größere plastische Zonen, die den Riss mehr abstumpfen. Die zunehmende Dimension der plastischen Zone hat zur Folge, dass die Dehnenergie stärker dissipiert wird. Die stärkere Energiedissipation verringert die Risswachstumsgeschwindigkeit. Zusätzlich bilden sich bei niedrigerer Temperatur größere plastische Zonen aus, daher kann die Risswachstumsgeschwindigkeit mit zunehmender Temperatur beschleunigt werden. (Cazenave et al., 2006; Frank et al., 2012; Pinter et al., 2002)

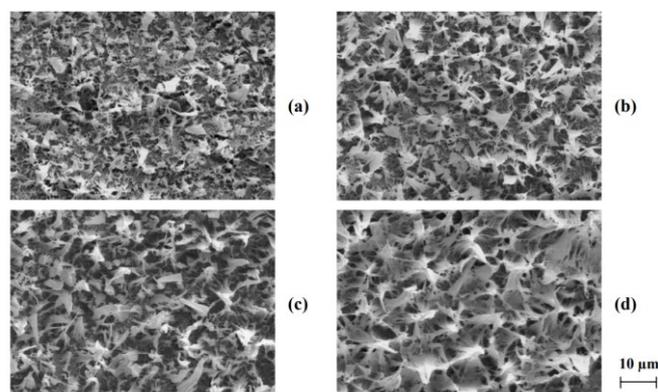
Trotz Unterschiede bei den Lastbedingungen, zeigt PE bei CCG und FCG ähnliche Merkmale. Kenntnis über die Auswirkungen der Prüfkörperkonfiguration, der mittleren Spannung (die durch das R-Verhältnis bestimmt ist) und der Frequenz ist notwendig, um die Versuchsergebnisse von CCG und FCG miteinander vergleichen zu können. R ist das Verhältnis von geringster Last ( $F_{min}$ ) zu höchster Last ( $F_{max}$ ) während eines Belastungszyklus. Jedes R-Verhältnis erzeugt eine eigene Versagens- und Risskinetikkurve. Ein Spannungsverhältnis von  $R = 1$  beschreibt den statischen Lastfall. In Abbildung 2.8 ist der Vergleich von zwei Belastungszyklen bei unterschiedlichen R und gleicher Maximalkraft dargestellt. Da der Belastungsverlauf bei unterschiedlichem R-Verhältnis verschieden ist, kann davon ausgegangen werden, dass das R-Verhältnis einen Einfluss auf die Form der Crazes und die Größe der Craze-Zone hat. Ein höheres R-Verhältnis bedeutet eine höhere durchschnittliche Last und hat eine geringere lokale Dehnungsgeschwindigkeit zur Folge, da die Lastgeschwindigkeit verringert wird. FCG ist eine Kombination von Schädigung aus zyklischen und statischen Anteilen der Beanspruchung. Je höher die Temperatur während der Belastung ist, desto größer wird der Einfluss des statischen Anteils und die Risskinetikkurven bei verschiedenen R-Verhältnissen ähneln einander stärker. Mit der

Anwendung von FCG können lange Versuchszeiten der CCG verkürzt werden, die durch hohe Widerstände der Materialien gegenüber CCG entstehen können. (Choi et al., 2009; Frank et al., 2008; Pinter et al., 2002)



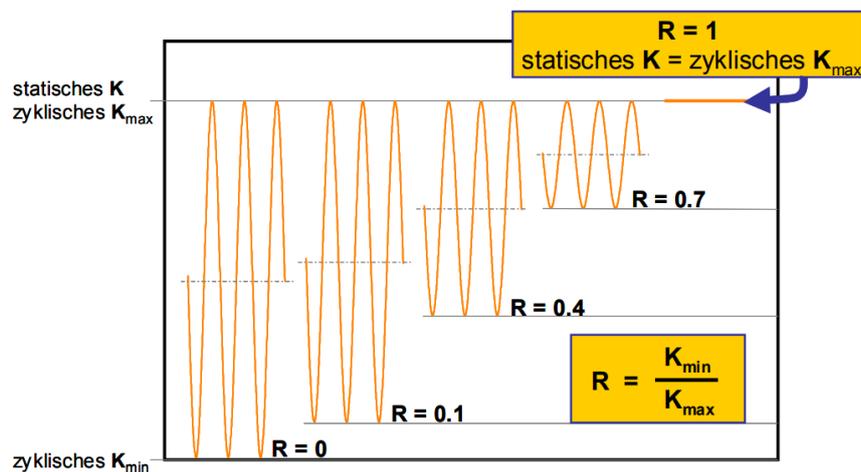
**Abbildung 2.8:** Vergleich zweier Belastungszyklen bei unterschiedlichen R-Verhältnissen und gleicher Maximalkraft. (Pinter et al., 2002)

Durch die geringere Lastgeschwindigkeit wird die, an den Crazes in der Rissspitze, anliegende Spannung durch Kriech- und Relaxationsvorgänge reduziert. Somit entstehen bei konstantem  $K_I$  und höherem R-Verhältnis eine größere Craze-Zone und größere orientierte Fibrillenerweiterungen. Aufgrund der größeren plastischen Zone (bedeutet größere Crazes) wird der Riss mehr abgestumpft und die Wahrscheinlichkeit zur Dissipation der Dehnergie steigt. Durch die zunehmende Energiedissipation wird die Risswachstumsgeschwindigkeit reduziert. In Abbildung 2.9 sind die Bruchflächen desselben Werkstoffs bei konstanten  $K_{I,max}$  und Rissgeschwindigkeiten dargestellt. Bereich (a) zeigt die Crazes bei  $R = 0,1$ , Bereich (b) bei  $R = 0,3$ , Bereich (c) bei  $R = 0,5$  und Bereich (d) bei  $R = 1$ . Dabei wird deutlich, dass mit zunehmenden R-Verhältnis auch die Craze-Dimensionen steigen. (Choi et al., 2009; Pinter et al., 2002)

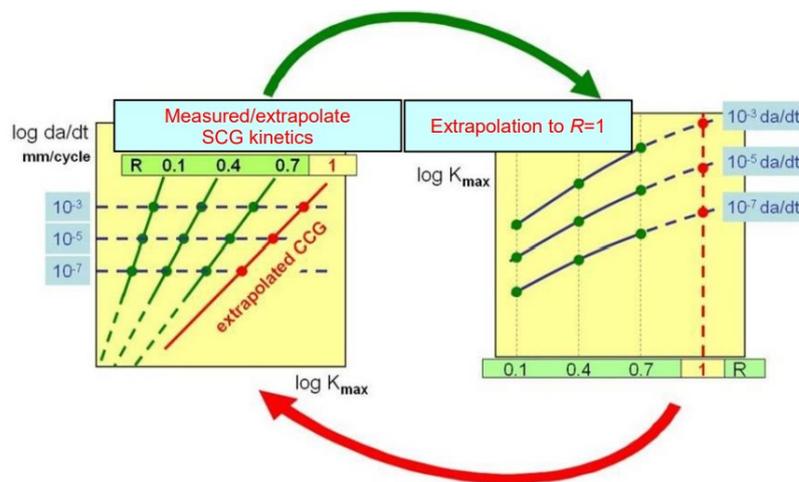


**Abbildung 2.9:** Bruchflächen bei  $R = 0,1$  (a),  $R = 0,3$  (b),  $R = 0,5$  (c) und bei  $R = 1$  (d). (Pinter et al., 2002)

Werden Versuche bei einem konstantem  $K_{I,max}$  und einer Variation des Spannungsverhältnisses durchgeführt, kann auf den statischen Belastungsfall extrapoliert werden. Dabei werden für die Versuche geringe R (entspricht der geringsten Versuchszeit bis zum Versagen) und ähnliche  $K_{I,max}$  gewählt, und die Risskinetikkurven werden extrapoliert. Für jedes R entstehen „synthetische“ FCG Kurven. Anschließend werden die synthetischen FCG Kurven in ein Diagramm mit  $K_{I,max}$  als Funktion von R bei konstanten Risswachstumsgeschwindigkeiten übertragen. Im nächsten Schritt werden die Kurven auf den statischen Lastfall extrapoliert. Schließlich werden die statischen  $K_{I,max}$ -Faktoren in das Risswachstumsdiagramm zurücktransformiert und es entstehen synthetische Risswachstumskurven. In Abbildung 2.10 und Abbildung 2.11 ist der Vorgang für die Extrapolation schematisch dargestellt. (Frank et al., 2008; Frank, 2010)



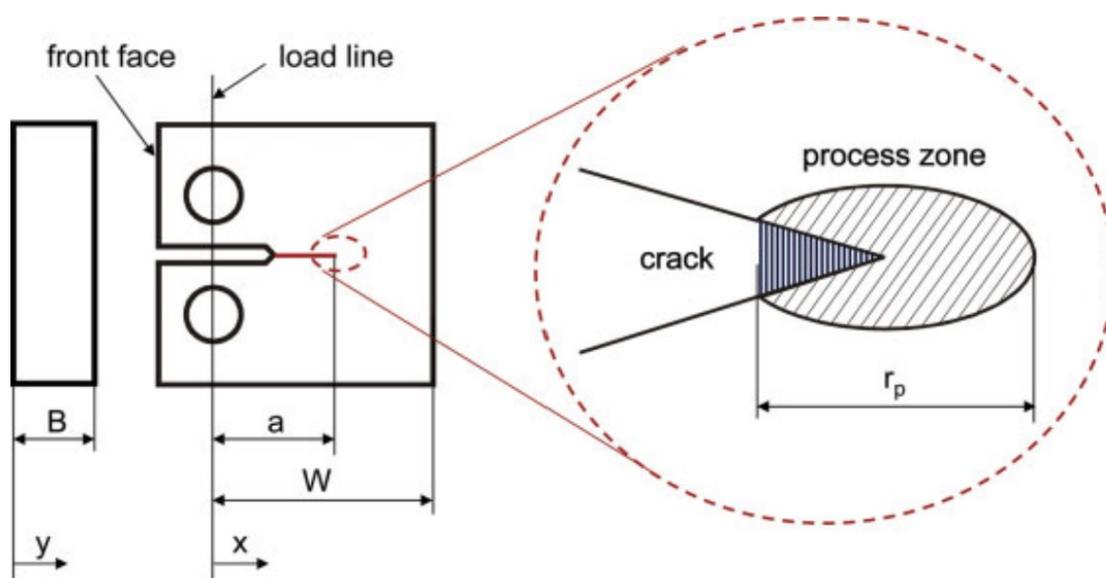
**Abbildung 2.10:** Extrapolation auf statische Beanspruchung durch Variation von R. (Frank et al., 2008)



**Abbildung 2.11:** Entstehung synthetischer Risswachstumskurven. (Pinter et al., 2014)

### 2.3.3 Berechnung der Lebensdauer

Kompaktzugprüfkörper haben sich bei der Forschung über das Risswachstumsverhalten bei sprödem PE als besonders nützlich erwiesen. Aufgrund der Geometrie ermöglichen CT-Proben eine genaue Beobachtung und Analyse des Rissfortschritts und somit der Rissskinetik. In Abbildung 2.12 ist eine CT-Probe mit den charakteristischen Abmessungen, der Kraftangriffslinie und der Prozesszone schematisch dargestellt. (Balika et al., 2007; Haager, 2006)



**Abbildung 2.12:** Darstellung einer CT-Probe mit den charakteristischen Abmessungen, der Kraftangriffslinie und der Prozesszone vor dem Riss. (Balika et al., 2007)

Mithilfe der in Abschnitt 2.3.2 beschriebenen synthetischen CCG-Kurven kann die Lebensdauer von Rohren bestimmt werden. Die absolute Versagenszeit setzt sich dabei aus der Rissinitiierungs- und der Risswachstumszeit zusammen. Wird die Rissinitiierungszeit vernachlässigt, dann kann die Lebensdauer durch das Umformen der Gleichung (2.2) zu Gleichung (2.4) berechnet werden. Dabei stellt die Risswachstumszeit  $t_{SCG}$  jene Zeit von ursprünglicher Risslänge  $a_{ini}$  bis zur Risslänge bei Versagen  $a_f$  dar. Die Komponenten  $A$  und  $m$  sind die in Abschnitt 2.3.1 angeführten Materialparameter. (Frank et al., 2008; Pinter et al., 2014)

$$t_{SCG} = \frac{1}{A} \cdot \int_{a_{ini}}^{a_f} \frac{1}{K_I^m} \cdot da \quad (2.4)$$

Bei Berücksichtigung der Rissinitiierungszeit  $t_{ini}$  kann die gesamte Versagenszeit  $t_f$  mit Gleichung (2.5) bestimmt werden. Die Konstanten  $B_t$  und  $n$  sind materialspezifische Parameter. Diese Parameter werden durch Auftragung in einem doppeltlogarithmischen Diagramm mit der Rissinitiierungszeit über dem maximalen  $K_I$ -Faktor am Versuchsbeginn ( $K_{I,max,ini}$ ) bestimmt, wobei das in Gleichung (2.5) angeführte Potenzgesetz gilt (Stern, 1995). Anhand von Untersuchungen an einem HDPE Material konnte bereits eine gute Übereinstimmung zwischen tatsächlichem und vorhergesagtem sprödem Versagen von Rohren in einem Temperaturbereich zwischen 23 °C und 80 °C unter der Vernachlässigung der Rissinitiierungszeit gefunden werden. Dabei wird von anfänglichen Defekten mit einer Größe von 10 bzw. 100  $\mu\text{m}$  ausgegangen. (Lang et al., 1997)

$$t_f = t_{ini} + t_{SCG} = B_t \cdot K_{I,max,ini}^{-n} + \frac{1}{A} \cdot \int_{a_{ini}}^{a_f} \frac{1}{K_I^m} \cdot da \quad (2.5)$$

## 2.4 Mechanisches Recycling von PE

Das Recycling von Kunststoffen bietet eine Möglichkeit, ökologische Probleme zu reduzieren, die durch die Ansammlung von Kunststoffabfällen verursacht werden. Diese Kunststoffabfälle entstehen durch die täglichen Anwendungen von Polymermaterialien in Bereichen wie Verpackungen, Rohrleitungen oder Gartenmöbel. Da die meisten Kunststoffe aus Öl und Gas hergestellt werden, kann das Recyceln der Kunststoffabfälle zur Erhaltung von natürlichen Ressourcen beitragen. (Domininghaus et al., 2008; Hamad et al., 2013) Mehrere zehn Millionen Tonnen verwendeter Kunststoff-Materialien werden jährlich weltweit entsorgt. Die Abfalllagerung in Mülldeponien wird weniger erstrebenswert aufgrund der geringen Nachhaltigkeit, der steigenden Kosten und dem reduzierten verfügbaren Platz. Die Verwertung von Kunststoffen aus Recyclingware kann zudem wirtschaftlich vorteilhaft sein, da der Marktpreis von Kunststoffabfällen momentan niedrig ist. (Ignatyev et al., 2014) Der Anteil von Kunststoffrecycling an den Verwertungswegen von Kunststoffabfällen nimmt global kontinuierlich zu. 2015 lag der Anteil des Recycling-Wegs bei circa 20%. Verbraucher sind vermehrt dazu bereit, Kunststoffprodukte mit recycelten Anteilen zu kaufen und auch politische Initiativen wie

etwa das Kreislaufwirtschaftspaket der Europäischen Union führen zu dem Anstieg des Recycling-Wegs (Maurer, 2021)

Das mechanische Recycling von Kunststoffen kann nur bei Thermoplasten angewendet werden, denn diese können erneut aufgeschmolzen und in Endprodukte wiederverarbeitet werden. Das chemische Recycling hat den großen Nachteil, dass diese Methode hauptsächlich auf Kondensations-Polymere begrenzt ist. Beim mechanischen Recycling wird der Kunststoffmüll geschnitten, zerkleinert und gewaschen und dabei in kleine Stücke geformt. Diese werden anschließend mit einem Extruder geschmolzen und wiederaufbereitet. Letztendlich wird das Regranulat sortiert, gewaschen, getrocknet und in ein neues Produkt verarbeitet. Eine mögliche heterogene Zusammensetzung kann zu einer großen Herausforderung beim mechanischen Recycling werden. Aufgrund überschneidender Dichten verschiedener Polyolefine gestaltet sich die Trennung der Polymere bei Polyolefinabfällen als schwierig. Daher kann es zu Unterschieden in der Reinheit und der Leistungsfähigkeit bei Rezyklaten von Polyolefinen kommen. Die geringere Reinheit und möglicher Polymerabbau haben häufig zur Folge, dass Rezyklate oft nicht dieselben technischen Fähigkeiten besitzen wie Neumaterialien. Um das geringere Eigenschaftsniveau auszugleichen, kann das gewonnene recycelte Granulat mit Neumaterial zusammengemischt werden, um bessere Produkteigenschaften zu erzielen. (Freudenthaler et al., 2022; Grigore, 2017; Huysveld et al., 2022)

Bei Polymeren verändert sich während des Recyclingprozesses die Struktur und, in manchen Fällen, auch die Morphologie. Die Strukturänderung äußert sich durch die Abnahme der Kettenlänge und die Ausbildung von Kettenverzweigungen und funktionellen Gruppen. Die Veränderung der Kristallinität variiert abhängig von der Veränderung des molekularen Gewichts. Die Gründe für diese Modifikationen sind die Gegenwart von Sauerstoff oder thermomechanische Belastung. Außerdem kann bei kondensierten Polymeren die Gegenwart von Wasser ein weiterer Aspekt für die Veränderung der Struktur oder Morphologie sein. Bei einer parallelen Veränderung der Struktur und Morphologie variieren vor allem die rheologischen und mechanischen Eigenschaften, die Außenbeständigkeit und die thermische Beständigkeit stark. Der Grad des Abbaus und infolgedessen die Verschlechterung der Eigenschaften ist abhängig von der Höhe der Beanspruchung und der Anzahl der Aufbereitungsvorgänge. Daher ist es unumgänglich, für

die Nutzung von recycelten Materialien, Kenntnis über die Variationen der Eigenschaften mit der Anzahl der Aufbereitungsschritte und mit der Beanspruchung zu besitzen. Um die Ausführbarkeit des Recyclings von Polymeren zu beurteilen, müssen verschiedene technische und wirtschaftliche Faktoren berücksichtigt werden. Während des Sortierens, Waschens, Regranulierens und der Wiederaufbereitung ist der Polymerabbau und die Verschmutzung unvermeidlich. Dies kann zu Problemen bei der Herstellung führen und in weiterer Folge zu fertigen Produkten mit unzureichender Qualität. Die Eigenschaften von recycelten Polymeren sind vor allem von der Anzahl der Recyclingprozesse abhängig. Dabei verändern sich die Eigenschaften unterschiedlicher Polymere je nach der chemischen Art des Polymers, der Höhe der thermomechanischen Beanspruchung und der Gegenwart von Wasser oder anderen Substanzen (Alzerreca et al., 2015; La Mantia, 1999)

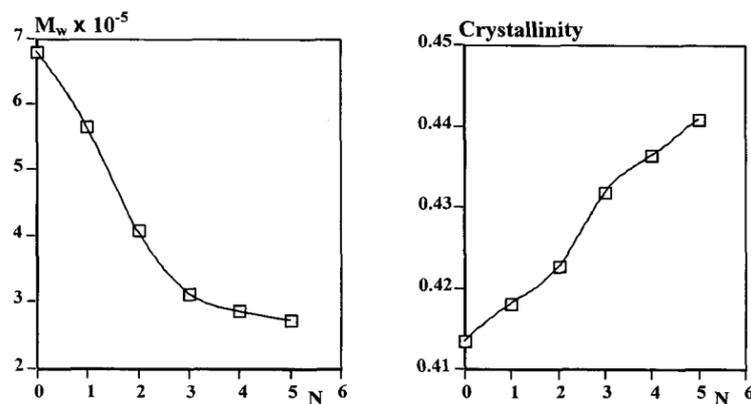
#### **2.4.1 Chemische Eigenschaften**

Während der Betriebszeit kann es bei einem Material zum oxidativen Abbau kommen und durch die mögliche Aufnahme von Verschmutzung oder Entstehung von Defekten weisen wiederaufbereitete oder recycelte Polymere eine schlechtere mechanische Leistung auf als Polymere, die aus Neumaterial hergestellt werden (Alzerreca et al., 2015; Zeng et al., 2023). Bei PE kann der Abbau des Materials durch irreversible chemische Reaktionen hervorgerufen werden (Wang et al., 2023). Der Kontakt mit Chemikalien wie Sauerstoff (O) kann dabei die molekulare Struktur verändern. Recyceltes PE beinhaltet generell eine höhere Konzentration an Hydroperoxiden und Peroxidgruppen als PE-Neumaterialien. Die Hydroperoxide können die Lebenszeit und die Stabilität des Polymers drastisch verkürzen. (Alzerreca et al., 2015) Sauerstoff greift die Kohlenwasserstoffkette an und es kommt zur Bildung von Radikalen, wodurch Sauerstoffmoleküle in weiterer Folge an dieser freien Bindung anlagern. Das neu entstehende Radikal reagiert anschließend mit einem weiteren Kohlenwasserstoffmolekül unter der Bildung von Hydroperoxid. (Ehrenstein and Pongratz, 2007; Wang et al., 2023) Bei der Produktion mit Neumaterialien werden Hydroperoxide nur in geringen Mengen erzeugt, da nur eine begrenzte Menge an Sauerstoff in der Prozessanlage vorhanden ist (Jansson et al., 2004). Während des Alterns oder der Wiederaufbereitung werden die Hydroperoxide aufgrund der geringen Stabilität der O-O-Bindung zersetzt (Ehrenstein and Pongratz, 2007; Jansson et al., 2004). Die Hydroperoxide

sind instabil, wenn sie Wärme oder ultra-violetter Strahlung ausgesetzt werden und zerfallen dabei in Radikale, die den oxidativen Abbau jedes Kohlenwasserstoffes initiieren können. Sekundäre Peroxylradikale, die bei der Reaktion des Peroxylradikals mit dem Kohlenwasserstoff gebildet werden, bilden sich in weiter Folge zu sekundärem Alkohol und Keton. Der entscheidende Faktor für die Versprödung ist allerdings die Spaltung der Hauptkette. Das sekundäre Alkoxyradikal, das beim Zerfall des Hydroperoxides gebildet wird, abstrahiert Wasserstoff von der Kette und formt somit erneut Alkohol. Außerdem kann das sekundäre Alkoxyradikal eine  $\beta$ -Spaltung durchführen, die in weiterer Folge zur Hauptkettenspaltung führt und ein aldehydes Kettenende bedingt. Das aldehyde Kettenende oxidiert zu Carbonsäure. Die Versprödung und die Bildung der Carbonsäure gehen auch mit der  $\gamma$ -initiierten Oxidation von PE einher, die überwiegend aus der durch die Strahlung verursachten Spaltung der Kohlenstoff-Wasserstoff-Bindung resultiert. (Amin et al., 1975; Lacoste et al., 1991)

Während des Recyclingprozesses können zudem Änderungen im molekularen Gewicht durch Kettenverzweigungen, Vernetzung oder Kettenspaltung auftreten. HDPE-Neumaterial besteht grundsätzlich aus einer linearen Struktur mit kaum Verzweigungen. Je länger die Hauptkette ist, desto höher ist auch die Anzahl an Atomen. Mehr Atome in der Hauptkette bedeutet wiederum ein größeres molekulares Gewicht. Das molekulare Gewicht, die Verteilung des molekularen Gewichts und die Anzahl an Verzweigungen bestimmen Eigenschaften wie die Kristallinität. Die Größe der kristallinen Regionen bestimmt wiederum die Zugfestigkeit und die umgebungsbedingte Spannungsrisssbeständigkeit des Endprodukts. Bei einer höheren Anzahl an Verzweigungen werden die intermolekularen Kräfte reduziert und dadurch wird die Zugfestigkeit verringert. Bei Polymeren mit höherem molekularem Gewicht steigt die Anzahl an Tie-Molekülen und ihre Widerstandsfestigkeit gegen Entschlafungen an (Pan et al., 2015). Zusätzlich haben eine gezielte Verteilung von Kurzkettenverzweigungen an Positionen von hohem molekularem Gewicht, breite bimodale Verteilung des molekularen Gewichts, perfekte Kristallisation und geringer Abstand zwischen Lamellen einen positiven Einfluss auf die Widerstandsfähigkeit eines Werkstoffs gegenüber SCG (Gholami et al., 2019; Lu et al., 1996; Pan et al., 2015). Dabei wird die Anzahl an Verschlaufungen zwischen Molekülen erhöht, was weniger und dünnere Kristalle mit einer sehr hohen Anzahl an Tie-Molekülen

bedingt (Gholami et al., 2019). Die höhere Anzahl an Tie-Molekülen bei dünnen perfekten Kristallen bestimmt zusätzlich positiv die Widerstandsfähigkeit gegenüber SCG, da die Anzahl an Verschlaufungen erhöht wird (Gholami et al., 2019). In Abbildung 2.13 sind die Abnahme des molekularen Gewichts und die Zunahme der Kristallinität einer PP Probe abgebildet. Während die Kristallinität mit der Anzahl an Extrusionsprozessen zunimmt, nimmt das molekulare Gewicht mit jedem Prozess ab. (Alzerreca et al., 2015; Kumar et al., 2011; La Mantia, 1999)



**Abbildung 2.13:** Molekulares Gewicht (links) und Kristallinität (rechts) einer PP Probe als Funktion von der Anzahl an Extrusionsprozessen. (La Mantia, 1999)

Außerdem können Oberflächendefekte und Partikel von Katalysatoren oder mineralischen Füllstoffen Oberflächenrisse erzeugen, die die Kriechbeständigkeit stark verringern. Alzerreca et al. (Alzerreca et al., 2015) fanden in recycelten HDPE-Materialien Titanium und Kalzium als überwiegende Fremdstoffe. Für die hohe Konzentration von etwa 5000 ppm an Titanium können vor allem Rückstände von Füllstoffen und Pigmenten wie Titaniumoxid, das zum Erzeugen von weißen Thermoplasten verwendet wird, verantwortlich sein. Bei der Betrachtung mit der energiedispersiven Röntgenspektroskopie wird bestätigt, dass Mikro- und Nanopartikel von Titanium und Sauerstoff im selben Bereich des Polymers eingelagert sind. Zusätzlich kann nachgewiesen werden, dass andere Rückstände wie Kalziumcarbonat, Eisen und Zink im Rezyklat vorhanden sind. (Alzerreca et al., 2015)

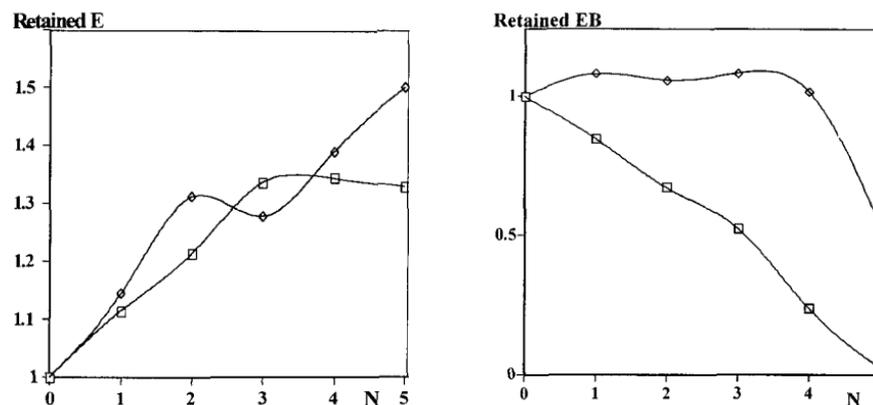
#### 2.4.2 Studien über mechanische Eigenschaften von Rezyklaten

HDPE wird häufig bei der Produktion von Wasserleitungen verwendet. Rohre aus HDPE besitzen einzigartige Eigenschaften, da sie von kundenspezifischen PE-Materialien

hergestellt werden. Druckbeaufschlagte PE-Rohre, die hauptsächlich für Trinkwasser verwendet werden, müssen geforderten Lebensmittelstandards entsprechen, hohe Druckbeständigkeit und eine garantierte minimale Lebenszeit von 50 Jahren haben. (Alzerreca et al., 2015)

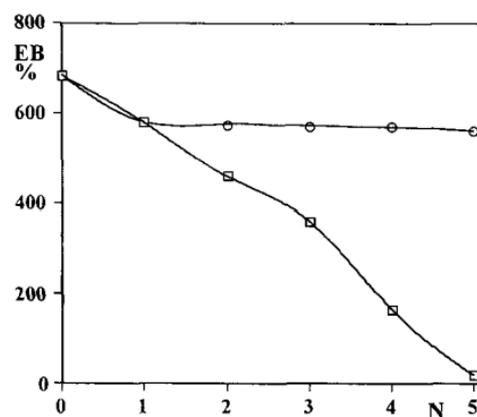
Bei der Durchführung von Zugversuchen während der Studie von Alzerreca et al. (Alzerreca et al., 2015) zeigen recycelte HDPE-Proben bei den mechanischen Eigenschaften große Unterschiede zu den Neumaterialien. Die Zugfestigkeit des Neumaterials beträgt ungefähr 30,5 MPa, während wiederaufbereitetes HDPE aus granuliertem Industrieabfall eine Zugfestigkeit von circa 26,7 MPa aufweist. Dem Industrieabfall werden dabei Antioxidantien vor der Wiederaufbereitung zugeführt, um das Polymer zu stabilisieren. Für HDPE, das aus einer Mischung von wiederaufbereitetem Material und mindestens 80 % Neumaterial besteht, ergeben die Versuche eine ähnliche Zugfestigkeit wie die des granulierten Abfalls. Bei HDPE, das von Hausmüll entnommen wird, sinkt die Zugfestigkeit auf 24,8 MPa. Diese Ergebnisse verdeutlichen, dass die Wiederaufbereitung Einflüsse auf die Materialeigenschaften durch Veränderungen im molekularen Gewicht und Kristallinität zur Folge hat. (Alzerreca et al., 2015)

Die Abbaukinetik und auch die Wechselwirkung eines Polymers wird von dessen chemischer Art und der Struktur beeinflusst. In Abbildung 2.14 sind der dimensionslose Modul und die dimensionslose Bruchdehnung von Polypropylen (PP) und HDPE abhängig von der Anzahl an Extrusionsprozessen dargestellt. Durch Division des jeweiligen Wertes nach momentanem Reproduktionsschritt durch den Wert des Neumaterials können die dimensionslosen Beträge ermittelt werden. Dabei wird deutlich, dass der Modul mit der Anzahl an Aufbereitungen steigt, während die Bruchdehnung abnimmt. Der Anstieg des Moduls und die Abnahme der Bruchdehnung sind jeweils auf die Zunahme der Kristallinität durch Reduktion des molekularen Gewichts zurückzuführen. Der deutliche Unterschied im Materialverhalten ist bei der Abnahme der Bruchdehnung zu beobachten. Die Bruchdehnung von PP nimmt offensichtlich schneller ab als die Bruchdehnung von HDPE. Dieses Verhalten ist auf die höhere Empfindlichkeit von PP auf thermomechanische Beanspruchung zurückzuführen. Aufgrund des tertiären Kohlenstoffatoms in der PP-Kette nimmt die thermische Stabilität ab. (La Mantia, 1999)



**Abbildung 2.14:** Dimensionsloser Modul (links) und dimensionslose Bruchdehnung (rechts) von PP (□) und HDPE (◇) als Funktion von der Anzahl an Extrusionsprozessen. (La Mantia, 1999)

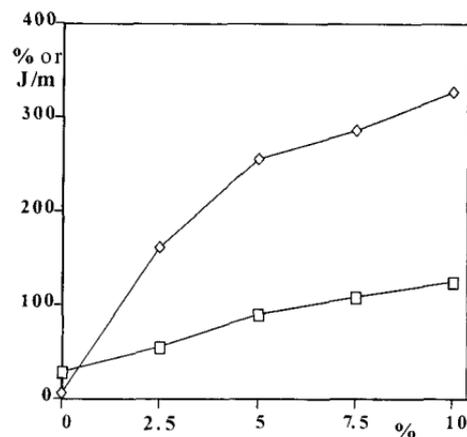
Durch Hinzufügen eines Stabilisators – in diesem Fall ein Phosphonit mit hohem molekularem Gewicht – vor der Verarbeitungsstufe kann die Bruchdehnung des Rezyklats mit zunehmenden Anzahlen an Prozessen annähernd konstant und auf dem Niveau der Bruchdehnung des Neumaterials gehalten werden. Währenddessen nimmt die Bruchdehnung des nicht stabilisierten PP mit jedem Prozess stark ab und das eigentlich duktile PP verhält sich brüchig. Der Grund für diese Differenz ist, dass das molekulare Gewicht nicht abnimmt, wenn das Polymer durch den Stabilisator geschützt wird. Der Einfluss der Zugabe des Stabilisators ist in Abbildung 2.15 abgebildet. (La Mantia, 1999)



**Abbildung 2.15:** Bruchdehnung über Anzahl an Extrusionsprozessen von stabilisierten (o) und nicht stabilisierten (□) PP. (La Mantia, 1999)

Das Recycling von heterogenem Kunststoffabfall wird durch die mögliche Inkompatibilität der verschiedenen Phasen des Polymers erschwert. Dabei führt mangelnde Haftung zwischen den Phasen zu spröden Materialien mit schlechten mechanischen Eigenschaften.

In Abbildung 2.16 ist die Bruchdehnung in Prozent und die Schlagfestigkeit in J/m eines eigentlich inkompatiblen 50/50 Polyethylenterephthalat (PET)/PP Blends als Funktion des prozentuellen Anteils an Maleinsäureanhydrid-funktionalisierten Kautschuk abgebildet. Das Blend wird dabei durch die Zugabe von Maleinsäureanhydrid-funktionalisierten Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Kautschuk kompatibler. Die Bruchdehnung und die Schlagfestigkeit steigen mit zunehmendem Anteil an Kautschuk. (La Mantia, 1999)

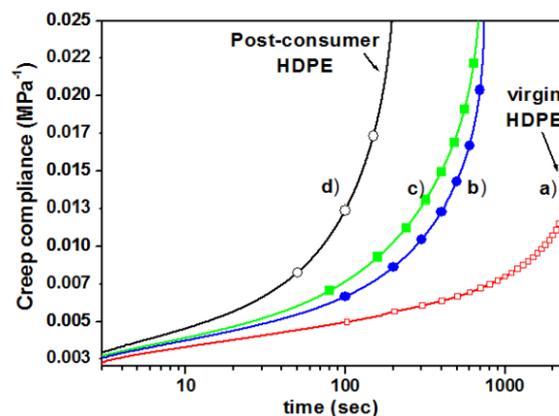


**Abbildung 2.16:** Bruchdehnung (◇) und Schlagfestigkeit (□) eines 50/50 PET/PP Blends als Funktion des Gehalts an Kautschuk. (La Mantia, 1999)

Im Gegensatz zur Bruchdehnung und Schlagfestigkeit bleibt die Zugfestigkeit annähernd konstant oder sinkt mit einem zunehmenden Anteil an Kautschuk leicht ab. Die Eigenschaften sind bei niedrigem Kautschuk-Gehalt am stärksten ausgeprägt. Durch die Verwendung des funktionalisierten Kautschuks entsteht ein spröd-duktil Übergang, welcher ein sprödes Material duktil werden lässt. Die Veränderungen der Eigenschaften lassen sich darauf zurückführen, dass der Kautschuk eine niedrige Zugfestigkeit und eine hohe Bruchdehnung und Schlagfestigkeit besitzt. Diese Annahme ist vor allem bei hohem Kautschuk-Konzentration gültig. Bei niedrigem Kautschuk-Gehalt, bei der die Steigerungsrate der Eigenschaften höher ist, ist die Kompatibilität für die erhöhten Eigenschaftswerte verantwortlich. Die Kompatibilität entsteht wahrscheinlich durch polare Bindungen zwischen dem Kautschuk und dem Polyester. (La Mantia, 1999)

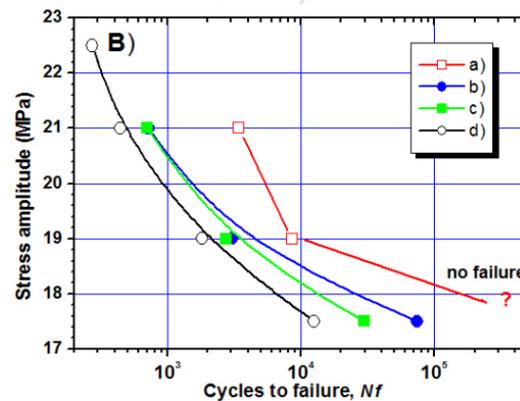
Die Festigkeit von PE hängt von der Höhe der Last und der Dauer der Beanspruchung ab. Bei Kriech- und Ermüdungsversuchen sind die linearen Ketten unter Spannung, die molekulare Bewegungen und somit eine Dehnung verursachen. Die molekularen Bewegungen führen zur Bildung und zum Wachstum von Crazes, die einen Riss zur Folge

haben. In Abbildung 2.17 sind die Kriechnachgiebigkeiten von unterschiedlichen HDPE-Proben bei einer Belastung von 800 N dargestellt. Recyceltes HDPE aus Haushaltsabfall (grün – d)) zeigt dabei die höchste Kriechnachgiebigkeit, während das Verhalten von wiederaufbereitetem HDPE aus Industrieabfall (grün c)) und die HDPE-Mischung aus recyceltem Material und mindestens 80 % Neumaterial (blau – b)) ähnlich ist. Diese Ergebnisse bestätigen die Entwicklung der Bruchdehnung, die bei den Zugversuchen der unterschiedlichen HDPE-Materialien gemessen wird. (Alzerreca et al., 2015)



**Abbildung 2.17:** Kriechnachgiebigkeit von HDPE als Neumaterial a) und recyceltem HDPE d). (Alzerreca et al., 2015)

Bei Ermüdungsversuchen an recyceltem HDPE muss die Widerstandsfähigkeit des Materials gegenüber der Rissausbreitung unter zyklischer Belastung untersucht werden. Dabei zeigt das Risswachstum in diesem Fall keine stufenweise Ausbreitung, die durch sequenzielles Craziing entsteht. Möglicherweise wird das sequenzielle Craziing durch eine Überlagerung von Ermüdungs- und Kriecheffekten bei der Risswachstumsrate verhindert. Es tritt eine allmähliche fortschreitende Schädigung mit Spannungsabbau an der Risspitze auf. Die Probe versagt durch die Ausbildung und das Zusammenwachsen von Hohlräumen im Inneren. Die Ergebnisse von Ermüdungsversuchen zeigen, dass die Proben von HDPE-Neumaterial (rot – a)) mehr als die 20-fache Anzahl an Zyklen ohne Versagen aufnehmen können, als recyceltes HDPE aus Haushaltsabfall (schwarz – d)), welches früher versagt. Diese Unterschiede sind in Abbildung 2.18 abgebildet. Die HDPE-Mischung aus Rezyklat und mindestens 80 % Neuware (blau – c)), sowie das wiederaufbereitete HDPE aus Industrieabfall (grün – c)) verhalten sich erneut ähnlich. (Alzerreca et al., 2015)

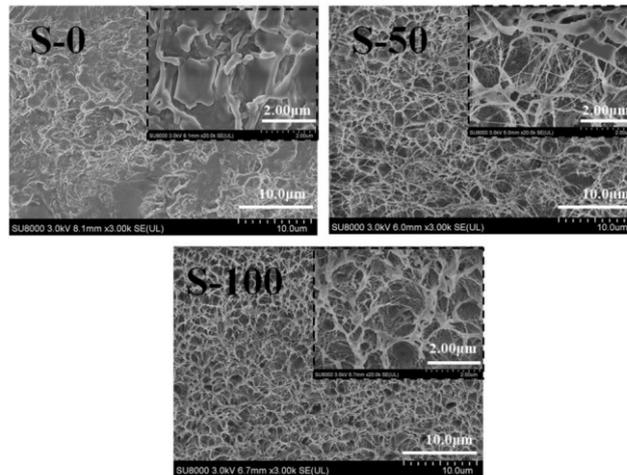


**Abbildung 2.18:** Spannungsamplitude über der Anzahl von Zyklen bis Versagen bei unterschiedlichen HDPE-Typen (Neuware – rot a); Neuware-Rezyklat-Mischung – blau); Wiederaufbereitetes HDPE – grün c); Rezyklat – schwarz d)). (Alzerrca et al., 2015)

### 2.4.3 Morphologie

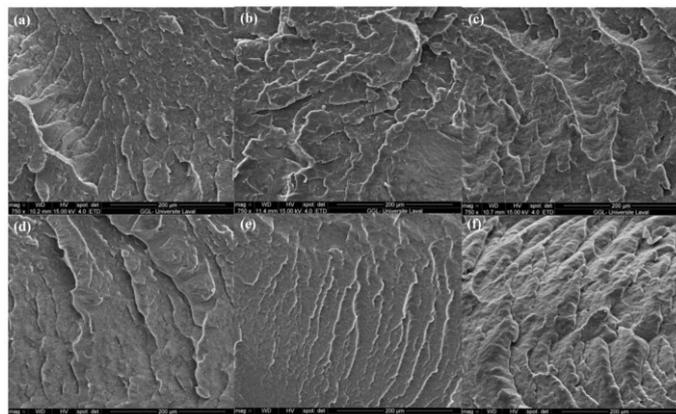
Mithilfe eines Rasterelektronenmikroskops (REM) kann die Morphologie von Kunststoffproben an den Bruchflächen analysiert werden. Untersuchungen des Querschnitts von Bruchflächen mit hochauflösenden REM-Aufnahmen zeigen bei Proben aus HDPE-Neuware, Mischung aus 50/50 HDPE-Neuware/recyceltes HDPE und 100 % recycelten HDPE unterschiedliche Strukturtypen, nachdem sie in flüssigem Stickstoff gekühlt und gebrochen wurden (siehe Abbildung 2.19). Die Neuware besteht aus einer blockartigen Struktur, die durch zufällig angeordnete, verbundene PE-Bausteine gekennzeichnet ist. Außerdem kennzeichnen eine geringere Porosität und eine dichtere Struktur der Bausteine die Neuware. Im Gegensatz dazu nimmt der Anteil der Struktur in Form von Honigwaben mit steigendem Gehalt an recyceltem Material zu. Außerdem sind in den Hohlstellen des recycelten HDPEs mehr faserförmige Strukturen in schmalerer, loserer Form vorhanden. Die faserartige Struktur wird durch den Rezyklat-Gehalt feiner, dies bedingt eine Veränderung der Werkstoffeigenschaft von duktil zu spröde. Die Resultate beweisen die Abwandlung von HDPE durch thermische Oxidation während des mechanischen Recyclings. Bei der thermischen Oxidation finden Kettenbrüche statt und dadurch entstehen kürzere Ketten. Die kurzen Ketten sind beweglicher und können daher leichter in eine kristalline Struktur ausgerichtet werden (Buncick et al., 2000). Daraus resultieren Veränderungen bei der molekularen Struktur, die direkten Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften haben. Freie Radikale, die bei der Oxidation gebildet werden, können eine Vernetzung durch Ausbildung von Doppelbindung verursachen.

Doppelbindungen führen zu einem höheren Grad an Ungesättigtheit und Änderungen in der Polymerstruktur. (Zeng et al., 2023; Zhang et al., 2023)



**Abbildung 2.19:** Hochauflösende REM-Aufnahme einer HDPE-Neuware (oben links), einer Mischung aus 50/50 Gew.-% HDPE-Neuware/recyceltes HDPE (oben rechts) und reinem recyceltes HDPE (unten). (Zeng et al., 2023)

In Abbildung 2.20 sind die Oberflächenstrukturen einer HDPE-Neuware vermisch mit recyceltem HDPE bei 100 Gewichtsprozent (Gew.-%) ((a) und (d)), 60 Gew.-% ((b) und (e)) und 0 Gew.-% ((c) und (f)) der Neuware dargestellt. Die Aufnahmen (a), (b) und (c) zeigen Blends von einem Pulvermischer und bei den Aufnahmen (d), (e) und (f) sind Blends durch das Mischen per Extruder abgebildet. Bei allen Proben kann eine Schichtstruktur erkannt werden, die allerdings die deutlichen Unterschiede in den Materialeigenschaften nicht nachweist. (Zhang et al., 2023)



**Abbildung 2.20:** REM-Aufnahmen von 100 % HDPE-Neuware ((a) und (d)), Mischung aus 60 Gew.-% HDPE-Neuware und 40 Gew.-% Recyceltes HDPE ((b) und (e)) und 100 % HDPE-Rezyklat. Die Materialien der Proben der oberen Reihe sind mit Pulvermischer und die der unteren Reihe mit Extruder vermisch. (Zhang et al., 2023)

### 3 EXPERIMENTELLES

In diesem Abschnitt wird zu Beginn auf die zu untersuchenden Werkstoffe eingegangen. Anschließend werden die verwendeten Prüfkörper und die durchgeführten Versuche näher erörtert. Die bruchmechanische Prüfmethodik dieser Arbeit basiert auf der Reduzierung der langen Versuchszeiten durch Anwendung der Extrapolation zyklischer Versuchsergebnisse auf den statischen Fall.

#### 3.1 Werkstoffe

Diese Masterarbeit analysiert fünf PE-Typen bei jeweils verschiedenen Gewichtsanteilen einer Neuware und eines Rezyklats. Die Neuware ist ein HDPE-Typ, welches für den Einsatz beim Blasformen geeignet ist. Dabei handelt es sich um das Produkt BB2581 der Firma Borealis Polyolefine GmbH (Schwechat, Österreich), das fortan als *HDv2* bezeichnet wird. Dieses Material kennzeichnet eine hohe Steifigkeit und gute umgebungsbedingte Spannungsrissbeständigkeit. Das PE-Recyclingmaterial (welches fortan als *PEr1* bezeichnet wird) ist ein Rezyklat hoher Qualität („High Quality“ (HQ)) eines kommerziellen österreichischen Herstellers von Recyclingmaterialien, das aus Ballen von PE-Flaschen aufbereitet wird. Das PEr1 wurde zuvor im Recyclingprozess mit heißem Wasser und Lauge vorbehandelt und anschließend von den Flaschenkappen aussortiert, um die Reinheit des Rezyklats zu erhöhen (Ladinig, 2024). Außerdem kann aufgrund der Wiederaufbereitung aus Flaschen davon ausgegangen werden, dass es sich bei diesem Recyclingwerkstoff ebenso um einen BM-Typen handelt (Ladinig, 2024). Alle Mischungen wurden am TCKT (Transfercenter für Kunststofftechnik GmbH, Wels, Österreich) nach Gewicht dosiert und in einem Compounder gemischt. Der verwendete Compounder ist ein Leistritz 27 mm (ZSE 27 MAXX) gleichlaufender Doppelschneckenextruder mit dem Verhältnis von Länge zu Durchmesser gleich 40 der Firma Leistritz Extrusionstechnik GmbH (Nürnberg, Deutschland). Der Prozess lief mit einem konstanten Massestrom von 8 kg/h bei konstanter Umdrehung von 300 U/min und einer Belastung von etwa 43 Nm ab. Der Einzug wurde auf eine Temperatur von 40 °C gestellt und die folgenden Zonen und die Düse wiesen 200 °C auf. Anschließend wurden die Stränge durch ein Wasserbad abgezogen und mit einem

Schneidrad über Kaltabschlag granuliert. Der Tabelle 3.1 ist der unterschiedliche Anteil von Neuware und Rezyklat bei den Materialien zu entnehmen.

**Tabelle 3.1:** Verwendete Werkstoffe.

Materialbezeichnung	Anteil Neuware [Gew.-%]	Anteil Rezyklat [Gew.-%]
HDv2	100	0
HDv2_PEr1_90/10	90	10
HDv2_PEr1_75/25	75	25
HDv2_PEr1_50/50	50	50
PEr1	0	100

### 3.2 Prüfkörperherstellung und Verarbeitung

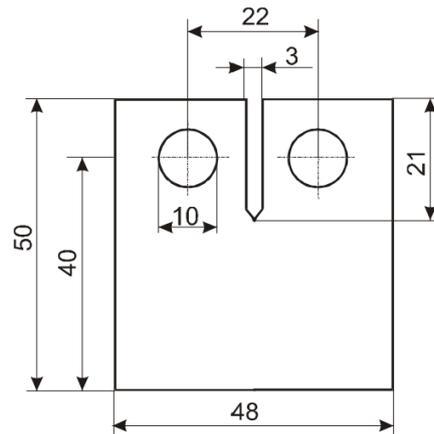
Zur Charakterisierung der Risskinetik werden im Zuge dieser Masterarbeit CT-Prüfkörper, wie in Abbildung 3.1 abgebildet, verwendet. Die Proben werden zunächst aus 395 g Granulat in eine Platte mit den Abmessungen 200 x 200 x 10 mm mit der Vakuumpresse des Typs Lab Line P 300SV (Collin Lab & Pilot Solutions GmbH, Maithenbeth, Deutschland) verpresst. Das Programm zur Herstellung der Platten ist in Tabelle 3.2 angeführt.  $T_{oben}$  steht dabei für die Temperatur der oberen Pressplatte und  $T_{unten}$  für die Temperatur der unteren Pressplatte.  $\Delta T$  bezeichnet die Abkühlungsgeschwindigkeit der Presse.

**Tabelle 3.2:** Herstellungsprogramm der Platten.

Schritt	Dauer [s]	$T_{oben}$ [°C]	$T_{unten}$ [°C]	$\Delta T$ [K/min]	Druck [bar]
1	600	200	200	0	0
2	300	200	200	0	100
3	300	200	200	0	120
4	9999	30	30	2	120

Anschließend werden die CT-Proben aus der Pressplatte mithilfe einer Werkzeugfräsmaschine und einem Tischkreissäger spanend gefräst. In weiterer Folge werden die Prüfkörper mit einer scharfen Industrieklinge an einem Säulenbohrwerk an der

Spitze des Risses circa 1 mm tief gekerbt. Durch die Verlängerung des Anfangsrisses mit der scharfen Kerbe wird die Spannungserhöhung an der Rissspitze vergrößert und somit die Rissinitiierungszeit verkürzt. Außerdem werden dadurch die Voraussetzungen der LEBM erfüllt. Abschließend werden die Dicken mit einem Messschieber vermessen, ein Stück kariertes Papier mit einem Raster von einem halben Zentimeter auf jeden Prüfkörper geklebt (dient zur späteren Auswertung der Risslänge) und die Proben beschriftet.



**Abbildung 3.1:** CT-Probe mit charakteristischen Abmessungen in Millimeter. (Pinter, 1999)

### 3.3 Versuchsdurchführung

Die Aufgabenstellung dieser Arbeit ist es, die Lebensdauer abhängig vom Anteil des Rezyklats in HDPE Proben zu ermitteln und Unterschiede in den Werkstoffstrukturen nachweisen zu können. Da Kunststoffbauteile unter statischer Langzeitbelastung vermehrt mit recycelten Anteilen hergestellt werden, ist es notwendig, die Auswirkungen auf die Lebensdauer mit steigendem Rezyklatgehalt zu untersuchen. Um die Versuchszeiten abzukürzen, werden zyklische Versuche bei drei unterschiedlichen Spannungsverhältnissen ( $R = 0,1$ ;  $R = 0,3$ ;  $R = 0,5$ ) durchgeführt und anschließend auf den statischen Lastfall ( $R = 1$ ) extrapoliert. Die statischen Versuche dienen bei dieser Masterarbeit als Vergleichs- und Richtwerte. Für alle Materialien wird ein Prüfumfang von mindestens drei Versuchen pro R-Verhältnis durchgeführt, um die Versagenskurve erstellen zu können und um die Ergebnisse der Risskinetik zu belegen. Außerdem ist dies für die Extrapolation notwendig, da sonst keine repräsentativen Ergebnisse erzielt werden können. Bei den Versuchen werden die CT-Prüfkörper bis zum Versagen beansprucht.

### 3.3.1 Bruchmechanische Versuche

In der folgenden Tabelle 3.3 sind die konstanten Versuchsparameter angeführt. Diese Parameter werden nicht variiert, um einen möglichst exakten Vergleich der verschiedenen Werkstoffe zuzulassen. Außerdem wird jeder Prüfkörper vor Versuchsbeginn für 90 Minuten bei der Prüftemperatur erwärmt, um zu garantieren, dass die Probe konstant erhitzt ist.

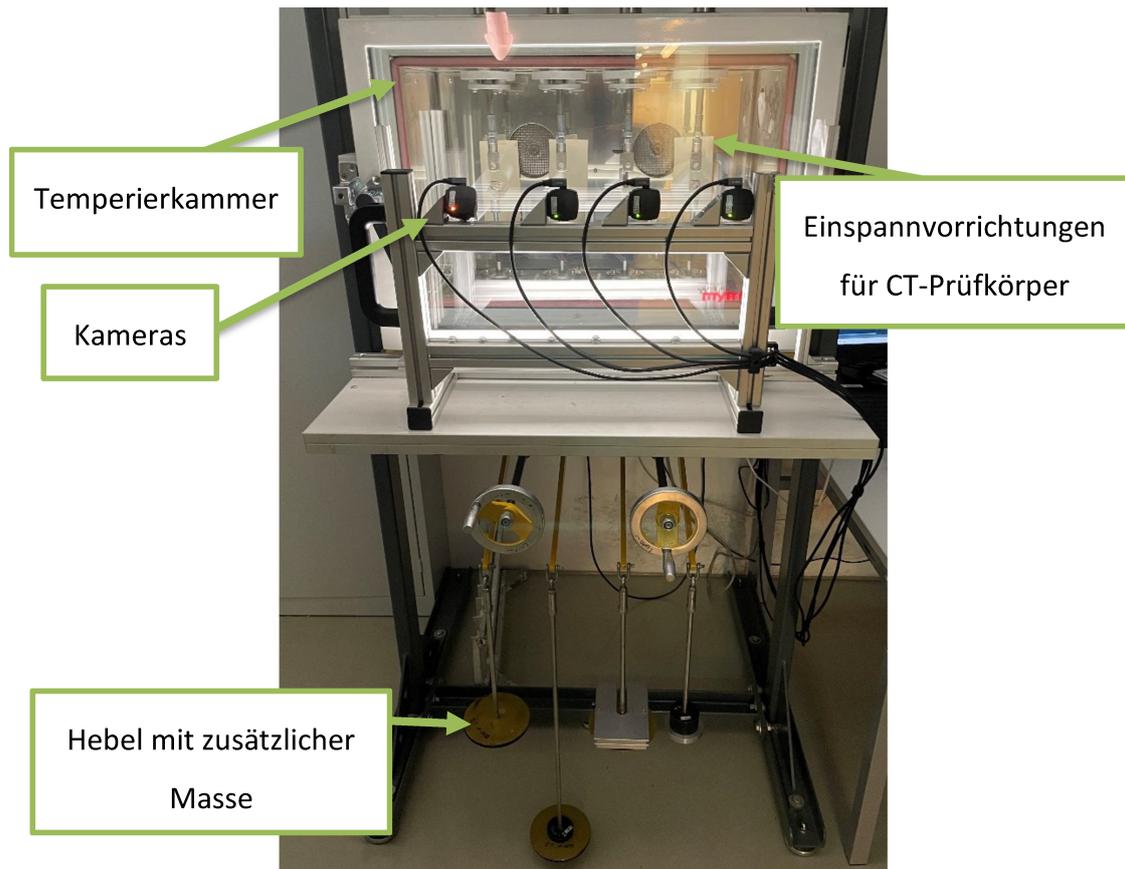
**Tabelle 3.3:** Konstante Versuchsparameter.

Temperatur [°C]	Frequenz bei zyklischen Versuchen [Hz]
80	10

Aufgrund der vorangegangenen Masterarbeit von Ladinig (Ladinig, 2024) ist das notwendige Kraft- und Spannungsniveau bekannt, um SCG zu bei den verwendeten Prüfkörpern und Materialien auszulösen. Bei den Versuchen werden die Spannungsverhältnisse und  $K_{I,max,ini}$  durch unterschiedliche Kraftmaxima und Kraftamplituden variiert.  $K_{I,max,ini}$  wird entsprechend der Gleichung (3.2) bei den zyklischen Versuchen mit den jeweiligen Kraftmaxima und bei den statischen Versuchen mit der konstant anliegenden Kraft berechnet.

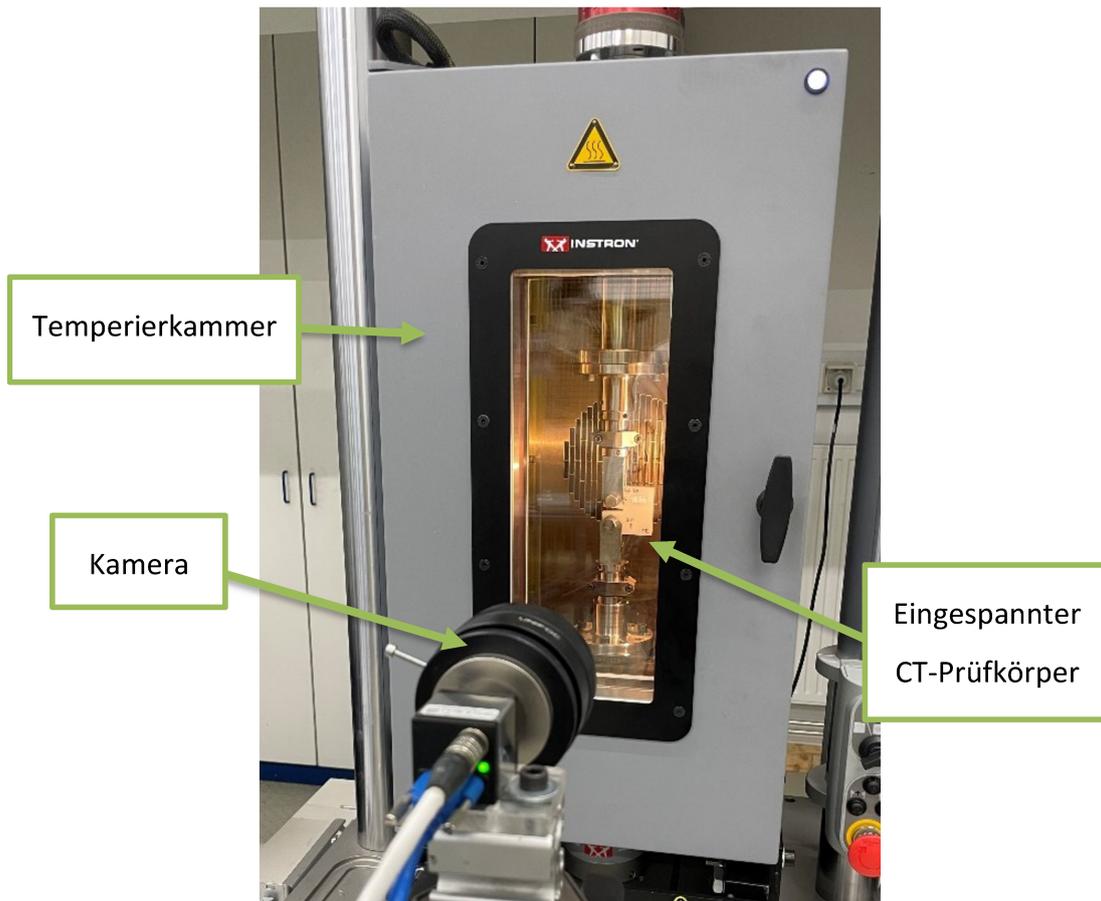
Die statischen Versuche werden auf einem Kriechprüfstand (Mechatronikwerkstätte Peter Moharitsch, Leoben, Österreich) mit der eingebundenen Temperierkammer Mytron Temperaturschrank T 30 (Mytron Bio- und Solartechnik GmbH, Heilbad Heiligenstadt, Deutschland) durchgeführt (siehe Abbildung 3.2). Auf jede der vier Proben ist dabei eine eigene Kamera gerichtet, die in Abständen von 900 Sekunden ein aktuelles Bild aufnehmen. Anhand dieser Aufnahmen werden nach den Versuchen die Rissinitiierung und das Risswachstum ausgewertet. Am Kriechprüfstand können vier CT-Prüfkörper gleichzeitig eingespannt und geprüft werden. Dabei wird eine Last, durch Befestigung einer bestimmten Masse  $m_g$  an einem Hebel, an den jeweiligen Prüfkörper angebracht. Durch Multiplikation der Masse mit der Erdanziehungskraft  $g$  und der Hebelwirkung (Wert „5“) wird die Kraft  $F$  berechnet, die auf einen Prüfkörper wirkt, wie in Gleichung (3.1) angeführt ist.

$$F = m_g \cdot g \cdot 5 \quad (3.1)$$



**Abbildung 3.2:** Kriechprüfstand mit Temperierkammer.

Zyklische Versuche werden an der vollelektrodynamischen Prüfmaschine des Typs ElectroPuls E3000 und der Software WaveMatrix2 der Firma Instron Corporation (Norwood, Massachusetts, USA) durchgeführt. Durch das Einstellen von mittlerer Kraft und Kraftamplitude werden die geforderten Maximal- und Minimalkräfte (und somit auch die Spannungsverhältnisse) erreicht, die auf die CT-Prüfkörper wirken sollen. Bei dieser Prüfmaschine wird eine Temperierkammer des Modells 3119-605 der Firma Instron Corporation implementiert. Analog zu den statischen Versuchen werden bei den zyklischen Versuchen fotografische Aufnahmen der Rissentwicklung aufgenommen – nach einer definierten Anzahl an Zyklen (500 Zyklen bei den Versuchen dieser Masterarbeit). Diese Prüfmaschine ist in Abbildung 3.3 abgebildet.



**Abbildung 3.3:** Vollelektrodynamische Prüfmaschine ElectroPuls E3000.

### 3.3.2 Mikroskopie

Anhand eines 3D Digitalmikroskop des Typs VHX-7000 der Firma Keyence Corporation (Osaka, Japan) wird nach den Versuchen die kritischen Maße der Anfangsrisslängen der Proben bestimmt, das einen großen Einfluss auf die Versagens- und Risskinetikkurven haben (siehe Gleichung (3.2)). Außerdem wird der Durchmesser der Bohrungen (Kraftangriffspunkte) gemessen, da diese vor dem Versuch mit einem Messschieber nur ungenau bestimmt werden können.

### 3.3.3 Auswertung der Ergebnisse

Nach dem Bruch werden unter der Anwendung der LEBM und des K-Konzepts die Versagenskurven und Rissausbreitungsgeschwindigkeiten der Proben ausgewertet. Der Spannungsintensitätsfaktor wird bei CT-Prüfkörpern nach der Gleichung (3.2) bestimmt. Dabei ist die Kraft  $F$  jene Kraft, die auf einen Prüfkörper angelegt wird. Bei den zyklischen Versuchen wird bei der Auswertung die Maximalkraft für  $F$  verwendet, um einen Vergleich

zwischen statischen und zyklischen Versuchen zuzulassen. Der Geometriefaktor  $f\left(\frac{a}{W}\right)$  der Gleichung (3.2) wird mit der Gleichung (3.3) berechnet. Die charakteristischen Abmessungen Probenbreite  $B$  und Probenweite  $W$  können Abbildung 2.12 und Abbildung 3.1 entnommen werden. Für die Berechnung des Spannungsintensitätsfaktors werden die tatsächlich gemessenen Werte der Proben verwendet. (Frick and Stern, 2011)

$$K_{I,\max} = \frac{F}{B \cdot \sqrt{W}} \cdot f\left(\frac{a}{W}\right) \quad (3.2)$$

$$f\left(\frac{a}{W}\right) = \frac{2 + \frac{a}{W}}{\left(1 - \frac{a}{W}\right)^{\frac{3}{2}}} \cdot \left[ \begin{array}{l} 0,886 + 4,64 \cdot \left(\frac{a}{W}\right) - 13,32 \cdot \left(\frac{a}{W}\right)^2 + \\ 14,72 \cdot \left(\frac{a}{W}\right)^3 - 5,6 \cdot \left(\frac{a}{W}\right)^3 \end{array} \right] \quad (3.3)$$

Mit dem Bildbearbeitungs- und Bildverarbeitungsprogramm ImageJ (Nationales Gesundheitsinstitut, Maryland, USA) wird der Rissfortschritt zunächst zu Beginn des jeweiligen Versuchs gemessen (erstes Bild der Probe bei Versuchsbeginn). Der Rissfortschritt wird durch Subtraktion der Risslänge von der geometrischen Abmessung  $W$  berechnet. Da die Anfangsrisslänge zuvor mit dem Digitalmikroskop bestimmt wird, kann auf  $W$  geschlossen werden. Anschließend wird der Rissfortschritt während der Versuche bestimmt. Dafür werden die weiteren fotografischen Aufnahmen ausgewertet. Bei den zyklischen Versuchen wird der Rissfortschritt pro Zyklus auf den Rissfortschritt pro Zeit mithilfe der Frequenz umgerechnet, um die statischen und zyklischen Versuche vergleichen zu können. Anhand subjektiver Wahrnehmung werden bei der Auswertung ungenaue Messpunkte, vor allem vor und nach der linearen Paris-Regression, nicht berücksichtigt, da diese die Abschätzung der Rissentwicklung erschweren. Während des SCG werden anhand subjektiver Bewertung zwischen zehn und 20 Messpunkte berücksichtigt, die eine adäquate Auswertung der Risskinetik ermöglichen. Vorerst werden die verschiedenen Werkstoffe anhand der Rissinitiierung und der Versagenskurven miteinander verglichen. Nachfolgend werden anhand der Risskinetik die Materialparameter  $A$  und  $m$  der Materialien berechnet. Dies ermöglicht eine Voraussage über den Einfluss des Rezyklatgehalts auf die Zeit bis zum Versagen unter statischer Belastung der Prüfkörper.

### 3.3.4 Untersuchung der Bruchflächen

Die Vorgehensweise dieser Arbeit ermöglicht es außerdem, an der Bruchfläche jedes Prüfkörpers eine Position zu ermitteln, an der die  $K_I$ -Faktoren den gleichen Wert annehmen. Da die Rissausbreitungsgeschwindigkeit eine Funktion des  $K_I$ -Faktors ist, gibt es zudem eine Position an jeder Bruchfläche, an der das Risswachstum mit der gleichen Geschwindigkeit stattfindet. Letztendlich werden die, während des Rissfortschritts entstehenden, Crazes mit dem REM an diesen Positionen analysiert. Dafür werden zwei Werte gewählt, an denen die Risswachstumsgeschwindigkeiten jedes Prüfkörpers auf der linearen Paris-Regression liegen. In Abbildung 3.4 ist das Vermessen der Risslänge einer Probe beispielhaft abgebildet, an der die Crazes untersucht werden sollen. Kenntnis über die Anfangsrisslänge ist auch bei der Untersuchung mit dem REM von entscheidender Bedeutung, da die Position der zu untersuchenden Crazes vor der eingebrachten Kerbe vermessen wird.

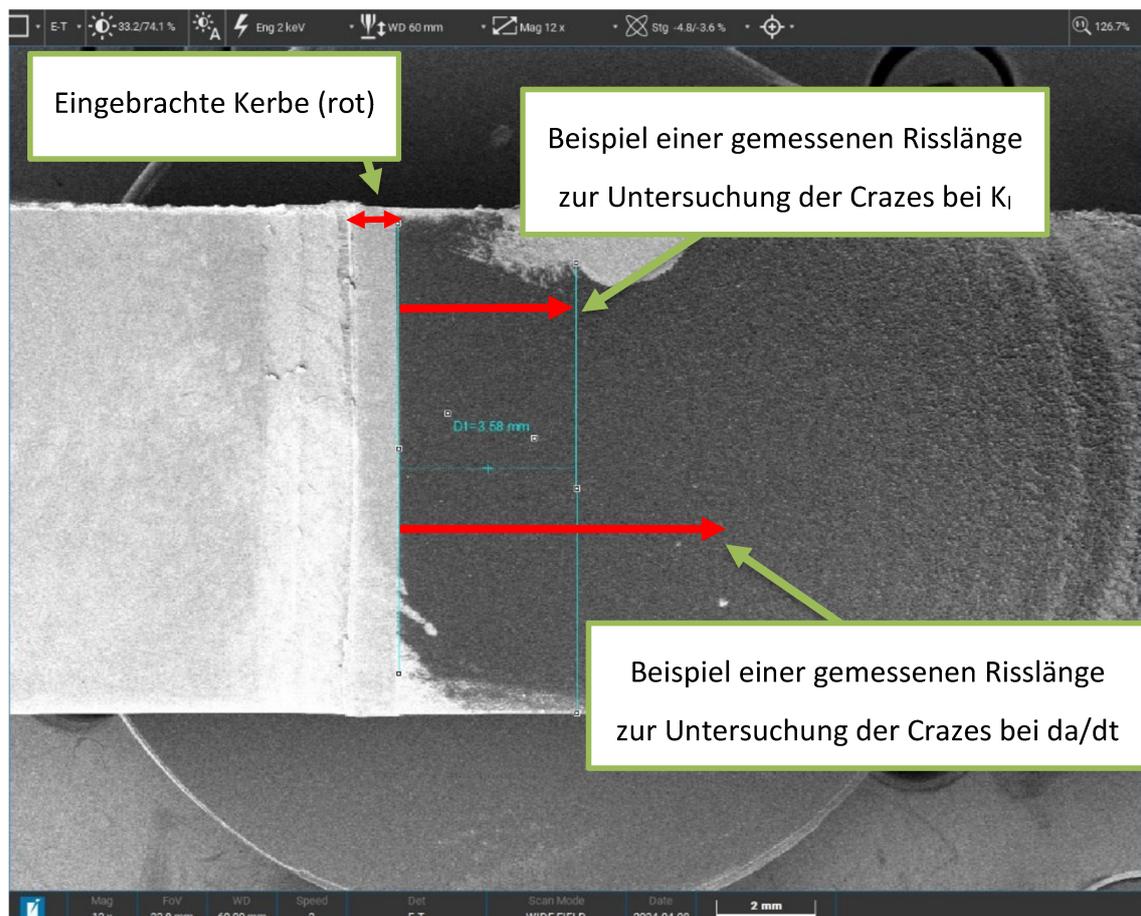


Abbildung 3.4: Messen der Risslänge, an der die Crazes untersucht werden.

Für die Erhebung wird von allen Materialien eine Probe bei jedem Spannungsverhältnis repräsentativ untersucht. Zur Analyse der Bruchflächen bzw. der Crazes wird das REM des Modells CLARA GMU einschließlich Software Tescan Essence, beide Komponenten von der Firma Tescan Group (Brünn, Tschechien), verwendet. Um eine Aufladung der Proben während der Untersuchung mit dem REM zu verhindern, werden die Bruchflächen vor der Untersuchung mit einer Goldschicht in vier Durchgängen zu je zu 20 Sekunden und einem Strom von 10 mA beschichtet („sputtern“). Das Sputtern erfolgt mit dem Sputtergerät Cressington 108A (Tescan GmbH, Dortmund, Deutschland).

## 4 ERGEBNISSE

Dieser Abschnitt ist in drei Kapitel unterteilt. Zu Beginn werden die bruchmechanischen Versagenskurven von HDv2 und PEr1 abgebildet und diskutiert. Anschließend wird der Einfluss des Rezyklat-Anteils auf die Versagenszeit dargestellt. Mithilfe der unterschiedlichen Werkstoffzusammensetzungen aus Neuware und Rezyklat kann dabei eine Übersicht über die Auswirkungen bei unterschiedlichen Lastsituationen gegeben werden. Im nächsten Abschnitt wird die Risswachstumskinetik aller Werkstoffe näher erläutert. Mithilfe dieser Auswertung kann auf die Lebensdauer extrapoliert werden. Im letzten Abschnitt werden die untersuchten Bruchflächen analysiert. Ergebnisse des Werkstoffs PEr1, die im Rahmen der Masterarbeit von Ladinig (Ladinig, 2024) ermittelt wurden, werden mit weiteren Versuchen bei dieser Masterarbeit ergänzt.

### 4.1 Bruchmechanische Versagenskurven

Im ersten Abschnitt werden die Auswirkungen der unterschiedlichen Belastungssituationen bei den verschiedenen Werkstoffen dargestellt. Die Auswertung der Versagenszeit unter der jeweiligen Beanspruchung ist die Basis für die Werkstoffcharakterisierung bei der Risswachstumskinetik. Anhand der Versagenskurven ist die Überprüfung der quasi-spröden Rissausbreitung möglich. Wird eine zu hohe Beanspruchung für die Prüfkörper ausgewählt, sollten die Ergebnisse deutlich von der in Abschnitt 2.1 beschriebenen Region B zu differenzieren sein, indem der Prüfkörper zu früh versagt. Bei einer zu geringen Belastung steigt die Versagenszeit signifikant an. Liegen die Messpunkte annähernd auf einer Geraden, kann von quasi-sprödem Versagen ausgegangen werden, da die dafür notwendigen  $K_{I,max,ini}$  aus der Masterarbeit von Ladinig (Ladinig, 2024) bekannt sind. Durch Variation der Lasthöhe und durch Unterschiede in den Prüfkörpergeometrien und in der Kerblänge ergeben sich unterschiedliche  $K_{I,max,ini}$ -Werte.

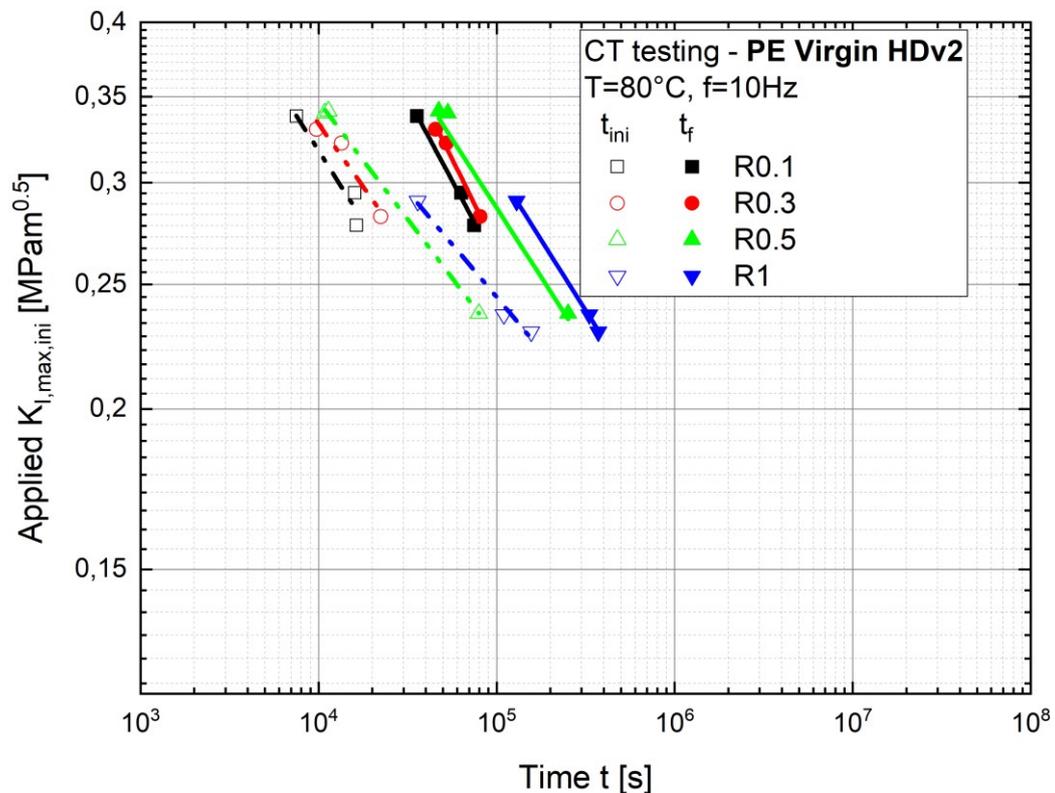
#### 4.1.1 Einfluss des R-Verhältnisses auf die Versagenskurven von HDPE und PEr1

In Abbildung 4.1 und Abbildung 4.2 sind die Versagenskurven von HDPE und PEr1 bei den unterschiedlichen R-Verhältnissen abgebildet. Die Diagramme sind zusätzlich mit den Rissinitiierungszeiten ergänzt. Anhand der Messergebnisse kann festgehalten werden, dass

unter den Prüfbedingungen bei beiden Werkstoffen SCG eintritt und die Materialien letztendlich quasi-spröde versagen. Die erhöhte Temperatur und die aufgebrachte Last sind somit für die beschleunigte Prüfmethode und Auswertung mittels LEBM zulässig, was eine wichtige Erkenntnis dieser Masterarbeit ist. Beide Werkstoffe zeigen eine sehr geringe Streuung der Messpunkte, denn die gemessenen Initiierungs- und Versagenszeiten der Werkstoffe sind abhängig vom R-Verhältnis annähernd auf einer linearen Potenzfunktion.

Während bei HDv2 die Zeit bis zum Versagen sowie die Rissinitiierungszeit bei unterschiedlichen R-Verhältnissen voneinander differenziert werden kann, so zeigt PEr1 keine geordnete Abhängigkeit der Versagenszeit von der Belastungssituation.  $t_{ini}$  und  $t_f$  von HDv2 steigen mit größerem R-Verhältnis an, was durch die unterschiedliche Beanspruchung zu erwarten ist, wie in Abschnitt 2.3.2 erklärt wird. Größere plastische Zonen, die bei höherem R-Verhältnis entstehen, können mehr Energie dissipieren. Bei der Deformation und Dehnung wird die Risswachstumsgeschwindigkeit durch die Dissipation der Dehnenergie verringert und die Versagenszeit steigt an. Dennoch ist die Differenz der Versagenskurven nur gering, was auf eine schlechte Spannungsrißbeständigkeit des Werkstoffes zurückzuführen sein kann. Selbst bei  $R = 0,1$  versagt HDv2 nur etwa doppelt so schnell wie bei  $R = 0,5$ . Die geringe Abhängigkeit der Versagenszeit vom Spannungsverhältnis kann auch auf die geringe Zähigkeit des Materials hindeuten. Je spröder ein Werkstoff ist, desto kleinere plastische Zonen werden gebildet und der Riss wächst ohne große plastische Deformation schneller. Dadurch werden die Unterschiede in den Versagenskurven weniger definierbar. PEr1 zeigt dieses Verhalten aufgrund der Versprödung, die wahrscheinlich durch Spaltung der Hauptkette (vgl. Abschnitt 2.4.1) entsteht. Die Versagenszeit wird dadurch unabhängig von der Belastungssituation und nur von der Rissspitzenspannung bestimmt. Die nicht konstanten Steigungen der Funktionen sind am ehesten auf Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der Einflussgrößen auf  $K_{I,max,ini}$  zurückzuführen. Die Versagenszeiten von PEr1 sind um einiges geringer als die des HDv2, was in Abschnitt 4.1.3 deutlicher angeführt ist. Es ist möglich, dass aufgrund von Alterungsvorgängen (vgl. Abschnitt 2.4.1) während der ersten Anwendungszeit die Belastbarkeit stark verringert wird und der recycelte Werkstoff bricht früher als die Neuware. Anhand dieser Ergebnisse sollten sich bei den Messdaten der drei Werkstoffmischungen klare Tendenzen zeigen. Mit steigendem Anteil an HDv2 sollte die

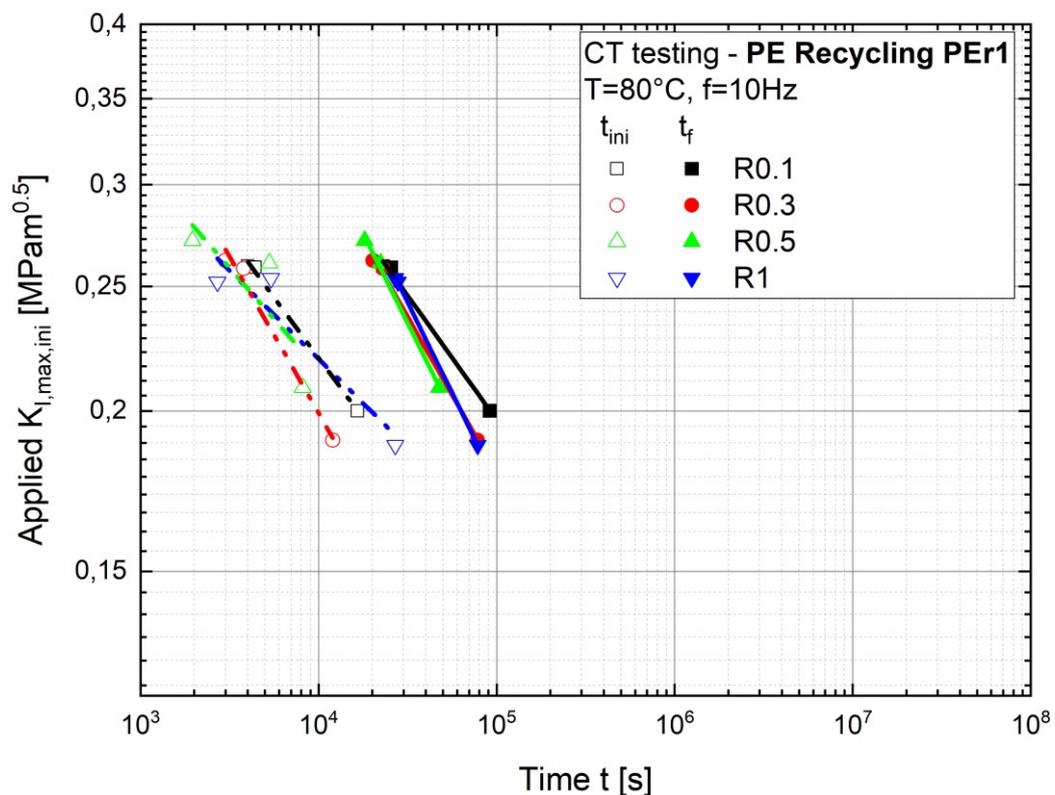
Versagenszeit ansteigen und die Anhängigkeiten der Versagenszeit vom R-Verhältnis deutlicher erkennbar werden.



**Abbildung 4.1:** Versagenskurven des Werkstoffs HDv2.

Die Rissinitiierungszeiten der Werkstoffe HDv2 und PEr1, abhängig von  $K_{I,max,ini}$ , in Abbildung 4.1 und in Abbildung 4.2 spiegeln die Ergebnisse der Versagenszeiten der Werkstoffe wieder. Bei HDv2 können die Rissinitiierungszeiten eindeutig voneinander differenziert werden, mit steigendem R-Verhältnis nimmt die Zeit bis zur Rissinitiierung stetig zu. Das entspricht auch der Erwartungshaltung (vgl. Abschnitt 2.3.2), dass bei geringerem R-Verhältnis die effektive risstreibende Kraft auf die Prüfkörper größer ist und somit Risse in den Proben schneller gebildet werden. Die Rissinitiierungszeiten von PEr1 scheinen unabhängig vom R-Verhältnis zu sein. Bei der Betrachtung von Abbildung 4.2 sind die Werte von  $t_{ini}$  bei den verschiedenen Spannungsverhältnissen nicht voneinander zu unterscheiden. Bei den Rissinitiierungszeiten der Werkstoffmischungen in Abschnitt 4.1.2 ist dieselbe Tendenz wie bei den Versagenszeiten und bei den Werkstoffen HDv2 und PEr1 zu erkennen. Mit steigendem R-Verhältnis nehmen die Rissinitiierungszeiten zu, allerdings wird bei größeren Anteilen an PEr1 die Diskrepanz in den Initiierungszeiten geringer und

$t_{ini}$  kann abhängig vom R-Verhältnis nicht mehr getrennt werden. (siehe HDv2\_PEr1\_50/50, Abbildung 4.7)



**Abbildung 4.2:** Versagenskurven des Werkstoffs PEr1.

Im nächsten Schritt werden die Werkstoffe anhand der Widerstandsfähigkeit gegenüber Rissbildung verglichen. Dafür werden in doppeltlogarithmischen Diagrammen  $K_{I,max,ini}$  über dem Verhältnis von  $t_{ini}$  zu  $t_f$  aufgetragen. Mit dieser Analyse wird der Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit bestimmt. Bei Werkstoffen mit einer geringeren Widerstandsfähigkeit gegen Rissausbreitung sollte die Rissinitiierungszeit einen größeren Anteil an der gesamten Versagenszeit haben. Der Anteil der Rissinitiierungszeit an der Versagenszeit sollte bei PEr1 aufgrund der in Abschnitt 2.4.1 angeführten Veränderungen in der Struktur höher sein als bei HDv2. Durch Defekte oder kleine Mikrorisse können Risse in einem recycelten Material schneller gebildet werden. Treten diese Defekte einmal ein, so wird sich der Riss schnell durchs Material fortbewegen. In Abbildung 4.3 sind exemplarisch die unterschiedlichen Verhältnisse der Rissinitiierungszeit an der Versagenszeit des Werkstoffs HDv2 dargestellt. Dabei sind, wie bei allen Materialien, keine eindeutigen Abhängigkeiten vom R-Verhältnis des Anteils der Initiierungszeiten zu erkennen. Grundsätzlich wird davon ausgegangen, dass die Ergebnisse abhängig vom R-

Verhältnis abfallen. Mit zunehmendem  $K_{I,max,ini}$  sollte die Rissinitiierung früher auftreten. Zusätzlich könnten die linearen Regressionen durch die ansteigende Beanspruchung bei geringerem R-Verhältnis weiter nach links zu früheren Zeiten verschoben werden, da die Risse schneller gebildet werden, das Risswachstum früher eintritt und somit der Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit geringer ist. Bei der Auswertung der fotografischen Aufnahmen ist es schwierig klar zu definieren, wann die eingebrachte Kerbe tatsächlich initiiert und zu wachsen beginnt. Bei unsauberer Kerbeinbringung, bei der die Rasierklinge ungleichmäßig in den Prüfkörper gedrückt wird, bildet sich an der Spitze der Kerbe eine größere plastische Zone. Durch kleine Beschädigungen am Material ist dieser Bereich bereits vorgeschädigt und der Riss „blunet“ durch die plastische Zone. Anschließend stoppt der Riss ab und die Rissinitiierung startet. Daher ist es oftmals schwierig abzugrenzen, ab welchem Zeitpunkt das Blunten der Kerbe abgeschlossen ist, und die Initiierung beginnt. Die Messergebnisse werden zu geringeren  $t_{ini}/t_f$ -Verhältnissen verschoben, wenn bei der Auswertung das Blunten bereits als Rissinitiierung definiert wird. Bei HDv2 kann keine klare Abhängigkeit des  $t_{ini}/t_f$ -Verhältnisses vom R-Verhältnis erkannt werden und die Messpunkte scheinen zufällig verstreut zu sein. Um eine Tendenz des Einflusses der unterschiedlichen Materialien zu erhalten, werden in einem Diagramm alle Verhältnisse der Initiierungszeit von der Versagenszeit zusammengefasst (siehe Abbildung 4.4).

Bei der Gegenüberstellung der Verhältnisse von Initiierungszeit zur Versagenszeit wird ein geringer Trend deutlich, dass mit steigendem Anteil an HDv2 das Verhältnis größer wird. Das bedeutet, dass bei höheren Rezyklat-Anteilen der Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit geringer wird. Somit ist bei geringeren Anteilen des Werkstoffs PE1 bzw. beim reinen Werkstoff PE1 die Risswachstumszeit nach der Initiierung des Risses der entscheidende Parameter für die Versagenszeit. Außerdem wird bei der Betrachtung der verschiedenen Werkstoffe in Abbildung 4.4 der Einfluss von  $K_{I,max,ini}$  erkennbar. Mit steigenden  $K_{I,max,ini}$ -Werten wird das Verhältnis von Initiierungs- zu Versagenszeit geringer. Die relative Rissinitiierungszeit wird mit steigendem Rezyklat-Anteil zwar geringer, aber die absolute Rissinitiierungszeit ist kleiner als bei den Werkstoffen mit einem höheren Anteil an HDv2 (siehe Abschnitte 4.1.1 und 4.1.2). Die absoluten Zeiten sind entscheidend für die Widerstandsfähigkeit der Werkstoffe gegenüber Rissbildung und Risswachstum.

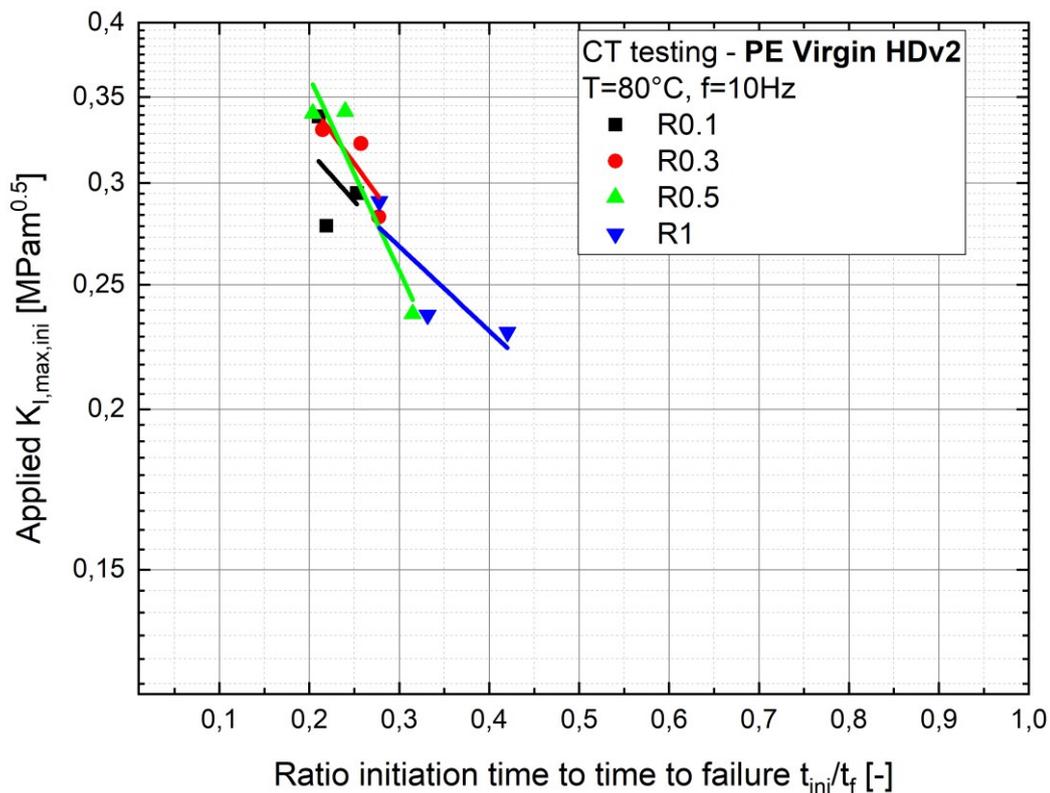


Abbildung 4.3: Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit des Werkstoffs HDv2.

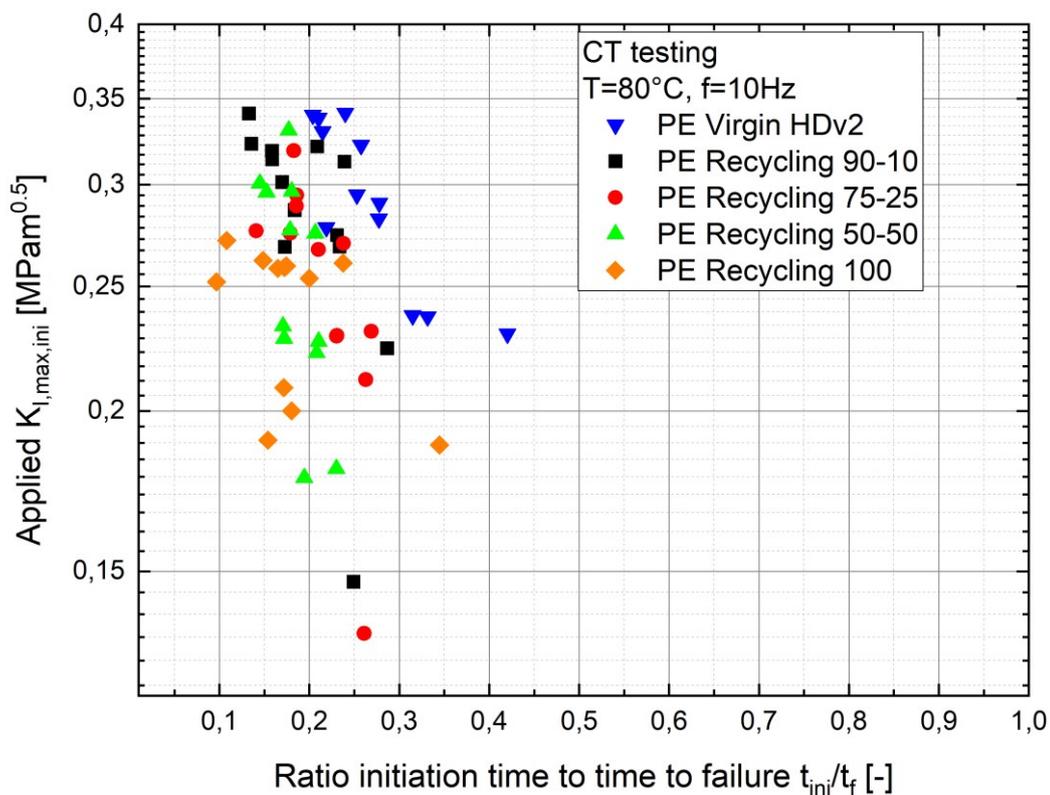


Abbildung 4.4: Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Versagenszeit der verschiedenen Werkstoffe.

#### 4.1.2 Einfluss des R-Verhältnisses auf die Versagenskurven der Werkstoffmischungen

Mit steigendem Gehalt an HDv2 und geringerem Rezyklat-Anteil sollte die Versagenszeit größer werden und die Unterschiede der Abhängigkeiten vom R-Verhältnis deutlicher werden, wie in Abschnitt 4.1.1 angeführt. In Abbildung 4.5 bis Abbildung 4.7 sind die Versagenskurven der Werkstoffe HDv2\_PEr1\_90/10, HDv2\_PEr1\_75/25 und HDv2\_PEr1\_50/50 angeführt. Ergänzend werden auch in diesen Diagrammen die Rissinitiierungszeiten angeführt. Wie zu erwarten ist, nimmt die Zähigkeit mit steigendem Rezyklat-Anteil ab (vgl. Abschnitt 2.4.1), was durch die geringeren Unterschiede in den Versagenszeiten deutlich wird. Bei HDv2\_PEr1\_50/50 liegen alle Messergebnisse unabhängig vom gewählten R-Verhältnis annähernd auf einer linearen Regressions-Geraden, was für einen äußerst spröden Werkstoff spricht. Bei HDv2\_PEr1\_75/25 ist eine geringe Abhängigkeit der Versagenszeit vom R-Verhältnis zu erkennen und bei HDv2\_PEr1\_90/10 sind die Kurven deutlich voneinander abzugrenzen. Außerdem sinkt die Versagenszeit mit steigendem Rezyklat-Anteil deutlich, was durch die Verschiebung der Kurven zu geringeren Zeiten bei geringerem HDv2-Gehalt nachgewiesen wird.

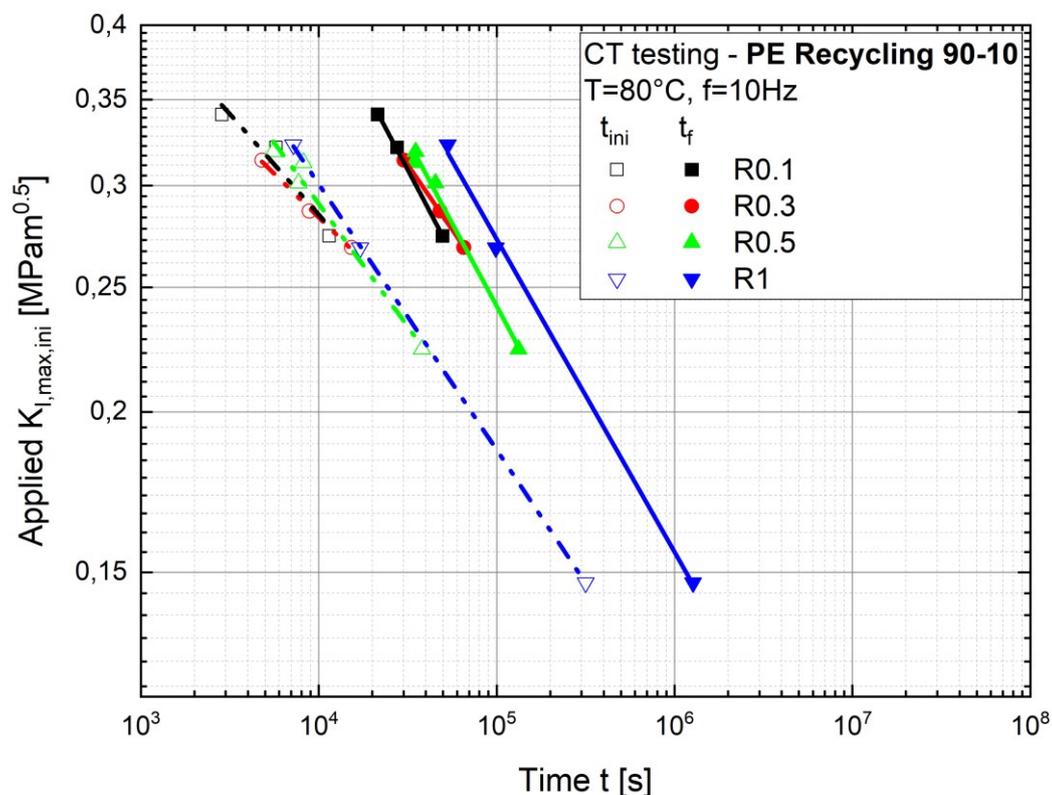


Abbildung 4.5: Versagenskurven des Werkstoffs HDv2\_PEr1\_90/10.

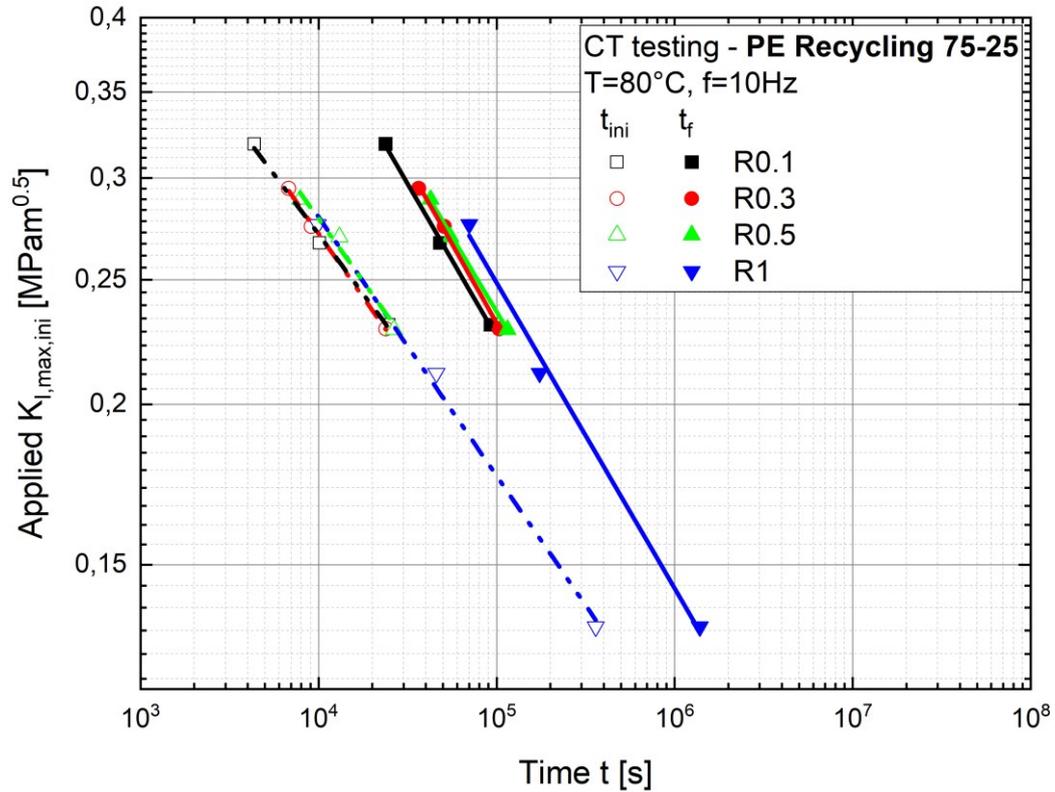


Abbildung 4.6: Versagenskurven des Werkstoffs HDv2\_PEr1\_75/25.

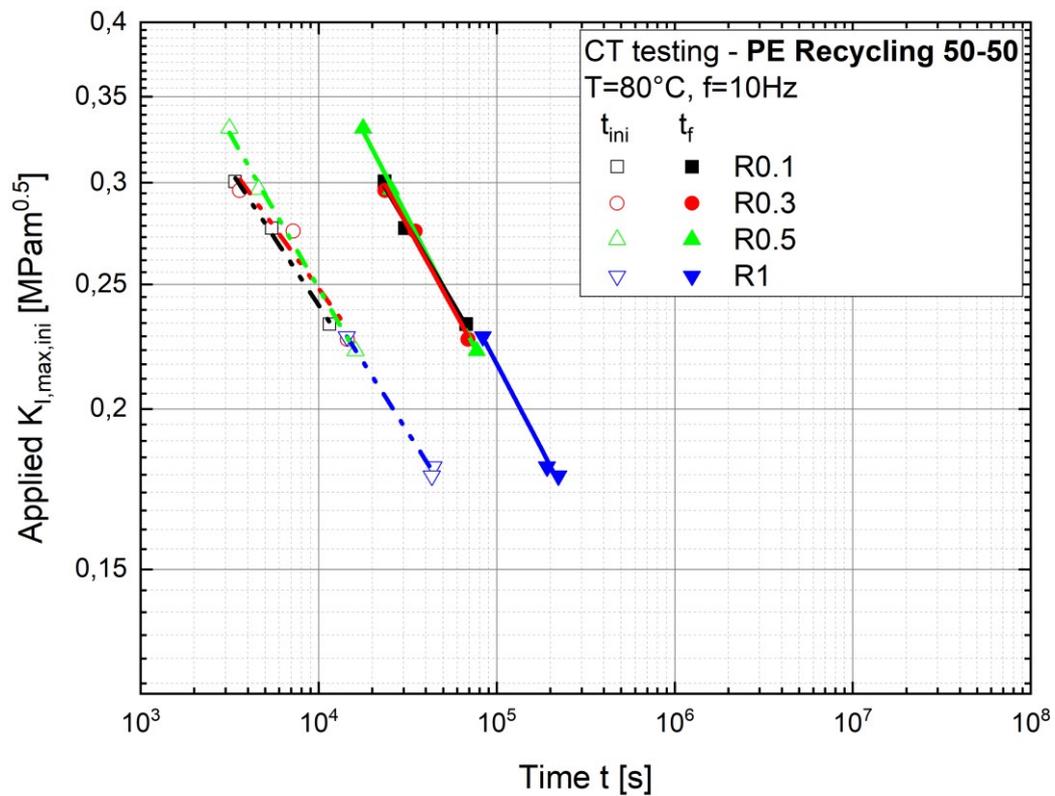


Abbildung 4.7: Versagenskurven des Werkstoffs HDv2\_PEr1\_50/50.

### 4.1.3 Einfluss des Rezyklat-Anteils auf die Versagenszeit

In diesem Abschnitt werden die Versagenszeiten der geprüften Werkstoffe abhängig vom Rezyklat-Anteil konkreter gegenübergestellt. In Abbildung 4.8 bis Abbildung 4.11 sind die Versagenszeiten von HDv2, HDv2\_PEr1\_90/10, HDv2\_PEr1\_75/25, HDv2\_PEr1\_50/50 und PEr1 bei den verschiedenen R-Verhältnissen abgebildet. Dabei ist zu erkennen, dass mit zunehmendem Rezyklat-Anteil die Versagenszeiten bis zum Bruch bei allen R-Verhältnissen abnehmen. Bei gleichem  $K_{I,max,ini}$  tritt Versagen bei PEr1 etwa bei einem Zehntel der Versagenszeit von HDv2 ein. Alle Funktionen zeigen annähernd die gleiche Steigung, das beweist die Anwendbarkeit der angewandten beschleunigten Prüfmethode. Aufgrund dessen kann zusätzlich davon ausgegangen werden, dass die Experimente reproduzierbar sind. Geringe Abweichungen der Messpunkte sind wahrscheinlich auf ungenaues Messen der Einflussgrößen auf  $K_{I,max,ini}$  zurückzuführen. Der Fehler bei der Bestimmung von  $K_{I,max,ini}$  beträgt etwa  $\pm 0,02 \text{ MPam}^{0,5}$ , wenn die Prüfkörpergeometrie oder die Anfangsrislänge nicht exakt bestimmt werden. Die geringere Versagenszeit der Werkstoffe mit steigendem Rezyklat-Anteil ist vor allem auf die Veränderungen in der chemischen Struktur zurückzuführen. Die Werkstoffe werden spröder, es bilden sich mehr kristalline Bereiche aus und die Dichte an Tie-Molekülen in den amorphen Bereichen wird verringert. Die geringere Anzahl an Tie-Molekülen (bedeutet weniger Verschlaufungen) und die erhöhte Beweglichkeit der kürzeren Kettenmoleküle durch Kettenbrüche hat zur Folge, dass die Entschlaufungen im interlamellaren Bereich schneller und bei geringerer Beanspruchung stattfinden. Außerdem verringern die Abnahme des molekularen Gewichts und die Verzweigungen bei PEr1 die Dichte an Tie-Molekülen, wodurch die Widerstandsfähigkeit reduziert wird. Die intermolekularen Kräfte nehmen ab und die Zugfestigkeit wird verringert. Da die Rissausbreitung in diesen Regionen stattfindet und Entschlaufungsprozesse die Hauptursache für die Rissausbreitung sind, bestimmt die Anzahl an Verschlaufungen die Widerstandsfähigkeit. Mit steigendem Anteil an HDv2 wird die Dichte an Tie-Molekülen erhöht, im amorphen Zwischenbereich sind mehr Verschlaufungen vorhanden und die anliegende Last wird auf mehr Ketten aufgeteilt. Dadurch nimmt die Versagenszeit bei gleicher Beanspruchung zu.

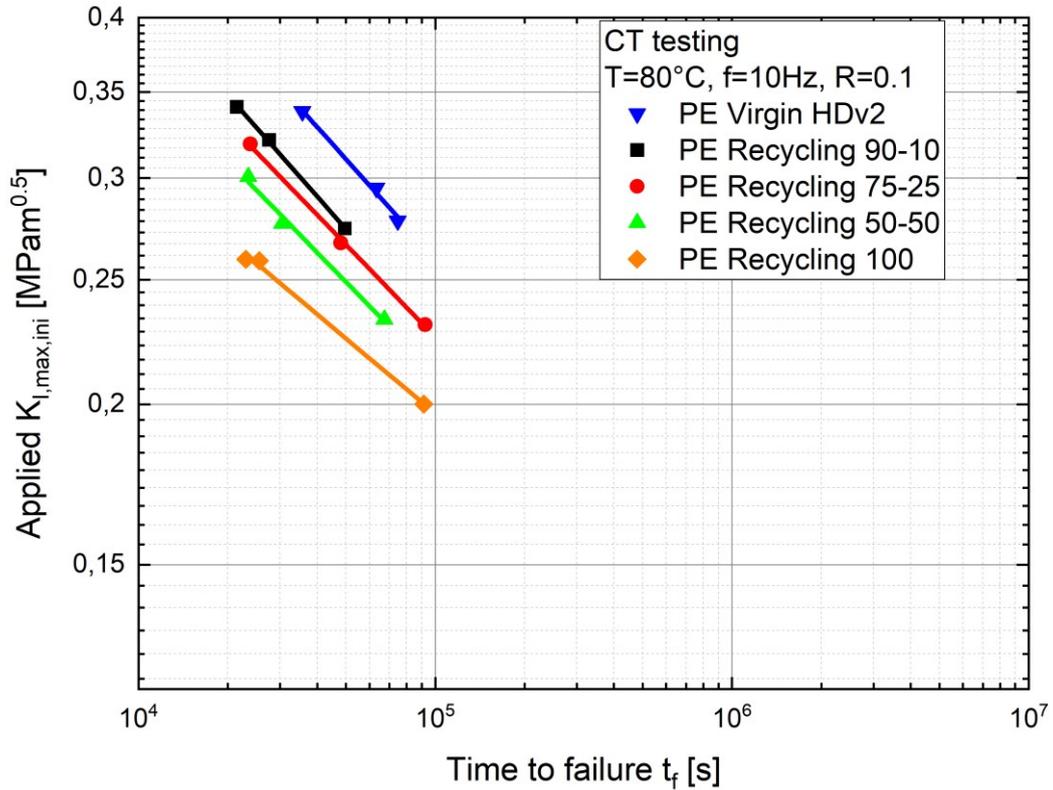


Abbildung 4.8: Versagenskurven der Werkstoffe bei R = 0,1.

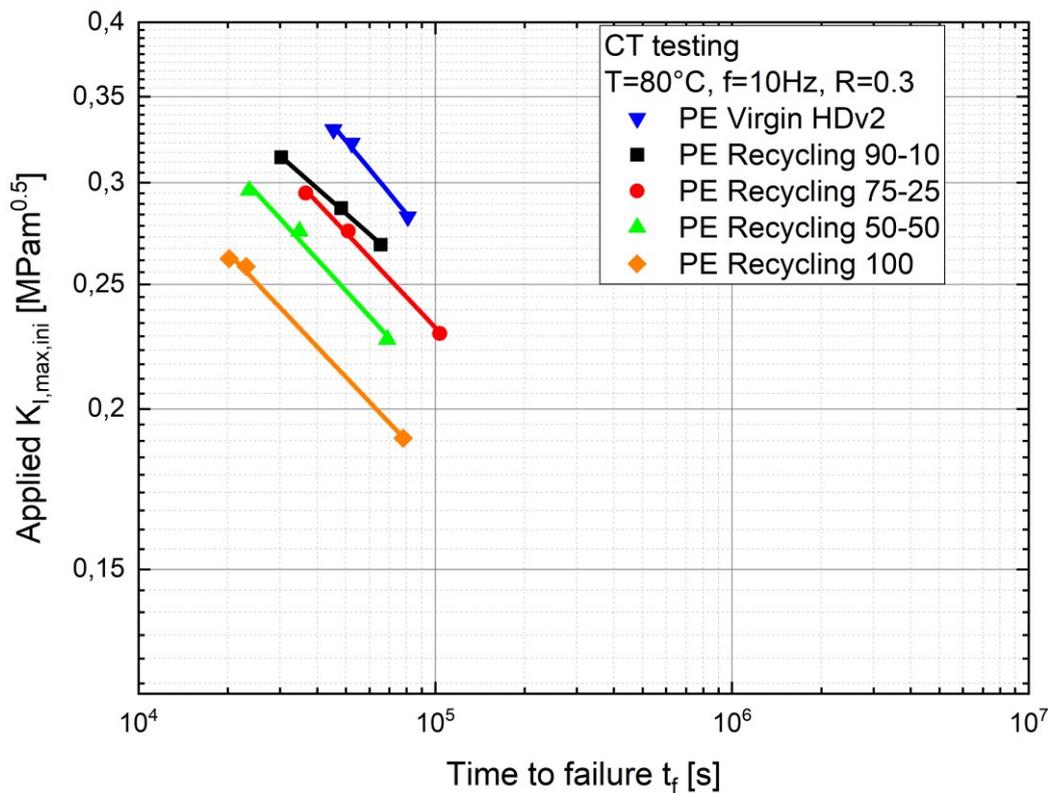


Abbildung 4.9: Versagenskurven der Werkstoffe bei R = 0,3.

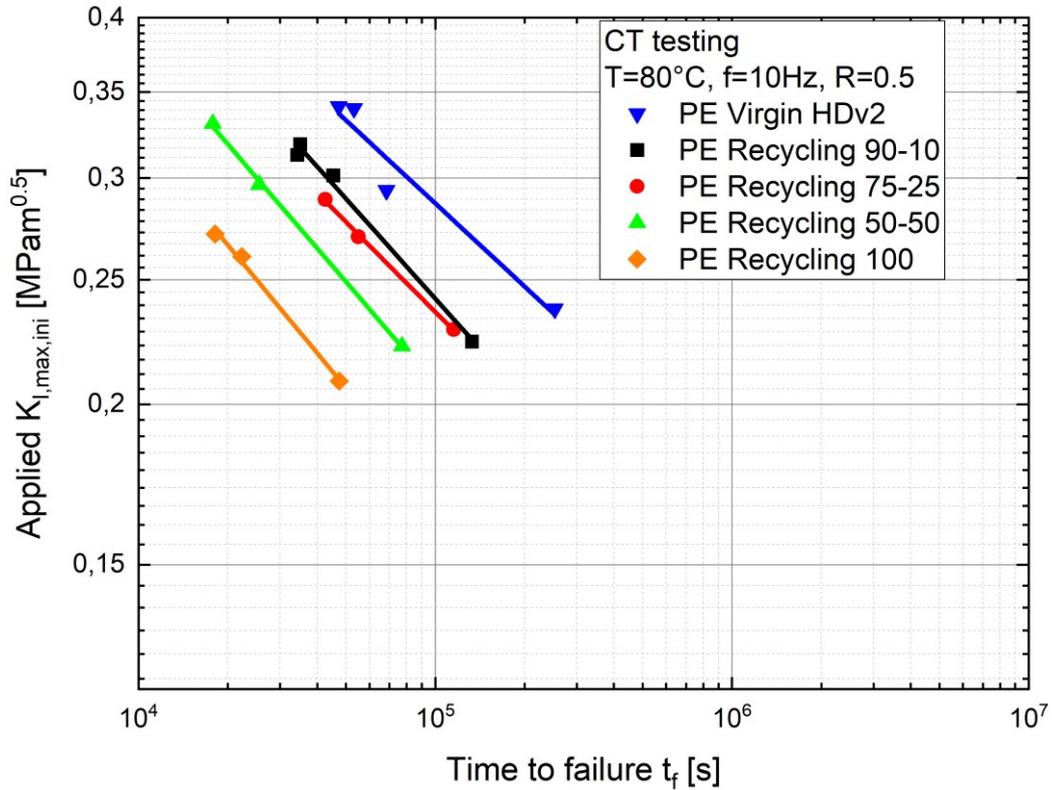


Abbildung 4.10: Versagenskurven der Werkstoffe bei R = 0,5.

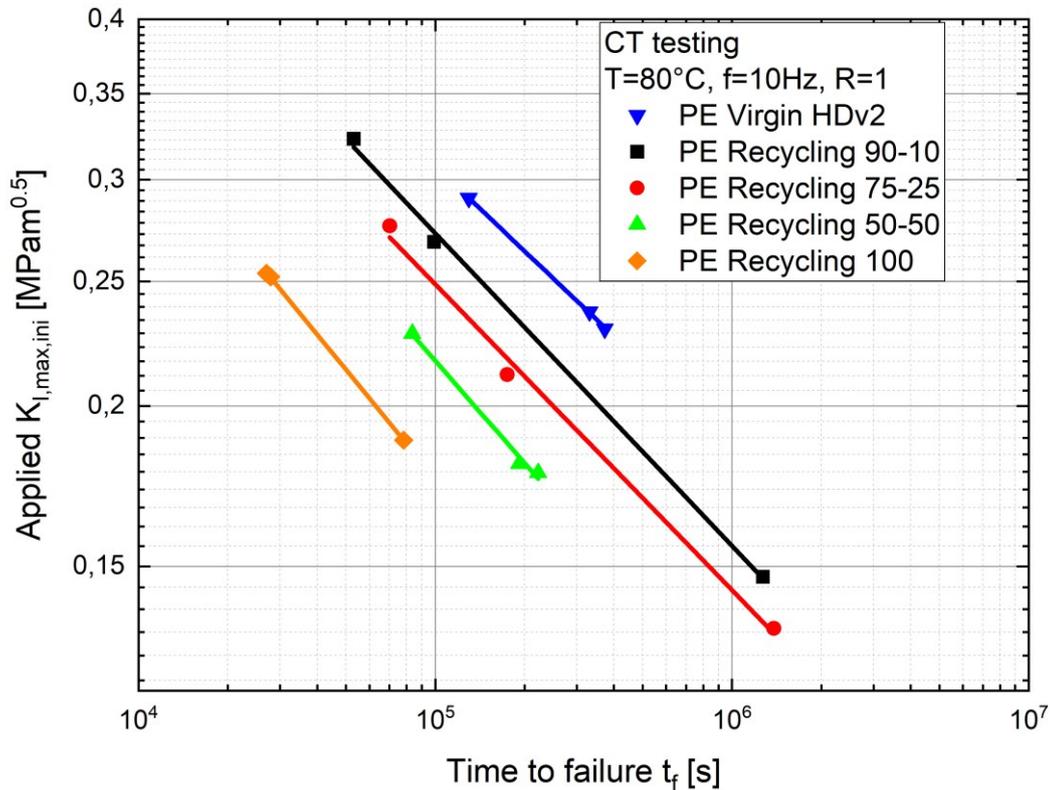
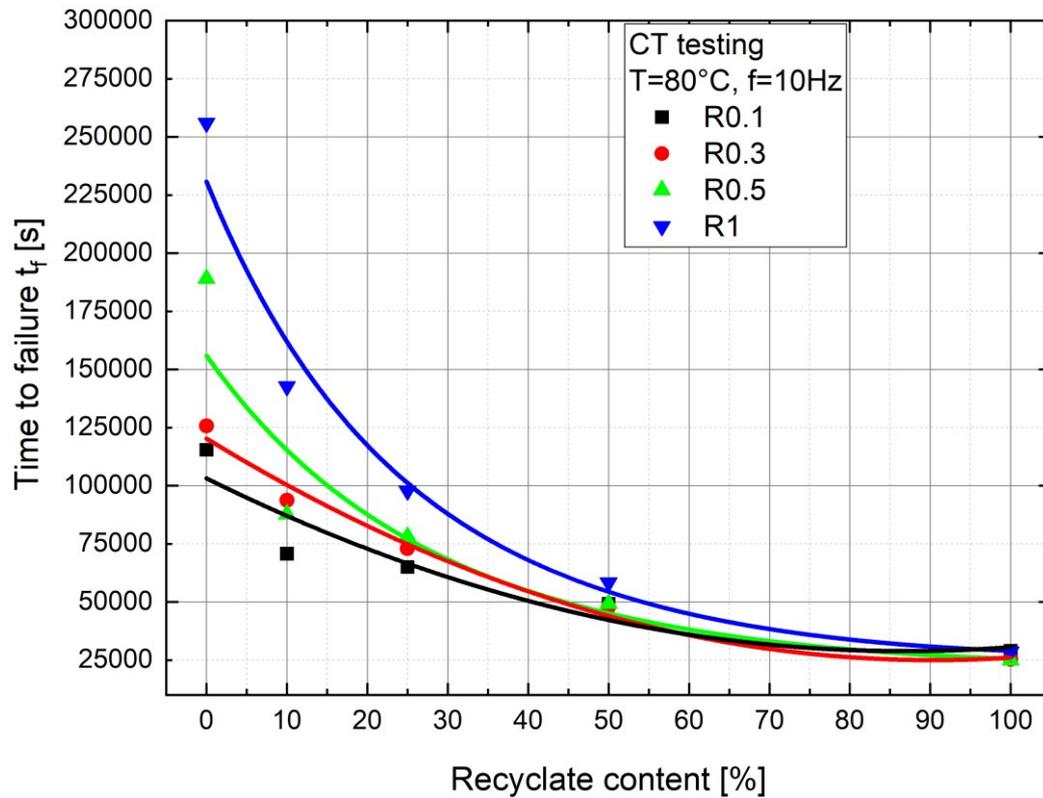


Abbildung 4.11: Versagenskurven der Werkstoffe bei R = 1.

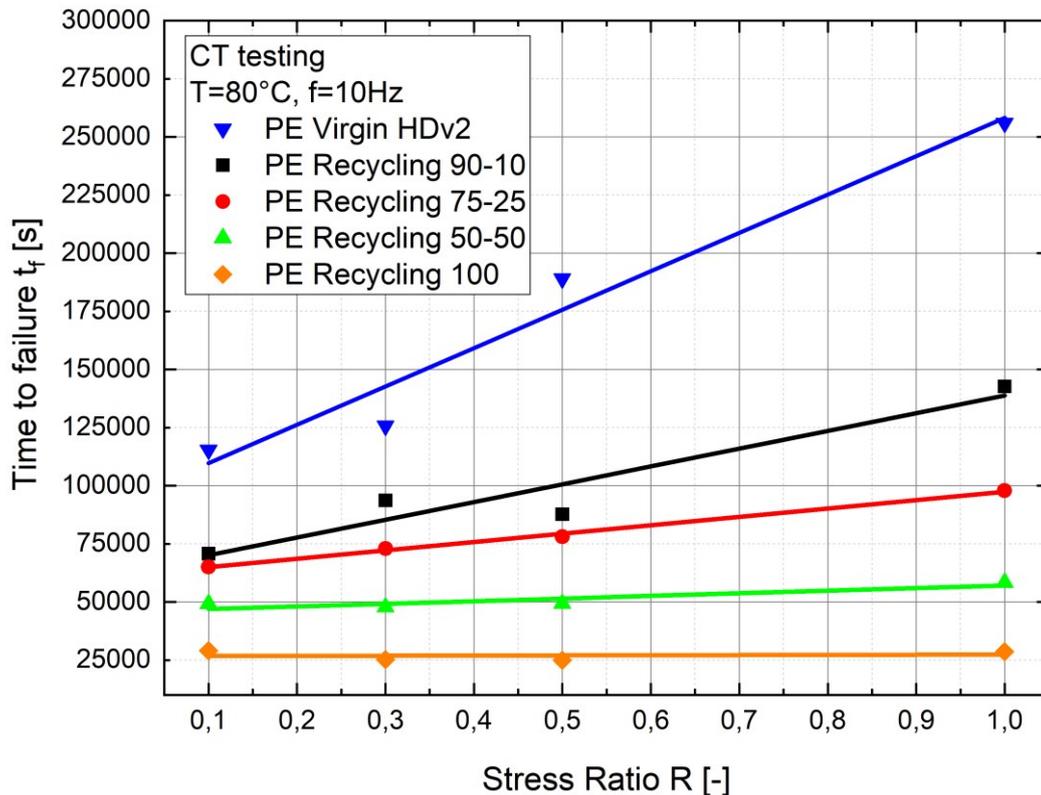
Um eine bessere Übersicht über die Auswirkung des Rezyklat-Anteils auf die Versagenszeit zu erhalten, wird die Versagenszeit über dem prozentuellen Anteil an PEr1 aufgetragen. Dabei werden die Versagenszeiten bei einer Rissspitzenspannungsintensität von  $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$  aufgetragen. Die Versagenkurven, die mit diesem Wert keinen Schnittpunkt aufweisen, werden manuell extrapoliert. Im linearen Diagramm (siehe Abbildung 4.12) ist zu erkennen, dass die Versagenszeit exponentiell mit steigendem Rezyklat-Anteil abnimmt. Dabei wird der Unterschied der verschiedenen R-Verhältnisse deutlich. Beim statischen Lastfall ist die Auswirkung des Rezyklats am stärksten definiert. Dieses Diagramm betont außerdem die geringen Unterschiede bei PEr1 und bei HDv2\_PEr1\_50/50, bei denen die Prüfkörper fast unabhängig vom R-Verhältnis nach derselben Zeit versagen.

Bei einem Rezyklat-Anteil von 0% (HDv2) beträgt die Zeit bis zum Versagen bei  $R=1$  etwa 250000 Sekunden und auch bei  $R = 0,1$  noch über 100000 Sekunden. Bei PEr1 (100% Rezyklat) beträgt die Versagenszeit unabhängig vom R-Verhältnis etwa 25000 Sekunden. Die Versagenszeiten der Werkstoffmischungen liegen dazwischen und die Abhängigkeiten der Versagenszeiten vom R-Verhältnis bei HDv2\_PEr1\_90/10 und bei HDv2\_PEr1\_75/25 sind zu erkennen. So steigt die Versagenszeit bei HDv2\_PEr1\_90/10 von etwa 75000 Sekunden ( $R = 0,1$ ) auf fast 150000 Sekunden beim statischen Lastfall an. Bei  $R = 0,3$  und bei  $R = 0,5$  beträgt die Versagenszeit etwa 90000 Sekunden. Die Versagenszeiten von HDv2\_PEr1\_75/25 sind bei  $R = 0,1$ ,  $R = 0,3$  und bei  $R = 0,5$  ähnlich im Bereich von 75000 Sekunden. Die Versagenszeit dieses Werkstoffs beim statischen Lastfall beträgt circa 100000 Sekunden. Bei HDv2\_PEr1\_50/50 sind die Versagenszeiten (etwa 50000 Sekunden) der zyklischen Versuche nicht mehr voneinander zu trennen. Bei  $R = 1$  kann eine etwas längere Versagenszeit gemessen werden.



**Abbildung 4.12:** Versagenszeit abhängig vom Rezyklat-Anteil bei  $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$  und unterschiedlichen R-Verhältnissen.

Im nächsten Abschnitt werden die Versagenszeiten der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis bei einer Belastung von  $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$  dargestellt (siehe Abbildung 4.13). Dieses Diagramm offenbart die Auswirkungen des Anteils an PEr1 noch konkreter. Während bei dem Neumaterial HDv2 die Versagenszeit mit zunehmendem R-Verhältnis stark zunimmt, so ist die Versagenszeit bei PEr1 unabhängig vom R-Verhältnis annähernd konstant. Bei Betrachtung der Werkstoffmischungen ist ein klarer Trend zu erkennen. Mit steigendem Gehalt an PEr1 nimmt die Steigung der linearen Ausgleichsgerade ab. Das bekräftigt die These, dass das Rezyklat verantwortlich ist für das zunehmend frühere Versagen und die Unterschiede in den Versagenszeiten abhängig vom R-Verhältnis werden geringer bei höherem Anteil an PEr1.

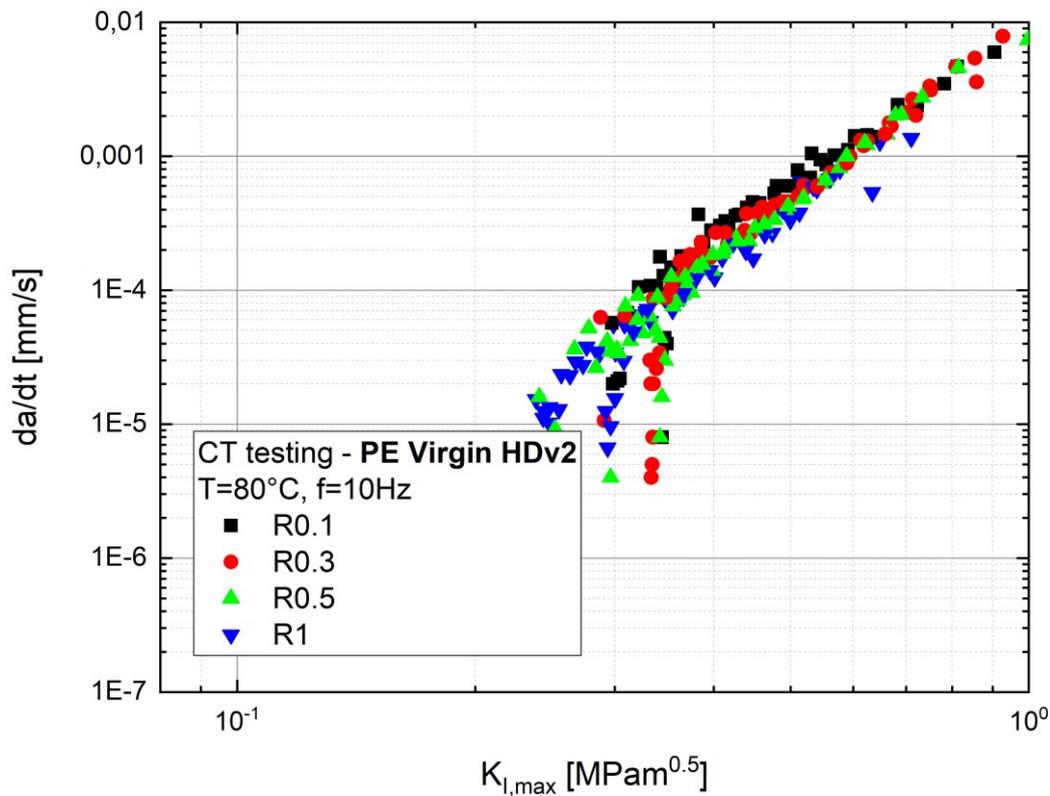


**Abbildung 4.13:** Versagenszeiten der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis bei  $K_{I,max} = 0,25 \text{ MPam}^{0,5}$ .

## 4.2 Risswachstumskinetik

Mit der Auswertung der Risslänge mithilfe der fotografischen Aufnahmen werden die momentanen Werte für  $K_{I,max}$  und  $da/dt$  bestimmt. Dadurch ergeben sich die Risswachstumskinetiken der unterschiedlichen Werkstoffe. Jeder Prüfkörper zeigt dabei ein stabiles Risswachstum in Bereich II, welcher für den Vergleich der Materialien entscheidend ist (vgl. Abschnitt 2.1). Mit dem linearen Zusammenhang in dieser Region werden die materialspezifischen Parameter  $A$  und  $m$  definiert. Dieser Bereich charakterisiert die Widerstandsfähigkeit eines Werkstoffes gegenüber SCG. In den folgenden Abschnitten werden beispielhaft von jedem Werkstoff und jedem R-Verhältnis die Risswachstumskinetiken eines Prüfkörpers dargestellt. Da die Kurven bei gleichem R-Verhältnis eines Werkstoffes fast identisch sind, wäre die Darstellung aller durchgeführten Versuche für den Vergleich zu unübersichtlich und nicht zielführend aufgrund der hohen Anzahl an Messpunkten. Zur Verdeutlichung sind alle durchgeführten Messungen an HDv2 in folgender Abbildung 4.14 eingefügt. Die Streuung der Messpunkte eines R-Verhältnisses sind gering, allerdings werden die Daten teilweise voneinander verdeckt. Daher sind in den

folgenden Abschnitten die Rissausbreitungsgeschwindigkeiten eines Prüfkörper je R-Verhältnis und Werkstoff repräsentativ angeführt.



**Abbildung 4.14:** Risswachstumskinetik der HDv2-Prüfkörper bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.

#### 4.2.1 Einfluss des R-Verhältnisses bei HDv2 und PER1

Bei einem höheren Werkstoffwiderstand gegenüber Rissausbreitung wird die Risswachstumskurve nach rechts zu höheren  $K_{I,max}$ -Werten verschoben. Das bedeutet, dass das Risswachstum bei gleicher Belastung langsamer stattfindet. Geringere R-Verhältnisse sollten beim gleichen Werkstoff eine schnelleres Risswachstum bedingen, da die lokale Dehngeschwindigkeit höher ist. In Abbildung 4.15 und in Abbildung 4.16 ist die Risswachstumskinetik von HDv2 und von PER1 angeführt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Kurve von PER1 weiter links bei geringeren  $K_{I,max}$  liegt, als die Kurve von HDv2. Somit wächst der Riss bei dem recycelten Werkstoff schneller als bei der Neuware und PER1 zeigt geringeren Widerstand gegenüber Rissausbreitung. Es ist außerdem zu beobachten, dass die Lastsituation bei PER1 keinen Unterschied in der Risswachstumsgeschwindigkeit bedingt, denn die Datenpunkte der Kurven sind nicht geordnet voneinander zu trennen. Bei HDv2 kann nur ein sehr geringer Einfluss des R-Verhältnisses auf die

Risswachstumsgeschwindigkeit erkannt werden. Ein Grund für den geringen Einfluss des R-Verhältnisses könnte sein, dass bei der erhöhten Temperatur der statische Einfluss auf das Risswachstum dominiert (vgl. Abschnitt 2.1). Je höher das Spannungsverhältnis ist, desto geringer ist die Geschwindigkeit der Rissausbreitung. Durch die hohe Risswiderstandsfähigkeit von HDv2 wächst der Riss bei der größten Dehngeschwindigkeiten ( $R = 0,1$ ) nur etwa doppelt so schnell wie bei dem statischen Lastfall. Wie bereits in Abschnitt 4.1.3 erörtert wird, hat die molekulare Struktur einen großen Einfluss auf das Widerstandsverhalten gegenüber Risswachstum. Vor allem die höhere Dichte der Tie-Moleküle wird einen positiven Einfluss auf die langsamere Rissausbreitung in HDv2 gegenüber PEr1 haben. Eine weitere Beobachtung ist, dass die Steigung der linearen Paris-Regression bei PEr1 augenscheinlich geringer ist als bei HDv2. Das widerspricht der Erwartung, dass die Prüfkörper aus den Rezyklaten bei vorhandener Schädigung noch schneller versagen müssten und die Rissgeschwindigkeit schneller zunimmt als bei dem reinen HDv2. Das geringere molekulare Gewicht und die höhere Kristallinität sollten bei PEr1 dazu führen, dass das Risswachstum sukzessive beschleunigt wird und die Steigung größer ist. Ein Grund für die geringere Steigung bei PEr1 könnte sein, dass der Werkstoff spröder ist. Bei höheren  $K_{I,max}$ -Werten werden aufgrund der geringeren Zähigkeit kleinere plastische Zonen gebildet als bei HDv2. Das könnte zu stetigerem Risswachstum führen und zu geringeren Unterschieden der Rissgeschwindigkeit bei steigender Beanspruchung durch  $K_{I,max}$ .

Während bei HDv2 der Bereich des stabilen Risswachstums bei einem  $K_{I,max}$  von etwa  $0,35 \text{ MPam}^{0,5}$  und einer  $da/dt$  von  $0,0001 \text{ mm/s}$  beginnt, so bildet sich dieser Bereich bei PEr1 bei einem  $K_{I,max}$  von circa  $0,30 \text{ MPam}^{0,5}$ . Der große Unterschied liegt aber in der Risswachstumsgeschwindigkeit. Der Bereich des stabilen Risswachstums bei PEr1 beginnt bei einer  $da/dt$  von etwa  $0,0004 \text{ mm/s}$ , was vier Mal so schnell ist als bei HDv2. Vergleicht man die Risswachstumsgeschwindigkeiten bei einem Wert  $K_{I,max} = 0,35 \text{ MPam}^{0,5}$ , sind die Unterschiede im Materialverhalten zu erkennen. Die Risswachstumsgeschwindigkeit  $da/dt$  bei PEr1 beträgt bei diesem Wert etwa  $0,0007 \text{ mm/s}$ , das ist ein Vielfaches schneller als bei HDv2. Diese Unterschiede werden vor allem in der Auswertung der Materialparameter deutlich, wie nachfolgend in Abschnitt 4.2.3 noch genauer erläutert wird.

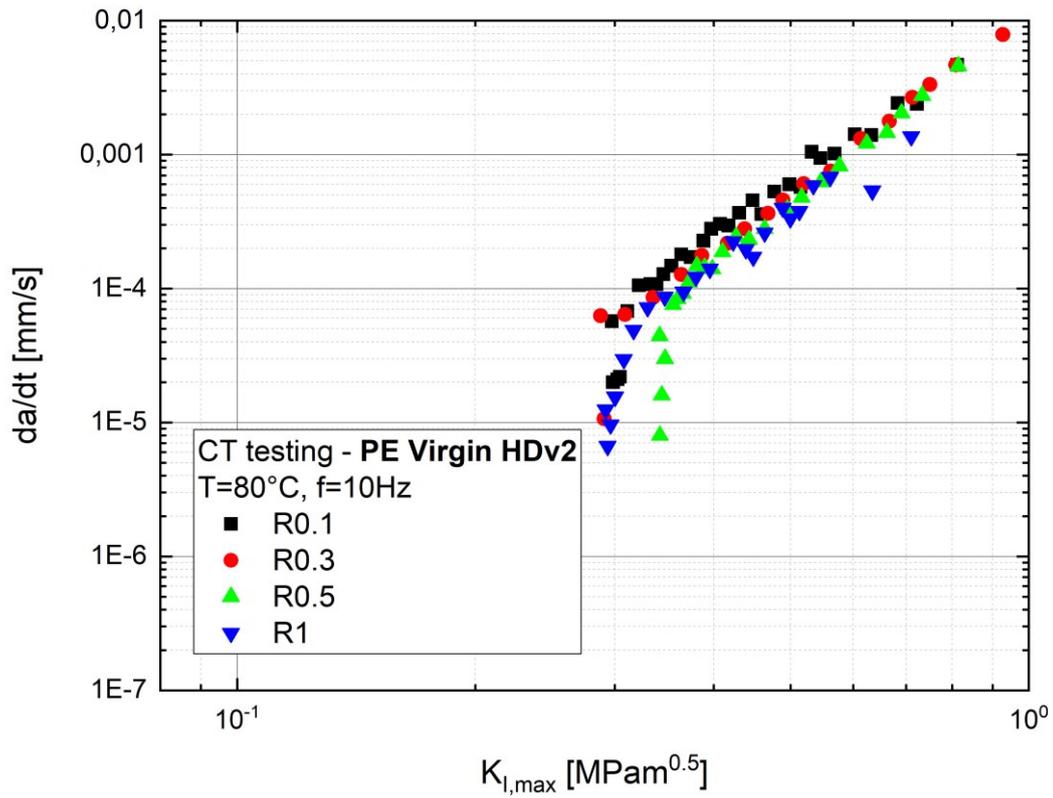


Abbildung 4.15: Risswachstumskinetik von HDv2 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.

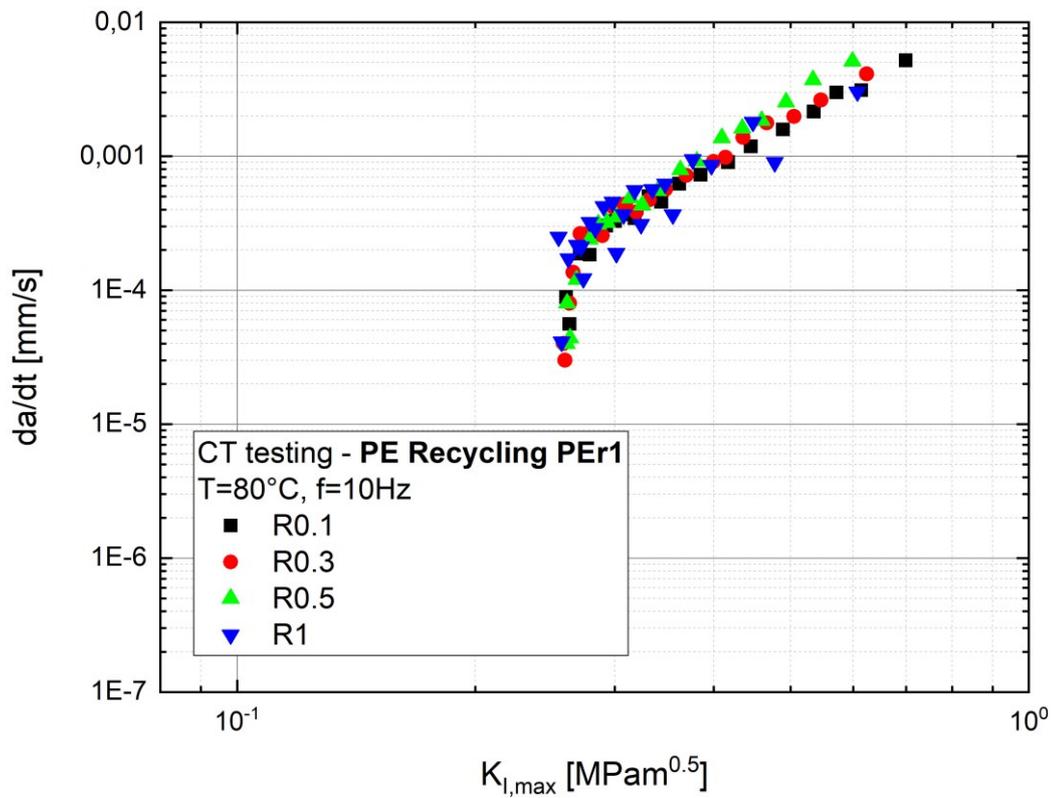
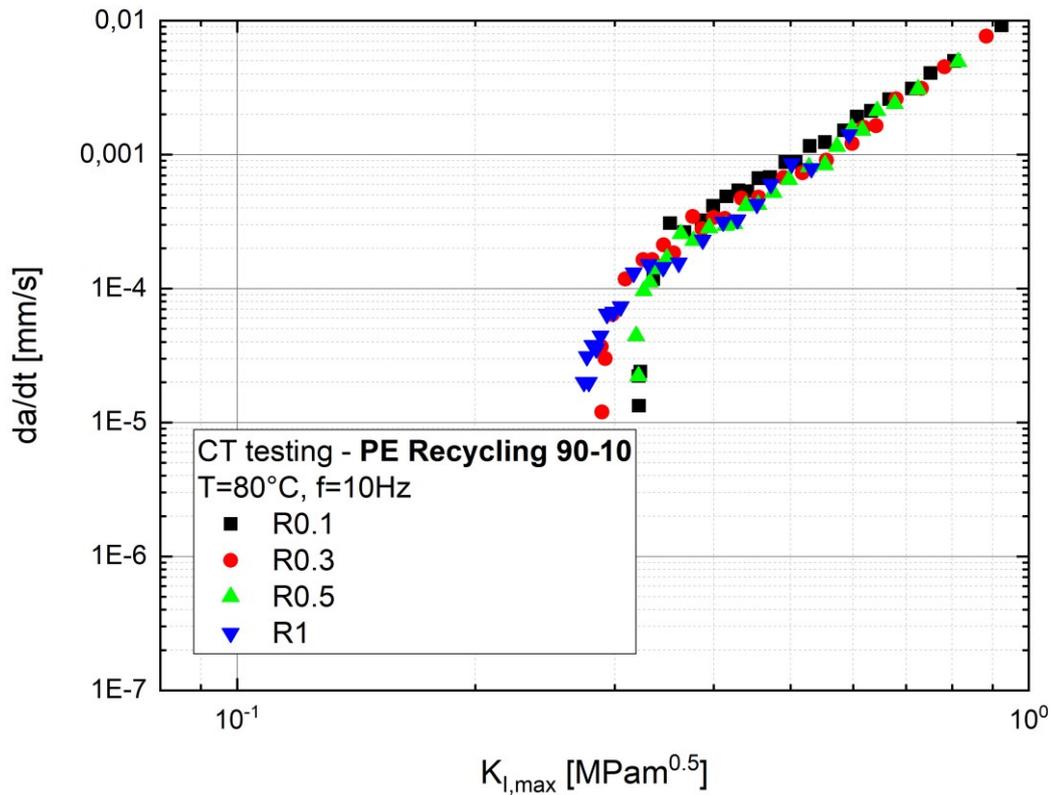


Abbildung 4.16: Risswachstumskinetik von PEr1 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.

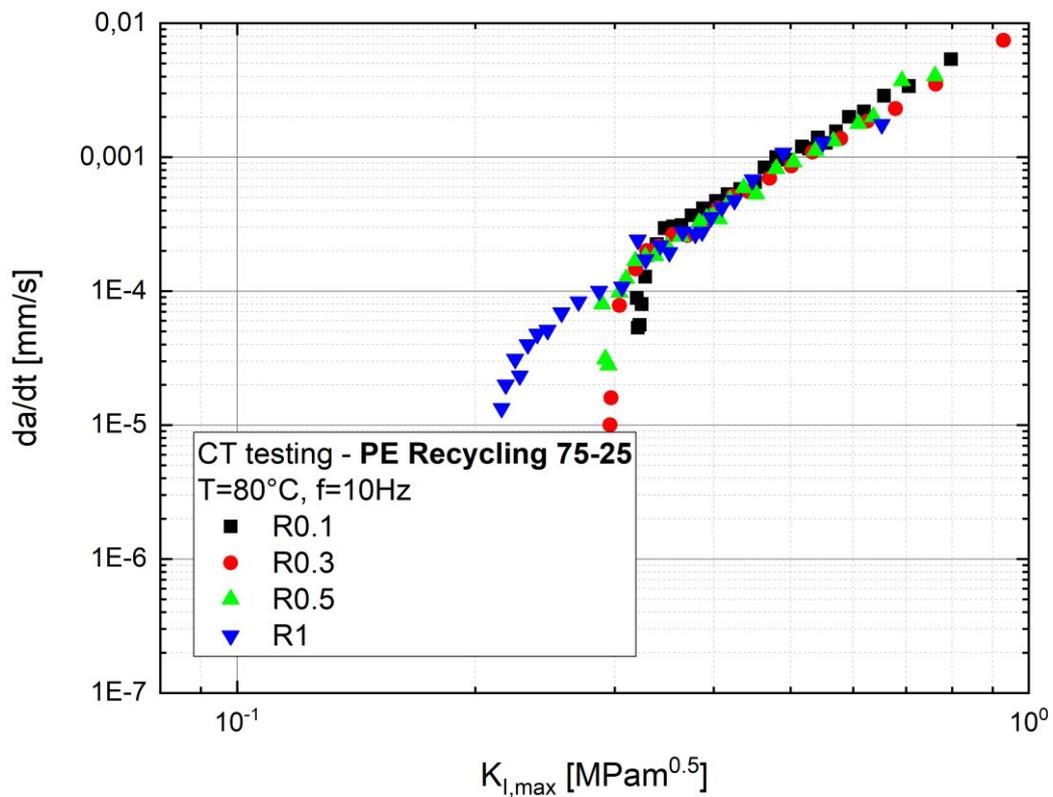
#### 4.2.2 Einfluss des R-Verhältnisses bei den Werkstoffmischungen

In diesem Abschnitt werden die Risswachstumskinetiken der Werkstoffmischungen miteinander verglichen. In Abbildung 4.17 bis Abbildung 4.19 ist der Trend deutlich zu erkennen, dass mit steigendem Rezyklat-Anteil die Kurven nach links zu geringeren  $K_{I,max}$ -Werten verschoben werden. Das bestätigt die Annahme aus dem Abschnitt zuvor, dass HDv2 eine höhere Widerstandsfähigkeit gegenüber Rissausbreitung besitzt als PEr1. Je höher der Anteil des Rezyklats im Werkstoff ist, desto geringer ist die notwendige Spannungsintensität an der Risspitze für die gleiche Risswachstumsgeschwindigkeit. Auch bei den Werkstoffmischungen ist zu erkennen, dass das R-Verhältnis nur einen sehr geringen Einfluss auf die Risskinetik hat. Bei HDv2\_PEr1\_90/10 ist noch die geringe Tendenz zu erkennen, dass mit steigendem R-Verhältnis die Kurven bei höheren  $K_{I,max}$ -Werten liegen. Bei HDv2\_PEr1\_75/25 und bei HDv2\_PEr1\_50/50 sind die Kurven nicht mehr eindeutig voneinander zu trennen. Das wird vor allem an den schlechteren Eigenschaften des PEr1 liegen. Ist ein Riss in diesem Material vorhanden, so wird sich dieser unabhängig von der Belastungssituation mit der annähernd gleichen Geschwindigkeit im Material ausbreiten und Versagen tritt nach ähnlicher Zeit ein. Für den Einfluss auf die Versagenszeit spricht auch die Versagenskurve von PEr1 (siehe Abbildung 4.2), bei der keine eindeutigen Einflüsse des R-Verhältnisses auf die Versagenszeit zu erkennen sind.

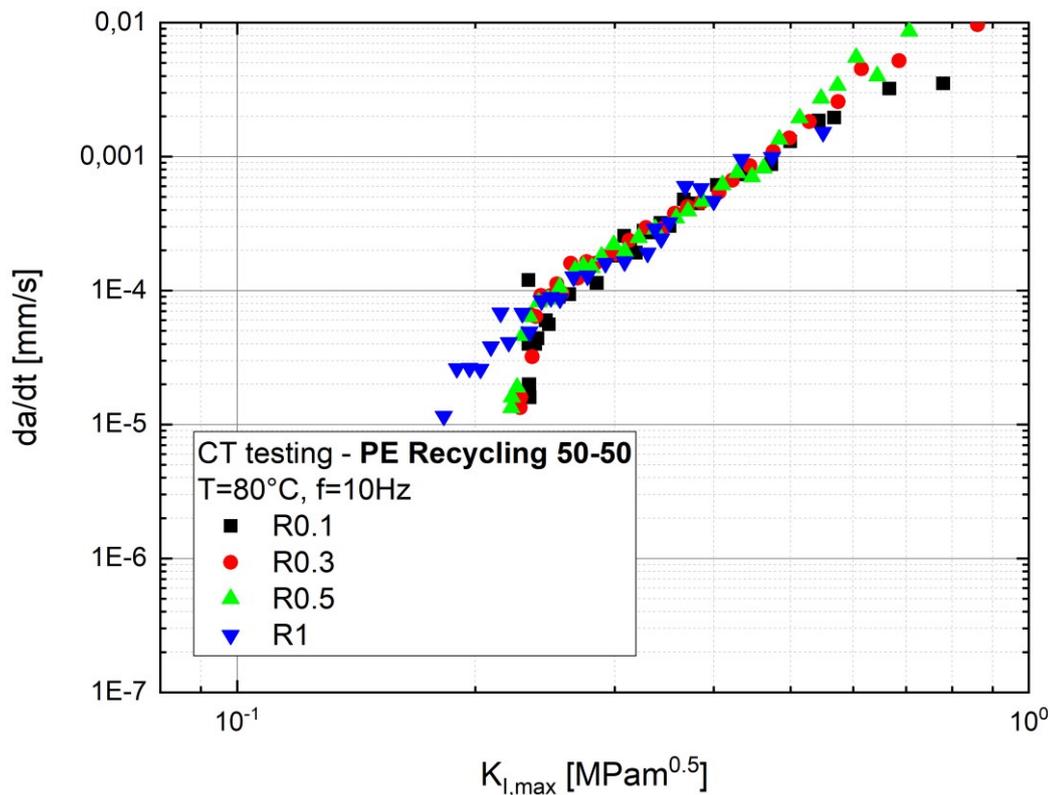
Die geringen Ausreißer der Messpunkte sind zum einen auf die ungenaue Auswertung zurückzuführen. Bei der Bestimmung des Rissfortschritts anhand der fotografischen Aufnahmen ist die Risspitze oftmals nicht eindeutig zu erkennen, da die gebildete plastische Zone und der Riss oftmals nicht eindeutig voneinander zu trennen sind. Die Auswertung der Risslänge erfolgt zwar bis zur Mitte der plastischen Zone, allerdings wird die exakte Auswertung mit steigender Dimension der plastischen Zone erschwert. Zusätzlich wächst der Riss in ovaler, halb-elliptischer Form an und ist dadurch im Inneren bereits weiter fortgeschritten als am betrachteten Rand des Prüfkörpers. Zum anderen ist das diskontinuierliche Risswachstum (abwechselnde Bildung plastischer Zonen und Rissfortschritt) dafür verantwortlich, dass die Messpunkte des Rissfortschritt nicht auf einer exakten linearen Funktion liegen, da der Riss abstoppt und anschließend schneller durch die plastische Zone wächst.



**Abbildung 4.17:** Risswachstumskinetik von HDv2\_PEr1\_90/10 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.



**Abbildung 4.18:** Risswachstumskinetik von HDv2\_PEr1\_75/25 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.



**Abbildung 4.19:** Risswachstumskinetik von HDv2\_PEr1\_50/50 bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.

#### 4.2.3 Bestimmung der Risskinetikparameter

Anhand aller durchgeführter Versuche werden die materialspezifischen Parameter für die Berechnung und Auswertung der Lebensdauern bestimmt. Dies erfolgt mithilfe der Paris-Geraden im Bereich II des stabilen Risswachstums. In diesem Bereich werden die materialspezifischen Parameter A und m aller Werkstoffe bei den unterschiedlichen Belastungsfällen berechnet. In Abbildung 4.20 bis Abbildung 4.23 sind die Risswachstumskinetiken aller Prüfkörper dargestellt. Der Bereich des stabilen Risswachstums wird bei der Untersuchung subjektiv ausgewählt, daher können geringe Abweichungen der Materialparameter aufgrund von Messungenauigkeiten nicht ausgeschlossen werden. Die Beurteilung der Grenzen des stabilen Risswachstums sind in einigen Fällen schwierig, da die Risswachstumsgeschwindigkeiten der Prüfkörper eines Materials und R-Verhältnisses voneinander stark abweichen können. Dennoch kann, wie in im folgenden Abschnitt angeführt wird, eine Tendenz ermittelt. Mithilfe der Ausgleichsgerade und dem Zusammenhang von Gleichung (2.2) werden die Parameter A und m ermittelt.

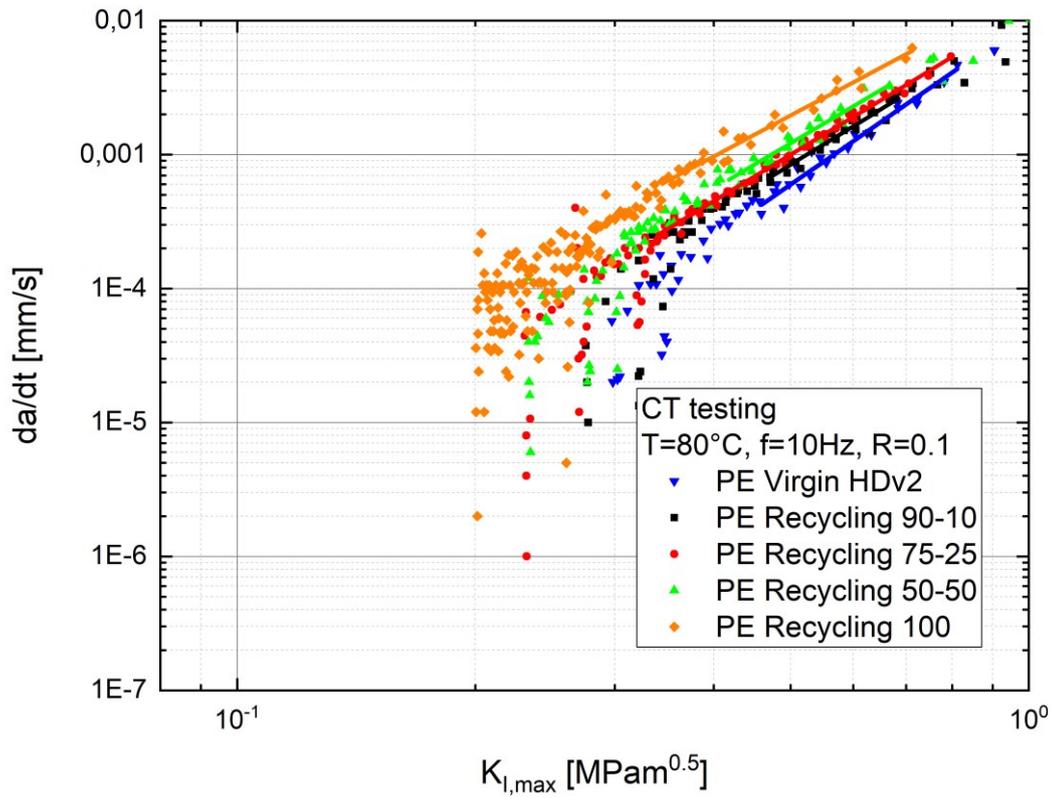


Abbildung 4.20: Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei R = 0,1.

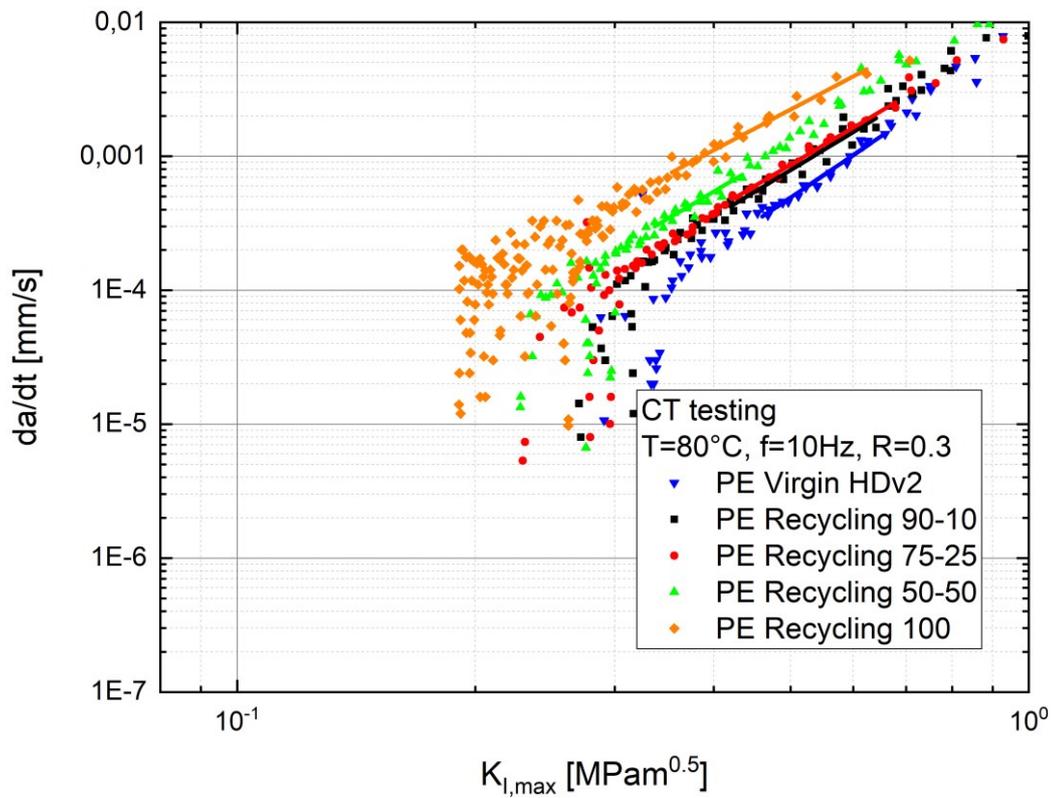


Abbildung 4.21: Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei R = 0,3.

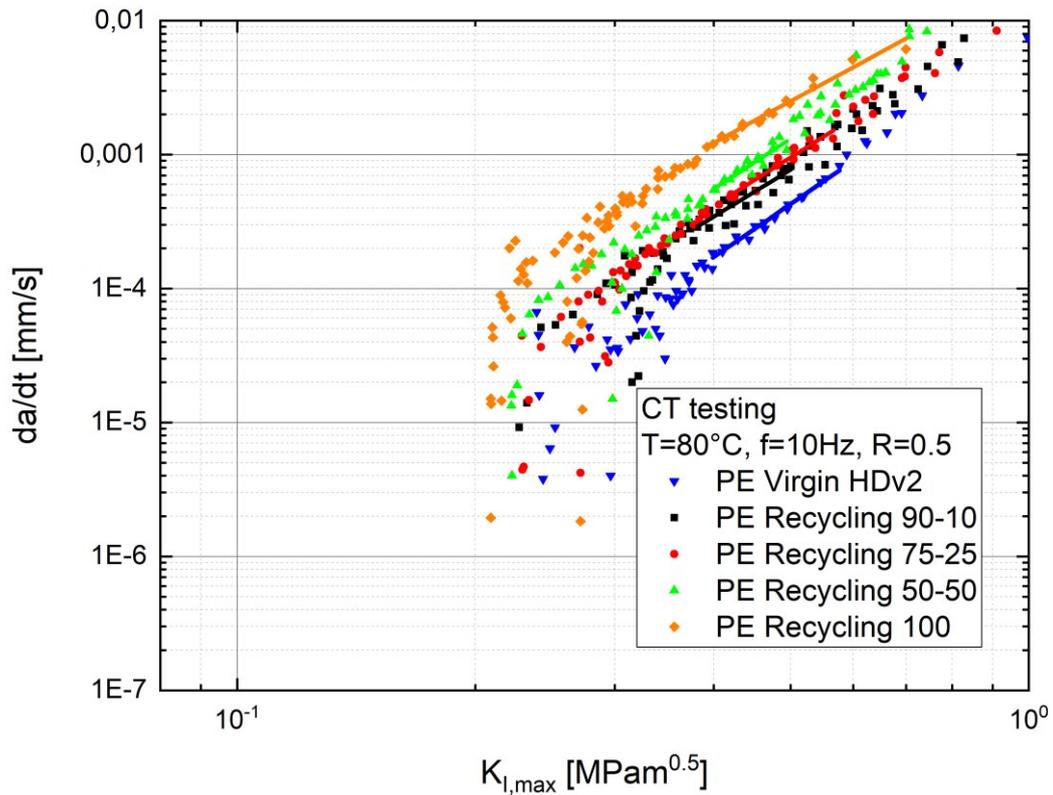


Abbildung 4.22: Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei R = 0,5.

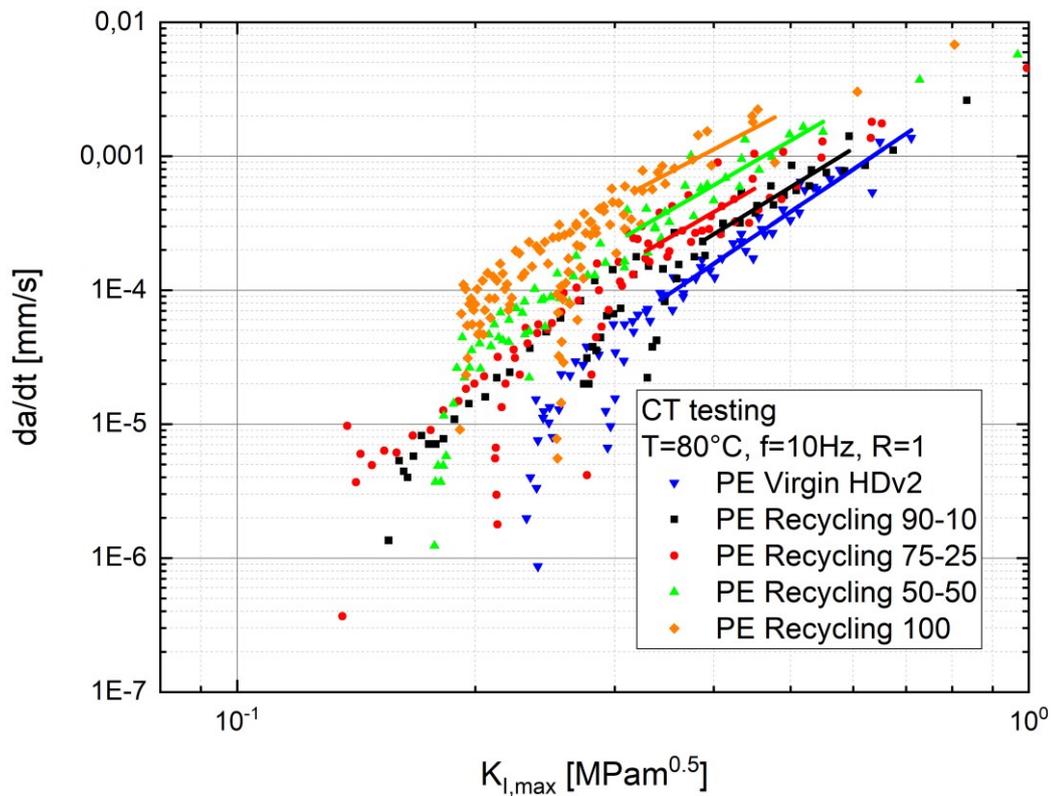
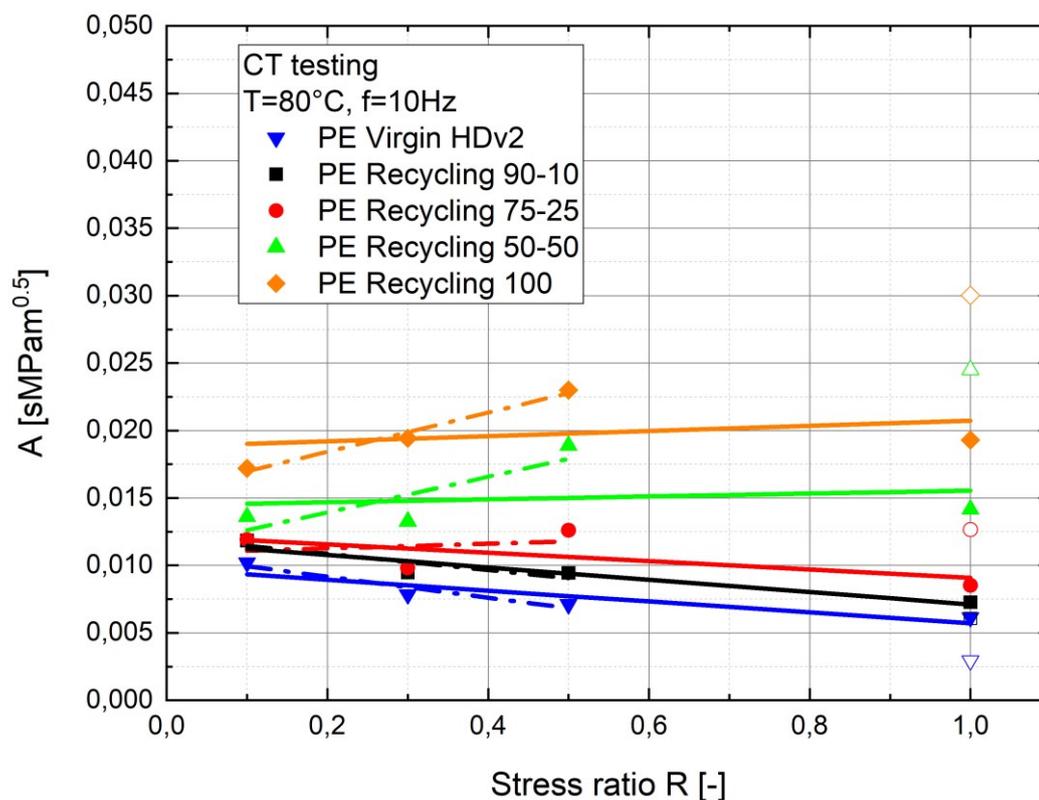


Abbildung 4.23: Risswachstumsverhalten und Paris-Gerade der geprüften Werkstoffe bei R = 1.

Die Auswertung zeigt, dass der Bereich des stabilen Risswachstums bei den unterschiedlichen Werkstoffen mit einer unterschiedlichen Länge definiert wurde. Dadurch verändert sich die Steigung und die Lage der Paris-Geraden. Diese subjektive Messmethode hat somit einen Einfluss auf die Risskinetikparameter  $A$  und  $m$ , die in verschiedenen großen Bereichen ausgewertet wurden. Dennoch kann durch Auftragung der Materialparameter über dem  $R$ -Verhältnis und über dem Rezyklat-Anteil analysiert werden, ob die Extrapolation auf den statischen Fall ( $R = 1$ ) möglich ist. Der Zusammenhang der Gleichung (2.4), mit der die Versagenszeit nach der Rissinitiierung berechnet wird, macht deutlich, dass der Werkstoffeinfluss auf  $t_{SCG}$  auf die Parameter  $A$  und  $m$  begrenzt ist. Daher kann durch die Extrapolation der Parameter  $A$  und  $m$  von den zyklischen Versuchen auf den statischen Lastfall untersucht werden, ob die beschleunigte Methode zur Untersuchung der Lebenszeit mit zyklischen Versuchen und anschließender Extrapolation zulässig ist. In Abbildung 4.24 und Abbildung 4.25 sind die Parameter der unterschiedlichen Werkstoffe dargestellt. Die extrapolierten Datenpunkte sind weiß ausgefüllt, um den Unterschied zwischen tatsächlichem und extrapoliertem Wert zu veranschaulichen.

In Abbildung 4.24 ist zu erkennen, dass der materialspezifische Parameter  $A$  des statischen Lastfalls bei keinem der fünf Werkstoffe mithilfe der zyklischen Versuche genau vorausgesagt werden kann. Während bei HDv2 und bei HDv2\_PEr1\_90/10 mit der Extrapolation der tatsächlicher Wert annähernd bestimmt wird, so zeigen die Werkstoffe mit höheren Anteilen an PEr1 größere Unterschiede der extrapolierten und gemessenen Werte. Bei HDv2 beträgt der tatsächliche Wert  $0,00615 \text{ sMPAm}^{0,5}$  und der extrapolierte Wert  $0,00296 \text{ sMPAm}^{0,5}$ . Der absolute Wert von  $A$  liegt bei HDv2 zwar in derselben Größenordnung wie der extrapolierte Wert, aber dieser Werkstoff zeigt mit einer prozentuellen Abweichung von etwa 52% der zwei Werte die höchste prozentuelle Ungenauigkeit aller Werkstoffe. Der Parameter  $A$  des Werkstoffs HDv2\_PEr1\_90/10 beträgt  $0,00727 \text{ sMPAm}^{0,5}$  (tatsächlicher Wert), bzw.  $0,00607 \text{ sMPAm}^{0,5}$  (extrapoliertes Wert). Der Unterschied von  $A$  dieses Werkstoffs sind somit am geringsten aller geprüften Materialien. Bei HDv2\_PEr1\_75/25 wird ein Wert von  $0,00853 \text{ sMPAm}^{0,5}$  getestet und der extrapolierte Parameter ergibt einen Wert von  $0,01264 \text{ sMPAm}^{0,5}$ . Die größten absoluten Unterschiede sind bei HDv2\_PEr1\_50/50 und bei PEr1 zu erkennen. So wird  $A$  von HDv2\_PEr1\_50/50 beim statischen Lastfall mit  $0,01416 \text{ sMPAm}^{0,5}$  geprüft, aber auf einen

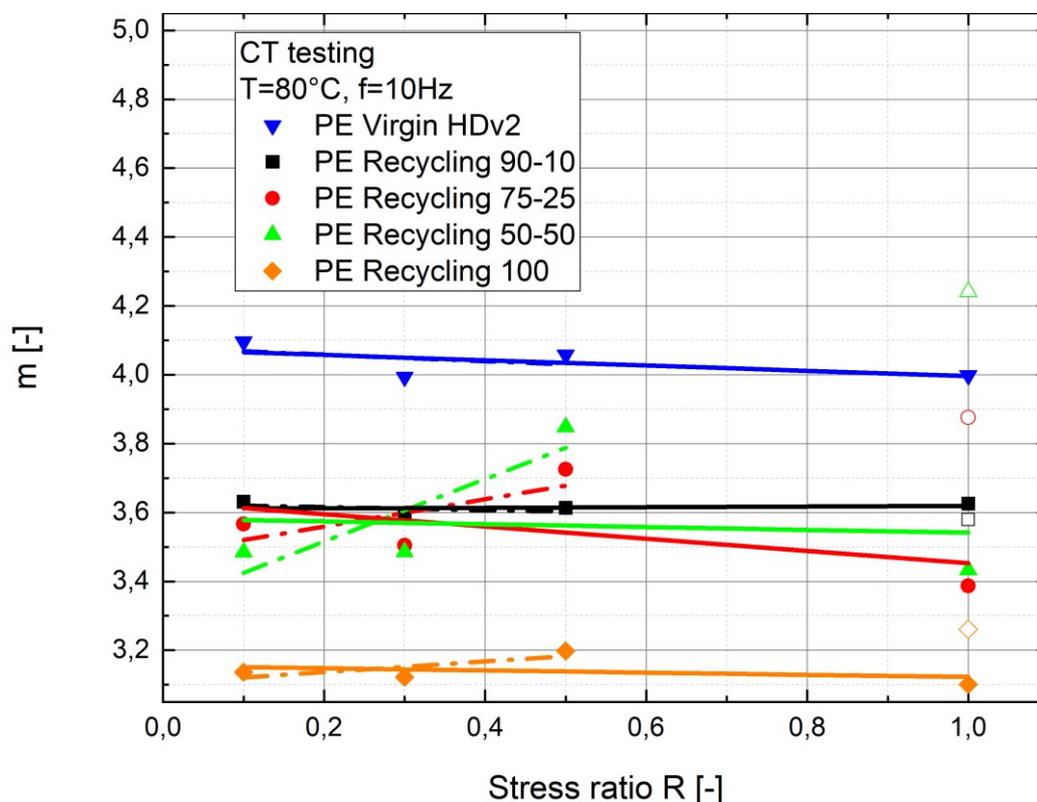
Wert von  $0,02450 \text{ sMPam}^{0,5}$  extrapoliert. Die Ergebnisse von PEr1 betragen  $A = 0,01929 \text{ sMPam}^{0,5}$  (statischer Versuch) bzw.  $A = 0,03003 \text{ sMPam}^{0,5}$  (extrapoliert). Es ist die eindeutige Tendenz zu erkennen, dass die Regressionsgerade mit unterschiedlichem Rezyklat-Anteil eine verschiedene Steigung aufweist. Bei HDv2 und bei HDv2\_PEr1\_90/10 nimmt der Parameter A mit steigendem R-Verhältnis stetig ab. Während bei HDv\_PEr1\_75/25 der Parameter A annähernd konstant bleibt, so steigt der Wert von A bei HDv2\_PEr1\_50/50 und bei PEr1 mit größer werdendem R-Verhältnis an. Die Gleichung (2.4) verdeutlicht, dass bei einem größeren Wert des Parameters A die Zeit bis zum Versagen abnimmt. Somit entspricht die Auswertung des materialspezifischen Parameters A der Erwartung, dass ein steigender Anteil an PEr1 eine negative Auswirkung auf  $t_{\text{SCG}}$  hat und die Zeit bis zum Versagen verringert wird.



**Abbildung 4.24:** Parameter A der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis und extrapoliert auf  $R = 1$  (weiß gefüllt).

Beim Vergleich des extrapolierten und experimentell ermittelten Materialparameters m können ebenfalls Unterschiede, abhängig von der Materialzusammensetzung, erfasst werden (siehe Abbildung 4.25). Bei HDv2 beträgt der extrapolierte und experimentelle Wert etwa 4,00 und kann damit mithilfe der zyklischen Versuche fast exakt extrapoliert

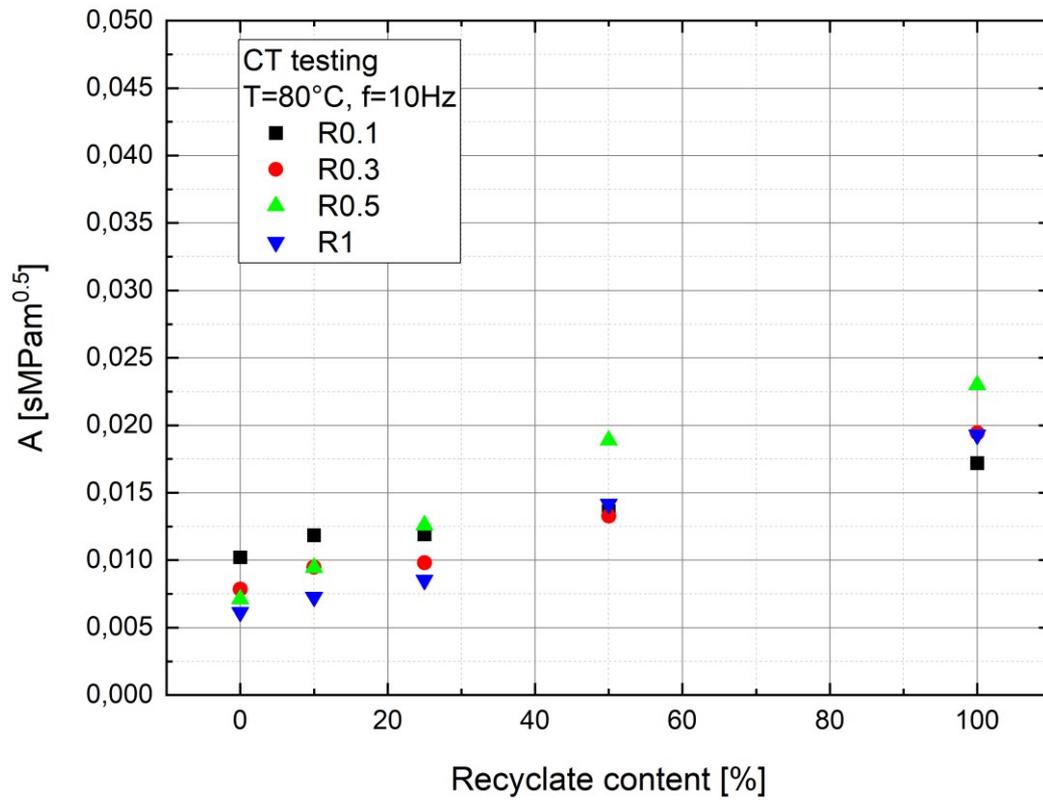
werden. Der Parameter  $m$  des Werkstoffs HDv2\_PEr1\_90/10 zeigt mit 3,63 (experimentell) bzw. 3,58 (extrapoliert) eine gute Übereinstimmung. Bei HDv2\_PEr1\_75/25 (experimentell:  $m = 3,39$ ; extrapoliert:  $m = 3,89$ ) und bei HDv2\_PEr1\_50/50 (experimentell:  $m = 3,43$ ; extrapoliert:  $m = 4,24$ ) sind die größten Unterschiede der Werte beim statischen Lastfall zu erkennen. Der Parameter  $m$  von PEr1 ergibt die Werte 3,10 (experimentell ermittelt) und 3,26 (extrapoliert). Zu erkennen ist, dass die experimentell ermittelten Werte von PEr1 deutlich unter den Werkstoffmischungen und die Werte von HDv2 über den Werkstoffmischungen liegen. Dieser Parameter gibt die Steigung der linearen Paris-Geraden während des stabilen Risswachstums wieder. Eine geringere Steigung deutet auf konstanteres Risswachstum in diesem Bereich hin. So beschleunigt der Riss mit zunehmenden  $K_{I,max}$  (aufgrund steigender Risslänge) nicht so stark wie bei höheren Werten von  $m$ . Bei Betrachtung der Gleichung (2.4) wird die Annahme der positiven Auswirkung eines geringeren  $m$ -Wertes bestätigt.  $t_{SCG}$  wird bei geringeren Werten von  $m$  erhöht. Ein eindeutiger Trend der Steigungen, abhängig vom R-Verhältnis, kann bei dem Materialparameter  $m$  nicht nachgewiesen werden.



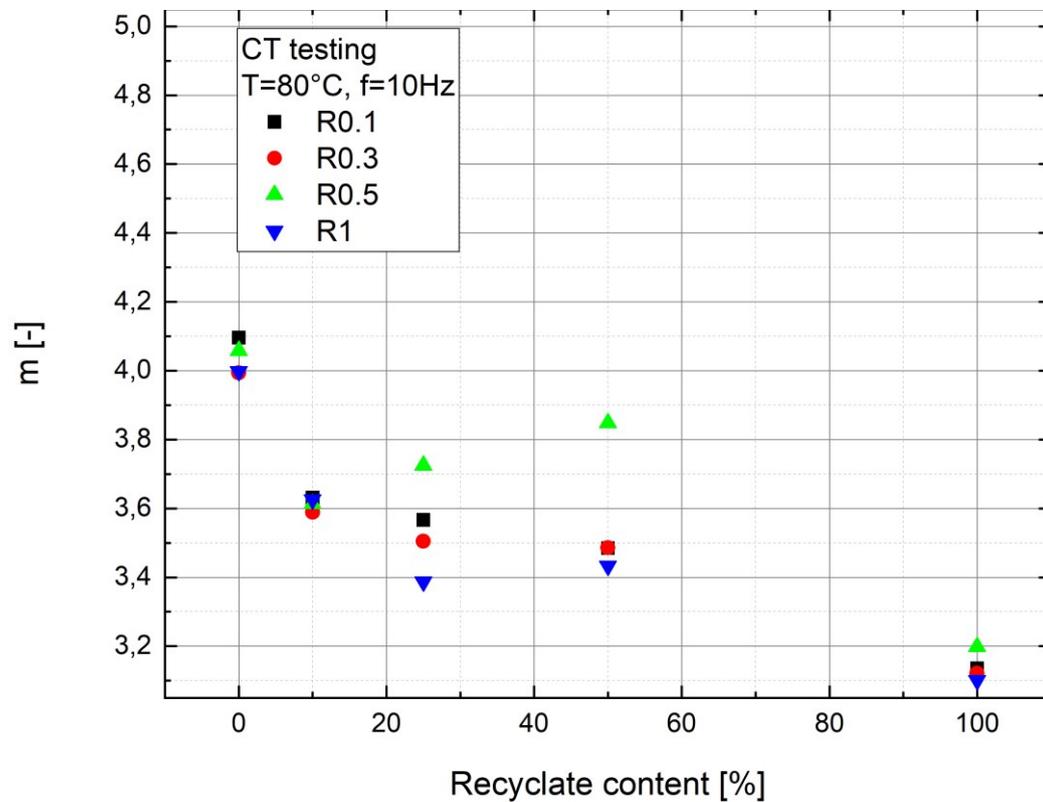
**Abbildung 4.25:** Parameter  $m$  der Werkstoffe abhängig vom R-Verhältnis und extrapoliert auf  $R = 1$  (weiß gefüllt).

Zwar ist der Parameter  $m$  bei den Werkstoffen mit höheren Rezyklat-Anteilen geringer, aber eine niedrige Kombination aus  $A$  und  $m$  ist entscheidend, um einen positiven Einfluss auf  $t_{SCG}$  zu haben. So ist der Parameter  $A$  bei den Materialien mit einem hohen Gehalt an PEr1 höher als bei den anderen Werkstoffen, was sich negativ auf die Versagenszeit auswirkt. Durch das Zusammenspiel dieser beiden Parameter ergibt sich für die Werkstoffe mit größerem Anteil an Neuware eine längere Versagenszeit. Es wird festgestellt, dass bei keinem bzw. geringen Anteilen an PEr1 die Extrapolation der Materialparameter auf den statischen Lastfall annähernd den experimentell ermittelten Werten entspricht. Für diese Werkstoffe (HDv2 und HDv2\_PEr1\_90/10) ist die hier durchgeführte Extrapolation somit zulässig. Bei den Materialien HDv2\_PEr1\_75/25, HDv2\_PEr1\_50/50 und PEr1 scheinen die zyklischen Versuche mit anschließender Extrapolation auf den statischen Belastungsfall zu signifikanten Diskrepanzen bei den Materialparameter zu führen. Daher ist die, im Rahmen dieser Masterarbeit durchgeführte, beschleunigte Prüfmethode zur Vorhersage der Versagenszeit bei den Werkstoffen mit größeren Rezyklat-Anteilen ungenau. Weitere Forschung mit mehr Proben, um eine größere Datenbasis bei diesen Werkstoffen zu erhalten, ist notwendig, um aussagekräftigere Ergebnisse zu erhalten. Der Grund für die starken Abweichungen von den experimentell ermittelten zu den extrapolierten Werten der Materialparameter  $A$  und  $m$  könnte vor allem die Zusammensetzungen der Rezyklate sein. Auch wenn das Material PEr1 ein Rezyklat hoher Qualität ist, kann davon ausgegangen werden, dass bei den einzelnen Prüfkörpern Unterschiede in der Reinheit vorhanden sind. Fremdstoffe oder Rückstände von Füllstoffen (vgl. Abschnitt 2.4.1) könnten zu großen Differenzen bei Recycling-Materialien oder Werkstoffen mit hohen Anteilen an Recycling-Material führen. Dadurch kann das Material geschwächt werden und die Zeit bis zum Versagen nimmt deutlich ab. Bei den verwendeten Prüfkörpern ist nicht auszuschließen, dass bei einigen Proben mehr Fremdstoffe enthalten als andere. Diese Fehlstellen in den Prüfkörpern könnten eine Ursache für Abweichungen von Messergebnissen sein und die für die Unzulässigkeit der Extrapolation mitverantwortlich sein.

Bei der Auftragung der Materialparameter über dem Rezyklat-Anteil abhängig vom R-Verhältnis (siehe Abbildung 4.26 und Abbildung 4.27) ist ein eindeutiger Trend zu erkennen. Diese Abbildungen bestätigen die zuvor angeführten Tendenzen der Entwicklung der Materialparameter mit zunehmendem Anteil an PEr1.



**Abbildung 4.26:** Materialparameter A abhängig vom Rezyklat-Anteil bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.



**Abbildung 4.27:** Materialparameter m abhängig vom Rezyklat-Anteil bei unterschiedlichen R-Verhältnissen.

Während der Parameter A mit steigendem Rezyklat-Gehalt stets zunimmt, so nimmt der Parameter m mit steigendem Rezyklat-Anteil fast monoton ab. Diese unterschiedlichen Trends bedingen die genau entgegengesetzten Einflüsse auf die charakteristische  $t_{SCG}$ . Der größer werdende Parameter A gibt wieder, dass die Rissskinetik im Diagramm zu geringeren  $K_{I,max}$ -Werten verschoben wird und der Riss somit bei gleichen  $K_{I,max}$ -Werten mit einer größeren Geschwindigkeit wächst.  $t_{SCG}$  wird dadurch verringert. Die Steigung der Rissskinetik, die durch den Parameter m charakterisiert ist, ist beim reinen PEr1 am geringsten und hat dadurch den positiven Einfluss auf  $t_{SCG}$ , dass die Zeit bis zum Versagen ansteigt. Der unterschiedlich große Auswertebereich der Paris-Geraden bei den verschiedenen Materialien hat einen signifikanten Einfluss auf die Parameter A und m, die durch subjektive Auswertung variieren können.

### 4.3 Untersuchung der Bruchflächen

Nach der Auswertung der Rissskinetikkurven werden von jedem Werkstoff und jedem R-Verhältnis jeweils ein Prüfkörper für die Untersuchung der Bruchflächen am REM ausgewählt. In Abbildung 4.28 sind die Risswachstumskurven der Prüfkörper dargestellt, bei denen die Bruchflächen und die Crazes mit dem REM analysiert werden. Mit dieser Gegenüberstellung werden die Parameter  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  bestimmt, bei denen die Crazes betrachtet werden sollen. Bei diesen Werten liegen die Rissskinetiken aller Prüfkörper auf der Paris-Geraden, daher kann von stabilem Risswachstum in diesem Bereich ausgegangen werden. Für die Bestimmung der Risslänge werden die Parameter  $K_{I,max}$  und  $da/dt$  der jeweiligen Prüfkörper auf die dabei vorhandene Risslänge zurückgerechnet. Somit werden die Risslängen der Proben bestimmt, bei denen diese Werte vorhanden sind.

Bei der REM-Untersuchung werden die in Tabelle 4.1 bis Tabelle 4.5 angeführten Prüfkörper bei den dazugehörigen Risslängen verwendet. Die Risslänge  $a_1$  ist die Risslänge bei  $K_{I,max,ini} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und die Risslänge  $a_2$  ist die Risslänge bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  der jeweiligen Prüfkörper. Mit dieser Methode wird sichergestellt, dass die betrachteten Crazes unter den gleichen Beanspruchungen gebildet werden. Daher kann davon ausgegangen werden, dass die betrachteten Unterschiede der Dimension und Form der Crazes nur vom Werkstoff abhängig sind.

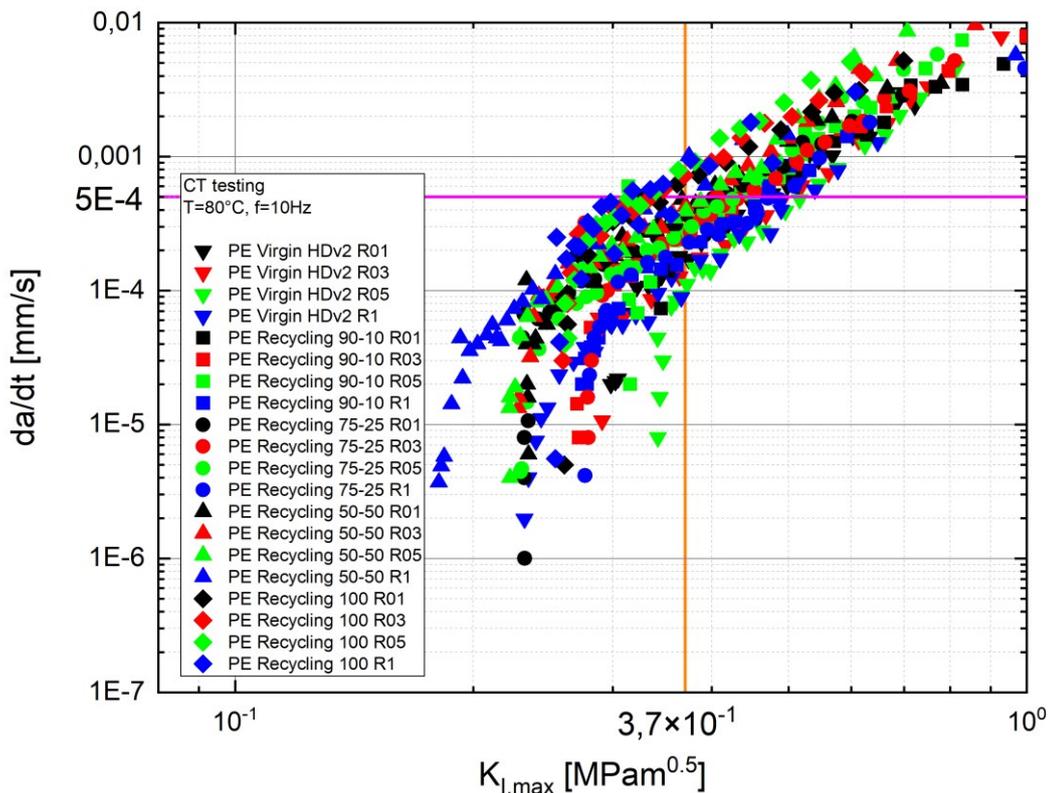


Abbildung 4.28: Risswachstumskurven der am REM zu untersuchenden Proben.

Tabelle 4.1: Risslängen für die Untersuchung am REM am Werkstoff HDv2.

Material	HDv2_BM			
R [-]	1	0,5	0,3	0,1
$K_{I,max,ini}$ [MPam <sup>0,5</sup> ]	0,22964	0,33997	0,28231	0,29471
$a_1$ [mm]	19,28	13,56	16,92	15,63
$a_2$ [mm]	23,41	18,66	21,04	19,31

Tabelle 4.2: Risslängen für die Untersuchung am REM am Werkstoff HDv2\_PEr1\_90/10.

Material	HDv2_PEr1_90/10			
R [-]	1	0,5	0,3	0,1
$K_{I,max,ini}$ [MPam <sup>0,5</sup> ]	0,26838	0,31271	0,26844	0,34092
$a_1$ [mm]	16,82	13,87	16,18	12,50
$a_2$ [mm]	19,86	16,27	18,86	15,08

**Tabelle 4.3:** Risslängen für die Untersuchung am REM am Werkstoff HDv2\_PEr1\_75/25.

Material	HDv2_PEr1_75/25			
R [-]	1	0,5	0,3	0,1
$K_{I,max,ini}$ [MPam <sup>0,5</sup> ]	0,27615	0,22867	0,27516	0,23066
$a_1$ [mm]	16,45	18,63	16,05	18,54
$a_2$ [mm]	19,86	20,25	18,44	20,12

**Tabelle 4.4:** Risslängen für die Untersuchung am REM am Werkstoff HDv2\_PEr1\_50/50.

Material	HDv2_PEr1_50/50			
R [-]	1	0,5	0,3	0,1
$K_{I,max,ini}$ [MPam <sup>0,5</sup> ]	0,17740	0,22193	0,22658	0,23282
$a_1$ [mm]	22,05	18,82	18,86	18,35
$a_2$ [mm]	22,73	19,14	19,26	19,12

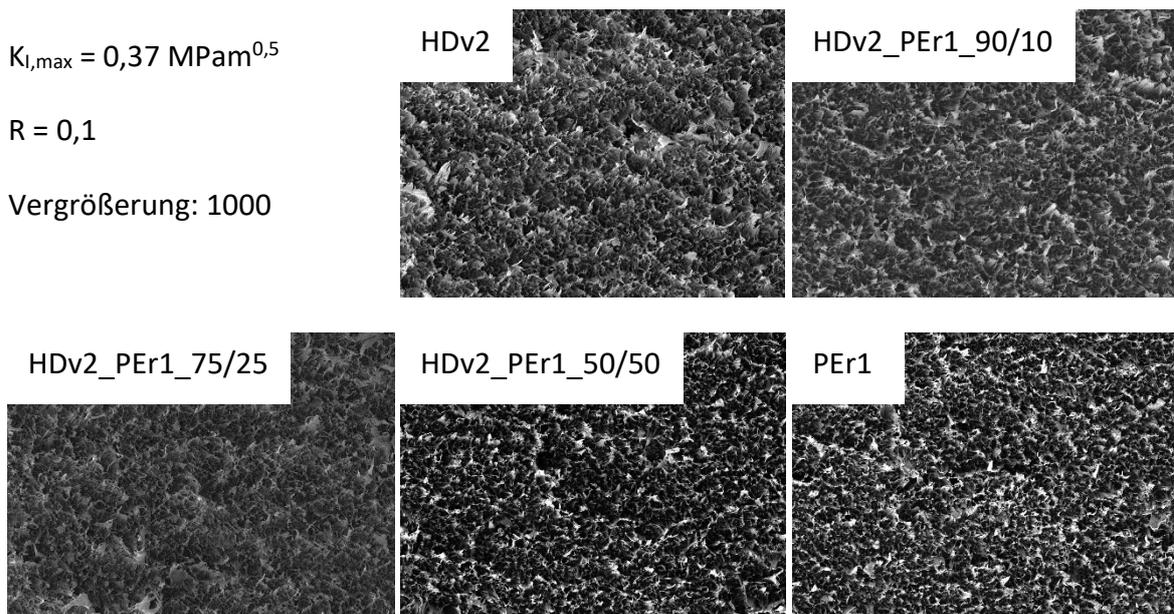
**Tabelle 4.5:** Risslängen für die Untersuchung am REM am Werkstoff PEr1.

Material	PEr1			
R [-]	1	0,5	0,3	0,1
$K_{I,max,ini}$ [MPam <sup>0,5</sup> ]	0,25373	0,26066	0,25821	0,25870
$a_1$ [mm]	18,04	17,52	17,71	17,65
$a_2$ [mm]	16,67	15,64	15,99	16,25

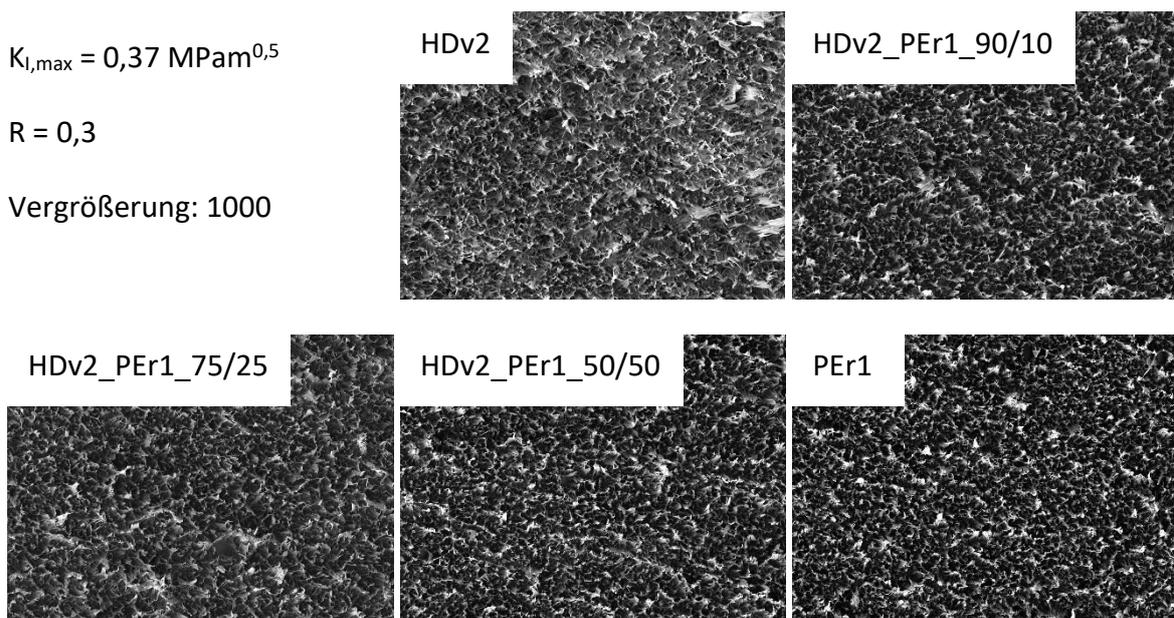
#### 4.3.1 crazes unter gleichem Spannungsintensitätsfaktor

In Abbildung 4.29 bis Abbildung 4.32 sind die crazes abgebildet, die bei Rissfortschritt unter einer Rissspitzenbelastung von  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und unterschiedlichen R-Verhältnissen entstehen. Es ist zu erkennen, dass die crazes mit steigendem Anteil an HDv2 stärker ausgebildet werden als bei dem reinen recyclingmaterial PEr1. Da die tie-moleküle in den amorphen zwischenbereichen bei höherem HDv2-gehalt zwischen den lamellen belastungsfähiger sind, werden die tie-moleküle weiter gestreckt und die dimension, also die gröÙe, der crazes steigt an. aufgrund der höheren belastungsfähigkeit treten

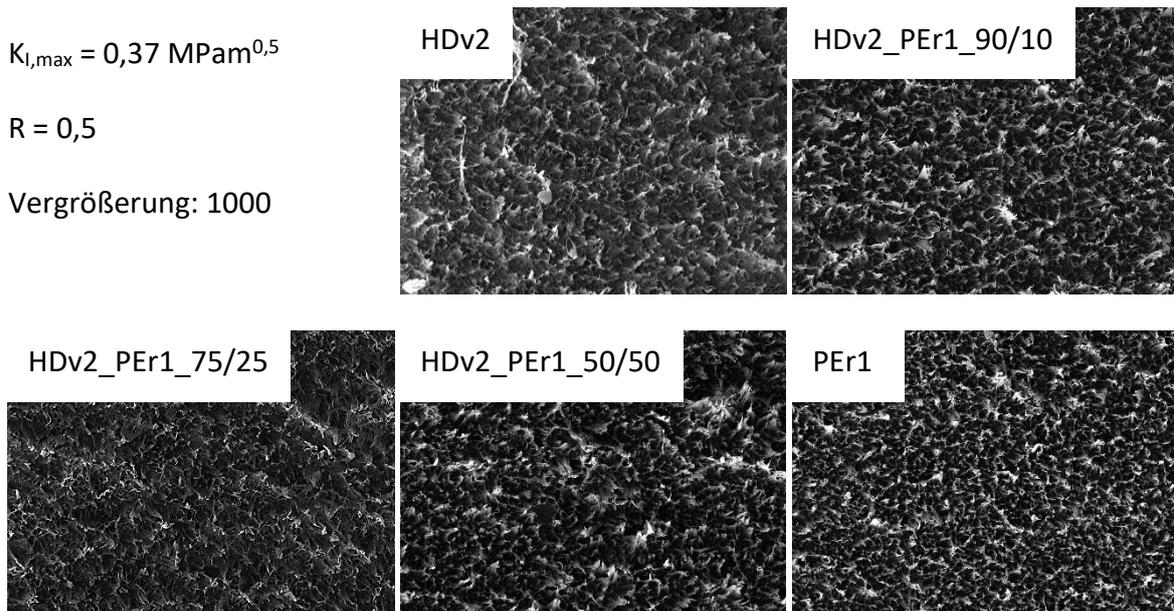
Entschlafungen zwischen den kristallinen Bereichen später ein und der Werkstoff reagiert mit einer höheren Widerstandsfähigkeit gegenüber der Rissausbreitung. Mit zunehmendem Anteil an PEr1 ist außerdem zu beobachten, dass die Crazes weniger orientiert und teilweise sogar abgeknickt sind. Dieses Phänomen ist auch durch die früheren Entschlafungen begründet, wenn sich die Tie-Moleküle während dem Dehnvorgang bereits vor der endgültigen Streckung entwirren. Die Dichte der Crazes wird mit steigendem HDv2-Anteil höher, was ebenso in den folgenden Abbildungen (Abbildung 4.29 bis Abbildung 4.32) betrachtet werden kann. Aufgrund der höheren Dichte an Tie-Molekülen zwischen den Lamellenpaketen sind Werkstoffe mit größerem Gehalt an Neumaterial belastungsfähiger als Rezyklate. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Dimension, also vor allem die Höhe und die Länge, der Crazes eines Werkstoffs mit steigendem R-Verhältnis zunehmen. Aufgrund der geringeren Dehngeschwindigkeit können die Ketten stärker relaxieren und diese werden dadurch stärker orientiert.



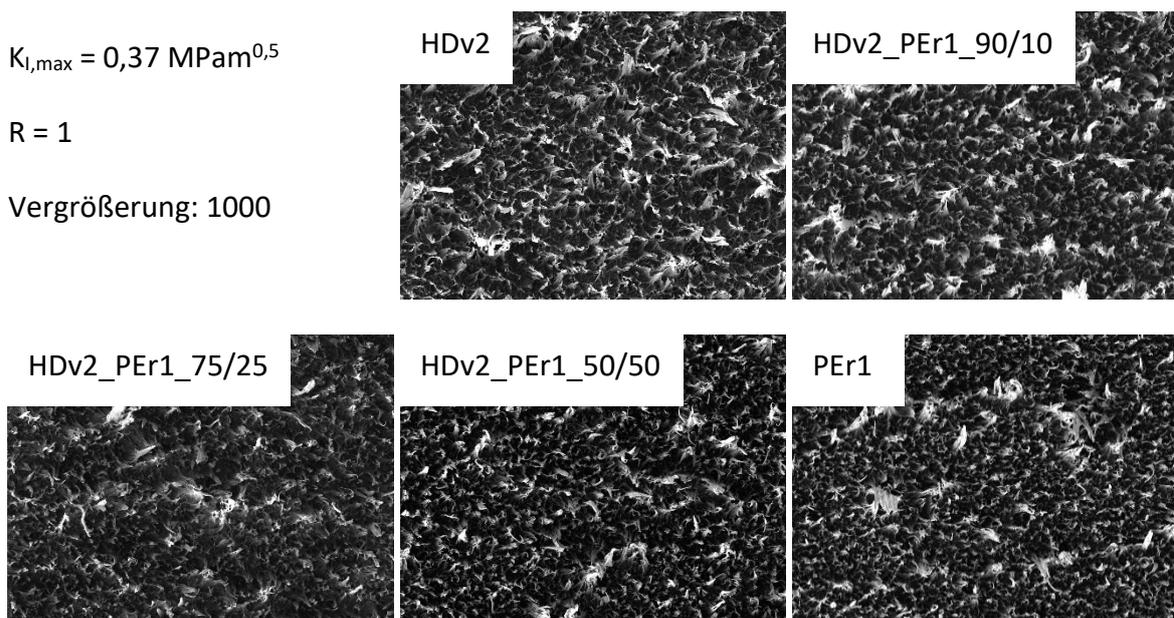
**Abbildung 4.29:** Crazes bei  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und  $R = 0,1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



**Abbildung 4.30:** Crazes bei  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und  $R = 0,3$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



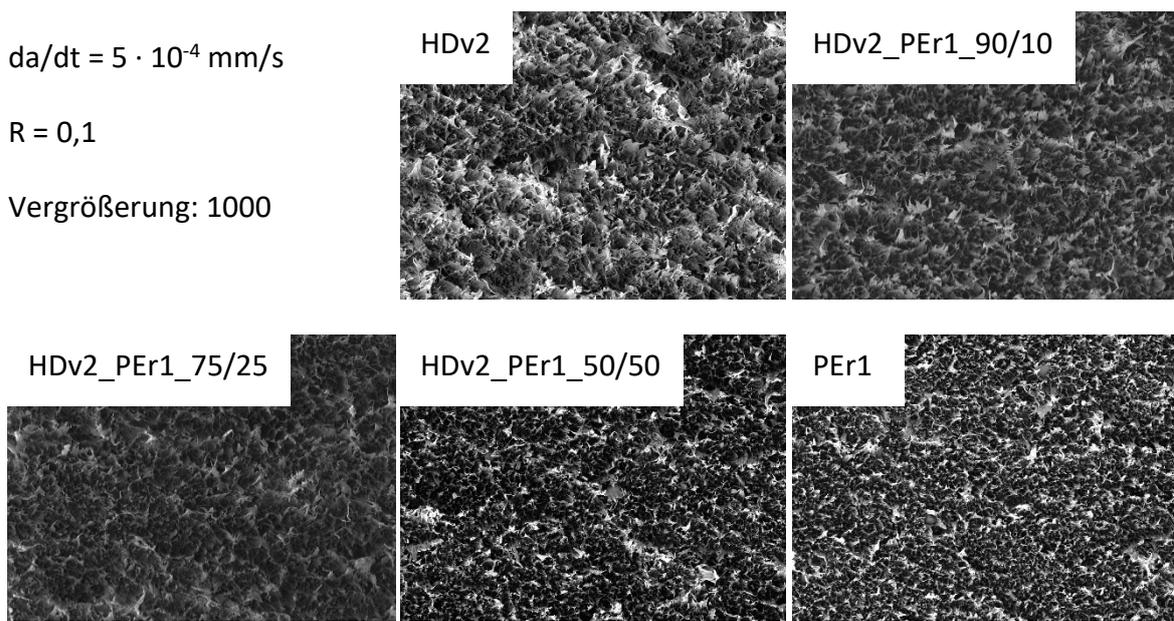
**Abbildung 4.31:** Crazes bei  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und  $R = 0,5$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



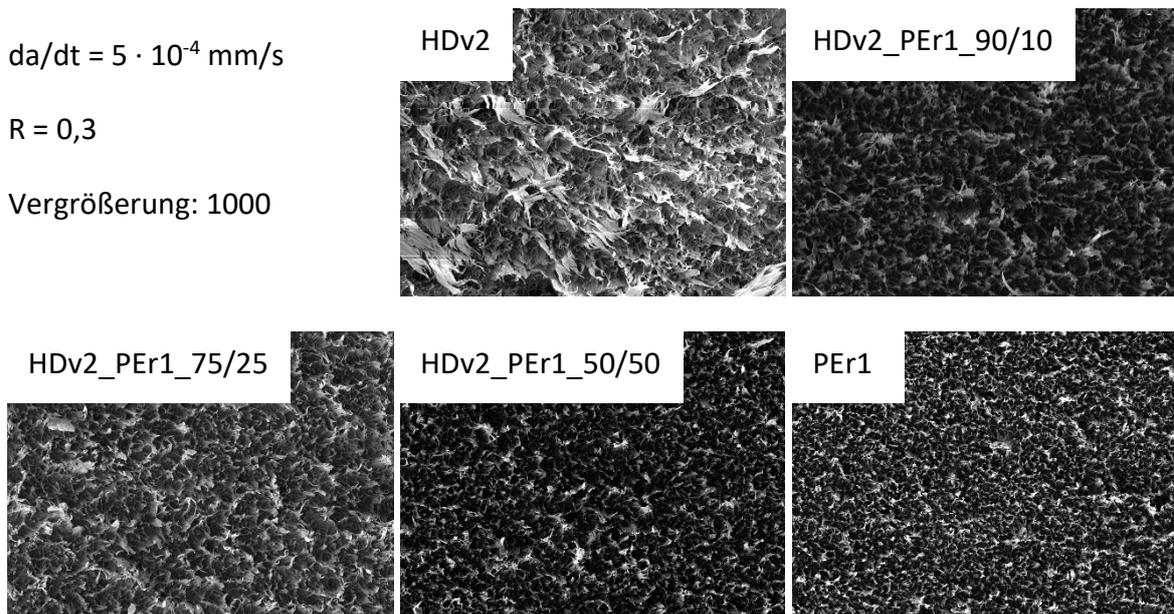
**Abbildung 4.32:** Crazes bei  $K_{I,max} = 0,37 \text{ MPam}^{0,5}$  und  $R = 1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.

#### 4.3.2 Crazes unter gleicher Rissausbreitungsgeschwindigkeit

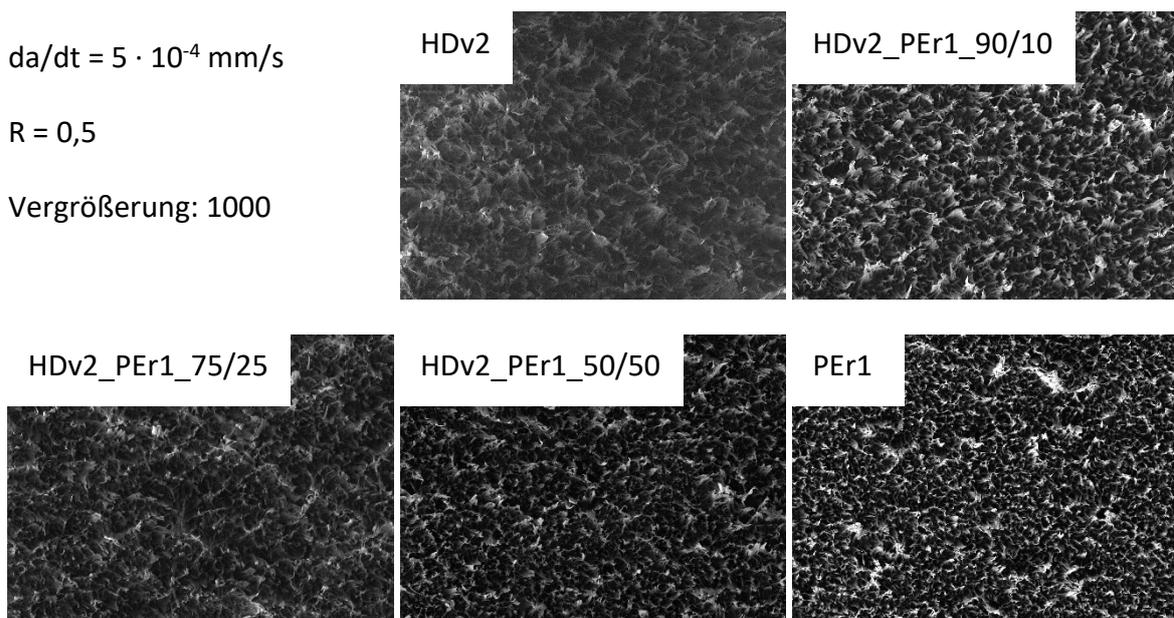
In diesem Abschnitt werden die Crazes unter der Rissausbreitungsgeschwindigkeit  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  betrachtet (siehe Abbildung 4.33 bis Abbildung 4.36). Dabei werden die Unterschiede der Craze-Dimension und der Form deutlicher als unter der gleichen Rissspitzenspannungsintensität. Die Dimensionen der Crazes sind bei HDv2 sichtbar größer als bei PEr1. Die abnehmende Größe der Crazes bei den Werkstoffmischungen mit steigendem Rezyklat-Anteil bestätigt die Annahme, dass eine geringere Belastung für die Rissausbreitung ausreicht. Bei dem Vergleich eines Werkstoffs unter den verschiedenen R-Verhältnissen unter derselben Rissausbreitungsgeschwindigkeit werden die Einflüsse der Belastungssituation noch signifikanter. Dazu trägt bei, dass der Riss bei PEr1 bei der gleichen Rissausbreitungsgeschwindigkeit weiter fortgeschritten ist als bei HDv2. Die Länge und die Breite der Crazes nimmt mit zunehmendem R-Verhältnis stark zu. Die langsamere Dehnung führt zu Kriech- und Relaxationsvorgängen zwischen den kristallinen Lamellenpaketen der Ketten bei der Verformung. Dadurch werden die Ketten mehr gestreckt und die Größe der Crazes nimmt in der Bruchfläche zu.



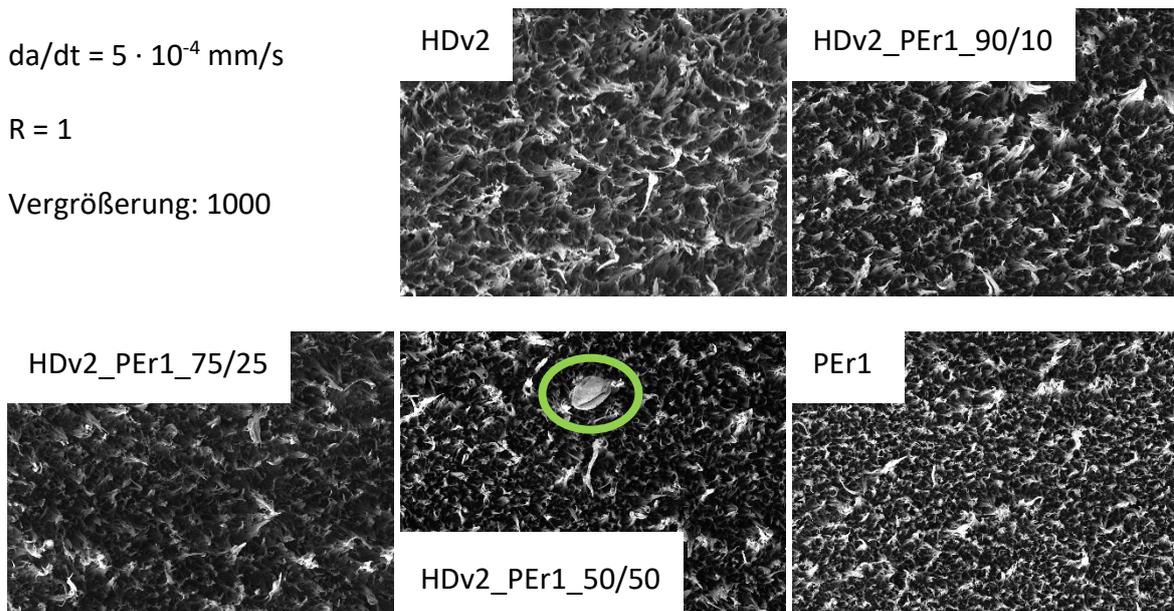
**Abbildung 4.33:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  und  $R = 0,1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



**Abbildung 4.34:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  und  $R = 0,3$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



**Abbildung 4.35:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  und  $R = 0,5$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.



**Abbildung 4.36:** Crazes bei  $da/dt = 5 \cdot 10^{-4} \text{ mm/s}$  und  $R = 1$ . Oben Mitte HDv2, oben rechts HDv2\_PEr1\_90/10, unten links HDv2\_PEr1\_75/25, unten Mitte HDv2\_PEr1\_50/50, unten rechts PEr1.

Bei näherer Betrachtung des Materials HDv2\_PEr1\_50/50 in Abbildung 4.36 könnte ein Fremdstoff entdeckt werden (grün eingekreist). Vergleicht man diese Abbildung mit geeigneter Literatur (Marulanda et al., 2014), so könnte es sich dabei um Rückstände wie Kalzium oder Titanium handeln. Diese Fremdstoffe können eine starke Abnahme der

mechanischen Eigenschaften verursachen, wodurch die Beständigkeit der Proben gegen Ermüdung oder Kriechen abnimmt und die Prüfkörper früher versagen (vgl. Abschnitt 2.4.1). Da die Kontamination bei Rezyklaten trotz intensiver Vorbehandlung nie ausgeschlossen werden kann, müssen möglicherweise starke Schwankungen der Rissbeständigkeit bei PEr1 berücksichtigt werden. Aufgrund von solchen Fremdstoffen kann es zu großen Unterschieden in dem Materialverhalten kommen, da bei geringerer Reinheit Mikrorisse schneller gebildet werden und das Material bzw. die Probe stärker geschwächt wird. Die Einflüsse solcher Fremdstoffe können dazu führen, dass die beschleunigte Methode zur Vorhersage der Lebensdauer bei Rezyklat-Materialien nicht zulässig ist, da die mechanischen Eigenschaften verschiedener Rezyklat-Batches zu stark schwanken könnten. Dadurch wird die tatsächliche Voraussage der Lebensdauer der Rezyklate erschwert, da nicht ausgeschlossen werden kann, dass durchgehend Rezyklate mit konstantem Eigenschaftsniveau aufbereitet werden können.

## **5 ZUSAMMENFASSUNG, SCHLUSSFOLGERUNGEN UND AUSBLICK**

Aufgrund ihrer vielseitigen Vorteile nimmt die weltweite Kunststoffproduktion nun schon einige Jahrzehnte stark zu. Die Produktion von Bauteilen aus Kunststoffen bringt allerdings auch Nachteile mit sich, wie etwa die stetige Zunahme an Abfall. Um der heutigen Abfallproblematik entgegenzusteuern, entstehen immer neuere Initiativen, das Recyceln von Kunststoffmüll anzutreiben und Rezyklate in Bauteilen zu verwenden. In Bereichen wie Verpackungen (Flaschen) oder im Bauwesen (drucklose Rohre) wird recycelter Kunststoff bereits regelmäßig eingesetzt. Bei technisch anspruchsvollen Bauteilen werden Rezyklate noch nicht in derselben Häufigkeit verwendet, da das mechanische Eigenschaftsniveau dieser Werkstoffe geringer ist als das von Neumaterialien. Die Verwendung von unter Druck stehenden Rohren mit Anteilen an Rezyklaten ist momentan zwar noch strikt untersagt, aber es kann davon ausgegangen werden, dass die Materialien dieser Bauteile in Zukunft durch Spezifikationen oder Modifikationen wie Füllstoffe bis zu einem gewissen Anteil aus Rezyklat-Werkstoffen bestehen. Rohre versagen typischerweise unter der Ausbildung und dem anschließend langsamen Wachstum eines Risses. Der Widerstand gegen die Initiierung und das Wachstum eines Risses bestimmen das Langzeitverhalten bei der Verwendung der Werkstoffe in Rohren. Da die Untersuchung realer Rohrwerkstoffe aufgrund ihrer hohen Duktilität mehrere Jahre dauern würde, untersucht diese Masterarbeit Blasform-Typen. Die untersuchten Werkstoffe sind spröder, was einerseits eine Beschleunigung des Prüfverfahrens und andererseits die Verwendung von Kompaktzugprüfkörpern ermöglicht. Um das Langzeitverhalten der Werkstoffe schneller einschätzen zu können, werden neben statischen Kriechversuchen auch zyklische Ermüdungs-Experimente durchgeführt und auf den statischen Lastfall extrapoliert. Dieses Verfahren ermöglicht außerdem die Überprüfung, ob dieses beschleunigte Prüfverfahren auch mit recycelten Werkstoffen durchgeführt werden kann. Abschließend werden im Rahmen dieser Arbeit die Bruchflächen der verwendeten Werkstoffe bei gleicher Rissausbreitungsgeschwindigkeit und gleicher Rissspitzenspannungsintensität miteinander verglichen.

Dementsprechend analysiert und vergleicht diese Masterarbeit das Langzeitverhalten und die Rissbeständigkeit eines HDPE-Neumaterials (HDv2) und PE-Rezyklats (PEr1). Außerdem wird in dieser Arbeit der Einfluss des Recycling-Anteils auf das Versagensverhalten untersucht. Dafür werden dem Werkstoff HDv2 unterschiedliche Gewichts-Anteile des Materials PEr1 zugemischt (10% bei HDv2\_PEr1\_90/10, 25% bei HDv2\_PEr1\_75/25 und 50% bei HDv2\_PEr1\_50/50). Dadurch entstehen Materialmischungen aus Neuware und Recyclingmaterial, die denselben Experimenten unterzogen werden wie das HDv2 und das PEr1. Die Prüfparameter wie Temperatur und Frequenz (bei den zyklischen Versuchen) wird bei allen Versuchen konstant gehalten, um einen möglichst genauen Vergleich zu gewährleisten.

Bei der Analyse der bruchmechanischen Versagenskurven sind Diskrepanzen im Materialverhalten der Werkstoffe zu erkennen. Während das Neumaterial HDv2 je nach Spannungsverhältnis nach unterschiedlicher Zeit versagt, so brechen die Prüfkörper des Recyclingmaterials PEr1 unabhängig vom Spannungsverhältnis bereits viel früher. Werden die Materialmischungen mit HDv2 und PEr1 verglichen, so wird eine klare Tendenz erkennbar. Mit zunehmendem Anteil an PEr1 werden die Proben spröder und brechen früher. Außerdem werden dadurch die Zeiten bis zum Versagen abhängig vom Spannungsverhältnis nicht mehr voneinander zu differenzieren. Das Neumaterial weist somit eine größere Rissbeständigkeit als das Recyclingmaterial auf und mit zunehmenden Anteilen an PEr1 wird die Zeit bis zum Bruch verkürzt. Derselbe Trend zeigt sich bei der Untersuchung der Rissinitiierungszeiten.

Wird der Anteil der Rissinitiierungszeit an der gesamten Zeit bis zum Versagen analysiert, dann ist zu erkennen, dass das Verhältnis von Rissinitiierungszeit zur gesamten Versagenszeit mit steigendem Anteil an PEr1 geringer wird und beim reinen PEr1 am geringsten ist. Das bedeutet, dass bei diesem Werkstoff zwar die relative Rissinitiierungszeit geringer ist als bei HDv2, aber die absolute Initiierungszeit ist deutlich unter der von HDv2. Somit ist bei PEr1 die entscheidende Größe für das Versagen die Zeit bis zur Rissinitiierung. In realen Bauteilen ist nicht zu vernachlässigen, dass durch die einwirkende Last Risse gebildet werden. Da dies bei den Werkstoffen mit steigendem Anteil an PEr1 bzw. reinem Per1 früher geschieht als bei HDv2, ist die Abnahme der Langzeitbeständigkeit mit zunehmendem PEr1-Anteil offensichtlich.

Die Auswertung der Risswachstumskinetiken bestätigen die Annahme der schlechteren Langzeitbeständigkeit mit zunehmenden Rezyklat-Anteilen. So steigt die Geschwindigkeit des Risswachstums bei vergleichbarer Belastung der Risspitze mit zunehmendem PEr1-Anteil stets an. Außerdem sind auch die Risswachstumsgeschwindigkeiten, analog zu den Initiierungs- und Versagenszeiten, zunehmend unabhängig von den Spannungsverhältnissen mit steigendem PEr1-Anteil. Mithilfe der Risswachstumskinetiken werden anschließend die materialspezifischen Parameter A und m aller Werkstoffe ausgewertet. Die Auswertung der Parameter zeigt, dass die Steigung der linearen Paris-Geraden (wird durch den Parameter m charakterisiert) im Bereich des stabilen Risswachstums mit zunehmenden Anteilen an PEr1 abnimmt. Das hat zur Folge, dass die Zeit bis zum Versagen größer wird. Der Parameter A zeigt den gegenteiligen Effekt. Mit zunehmendem Anteil an PEr1 werden die Kurven der Risskinetik zu geringerer Risspitzenbelastung verschoben, die Risswachstumsgeschwindigkeit wird bei derselben Risspitzenbelastung größer und der Parameter A wird größer. Das wirkt sich negativ auf die Versagenszeit aus. Mit den zyklischen Versuchen werden die Messwerte auf den statischen Fall extrapoliert und mit den statischen Versuchsergebnissen verglichen. Bei diesem Vergleich zeigen nur die Werkstoffe HDv2 und HDv2\_PEr1\_90/10 zufriedenstellende Ergebnisse. Bei den anderen Materialmischungen und bei PEr1 sind starke Unterschiede zwischen den tatsächlichen gemessenen und den extrapolierten Werten vorhanden. Daher bedarf es bei der beschleunigten Prüfmethode für PEr1 und für die Werkstoffe mit 25% und 50% PEr1 weiterer Forschung in Form von einer größeren Anzahl an Proben mit Rezyklat-Anteilen und bei mehr Spannungsverhältnissen. Dadurch kann eine größere Datenbasis generiert werden und die Ergebnisse werden aussagekräftiger. Die starken Diskrepanzen zwischen den prognostizierten und gemessenen Werten kann unter anderem durch Schwankungen in der Zusammensetzung im Rezyklat hervorgerufen werden. Durch Rückstände von Füllstoffen oder Fremdstoffe könnten die mechanischen Eigenschaften von PEr1 zu stark schwanken, um konstante Ergebnisse zu erzielen.

Bei der Untersuchung der Bruchflächen werden Unterschiede in den gebildeten crazes deutlich. Bei HDv2 sind die crazes länger und fast senkrecht zur Bruchfläche ausgebildet. Mit steigendem Rezyklat-Gehalt werden die crazes bei gleicher Risspitzenbelastung

kleiner, da die Ketten in den amorphen Zwischenbereichen früher versagen bzw. aneinander abgleiten. Dadurch sind die Crazes außerdem weniger orientiert. Beim Vergleich der Crazes unter der gleichen Risswachstumsgeschwindigkeit werden die Unterschiede noch deutlicher. Bei höheren Anteilen an PEr1 ist der Riss bereits weiter fortgeschritten und die Crazes versagen früher und sind weniger orientiert.

Zusammenfassend kann betont werden, dass diese Masterarbeit die Zielsetzung erfüllt hat. Es konnten die Auswirkungen des Rezyklat-Gehalts auf die Langzeitbeständigkeit analysiert werden und die Gründe dafür wurden ausführlich analysiert und diskutiert. Um aussagekräftigere Ergebnisse zu erzielen, sollten in Zukunft die gleichen bruchmechanischen Untersuchungen unter verschiedenen Testparametern durchgeführt werden. Einerseits kann das Recyclingmaterial PEr1 bei mehr Spannungsverhältnissen und mit einer größeren Anzahl an Proben unter sonst gleichen Bedingungen untersucht werden. Damit ergeben sich mehr Ergebnisse, die eine bessere Vorhersage des Verhaltens unter statischer Belastung erlauben. Andererseits können die Auswirkungen der Temperatur analysiert werden, indem zusätzliche Experimente unter beispielsweise Raumtemperatur oder leicht erhöhter Temperatur durchgeführt werden. Für eine weitere Untersuchung können die bruchmechanischen Untersuchungen auch mit unterschiedlichen Recyclingmaterialien durchgeführt werden, um die verschiedenen Rezyklate hinsichtlich ihrer Spannungsrissbeständigkeit zu bewerten.

## 6 LITERATUR

Alzerreca, M., Paris, M., Boyron, O., Orditz, D., Louarn, G. and Correc, O., "Mechanical properties and molecular structures of virgin and recycled HDPE polymers used in gravity sewer systems", *Polymer Testing*, **46**, 1 – 8 (2015),

DOI:10.1016/j.polymertesting.2015.06.012

Amin, M. U., Scott, G. and Tillekeratne, L., "Mechanism of the photo-initiation process in polyethylene", *European Polymer Journal*, **11**, 85 – 89 (1975), DOI:10.1016/0014-

3057(75)90179-2

Anderson, T. L., *Fracture Mechanics: Fundamentals and Applications*, 3<sup>rd</sup> Edition, CRC Press, Boca Raton (2005)

Balika, W., Pinter, G. and Lang, R. W., "Systematic investigations of fatigue crack growth behavior of a PE-HD pipe grade in through-thickness direction", *Journal of Applied Polymer Science*, **103**, 1745 – 1758 (2007), DOI:10.1002/app.25073

Bargel, H.-J. and Schulze, G., *Werkstoffkunde*, 11<sup>th</sup> Edition, Springer, Berlin (2011)

Broek, D., *The practical use of fracture mechanics*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1988)

Buncick, M. C., Thomas, D. E., McKinny, K. S. and Jahan, M. S., "Structural changes of ultra-high molecular weight polyethylene exposed to X-ray flux in X-ray photoelectron spectroscopy detected by valence band and electron spin resonance spectroscopy", *Applied Surface Science*, **156**, 97 – 109 (2000), DOI:10.1016/S0169-4332(99)00367-0

Cazenave, J., Seguela, R., Sixou, B. and Germain, Y., "Short-term mechanical and structural approaches for the evaluation of polyethylene stress crack resistance", *Polymer*, **47**, 3904 – 3914 (2006), DOI:10.1016/j.polymer.2006.03.094

Choi, B.-H., Balika, W., Chudnovsky, A., Pinter, G. and Lang, R. W., "The use of crack layer theory to predict the lifetime of the fatigue crack growth of high density polyethylene", *Polymer Engineering and Science*, **49**, 1421 – 1428 (2009), DOI:10.1002/pen.21436

Domininghaus, H., Elsner, P., Eyerer, P. and Hirth, T., *Kunststoffe: Eigenschaften und Anwendungen*, 7<sup>th</sup> Edition, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2008)

Ehrenstein, G. W. and Pongratz, S., Beständigkeit von Kunststoffen, Hanser Verlag, München (2007)

Fawaz, J., Deveci, S. and Mittal, V., "Molecular and morphological studies to understand slow crack growth (SCG) of polyethylene", Colloid and Polymer Science, **294**, 1269 – 1280 (2016), DOI:10.1007/s00396-016-3888-5

Frank, A., 2010, "Fracture mechanics based lifetime assessment and long-term failure behavior of polyethylene pressure pipes". Dissertation, Montanuniversität Leoben, Leoben

Frank, A., Hutař, P. and Pinter, G., "Numerical assessment of PE 80 and PE 100 pipe lifetime based on Paris-Erdogan Equation", Macromolecular Symposia, **311**, 112 – 121 (2012), DOI:10.1002/masy.201000096

Frank, A., Pinter, G. and Lang, R., "Accelerated investigation of creep crack growth in polyethylene pipe grade materials by the use of fatigue tests on cracked round bar specimens", ANTEC 2008 Society of Plastics Engineers' Annual Technical Conference, 2435 – 2439 (2008)

Frank, A., Pinter, G. and Lang, R. W., "Prediction of the remaining lifetime of polyethylene pipes after up to 30 years in use", Polymer Testing, **28**, 737 – 745 (2009), DOI:10.1016/j.polymertesting.2009.06.004

Freudenthaler, P. J., Fischer, J. and Lang, R. W., "Assessment of Commercially Available Polyethylene Recyclates for Blow Molding Applications by a Novel Environmental Stress Cracking Method", Polymers, **15**, 46 – 62 (2022), DOI:10.3390/polym15010046

Frick, A. and Stern, C., Praktische Kunststoffprüfung, Hanser, München (2011)

Gholami, F., Pircheraghi, G., Rashedi, R. and Sepahi, A., "Correlation between isothermal crystallization properties and slow crack growth resistance of polyethylene pipe materials", Polymer Testing, **80**, 106128 (2019), DOI:10.1016/j.polymertesting.2019.106128

Grigore, M. E., "Methods of Recycling, Properties and Applications of Recycled Thermoplastic Polymers", Recycling, **2**, 24 – 34 (2017), DOI:10.3390/recycling2040024

- Gross, D. and Seelig, T., Bruchmechanik: Mit einer Einführung in die Mikromechanik, 6<sup>th</sup> Edition, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (2016)
- Haager, M. J. A., 2006, "Bruchmechanische Methoden zur beschleunigten Charakterisierung des langsamen Risswachstums von Polyethylen-Rohrwerkstoffen". Dissertation, Montanuniversität Leoben, Leoben
- Hamad, K., Kaseem, M. and Deri, F., "Recycling of waste from polymer materials: An overview of the recent works", Polymer degradation and stability, **98**, 2801 – 2812 (2013), DOI:10.1016/j.polymdegradstab.2013.09.025
- Hamouda, H. B. H., Simoes-betbeder, M., Grillon, F., Blouet, P., Billon, N. and Piques, R., "Creep damage mechanisms in polyethylene gas pipes", Polymer, **42**, 5425 – 5437 (2001), DOI:10.1016/S0032-3861(00)00490-0
- Hertzberg, R. W., Deformation and fracture mechanics of engineering materials, 4<sup>th</sup> Edition, New York, NY [u.a.] : Wiley (1996)
- Hessel, J. and Bühler, H. E., "Parameteranalyse zum Zeitstandinnendruckversuch und Schädigungsmechanismus bei chemikalienbelasteten Thermoplastrohren (System: LDPE/H 2 SO 4 (98%))", Materialwissenschaft und Werkstofftechnik, **12**, 33 – 39 (1981), DOI:10.1002/mawe.19810120204
- Hutař, P., Ševčík, M., Náhlík, L., Pinter, G., Frank, A. and Mitev, I., "A numerical methodology for lifetime estimation of HDPE pressure pipes", Engineering Fracture Mechanics, **78**, 3049 – 3058 (2011), DOI:10.1016/j.engfracmech.2011.09.001
- Huysveld, S., Ragaert, K., Demets, R., Nhu, T. T., Civancik-Uslu, D., Kusenbergh, M., van Geem, K. M., Meester, S. de and Dewulf, J., "Technical and market substitutability of recycled materials: Calculating the environmental benefits of mechanical and chemical recycling of plastic packaging waste", Waste Management, **152**, 69 – 79 (2022), DOI:10.1016/j.wasman.2022.08.006
- Ignatyev, I. A., Thielemans, W. and Vander Beke, B., "Recycling of polymers: a review", ChemSusChem, **7**, 1579 – 1593 (2014), DOI:10.1002/cssc.201300898

- Jansson, A., Möller, K. and Hjertberg, T., "Chemical degradation of a polypropylene material exposed to simulated recycling", *Polymer degradation and stability*, **84**, 227 – 232 (2004), DOI:10.1016/j.polymdegradstab.2003.10.016
- Kumar, S., Panda, A. K. and Singh, R. K., "A review on tertiary recycling of high-density polyethylene to fuel", *Resources, Conservation and Recycling*, **55**, 893 – 910 (2011), DOI:10.1016/j.resconrec.2011.05.005
- La Mantia, F. P., "Mechanical properties of recycled polymers", *Macromolecular Symposia*, **147**, 167 – 172 (1999), DOI:10.1002/masy.19991470116
- Lacoste, J., Carlsson, D. J., Falicki, S. and Wiles, D. M., "Polyethylene hydroperoxide decomposition products", *Polymer degradation and stability*, **34**, 309 – 323 (1991), DOI:10.1016/0141-3910(91)90125-B
- Ladinig, A. J., 2024, "Umgebungsbedingte Spannungsrissbildung in Polyethylen : Analyse verschiedener Testmethoden". Masterarbeit, Montanuniversität Leoben, Leoben
- Lang, R. W., Stern, A. and Doerner, G., "Applicability and limitations of current lifetime prediction models for thermoplastics pipes under internal pressure", *Die Angewandte Makromolekulare Chemie*, **247**, 131 – 145 (1997), DOI:10.1002/apmc.1997.052470109
- Lu, X., Ishikawa, N. and Brown, N., "The critical molecular weight for resisting slow crack growth in a polyethylene", *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, **34**, 1809 – 1813 (1996), DOI:10.1002/(SICI)1099-0488(19960730)34:10<1809::AID-POLB12>3.0.CO;2-F
- Marulanda, D., Pérez, M. and Correa, L., "Influence of the percentage of recycled material on the mechanical properties of low-density polyethylene, polyethylene terephthalate, and polyvinyl chloride", *Journal of Elastomers & Plastics*, **46**, 355 – 367 (2014), DOI:10.1177/0095244312469125
- Maurer, A., "Wie machen wir mit Kunststoffen weiter? Eine Betrachtung unter realistischen Nachhaltigkeitsaspekten", in *JAHRBUCH 2022. Dichten. Kleben. Polymer.*, p. 441 – 464 (2021)

Pan, Y., Gao, X., Wang, Z., Lei, J., Li, Z. and Shen, K., "Effect of different morphologies on slow crack growth of high-density polyethylene", *RSC Advances*, **5**, 28191 – 28202 (2015), DOI:10.1039/C5RA00918A

Paris, P. and Erdogan, F., "A Critical Analysis of Crack Propagation Laws", *Journal of Basic Engineering*, **85**, 528 – 533 (1963), DOI:10.1115/1.3656900

Parsons, M., Stepanov, E. V., Hiltner, A. and Baer, E., "Correlation of fatigue and creep slow crack growth in a medium density polyethylene pipe material", *Journal of Materials Science*, **35**, 2659 – 2674 (2000), DOI:10.1023/A:1004789522642

Pinter, G., 1999, "Rißwachstumsverhalten von PE-HD unter statischer Belastung". Dissertation, Montanuniversität Leoben, Leoben

Pinter, G., Arbeiter, F., Berger, I. J. and Frank, A., "Correlation of fracture mechanics based lifetime prediction and internal pipe pressure tests", in *Proceedings of Plastic Pipes XVII* (September 22-24, 2014, Chicago, Illinois, USA) (2014)

Pinter, G., Balika, W. and Lang, R. W., "A correlation of creep and fatigue crack growth in high density poly(ethylene) at various temperatures", *European Structural Integrity Society*, **29**, 267 – 275 (2002), DOI:10.1016/S1566-1369(02)80083-8

Pinter, G., Haager, M. and Lang, R. W., "Lifetime and safety assessment of PE pressure pipes based on fracture mechanics fatigue tests", *ANTEC 2007*, 2921 – 2925 (2007)

Poduška, J., Dlhý, P., Hutař, P., Frank, A., Kučera, J., Sadílek, J. and Náhlík, L., "Design of plastic pipes considering content of recycled material", *Procedia Structural Integrity*, **23**, 293 – 298 (2019), DOI:10.1016/j.prostr.2020.01.102

Redhead, A., Pinter, G. and Frank, A., "Analysis of Molecular and Morphological Effects on Slow Crack Growth in Modern PE Pipe Grades by Cyclic Fracture Mechanics Tests", *Macromolecular Symposia*, **311**, 41 – 48 (2012), DOI:10.1002/masy.201000110

Stern, A., 1995, "Fracture mechanical characterization of the long-term behavior of polymers under static loads". Dissertation, Montanuniversität Leoben, Leoben

Sun, X., Shen, H., Xie, B., Yang, W. and Yang, M., "Fracture behavior of bimodal polyethylene: Effect of molecular weight distribution characteristics", *Polymer*, **52**, 564 – 570 (2011), DOI:10.1016/j.polymer.2010.12.008

Wang, Y., Feng, G., Lin, N., Lan, H., Li, Q., Yao, D. and Tang, J., "A Review of Degradation and Life Prediction of Polyethylene", *Applied Sciences*, **13**, 3045 – 3063 (2023), DOI:10.3390/app13053045

Zeng, S.-F., Guo, P., Hu, C.-Y. and Wang, Z.-W., "Effects of mechanical recycling on optical properties and microstructure of recycled high-density polyethylene pellets and bottles", *Journal of Applied Polymer Science*, **140** (2023), DOI:10.1002/app.53446

Zhang, J., Hirschberg, V. and Rodrigue, D., "Blending Recycled High-Density Polyethylene HDPE (rHDPE) with Virgin (vHDPE) as an Effective Approach to Improve the Mechanical Properties", *Recycling*, **8**, 2 (2023), DOI:10.3390/recycling8010002