

Zusammenhang zwischen Herstellungsbedingungen, übermolekularer Struktur und Eigenschaften von Peelfolien

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor-Ingenieur (Dr.-Ing.)

vorgelegt dem

Zentrum für Ingenieurwissenschaften
als organisatorische Grundeinheit für Forschung und Lehre im Range einer Fakultät
der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

von Herrn Dipl.-Ing. Michael Nase
geboren am 24.09.1979 in Halle (Saale), Sachsen-Anhalt

Gutachter:

1. Herr Prof. Dr. rer. nat. habil. Wolfgang Grellmann
2. Frau Prof. Dr.-Ing. habil. Sabine Seidler

Halle (Saale), den 14.02.2010

Inhaltsverzeichnis

Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen und Abkürzungen	IV
1 Einleitung und Zielstellung	1
2 Peelsysteme als Ziel werkstoffwissenschaftlicher Untersuchungen	4
2.1 Herstellung von Peelsystemen	4
2.1.1 Blasfolienverfahren	4
2.1.2 Siegelverfahren	6
2.2 Makroskopischer Aufbau und mikroskopische Struktur von Peelsystemen	8
2.2.1 Makroskopischer Aufbau	8
2.2.2 Mikroskopische Struktur	10
2.3 Eigenschaftsniveau von Peelsystemen – Werkstoffliche und technologische Einflussfaktoren	16
2.3.1 Einfluss der Rezeptur	16
2.3.2 Einfluss der Prozessparameter	18
2.3.3 Einfluss der Siegelparameter	21
2.3.4 Einfluss anwendungstechnischer Aspekte	22
2.4 Numerische Simulation des Peelvorgangs	24
3 Experimentelles	26
3.1 Untersuchte Peelfolienblendsysteme	26
3.1.1 Herstellung im Blasfolienverfahren	26
3.1.2 Siegelung	29
3.1.3 Werkstoffmechanisches Eigenschaftsniveau	30
3.2 Untersuchungsmethoden der Peelfolienprüfung	34
3.2.1 Durchführung und Auswertung	34
3.2.2 Einfluss von experimentellen Parametern	46
3.3 Werkstoffanalytische Untersuchungsmethoden	49
4 Ergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen	51
4.1 Der Aufbau – Struktur und Orientierungszustand des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems	51
4.1.1 Mikroskopische Struktur des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems	51
4.1.2 Physikalische Struktur und Orientierung der PE-LD/iPB-1-Peelfolien	52
4.2 Die Rezeptur – Ergebnisse zur Variation der Matrix und des iPB-1-Gehaltes	57
4.2.1 Variation des Matrixtyps	57
4.2.2 Variation des Anteils der Peelkomponente iPB-1	59

4.3	Die Verarbeitung – Einfluss der Prozess- und Siegelparameter auf die Peeleigenschaften	65
4.3.1	Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter	65
4.3.2	Untersuchungen zum Einfluss der Siegelparameter und des Siegelprozesses	75
4.4	Der Peelvorgang – Ergebnisse zur Variation des Peelwinkels	81
4.4.1	Inter- und translaminarer Rissmechanismus	81
4.4.2	Delamination	85
4.5	Technologische Schlussfolgerungen	87
5	Möglichkeiten der Modellierung des Peelverhaltens	90
5.1	Finite-Elemente-Modell	90
5.2	Mathematisch-statistisches Modell	95
6	Zusammenfassung	98
7	Anhang	102
8	Literatur	109

Danksagung

Lebenslauf

Verzeichnis der verwendeten Formelzeichen und Abkürzungen

Formelzeichen

a	(mm)	Risslänge
A	(mm ²)	Siegelnahtfläche
B	(mm ²)	Querschnitt der Folie
d_F	(μm)	Dicke der flachgelegten Folie
D	(cm ² s ⁻¹)	Selbstdiffusionskoeffizient
D	(mm)	Schneckendurchmesser
D_D	(mm)	Düsendurchmesser in der Blasfolienanlage
D_S	(mm)	Folienschlauchdurchmesser
E	(MPa)	Elastizitätsmodul (E-Modul)
$E_{d,P}$	(Nmm)	Deformationsenergie der Peelarme
$E_{d,S}$	(Nmm)	Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht
E_G	(Nmm)	Gesamtpeelenergie (entspricht der Fläche unter der Peelkurve)
$E_{G,i}$	(Nmm)	Gesamtpeelenergie beim Vorhandensein einer idealen Siegelnaht
f_{seg}	(-)	Reibungsfaktor (der Molekülketten untereinander)
F_{Dela}	(N)	Delaminationskraft
F_i	(N)	Peelinitiierungskraft
F_{peel}	(N)	Peelkraft
$F_{peel,ad}$	(N)	adhäsive Peelkraft
$F_{peel,ko}$	(N)	kohäsive Peelkraft
G_{alc}	(N/mm)	adhäsive Energiefreisetzungsrate für elastisch-plastisches Werkstoffverhalten
G_{Ic}	(N/mm)	Energiefreisetzungsrate für linear-elastisches Werkstoffverhalten
K	(N)	Kalibrierterm für das vorgestellte mathematisch-statistische Modell
l_0	(mm)	Einspannlänge im Peelttest
l_B	(mm)	Bruchweg
$l_{B,i}$	(mm)	Bruchweg beim idealen Peelvorgang
$l_{d,P}$	(mm)	Beginn des Peelvorgangs
l_T	(mm)	gemessener Weg im Peelttest (Peelfortschritt)
L	(mm)	Länge der Siegelnaht
L_{MT}	(mm)	Länge Mischteil
L_{ST}	(mm)	Länge Scherteil
L_{tub}	(mm)	Tube­slänge der Reptationsröhre

N_{seg}	(-)	Anzahl der Kettensegmente
s_S	(mm)	Länge der Foliensilhouette vom Blaskopf bis zur Frostlinie
s_W	(mm)	Spaltweite
S	(mm)	Beitrag der Siegelnaht zum gemessenen Weg im Peelttest bei vollständiger Öffnung der Naht ohne Deformationen
t	(h)	Zeit nach dem Siegeln
t_E	(s)	Einfrierzeit
t_{rep}	(s)	Reptationszeit
T	(°C)	Temperatur
T	(MPa)	Kohäsivspannung
T_c	(MPa)	kritische Kohäsivspannung
T_c	(°C)	Kristallisationstemperatur
T_i	(°C)	Schwellenwert der Siegeltemperatur
T_{max}	(MPa)	maximale Kohäsivspannung
T_S	(°C)	Temperatur der Schmelze während des Verarbeitungsprozesses
U_a	(Nmm)	direkte Adhäsionsenergie
U_{db}	(Nmm)	dissipierte Energie während des Biegevorgangs
$U_{db,P}$	(Nmm)	dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms
$U_{db,S}$	(Nmm)	dissipierte Energie während des Biegevorgangs der Siegelnaht
U_{dt}	(Nmm)	dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung
$U_{dt,P}$	(Nmm)	dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms
$U_{dt,S}$	(Nmm)	dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung der Siegelnaht
U_{ext}	(Nmm)	von außen aufgebrachte (externe) Arbeit
U_S	(Nmm)	gespeicherte elastische Energie
$U_{S,P}$	(Nmm)	gespeicherte elastische Energie im Peelarm
$U_{S,S}$	(Nmm)	gespeicherte elastische Energie in der Siegelnaht
v_A	(m/min)	Abzugsgeschwindigkeit der Abzugswalzen
v_B	(m/min)	mittlere Geschwindigkeit der Folienblase im Bereich der Schlauchbildungszone
v_E	(m/min)	Schmelzeaustrittsgeschwindigkeit
v_T	(mm/min)	Peelgeschwindigkeit
W	(mm)	Breite der Siegelnaht
W	(mm)	Breite des Prüfkörpers

W_S	(mm)	Flachlegebreite des Folienschlauches
δ	(mm)	Relativverschiebung
δ_c	(mm)	kritische Relativverschiebung
δ_e	(mm)	Relativverschiebung beim Versagen des kohäsiven Elements
δ_N	(mm)	normaler Teil der Relativverschiebung
δ_T	(mm)	tangentialer Teil der Relativverschiebung
Δn	(-)	Doppelbrechung
ϕ_{ges}	(%)	Orientierungsgrad
Γ	(nm)	Gangunterschied
Γ_c	(Nmm)	Kohäsivenergie
θ	(°)	Peelwinkel
2θ	(°)	Streuwinkel
θ_T	(-)	inter-/translaminaer Übergangsbereich bei variierendem Peelwinkel
ρ_E	(g cm ⁻³)	Dichte des Extrudats
ρ_M	(g cm ⁻³)	Dichte der Schmelze
Φ	(-)	inter-/translaminaer Übergangsbereich bei konstantem Peelwinkel

Abkürzungen

ABV	Aufblasverhältnis
ASTM	American Society for Testing Materials
AZV	Abzugsverhältnis
DIN	Deutsches Institut für Normung
DMA	Dynamisch-Mechanische Analyse
DSC	Differential Scanning Calorimetry
ESEM	Environmental Scanning Electron Microscopy
ESZ	ebener Spannungszustand
EVA	Ethylenvinylacetat
FEM	Finite-Elemente-Methode
FE-Modell	Finite-Elemente-Modell
FLH	Frostlinienhöhe
FTIR	Fourier-Transformations-Infrarot-Spektroskopie
GVM	Gesellschaft für Verpackungsmarktforschung

HASYLAB	Hamburger Synchrotronstrahlungslabor
iPB-1	isotaktisches Polybuten-1
ICI	Imperial Chemical Industries
KZE	Kohäsiv-Zonen-Element
MFI	Melt Flow Index
MR	Maschinenrichtung
NR	Normalenrichtung
PA	Polyamid
PE	Polyethylen
PE-HD	Polyethylen hoher Dichte
PE-LD	Polyethylen niederer Dichte
PE-LLD	lineares Polyethylen niederer Dichte
PET	Polyethylenterephthalat
PTFE	Polytetrafluorethylen
PP	Polypropylen
PS	Polystyrol
PVC	Polyvinylchlorid
QR	Querrichtung
REM	Rasterelektronenmikroskopie
RKWS	Röntgenkleinwinkelstreuung
RWWS	Röntgenweitwinkelstreuung
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TSL	Traction–Separation Law

1 Einleitung und Zielstellung

Der Verbrauch von Kunststoffverpackungen hat sich in Deutschland seit den 1990er Jahren bis 2007 mehr als verdoppelt [1]. Heutzutage werden ca. 1,8 Mio. Tonnen pro Jahr an Kunststoffverpackungen im Inland für den Endverbraucher produziert. Innerhalb dieses Anteils an Kunststoffverpackungen hatten die Kunststofffolien im Jahr 2007 einen Marktanteil von 47 %. Dabei kommt den Verpackungsfolien mit speziellen Funktionen, auch als technische Folien bezeichnet, welche die Standardfolien teilweise ersetzen, eine immer größere Bedeutung zu.

Ein wichtiger und an Bedeutung zunehmender Vertreter der technischen Folien sind die Peelfolien, die derzeit einen steigenden Anteil an der Gesamtproduktion von flexiblen Verpackungen in Deutschland haben, und deren Substitutionspotenzial noch nicht ausgeschöpft ist. Verpackungen aus Peelfolien können nach erfolgter Verschweißung/Versiegelung zu einem Peelsystem mit einer definiert geringen Kraft, die als Peelkraft bezeichnet wird, „von Hand“ wieder geöffnet werden. Daraus ergibt sich ein breites Anwendungsspektrum für diese speziellen Folien.

Peelsysteme kommen vorrangig im Verpackungssektor der Lebensmittelindustrie und im medizinischen Bereich zur Anwendung [2,3]. Beispielgebend hierfür seien Kaffee-, Wurst-, Snack- und Müsliverpackungen genannt. In der Medizin finden Peelsysteme z.B. in Form von Schutzverpackungen für steriles OP-Besteck, Katheter oder Prothesen immer mehr Anwendung, da ein schnelles und keimfreies Handling gewährleistet werden kann. Darüber hinaus werden Peelsysteme auch in anderen Bereichen der Verpackungsindustrie eingesetzt. So werden z.B. Nachfüllbeutel für Reinigungsartikel zunehmend mit Peelsystemen konzipiert.

Das Öffnen von Peelsystemen aus thermoplastischen Werkstoffen ist ein sehr komplexer mechanischer bzw. bruchmechanischer Vorgang, für den eine geschlossene Beschreibung des Zusammenhangs zwischen Herstellungsbedingungen, übermolekularer Struktur und Werkstoffeigenschaften nur in Ansätzen existiert [3,4]. Daraus resultieren die Aktualität der wissenschaftlichen Aufgabenstellung und die Notwendigkeit der Anwendung von Konzepten der technischen Bruchmechanik, die bei der Bewertung von Rissausbreitungsvorgängen vermehrt angewendet werden, da bruchmechanische Kennwerte außerordentlich empfindlich auf strukturelle Veränderungen reagieren [5–7].

Ziel dieser Arbeit ist eine wissenschaftliche Untersuchung von Peelsystemen mit ihren vielfältigen Modifikationen, um das grundlegende Wissen über die Zusammenhänge zwischen Herstellungsbedingungen, Struktur und Eigenschaften zu verbessern und somit Grenzwerte für die Gewährleistung stabiler und reproduzierbarer Peeleigenschaften abzuleiten.

Als Modellsystem für diese Untersuchungen wurde das Peelfolienblendsystem Polyethylen niederer Dichte (PE-LD) als Matrix mit der Dispergierkomponente isotaktisches Polybuten-1 (iPB-1) ausgewählt.

Das spezielle Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1, das den kohäsiven Peelsystemen zugeordnet wird, war bisher kaum Gegenstand der Grundlagenforschung. Der bisherige Forschungsschwerpunkt lag im industriellen Bereich. In der modernen Erzeugnisherstellung sind geringe Standardabweichungen der entsprechenden Kennwerte (z.B. Peelkraft) der Garant für den Vermarktungserfolg. Derartige Maßgaben der Kunden können jedoch nur mit tiefergehender wissenschaftlicher Forschung – im Vorfeld der Produktion – garantiert werden. Die bisher übliche Praxis bestand in der Einstellung der Peeleigenschaften auf der Basis von Erfahrungswerten. Demnach kam das Prinzip „Try and Error“ zur Anwendung, welches jedoch aufwändige Folge- bzw. Begleituntersuchungen mit sich brachte. Eine wissenschaftliche Analyse aller Einflussfaktoren sowie die Gewinnung mechanischer und sensitiver bruchmechanischer Kennwerte in Korrelation mit einer Strukturanalyse führt zu einer Vorhersagbarkeit der Eigenschaften des vorliegenden Peelfolienblendsystems, die es in dem technisch erforderlichen Maß derzeit noch nicht gibt.

Die im Blasfolienverfahren hergestellten Peelfolien aus PE-LD/iPB-1-Blends weisen im Allgemeinen eine Matrix-Teilchen-Struktur auf und ergeben somit ein heterogenes Blend. Polyethylen bildet dabei die Matrix, in der aufgrund der Unverträglichkeit der Anteil an Polybuten-1 als Peelkomponente dispergiert ist (Bild 1.1). Ein entscheidender Faktor für die Dispergierung der iPB-1-Teilchen in der PE-LD-Matrix und die Ausbildung der übermolekularen Struktur der resultierenden Peelfolie stellt die Verarbeitung in der Blasfolienanlage dar.

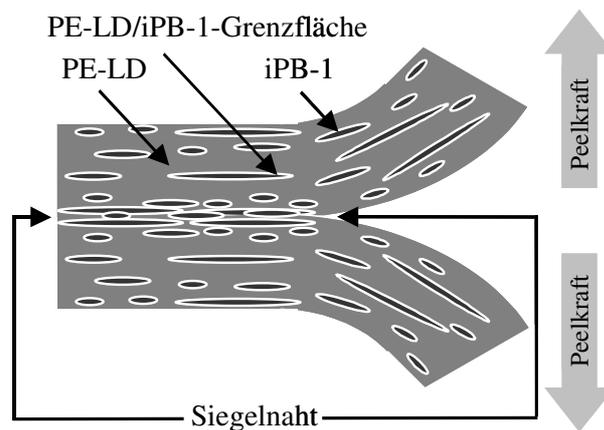


Bild 1.1: Schematische Darstellung des Peelvorgangs

Im Anwendungsfall erfolgt im Anschluss an die Verarbeitung das Siegeln, d.h. es wird ein Bereich mit definierter Fläche zwischen zwei Peelfolien unter Druck aufgeschmolzen und anschließend abgekühlt, der als Siegelnah bezeichnet wird (vgl. Bild 1.1). Aufgrund der dispergierten iPB-1-Teilchen in dieser Siegelnah bilden sich Zonen unterschiedlicher Haftfestigkeit aus. An der Grenzfläche zwischen iPB-1-Teilchen und PE-LD-Matrix ist der Zusammenhalt aufgrund der vorliegenden Unverträglichkeit schwächer als zwischen den versiegelten PE-LD-Bereichen. Somit kann die Siegelnah kontrolliert und „von Hand“ mit definierten Peelkräften geöffnet werden. Die Unverträglichkeit zwischen PE-LD und iPB-1 ist notwendige Voraussetzung zur Realisierung des Peelvorgangs. Die Peeleigenschaften, und insbesondere die Peelkraft, werden maßgeblich durch die Blendzusammensetzung (Rezeptur), die Verarbeitungs- und Siegelbedingungen und anwendungstechnische Aspekte wie die Variation des Peelwinkels beeinflusst.

Daher beinhaltet die vorliegende Arbeit eine Optimierung des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems hinsichtlich des Einflusses der Peelkomponente Polybuten-1 und des verwendeten Matrixmaterials. Die Polymorphie von Polybuten-1, insbesondere die bei der Kristallisation aus der Schmelze stattfindende Umwandlung der hexagonalen in die tetragonale Kristallmodifikation (II→I-Umwandlung), wurde bezüglich ihres Einflusses auf das Peelverhalten analysiert.

Ein weiteres Ziel ist die Untersuchung und Aufklärung der mikroskopischen Struktur und der Orientierung der verwendeten PE-LD/iPB-1-Peelfolien, da sowohl die Struktur als auch die Orientierung in hohem Maße die werkstoffmechanischen Eigenschaften einer Folie beeinflussen.

Einen Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit stellen die Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter des Blasfolienprozesses (nachfolgend Prozessparameter genannt) auf das Peelverhalten dar. Hierbei wurden die Prozessparameter entlang der Prozesslinie (Extruder, Blaskopf, Folienblase) variiert. Weiterhin wurde die Abhängigkeit der Peeleigenschaften von den Siegelparametern (Siegeltemperatur, -zeit und -druck) untersucht.

Darüber hinaus wurde der Peelvorgang mikroskopisch analysiert und in Abhängigkeit des Peelwinkels untersucht. Hierbei kamen neuartige hybride Methoden der Werkstoffprüfung, insbesondere der in-situ-Peeltest mit Umgebungs-Rasterelektronenmikroskopie zur Anwendung. Diese Methode ermöglicht eine direkte Zuordnung von Mikrostruktur und mechanischer Charakteristik des Peelvorgangs mit dem Ziel Morphologie-Eigenschafts-Korrelationen aufzustellen. Weiterhin beinhaltet die vorliegende Arbeit eine Zusammenstellung und Wichtung aller Einflussfaktoren auf das Peelverhalten unter Zugrundelegung der aufgestellten Morphologie-Eigenschafts-Korrelationen.

Ein weiteres Ziel ist die Erarbeitung von Möglichkeiten zur Modellierung des Peelvorgangs. Hierbei wurde die Finite-Elemente-Methode angewendet, die es ermöglicht den Peelvorgang auf numerischem Weg nachzuvollziehen. Ein Vorteil der numerischen Modellierung besteht in der Variation experimentell schwer zugänglicher Parameter des Peelsystems.

Die experimentelle Basis zur Charakterisierung des Peelverhaltens der vorliegenden Peel-folienblendensysteme bilden der T-Peeltest [8] und der Fixed-Arm Peeltest [9]. Die beiden Versuche ermöglichen sowohl eine mechanische als auch bruchmechanische Bewertung des Peelvorgangs unter quasistatischer Beanspruchung und haben hinsichtlich der mechanischen Bewertung bereits ein fundiertes ingenieurwissenschaftliches Stadium erreicht [3,4]. Eine bruchmechanische Bewertung des Peelverhaltens, welche sowohl die Peelkraft als auch auftretende Deformationen während des Peelvorgangs berücksichtigt, fand bisher keinen Eingang in die industrielle Praxis. Die vorliegende Arbeit soll dazu beitragen, die hier aufgezeigten Möglichkeiten zur Charakterisierung des Peelverhaltens mit Hilfe energiedeterminierter bruchmechanischer Kenngrößen in die bestehende Prüfpraxis zu überführen.

2 Peelsysteme als Ziel werkstoffwissenschaftlicher Untersuchungen

2.1 Herstellung von Peelsystemen

2.1.1 Blasfolienverfahren

Die Verpackung ist in den letzten Jahren immer stärker in den Mittelpunkt des Interesses der Lebensmittelhersteller gerückt. Dies gilt besonders für Folien, die für viele Produktgruppen wie beispielsweise Fleisch, Wurst, Kaffee und Müsli mittlerweile als unersetzbare Primärverpackung gelten. Dabei ist vor allem die Funktionalität und der Zusatznutzen der Verpackungsfolie ein wichtiges Kaufkriterium.

Für den Verbraucher sind neben aktiven Verpackungsfolien, die z.B. die Haltbarkeit von Produkten verlängern, vor allem intelligente Verpackungen mit einem leichten und bequemen Öffnungsmechanismus von Interesse. Hierbei kommt den Peelsystemen, die mit versiegelten Peelfolien realisiert werden, eine große Bedeutung zu.

Üblicherweise werden solche Peelfolien im Blasfolienverfahren [10–12] und seltener im Gießfolienverfahren [12] hergestellt. Das in Bild 2.1 schematisch dargestellte Blasfolienverfahren ist neben dem Gießfolienverfahren das bedeutendste technologische Verfahren zur Herstellung von Folien. In der vorliegenden Arbeit soll der Schwerpunkt auf dem Blasfolienverfahren und damit verbundener Prozessparametervariationen liegen.

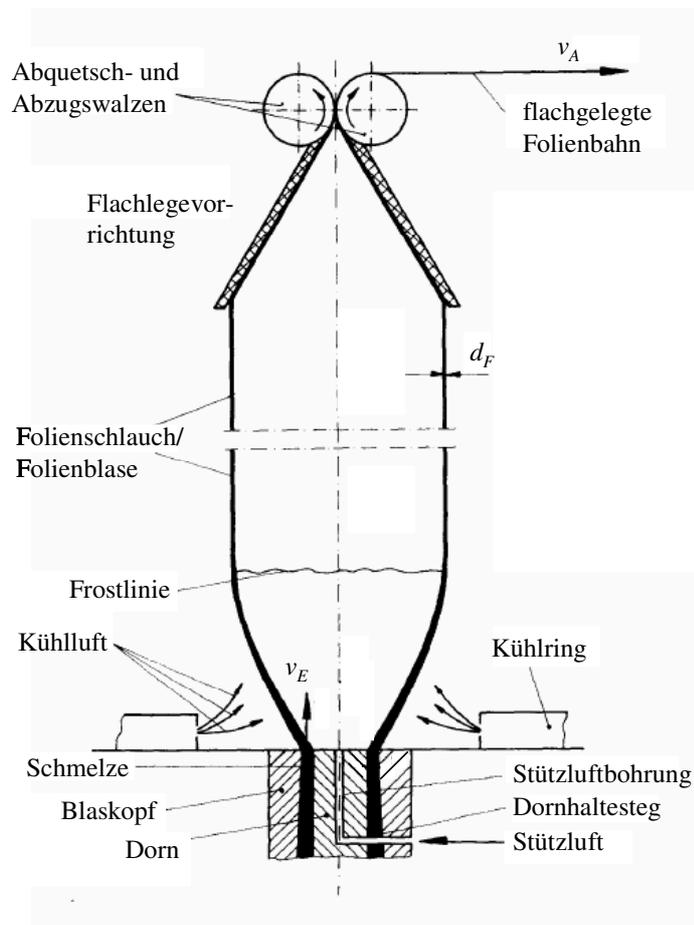


Bild 2.1: Arbeitsprinzip des Blasfolienverfahrens [11]; nicht dargestellt: zugehöriger Extruder (v_A – Abzugsgeschwindigkeit der Abzugswalzen, v_E – Schmelzeaustrittsgeschwindigkeit, d_F – Dicke der flachgelegten Folie)

Bei der Herstellung wird gravimetrisch dosiertes Granulat in einem Einschneckenextruder unter Verwendung eines definierten Temperaturprofils aufgeschmolzen und mit Hilfe einer Barrierschnecke bei einer festgelegten Schneckendrehzahl gefördert [13]. Die Verarbeitungstemperatur liegt beispielsweise für PE-LD bei 180 ± 10 °C [14]. Nach erfolgtem Aufschmelz- und Homogenisiervorgang im Extruder wird die Schmelze über einen beheizten Adapter zum Blaskopf gefördert, wo ebenfalls ein definiertes Temperaturprofil vorherrscht. Dort gelangt die Schmelze in ein Wendelverteilerwerkzeug, in dessen Mitte sich ein Dorn und wendelförmige Kanäle befinden, so dass die Schmelze einen zylindrischen Spalt definierter Spaltweite durchläuft und einen Folienschlauch ausbildet. Zusätzlich wird über einen Kanal Stützluft in den sich bildenden schmelzeblässigen Folienschlauch geblasen, wodurch dieser in Querrichtung (QR) verstreckt und von Innen abgekühlt wird.

Die Querverstreckung wird mit Hilfe des Aufblasverhältnisses (ABV) nach Gl. 2.1 bestimmt.

$$ABV = \frac{2 \cdot W_S}{\pi \cdot D_D} \quad (2.1)$$

mit W_S Flachlegebreite des Folienschlauches
 D_D Düsendurchmesser

Parallel zur Querverstreckung findet eine Längsverstreckung des Folienschlauches in Abzugsrichtung statt, deren Maß durch den Unterschied zwischen Austrittsgeschwindigkeit des schmelzeblässigen Folienschlauches aus dem Extruder v_E und Abzugsgeschwindigkeit der Abzugswalzen v_A bestimmt wird. Somit wird das Abzugsverhältnis (AZV) nach Gl. 2.2 berechnet.

$$AZV = \frac{v_A}{v_E} = \frac{\rho_M \cdot D_D \cdot s_W}{\rho_E \cdot D_S \cdot d_F} = \frac{\rho_M \cdot s_W}{\rho_E \cdot d_F \cdot ABV} \quad (2.2)$$

mit v_A Abzugsgeschwindigkeit der Abzugswalzen
 v_E Schmelzeaustrittsgeschwindigkeit
 ρ_M Dichte der Schmelze
 s_W Spaltweite
 ρ_E Dichte des Extrudats
 D_S Folienschlauchdurchmesser
 d_F Dicke der flachgelegten Folie

Im Anschluss an den Verstreckprozess, der synchron in Umfangs- und in Längsrichtung erfolgt und wesentlich zur Ausbildung der mechanischen und optischen Eigenschaften der Blasfolie beiträgt, kommt es zur Fixierung der verstreckten Folie an der Frostlinie. Bei der Frostlinienhöhe (FLH) erfolgt der Übergang vom schmelzeblässigen in den festen Zustand. Bis zur Flachlegevorrichtung erfährt der Folienschlauch im Allgemeinen eine weitere Abkühlung um ca. 15 °C bis 20 °C. In der Flachlegevorrichtung (vgl. Bild 2.1) wird der abgekühlte Folienschlauch zusammengelegt und anschließend als Schlauch- oder Flachfolie aufgewickelt. Das Grundprinzip des Blasfolienprozesses ist für die Herstellung von Einschicht- oder Mehrschichtfolien identisch.

Der Blasfolienprozess unterlag im Laufe der Zeit immer wieder Veränderungen und Weiterentwicklungen. Beispielsweise wurde mit zunehmenden Durchsatzmengen die Schlauchinnenkühlung wesentlich verbessert, bei der ein Luftaustausch der Schlauchinnenluft mit gekühlter Luft stattfindet und mit der eine nahezu homogene Abkühlung des Folienschlauches

bezogen auf die Foliendicke möglich wurde [12]. Eine Weiterentwicklung der Schlauchinnenkühlung wurde mit dem Blasfolienprozess mit offenem Schlauch realisiert [15]. Hierbei wird ein Kühlkalibrierkegel in der Schlauchbildungszone (Zone zwischen Austrittsspalt der Schmelze aus dem Blaskopf und der Frostlinie) innerhalb des Folienschlauches platziert, so dass durch den entstehenden ringförmigen Spalt nur geringfügig Kühlluft austreten kann, deren Verlust jedoch durch nachströmende Kühlluft ausgeglichen wird. Der abgekühlte Folienschlauch wird anschließend geschlitzt und als Flachfolie aufgewickelt. Durch die besonders intensive Kühlwirkung des Kühlkalibrierkegels im Inneren des Folienschlauches kann der Massedurchsatz und damit die Produktivität der Blasfolienherstellung deutlich gesteigert werden. Darüber hinaus ermöglicht die Öffnung des Folienschlauches und damit stärkere Abkühlung in der Schlauchbildungszone niedrigere Abzugserüste für die Blasfolienanlage.

2.1.2 Siegelverfahren

Das Siegelverfahren erfolgt im Anschluss an die Bedruckung und Befüllung der zuvor im Blasfolienverfahren hergestellten Peelfolien. Ziel des Siegelverfahrens ist die Verschweißung zweier Peelfolien oder einer Peelfolie und einer Folie bzw. Folienschicht, die aus dem jeweiligen Peelfolien-Matrixmaterial besteht, zu einem Peelsystem. Hierbei hat das Heißsiegelverfahren [16,17], welches neben weiteren Verfahren wie dem Ultraschallsiegeln [18] angewendet wird, eine herausragende Bedeutung erlangt.

Beim Heißsiegelverfahren durchlaufen die zu versiegelnden Folien ein Paar beheizter Siegelbacken, die mit definiertem Druck und definierter Siegelzeit eine Siegelnaht erzeugen. Die Taktzeit dieses Verfahrens wird dabei maßgeblich durch die Schmelztemperatur des verwendeten Folienwerkstoffs, die Siegelzeit und den Siegeldruck bestimmt.

Die beim Heißsiegelverfahren auftretenden physikalischen Bindemechanismen wie Verschlaufungen und Verhakungen der Makromoleküle innerhalb der Grenzschicht sind mit Hilfe verschiedenster Modelle vielfach untersucht worden [16,17,19,20]. Eine schematische Darstellung der beim Siegeln zweier teilkristalliner Folien stattfindenden molekularen Prozesse ist in Bild 2.2 zu sehen. Die beiden Folien werden zunächst in Kontakt gebracht und unter Druck aufgeschmolzen. Hierbei kommt es zur Entschlaufung der Makromoleküle in Grenzschichtnähe. Ist die molekulare Beweglichkeit infolge der eingebrachten Wärme ausreichend groß, kommt es zur Interdiffusion, d.h. zur gegenseitigen Verschlaufung der grenzschichtnahen Makromoleküle der beiden aufgeschmolzenen Folien. Anschließend wird die so realisierte Siegelnaht abgekühlt, wodurch der Re-Kristallisationsprozess eingeleitet wird.

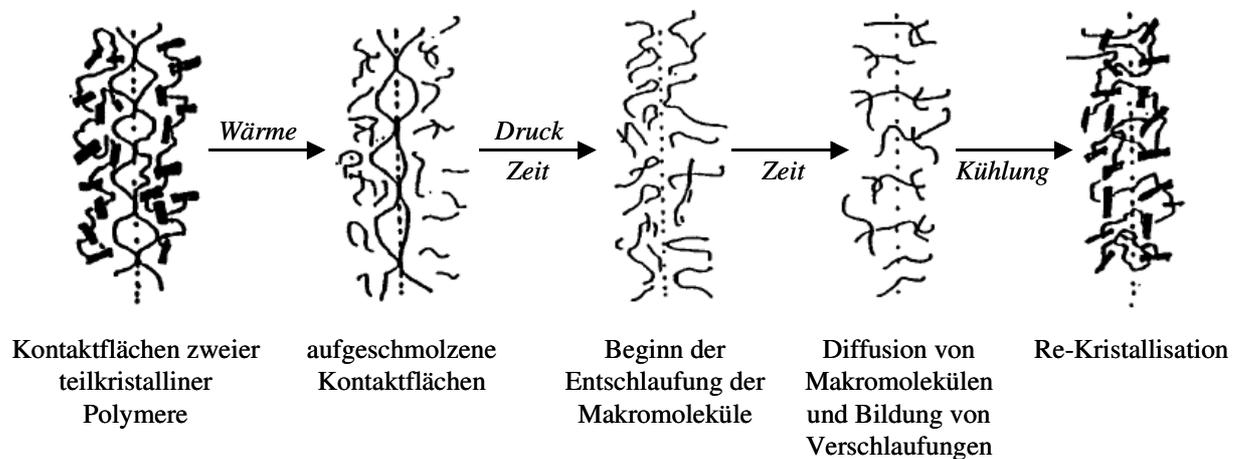


Bild 2.2: Schematische Darstellung der molekularen Prozesse beim Siegeln zweier teilkristalliner polymerer Folien [17]

Die Interdiffusion von Makromolekülen an Grenzflächen von Polymerschmelzen kann beispielsweise mit dem Reptation-Modell beschrieben werden. Das Reptation-Modell wurde von *deGennes* [21,22] zunächst für die Bewegung eines Moleküls in einer vernetzten Matrix aufgestellt, von *Doi* und *Edwards* [23] auf unvernetzte Systeme angewandt und von *des Cloizeaux* [24] weiterentwickelt. Nach diesem Modell legen sich benachbarte Makromoleküle oder Segmente benachbarter Makromoleküle schlaufenartig um das diffundierende Makromolekül (Testkette) und bilden dabei eine Art Tubus (Bild 2.3), wobei die Testkette nur in dieser Röhre reptieren kann, d.h. sich schlangenartig bewegen kann. Die Testkette bahnt sich an den benachbarten Makromolekülen (Hindernissen) vorbei den Weg und legt somit die Bahn der Testkette fest. Triebkraft dieser Reptation, d.h. Kettenbewegung, kann die Brown'sche Molekularbewegung oder eine von außen angelegte Kraft sein. Dabei weicht das System dem äußeren Zwang aus, die Makromoleküle relaxieren. Bei langkettenverzweigten Polymeren wirken die Verzweigungsstellen wie Anker und verlangsamen die Relaxation des Makromoleküls. Dies führt zu einer Verbreiterung des Relaxationszeitspektrums aufgrund der Vielzahl an Prozessen, die zur Relaxation beitragen.

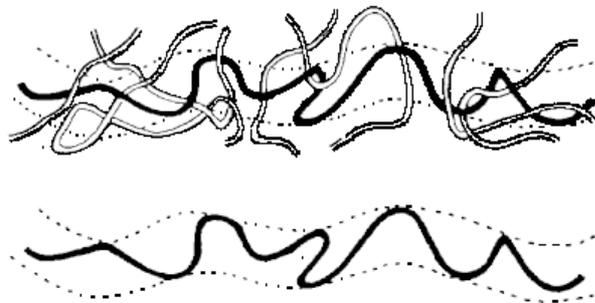


Bild 2.3: Schematische Darstellung der Reptation einer Testkette (schwarz) durch die Ketten bzw. Makromoleküle der Matrix (oberes Teilbild) und Testkette im Tubus der Matrixketten (unteres Teilbild) [25]

Die Testkette benötigt eine Reptationszeit t_{rep} , um sich aus dem Tubus der Länge L_{tub} herauszuwinden. Die Reptationszeit wird nach Gl. 2.3 berechnet.

$$t_{rep} = \frac{L_{tub}^2}{D} \quad (2.3)$$

mit D Selbstdiffusionskoeffizient

Der Selbstdiffusionskoeffizient ist temperaturabhängig und wird nach Gl. 2.4 berechnet.

$$D = \frac{k_B T}{N_{seg} f_{seg}} \quad (2.4)$$

mit k_B Boltzmann-Konstante ($k_B \approx 1,3805 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$)
 T Temperatur
 N_{seg} Anzahl der Kettensegmente
 f_{seg} Reibungsfaktor (der Ketten untereinander)

Bei einer Siegelzeit zweier polymerer Folien von $\frac{1}{2} t_{rep}$ ist die sich ausbildende Grenzschicht mechanisch am stabilsten, da die entsprechenden grenznahen Makromoleküle jeweils zur Hälfte in den beiden Folien verankert sind. Für eine Polymerkette mit ca. 10^4 Kettensegmenten ergibt sich eine theoretische Reptationszeit von etwa 80 bis 100 s [26]. Somit wäre hier die Siegelzeit, die zu maximaler Festigkeit führt, ca. 40 bis 50 s. In der Praxis liegen die Siegelzeiten jedoch nur bei wenigen Sekunden.

Neben dem Reptation-Modell gibt es weitere Modelle wie beispielsweise die Diffusionstheorie [27], die „Mixed Crystal“-Hypothese [28] und die Nexus-Hypothese [29].

2.2 Makroskopischer Aufbau und mikroskopische Struktur von Peelsystemen

2.2.1 Makroskopischer Aufbau

Das Spektrum an verwendbaren polymeren Matrixmaterialien zur Herstellung von funktionellen Verpackungsfolien, denen die Peelfolien zugeordnet werden, ist sehr breit. Die wichtigsten Vertreter, die häufig Gegenstand wissenschaftlicher Untersuchungen waren, sind die thermoplastischen Polymere Polyethylen (PE) [30–34], Polypropylen (PP) [30,31,33–35], Polyamid (PA) [30,31,36,37] und Polyethylenterephthalat (PET) [30,31,38] als teilkristalline Kunststoffe sowie Polystyrol (PS) [30,31,33] und Polyvinylchlorid (PVC) [30,31,39] als amorphe Kunststoffe. Darüber hinaus werden auch Copolymere wie beispielsweise Ethylen-Vinylacetat (EVA) [30,31] als Matrix in Verpackungsfolien verwendet. Ausgewählte allgemeine Anwendungseigenschaften der einzelnen Matrixmaterialien sind in Tabelle A.1 zusammengefasst. Darüber hinaus hängen die Anwendungseigenschaften in hohem Maße von der Struktur und der Verarbeitung ab.

Peelsysteme werden vorrangig aus Peelfolien auf der Basis von PE-LD/iPB-1-Blends hergestellt [2–4]. Das Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1 kann dabei als Einschichtfolie oder als eine funktionale Schicht innerhalb eines Mehrschichtfolienverbundes vorliegen, der beispielsweise Aromasperrschichten [37] oder Barrierschichten gegen Wasserdampfdurchlässigkeit [40,41] als weitere funktionale Folienschichten enthält.

Das PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem wird den kohäsiven Peelsystemen zugeordnet. Darüber hinaus wird zwischen adhäsiven und Reiß-Peelsystemen unterschieden [42].

Das in Bild 2.4a dargestellte kohäsive Peelsystem ist dadurch gekennzeichnet, dass die beiden zu versiegelnden Folien (bzw. Substrat und Deckel) infolge lokalen Aufschmelzens an ihrer Kontaktfläche eine Grenzschicht ausbilden, die als Peel- oder Siegelnaht bezeichnet wird. Die Ausbildung der Grenzschicht der beiden Folien kann sowohl durch physikalische Bindungen, wie Verschlaufungen und Verhakungen, als auch durch chemische Bindungen zwischen den Molekülen erfolgen. Wird ein solches kohäsives System aufgepeelt, finden sich im Anschluss Rückstände der einen (Peel)Folie auf der Peelfläche der anderen wieder. Kohäsive Peelsysteme werden vor allem für Kaffee-, Wurst- und Käseverpackungen verwendet [2], da die kohäsive Siegelnaht infolge molekularer Verschlaufungen in der Grenzschicht im Allgemeinen undurchlässig gegenüber äußerer Einwirkung bestimmter Medien ist.

Beim in Bild 2.4b dargestellten adhäsiven Peelsystem wird im Gegensatz zum kohäsiven Peelsystem der Zusammenhalt durch die gegenseitige Anziehung der beteiligten Folien oder Substrate zum Beispiel durch elektrostatische Wechselwirkungen realisiert. Das Aneinanderhaften zweier Folien kann auch durch ein zusätzliches Aufbringen einer Kleberschicht auf eine der beiden Folien erfolgen. Das Charakteristikum des adhäsiven Peelvorgangs ist eine nahezu rückstandsfreie Ablösung der einen Folie von der anderen bzw. vom Substrat.

Das adhäsive Peelsystem kommt beispielsweise bei Klebestreifen [43] und Stretchfolien [44] zur Anwendung. Im Verpackungssektor wird das adhäsive Peelsystem zum Verschließen von Joghurtbechern angewendet, bei denen ein Aluminiumdeckel von einem Becher aus PP nahezu rückstandsfrei abgepeelt werden kann.

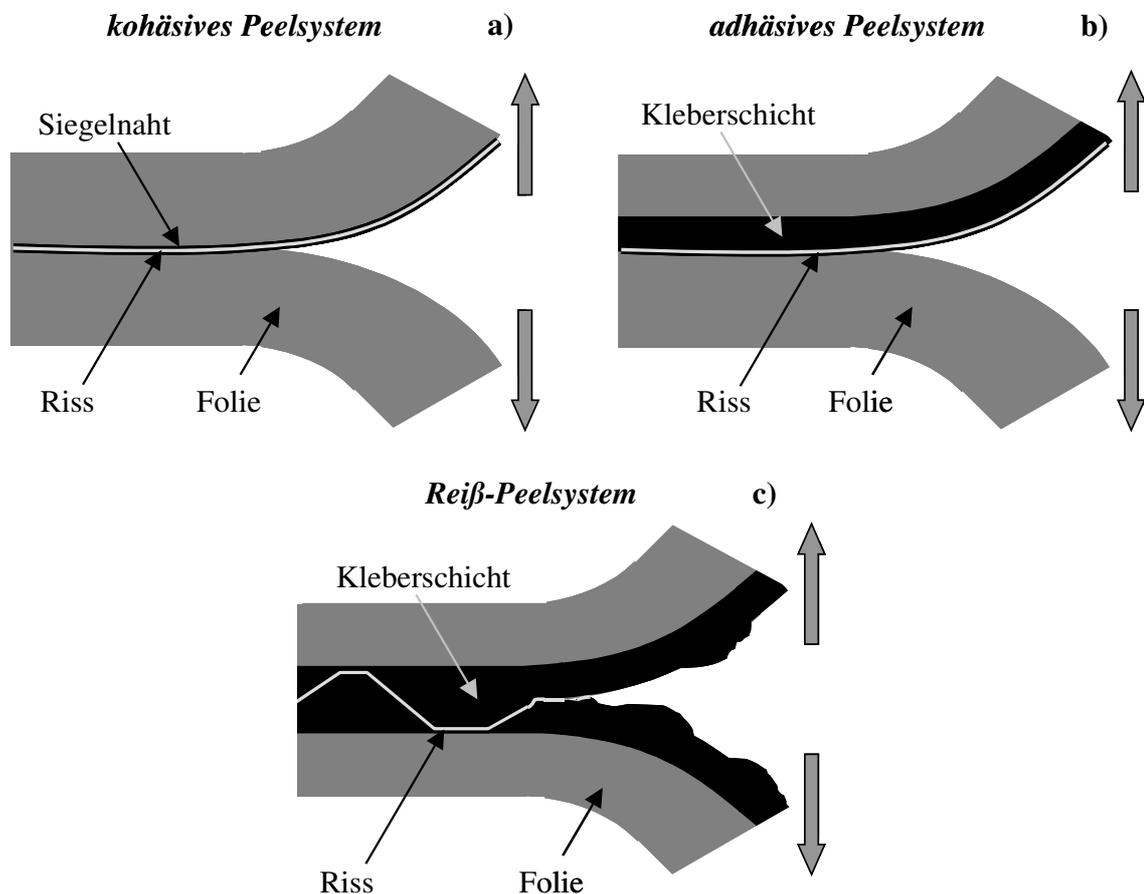


Bild 2.4: Schematische Darstellung verschiedener Peelsysteme: kohäsives Peelsystem (a), adhäsives Peelsystem (b) und Reiß-Peelsystem (c) [42]

Ein weiteres Peelsystem ist das in Bild 2.4c abgebildete Reiß-Peelsystem. Hier breitet sich der Riss beim Peelvorgang über den Querschnitt der Peelschicht aus, so dass im Anschluss an den Peelvorgang große Rückstände der einen (Peel)Folie auf der Peelfläche der anderen wiederzufinden sind. Das Reiß-Peelsystem kann erwünscht sein, oder als Fehlerbild des kohäsiven und adhäsiven Peelsystems auftreten. Eine erwünschte Anwendung des Reiß-Peelsystems stellen beispielsweise die wiederverschließbaren Peelverpackungen dar. Wiederverschließbare Peelsysteme sind Mehrschichtfolien (im Allgemeinen 3-Schichtfolien) bestehend aus einer peelbaren Außenschicht, einer kleberhaltigen Mittelschicht und einer entsprechenden Rückenschicht. Beim im Anschluss an das Siegeln stattfindenden Peelvorgang setzt der hierbei teilweise über den Querschnitt der Peelschicht laufende Riss klebende bzw. haftende Substanzen aus der Mittelschicht frei, die ein Wiederverschließen der Peelfolienverpackung ermöglichen.

2.2.2 Mikroskopische Struktur

Neben dem makroskopischen Aufbau von Peelsystemen kommt der mikroskopischen Struktur der versiegelten Peelfolien eine große Bedeutung zu.

Die sich während der Herstellung im Blasfolienverfahren einstellende mikroskopische Struktur der PE-LD/iPB-1-Peelfolie beeinflusst die werkstofftechnischen Eigenschaften (Bild 2.5) [45–47], wie beispielsweise die Festigkeit und die Transparenz und darüber hinaus maßgeblich die Peeleigenschaften.

Die mikroskopische Struktur der PE-LD/iPB-1-Blasfolie setzt sich aus der chemischen (molekularen) und der physikalischen (übermolekularen) Struktur zusammen. Zur chemischen Struktur gehören das Molekulargewicht, die Molekulargewichtsverteilung, der Verzweigungsgrad im Fall von PE-LD und die Taktizität im Fall von iPB-1 sowie die Konstitution der Makromoleküle [46]. Neben der chemischen Struktur der Blendkomponenten ist die physikalische Struktur von großer Bedeutung für die Eigenschaftsbildung der Blasfolie. Zur physikalischen Struktur gehören das Mischungsverhältnis im Blend, die Phasenstruktur, d.h. das Vorhandensein einer homogenen oder heterogenen oder co-kontinuierlichen Phase(n), die Größe der in der Matrix dispergierten Partikel im Falle einer Matrix-Partikel-Struktur (heterogene Phasenstruktur), der Kristallinitätsgrad und die Gestalt der sich ausbildenden übermolekularen Struktur sowie die Orientierung der kristallinen Phase [46].

Die physikalische Struktur wird durch die chemische Struktur und die Herstellungsbedingungen maßgeblich beeinflusst. Somit kommt dem Herstellungsprozess der PE-LD/iPB-1-Blasfolie einer gegebenen chemischen Struktur eine große Bedeutung hinsichtlich der Ausbildung der physikalischen Struktur zu.

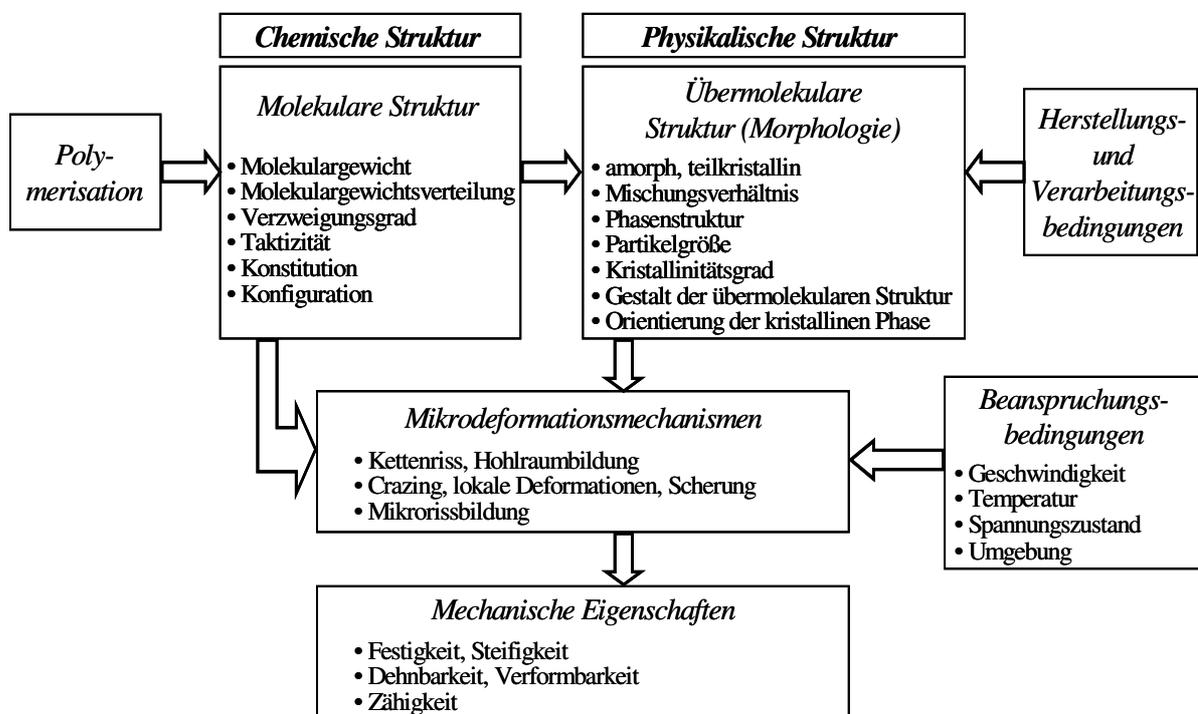


Bild 2.5: Zusammenhang zwischen Struktur, Einflussbedingungen und mechanischen Eigenschaften von Polymeren [45–47]

Für Peelfolienanwendungen liegt die iPB-1-Konzentration im PE-LD/iPB-1-Blend üblicherweise bei bis zu 20 M.-%. Innerhalb dieses Mischungsverhältnisses führt das Mischen von PE-LD und iPB-1 im Schmelzzustand zur Ausbildung einer Matrix-Partikel-Struktur, da PE-LD und iPB-1 thermodynamisch unverträglich sind [2–4]. Die thermodynamische Unverträglichkeit resultiert aus der gegebenen chemischen Struktur der beiden Blendkomponenten. Somit kristallisieren die Blendkomponenten PE-LD und iPB-1 separat und bilden eine entsprechende übermolekulare Struktur aus.

Übermolekulare Struktur von PE-LD

Die übermolekulare Struktur von PE-LD war in der Vergangenheit Gegenstand vieler wissenschaftlicher Studien [48–61]. Blasfolien aus Polyethylen kristallisieren im Allgemeinen unvollständig unter Bildung von Lamellen durch Kettenfaltung [53,56,57]. Die Molekülhauptkette von PE ist parallel zur c-Achse der orthorhombischen PE-Elementarzelle (Bild 2.6) [46] und auch parallel zur Lamellendicke [45] ausgerichtet.

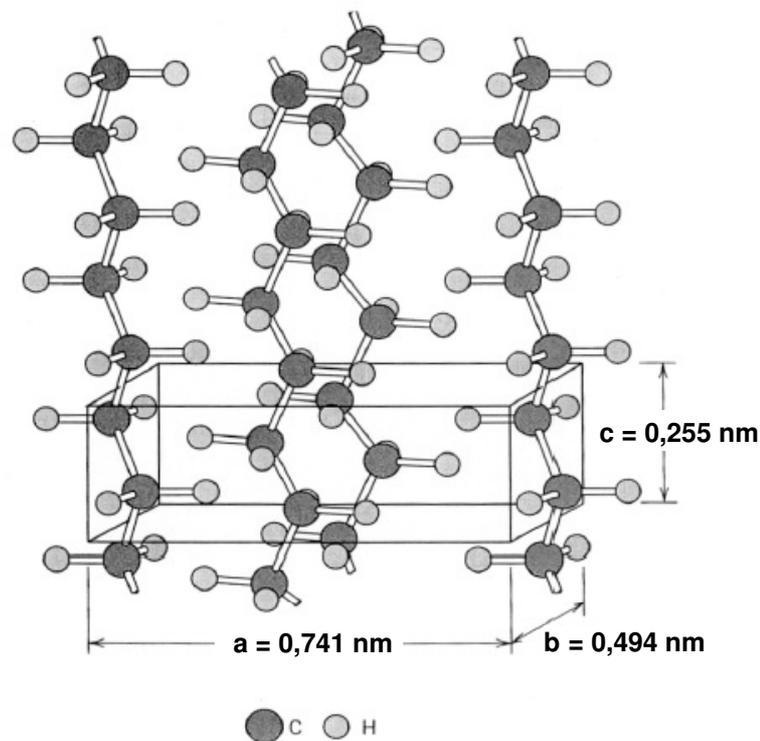


Bild 2.6: Darstellung der Molekülhauptkette von Polyethylen und der zugehörigen orthorhombischen Elementarzelle [46]

PE-Blasfolien sind im Allgemeinen teilkristallin und weisen einen maximalen Kristallinitätsgrad auf, der von der molekularen Architektur bzw. dem Verzweigungsgrad abhängt. Die Orientierung der kristallinen Phase ist abhängig von den Prozessparametern des Blasfolienprozesses, insbesondere vom Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung und der Kühlung der Blasfolie.

Die Orientierung der kristallinen Phase (auch als Textur bezeichnet) ist von entscheidender Bedeutung für die werkstoffmechanischen Eigenschaften der Blasfolie und auch ihrer Richtungsabhängigkeit. Die Textur von Blasfolien aus PE wurde anhand von röntgenographi-

schen Analysen vielfach untersucht. Ursprünglich beobachteten *Holmes* und *Palmer* [48] an PE-LD-Blasfolien mit einem kleinen Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung eine uniaxiale a-Textur, d.h. die a-Achse der orthorhombischen Elementarzelle von PE ist parallel zur Maschinenrichtung (MR) orientiert. Die b- und c-Achse sind rotationssymmetrisch um die a-Achse verteilt. Das aus diesen Untersuchungen hervorgehende a-Achsen-Modell nach *Holmes* und *Palmer* [48] ist im Schema in Bild 2.7 dargestellt.

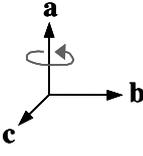
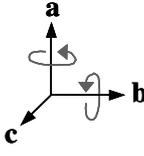
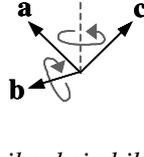
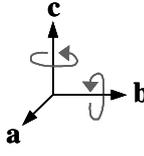
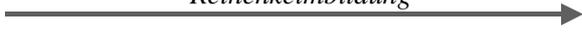
a-Achsen-Modell (nach Holmes und Palmer)	Reihenkeimbildungs-Modell (nach Keller und Machin)		
	Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung (AZV/ABV) der Blasfolie		
	niedrig („low-stress“)	mittel („intermediate-stress“)	hoch („high-stress“)
			
uniaxiale a-Textur			
			
	uniaxiale a-Textur	Zwischenlagetextur	uniaxiale c-Textur

Bild 2.7: Schematische Darstellung des a-Achsen-Modells [48] und des Reihenkeimbildungs-Modells [51]

Die von *Holmes* und *Palmer* gefundene a-Textur an Blasfolien aus PE-LD wurde durch die Untersuchungen von *Keller* und *Machin* [51] bestätigt, die ebenfalls für kleine Verhältnisse von Längs- zu Querverstreckung eine uniaxiale a-Textur beobachteten (vgl. Bild 2.7). Darüber hinaus stellten *Keller* und *Machin* fest, dass eine Erhöhung des Verhältnisses von Längs- zu Querverstreckung der Blasfolie zu einer Zwischenlageorientierung führt, d.h. sowohl die a-Achse als auch die c-Achse sind unter einem Winkel von ca. 45° in Bezug zur MR orientiert (vgl. Bild 2.7). Die Zwischenlagetextur wurde insbesondere an Folien aus PE-HD [56,62] und PE-LLD [51,59,61] beobachtet. Darüber hinaus postulierten *Keller* und *Machin* eine uniaxiale c-Textur für Blasfolien mit einem sehr großen Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung (vgl. Bild 2.7).

Eine a-Textur an PE-LD-Blasfolien wurde ebenfalls von *Aggarwal et al.* [49], *Haberkorn et al.* [53] und *Tagawa* [54] beobachtet. Im Gegensatz zu den genannten Autoren interpretierten *Keller* und *Machin* [51] jedoch die Röntgenaufnahmen in dem Sinne, dass die a-Achse und die c-Achse um die zur Maschinenrichtung senkrecht orientierte und mehr oder weniger rotationssymmetrisch um diese verteilte b-Achse rotieren. Diese komplizierte Kristallitverteilung liegt in einer durch Reihenkeime entstandenen Reihenstruktur dann vor, wenn die senkrecht zur Maschinenrichtung in Richtung der b-Achse gewachsenen Lamellen um die b-Achse toridiert sind (im Falle von PE ist die b-Achse die Wachstumsrichtung der Lamellen). Nach

Keller und *Machin* nimmt der Grad der Reihenkeimbildung mit zunehmendem Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung zu, da die Kristallisation durch Reihenkeimbildung unter Spannung („stress“) abläuft und diese mit zunehmendem Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung immer größer wird.

Parallel zur Kristallisation durch Reihenkeime kann unter bestimmten Bedingungen eine Kristallisation von der Folienoberfläche ausgehend stattfinden, die als Transkristallisation bezeichnet wird [51,52,57,58]. Die auf der noch schmelzeflüssigen Folienoberfläche befindlichen Kristallkeime behindern sich gegenseitig und somit erfolgt das Wachstum dieser Kristallite in Normalenrichtung (NR) der Blasfolie. Bei starker Abkühlung und/oder großem Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung ist dieser Effekt unterdrückt (vgl. Bild 2.7). Das Reihenkeimbildungs-Modell nach *Keller* und *Machin* [51] fand bei vielen Texturuntersuchungen an PE-Blasfolien Anwendung [56–58,61]. Es wurde jedoch beispielsweise von *Haberhorn* [53] kritisch diskutiert, der eine Torsion der Lamellen aufgrund der röntgenographischen und der transmissionselektronenmikroskopischen Ergebnisse, die zu Zeiten *Kellers* und *Machins* noch nicht angefertigt werden konnten, ausschloss.

Eine Untersuchung der Morphologie von PE-Blasfolien führt somit nur unter Anwendung einer Vielzahl von Methoden wie beispielsweise Röntgenstreuungsmethoden, Elektronenmikroskopie, Polarisationsmikroskopie und anderen zu sinnvollen Interpretationen der Ergebnisse [53].

Darüber hinaus ist beim Reihenkeimbildungs-Modell die Quantifizierung für ein kleines, mittleres und großes Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung nicht eindeutig dokumentiert, da die Textur neben den Verstreckverhältnissen auch von der Kühlung des Folienschlauches während des Blasfolienprozesses beeinflusst wird. Beispielsweise misst *Pazur* [58] bei einem Abzugsverhältnis von 1:8 und einem Aufblasverhältnis von 1:2 immer noch eine uniaxiale a-Textur. Weiterhin ist die Relaxationszeit bzw. die molekulare Beweglichkeit des Polyethylens für die Texturausbildung von besonderer Bedeutung [59]. *Guichon et al.* [59] stellten fest, dass die Texturausbildung für ein metallocen-katalysiertes PE-LLD aufgrund der geringen Relaxationszeit und somit großen molekularen Beweglichkeit in der Schmelze weniger ausgeprägt ist als für ein ziegler-natta-katalysiertes PE-LLD, bei dem die Relaxationszeit deutlich über der Einfrierzeit in der Schlauchbildungszone liegt.

Übermolekulare Struktur von iPB-1

Die übermolekulare Struktur von iPB-1 wurde vorrangig an Gießfolien untersucht [63,64]. Hierbei fand ausschließlich eine Orientierung der Moleküle/Kristallite in Maschinenrichtung statt. Die Kristallisation von iPB-1 unterscheidet sich von der von PE aufgrund der unterschiedlichen molekularen Struktur. Gießfolien aus iPB-1 kristallisieren unvollständig bei einer hohen Kühlrate unter Bildung von Nadelkristallen (Bild 2.8a). Nadelkristalle bestehen aus mehreren parallel orientierten Molekülketten. Die Stirn- und die Seitenflächen der Nadelkristalle wirken als physikalische Verbindungsstellen mit der amorphen Phase. Im Gegensatz zu PE, bei dem eine Orientierung der Makromoleküle parallel zur Lamellendicke vorliegt, sind die Makromoleküle in den iPB-1-Nadelkristallen parallel zur Längsachse orientiert.

An iPB-1-Gießfolien wurde von *Fujiwara* [65] eine uniaxiale c-Textur beobachtet, d.h. die Nadelkristalle sind mit ihrer Längsachse parallel zur MR orientiert. Eine c-Textur wurde von *Hashimoto* [66] auch für Blasfolien aus iPB-1 gefunden.

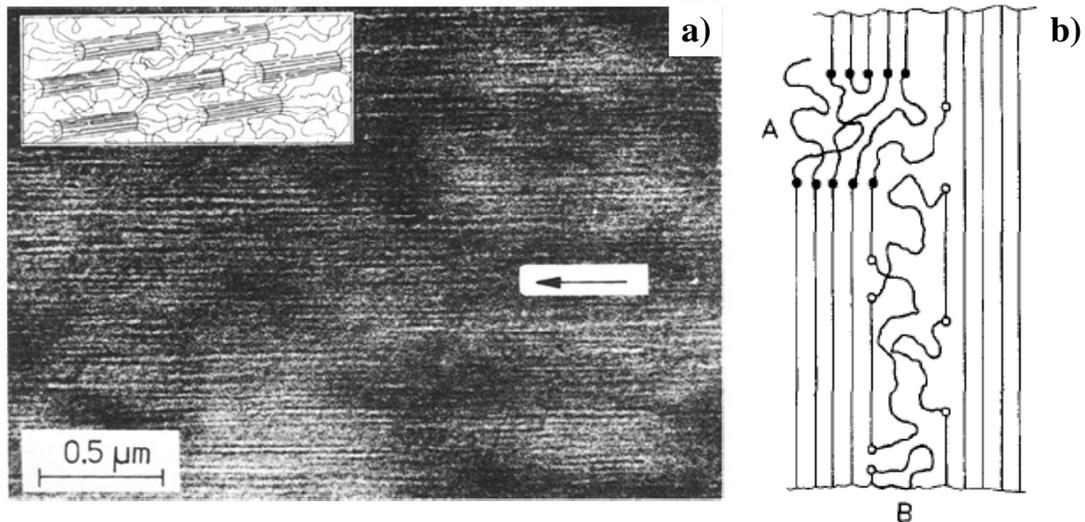


Bild 2.8: Elektronenmikroskopische Aufnahme der Nadelkristalle (dunkle Bereiche) und eine schematische 3D-Darstellung ihrer Morphologie; der Pfeil markiert die MR [63] (a) und vergrößerte schematische 2D-Darstellung der Morphologie der Nadelkristalle, ● repräsentiert die physikalischen Verbindungsstellen am Ende der Nadelkristalle (Region A), ○ repräsentiert die seitlichen physikalischen Verbindungsstellen der Nadelkristalle (Region B) [64] (b)

Darüber hinaus findet bei iPB-1 im Anschluss an die Kristallisation aus der Schmelze eine Umwandlung der hexagonalen in die tetragonale Kristallmodifikation (II→I-Umwandlung) in Abhängigkeit von den Kristallisationsbedingungen statt.

Polybuten-1 ist polymorph, d.h. die kristalline Phase kann in verschiedenen Kristallmodifikationen vorkommen. Die polymorphen Kristallmodifikationen von iPB-1 sind Form I, II, III, I' und II' (Tabelle A.2). Die Ausbildung der einzelnen polymorphen Kristallmodifikationen hängt von den thermodynamischen Bedingungen der Kristallisation aus der Schmelze oder aus der Lösung (Amylacetatlösung) und den speziellen Prozessparametern ab [67–70].

Die Kristallisation aus der Lösung ermöglicht die Ausbildung der Modifikationen I', II und III und wird durch den Lösungsprozess und die Kristallisationstemperatur gesteuert [71]. Die Kristallisation aus der Schmelze ermöglicht die Ausbildung der Modifikation II unter Umgebungsdruck [72,73] und die Ausbildung der Kristallmodifikation III bei Anwesenheit eines speziellen Nukleierungsmittels [69,70]. Bei erhöhtem Druck von etwa 100 MPa [68,71] wird die Ausbildung der Kristallmodifikation I' begünstigt. Darüber hinaus können bei einer Kristallisation während der Polymerisation ebenfalls die Kristallmodifikationen I' und III gebildet werden [73].

Die Kristallmodifikationen I und I' sind hinsichtlich ihrer Kristallstruktur identisch. Die Notation „,““ bei der Kristallmodifikation I' bedeutet, dass diese Kristallmodifikation direkt aus der Schmelze oder Lösung während der Polymerisation gebildet wurde. Im Gegensatz dazu wird die Kristallmodifikation I durch eine Umwandlung der Kristallmodifikation II in die Kristallmodifikation I (II→I-Umwandlung) gebildet. Die Kristallmodifikationen I und I' weisen eine hexagonale Elementarzelle auf und die Moleküle bilden eine 3_1 -Helix-Konformation aus. Der unterschiedliche Weg zur Bildung der Kristallmodifikationen I und I' führt zu Unterschieden in der Kristallperfektion. Somit weist die weniger perfekte Kristallmodifikation I' eine niedrigere Schmelztemperatur auf (vgl. Tabelle A.2) [68,71,74]. Ähnlich verhält es sich bei den Kristallmodifikationen II und II'. Modifikation II' wird bei erhöhtem Druck gebildet und weist ebenfalls weniger perfekte Kristallite im Vergleich zu Modifikation II und folglich auch eine niedrigere Schmelztemperatur auf (vgl. Tabelle A.2) [74]. Die Kris-

tallmodifikationen II und II' haben eine tetragonale Elementarzelle und die Moleküle bilden eine 11_3 -Helix-Konformation aus. Kristallmodifikation III hat eine orthorhombische Elementarzelle und die Moleküle sind in einer 4_1 -Helix-Konformation angeordnet [75].

Die unterschiedlichen Kristallmodifikationen des iPB-1 sind durch Tempern bei definierten Temperaturen ineinander umwandelbar [71,76]. In der vorliegenden Arbeit steht die II→I-Umwandlung bei Raumtemperatur im Vordergrund. Nach erfolgter Kristallisation von iPB-1 aus der Schmelze bei Umgebungsdruck wird die weniger stabile tetragonale Kristallmodifikation II gebildet, die sich spontan in die stabile Kristallmodifikation I bei Raumtemperatur umwandelt [65,73,75,77–82]. Die II→I-Umwandlung ist mit einem Volumenschumpf von ca. 5 % verbunden, der im Kompaktmaterial iPB-1 zu Spannungen und Mikrorissen führen kann [75]. Die Umwandlung der Kristallmodifikationen erfolgt durch Nukleierung an den lokal unter Spannung stehenden Kristallitflächen, dennoch ist der exakte Mechanismus auf mikroskopischer Ebene noch nicht vollständig aufgeklärt.

Die Kinetik der II→I-Umwandlung ist einerseits abhängig von der chemischen Struktur des Makromoleküls, insbesondere vom Molekulargewicht, der Taktizität und dem Vorhandensein bestimmter Comonomere, und andererseits von der physikalischen Struktur, die durch die Prozessparameter bei der Herstellung bestimmt wird. Darüber hinaus wurde von *Alfonso et al.* [77] und *Azzurri et al.* [78] festgestellt, dass die II→I-Umwandlung beschleunigt abläuft, wenn die vorangegangene Kristallisation der Kristallmodifikation II bei niedrigen Temperaturen erfolgt. Da eine Kristallisation bei niedrigeren Temperaturen zu kleineren Kristalliten führt, wird ein beschleunigter Ablauf der II→I-Umwandlung aufgrund der größeren Anzahl an Nukleierungsmöglichkeiten vermutet.

Weiterhin ist die Kinetik der II→I-Umwandlung von thermodynamischen Parametern wie Temperatur und Druck abhängig [68,80] sowie vom Vorhandensein einer zweiten Komponente (Additiv oder Polymer) [82]. Die II→I-Umwandlung kann zwischen -25 °C , der Glasübergangstemperatur von iPB-1, und ca. 60 °C erfolgen. Die größte Umwandlungsgeschwindigkeit der II→I-Umwandlung wurde zwischen 20 und 40 °C , nahe Raumtemperatur beobachtet [77]. Mittels quantitativer kalorimetrischer Messungen der Umwandlungsgeschwindigkeit der II→I-Umwandlung eines speziellen, bei 50 °C kristallisierten iPB-1 mit einem Molekulargewicht von $525\,000\text{ g mol}^{-1}$ wurde eine nahezu vollständige II→I-Umwandlung bei 20 °C nach ca. 200 Stunden ermittelt [77]. Allgemein kann festgestellt werden, dass sowohl Druck als auch mechanische Deformationen die Umwandlungsgeschwindigkeit der II→I-Umwandlung erhöhen, da hierbei der Grad der Nukleierung erhöht wird.

Darüber hinaus wird die Umwandlungsgeschwindigkeit durch die Anwesenheit von Additiven erhöht, da sie zusätzliche Oberflächen bilden, welche die Ausbildung der Kristallmodifikation I unterstützen. Studien, die sich mit der Bewertung des Einflusses einer zweiten Komponente auf die Umwandlungsgeschwindigkeit der II→I-Umwandlung befassen, beinhalten vorrangig die Untersuchung von niedermolekularen Komponenten wie beispielsweise Biphenyl, Stearinsäure, Dioctylphthalat und 1-Naphtylacetamid sowie von nanoskaligen Füllstoffen und Polymeren wie beispielsweise isotaktischem Polypropylen und PE-HD [82–84]. Das Blenden von iPB-1 mit Polypropylen führt zu einer Erhöhung der Umwandlungsgeschwindigkeit der II→I-Umwandlung [83]. Im Gegensatz zur beschriebenen langwierigen II→I-Umwandlung in reinem iPB-1, vollzieht sich die II→I-Umwandlung in iPB-1/iPP-Blend mit 25 M.-% iPP in 72 h. Die Erhöhung der Umwandlungsgeschwindigkeit ist auf die ähnliche Helix-Konformation der Makromoleküle der monoklinen α -Form von iPP und der hexagonalen Kristallmodifikation I von iPB-1 zurückzuführen.

2.3 Eigenschaftsniveau von Peelsystemen – Werkstoffliche und technologische Einflussfaktoren

2.3.1 Einfluss der Rezeptur

Der Peeleffekt in kohäsiven Peelsystemen wird im Allgemeinen durch das Einmischen eines definierten Masseanteils einer zur Polymermatrix unverträglichen, im Unterschuss vorliegenden polymeren Komponente (Peelkomponente) realisiert. Somit kommt der Rezeptur der Peelfolie, d.h. der Blendzusammensetzung des verwendeten Peelfolienblendsystems, eine entscheidende Bedeutung bei der Ausbildung der Peeleigenschaften zu.

In der Praxis werden vorrangig PE-LD/iPB-1- [2–4,42], PE-LLD/iPB-1- [42] und EVA/iPB-1-Peelfolienblendsysteme [4] verwendet. Darüber hinaus sind auch weitere unverträgliche Blendsysteme wie beispielsweise PE-LD/PA für eine Anwendung als Peelfolienblendsystem denkbar.

Stober [3], *Hwo* [4] und *Roucourt* [42] untersuchten den Einfluss der Peelkomponente auf die Peelkraft für das Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1. Darüber hinaus war das Peelfolienblendsystem EVA/iPB-1 Gegenstand der Untersuchungen von *Hwo* [4]. In Bild 2.9 ist am Beispiel der Peelfolienblendsysteme PE-LD/iPB-1 und EVA/iPB-1 die Peelkraft in Abhängigkeit des iPB-1-Masseanteils dargestellt [4]. Bis zu einem iPB-1-Masseanteil von 8 M.-% wurde kein definierter Peelvorgang beobachtet. Eine Erhöhung des Anteils der Peelkomponente von 8 auf 25 M.-% führt zu einer Verminderung der Peelkraft um 75 %. Zu gleichsinnigen Ergebnissen gelangten sowohl *Roucourt* [42] als auch *Stober* [3], die für PE-LD/iPB-1 eine Verminderung der Peelkraft um 70 % bei einer Erhöhung des iPB-1-Masseanteils von 10 auf 25 M.-% ermittelten. Im Ergebnis der Untersuchungen stellte *Hwo* [4] sowohl für PE-LD/iPB-1 als auch für EVA/iPB-1 fest, dass eine Erhöhung des Anteils der Peelkomponente iPB-1 über 50 M.-% ebenfalls zu einem kontrollierbaren Peelvorgang führt, da nun die ursprüngliche Peelkomponente zur Matrix und die ursprüngliche Matrix zur Peelkomponente wird.

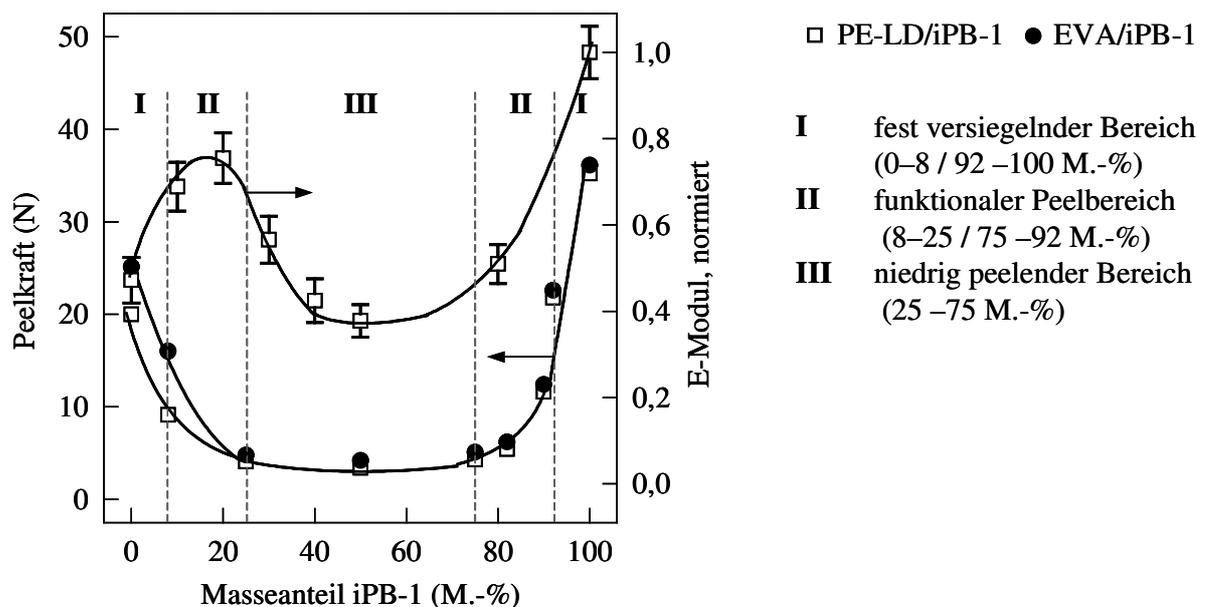


Bild 2.9: Peelkraft eines PE-LD/iPB-1- und eines EVA/iPB-1-Peelfolienblendsystems (Siegelnahtbreite = 25,4 mm; einfache Foliendicke = 50 μ m; Siegeltemperatur = 130 $^{\circ}$ C) [4] und E-Modul einer PE-LD/iPB-1-Folie [85] in Abhängigkeit vom iPB-1-Masseanteil

Allgemein können nach *Hwo* [4] die in Bild 2.9 dargestellten Peelbereiche unterschieden werden. Der festversiegelnde Bereich I liegt üblicherweise zwischen 0 und 8 M.-% der Peelkomponente. Hier peelt die Siegelnaht nicht kontrollierbar auf, sondern es kommt zum mechanischen Versagen der Peelfolie durch Reißen. Der eigentliche funktionale Peelbereich (Bereich II) liegt nach *Hwo* [4] zwischen 8 und 25 M.-% iPB-1 und nach *Stober* [3] und *Roucourt* [42] zwischen 12 und 20 M.-% iPB-1. Die Peelkraft nimmt hier mit größer werdendem Anteil der Peelkomponente ab. Somit ist in diesem Bereich eine definierte Einstellung der Peelkraft möglich und die Siegelnaht kann kontrolliert geöffnet werden. Im Bereich III, der üblicherweise zwischen 25 und 75 M.-% iPB-1 [4] bzw. zwischen 20 und 80 M.-% iPB-1 [3] liegt, ist die Peelkraft auf einem konstant niedrigen Niveau, d.h. eine definierte Einstellung der Peelkraft ist hier nicht möglich.

Hwo [4] stellte weiterhin fest, dass die Peelkräfte beim Peelfolienblendsystem EVA/iPB-1 um bis zu 25 % kleiner sind als beim Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1. Dieser Effekt wurde auf die geringere Affinität von EVA und iPB-1 im Vergleich zu PE-LD und iPB-1 zurückgeführt.

Die Peelfolienblendzusammensetzung hat nicht nur Einfluss auf die Peeleigenschaften, sondern auch auf werkstoffmechanische Eigenschaften wie den E-Modul. *Gohil et al.* [85] untersuchten an PE-LD/iPB-1-Folien den Zusammenhang zwischen Blendzusammensetzung, Struktur und Steifigkeit. Hierbei wurde der E-Modul in Abhängigkeit des iPB-1-Masseanteils ermittelt, dessen Verlauf neben der Abhängigkeit der Peelkraft vom iPB-1-Masseanteil in Bild 2.9 dargestellt ist. Der von der Mischungsregel abweichende Verlauf des E-Moduls wird von *Gohil et al.* [85] mit der sich ausbildenden unterschiedlichen übermolekularen Struktur für unterschiedliche Blendzusammensetzungen erklärt. Für iPB-1-Masseanteile bis 20 M.-% und von 50 bis 100 M.-% iPB-1 wurde eine Kristallisation des PE-LD-Blendanteils in Form einer Shish-Kebab-Struktur (Schaschlik-Struktur) [86] beobachtet. Im Gegensatz dazu kristallisiert der PE-LD-Blendanteil bei iPB-1-Masseanteilen von 20 bis 50 M.-% in Form von orientierten Lamellen. Die orientierten Lamellen weisen eine geringere Steifigkeit als die Shish-Kebab-Struktur auf, womit die Verminderung des E-Moduls im mittleren Teil des Kurvenverlaufs zwischen 20 und 50 M.-% iPB-1 erklärt wird.

In der Praxis wird Blasfolien eine geringe Menge Antiblockmittel (meist feinkörnige kristalline Substanzen wie zum Beispiel SiO_2 , die aus der Folienoberfläche herausragen) zugesetzt um ein Zusammenkleben des flachgelegten Folienschlauches zu vermeiden. *Roucourt* [42] konnte einen Einfluss von Antiblockmittel auf die Peeleigenschaften eines PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems nachweisen. Eine Zugabe von 8000 ppm Antiblockmittel führte zu einer Erhöhung der Peelkraft um 26 % im Vergleich zur Referenz (PE-LD/iPB-1 ohne Antiblockmittel).

Weiterhin wurde in [42] der Einfluss der Schmelzmassefließrate (MFR) der Polymermatrix PE-LD und der Peelkomponente iPB-1 auf das Peelverhalten untersucht. Während die Schmelzmassefließrate von PE-LD keinen signifikanten Einfluss auf das Peelverhalten hat, konnte eine Verminderung der Peelkraft um bis zu 68 % bei Verwendung eines iPB-1-Typs mit einer um 90 % erhöhten Schmelzmassefließrate festgestellt werden. Eine gleichsinnige Abhängigkeit der Peelkraft von den MFR-Werten des verwendeten iPB-1 wurde auch von *Hwo* [4] gefunden. Die Verminderung der Peelkraft wurde mit einer feineren Dispergierung der Peelkomponente infolge der größeren Mobilität in der Schmelze mit zunehmenden MFR-Werten in Zusammenhang gebracht.

Der Einfluss der Rezeptur bzw. der Peelfolienblendzusammensetzung auf die Peeleigenschaften ist in Bild 2.10 zusammenfassend dargestellt.

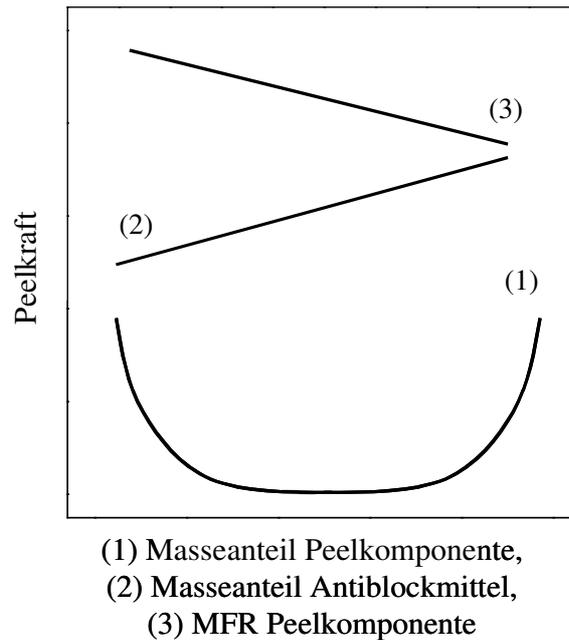


Bild 2.10: Schematische Darstellung des Einflusses von iPB-1-Masseanteil, Antiblockmittel-Gehalt und Schmelzmassefließrate der Peelkomponente auf die Peelkraft [2–4,42]

Mit zunehmendem Masseanteil der Peelkomponente bis maximal 50 M.-% wird die Peelkraft nicht-linear vermindert, so dass bei Kenntnis dieses funktionalen Zusammenhangs eine definierte bzw. kundenorientierte Einstellung der Peelkraft möglich ist. Für größere Massenanteile dreht sich die Zuordnung Matrix/Peelkomponente bei gleichsinniger Abhängigkeit um. Die Zugabe von Antiblockmittel zur Peelfolienrezeptur führt zu einer Erhöhung der Peelkraft. Eine Verminderung der Peelkraft wird durch Verwendung einer leicht fließenden Peelkomponente erreicht.

2.3.2 Einfluss der Prozessparameter

Neben der Rezeptur haben die Prozessparameter einen großen Einfluss auf die werkstoffmechanischen Eigenschaften der Peelfolie und insbesondere auf die Peeleigenschaften des verwendeten Peelsystems.

Der Einfluss der Prozessparameter des Blasfolienprozesses auf die übermolekulare Struktur und folglich auf die werkstoffmechanischen Eigenschaften wurde in den letzten 40 Jahren eingehend an Polyethylenfolien untersucht [11,15,47,50,52,87–95].

Das Temperaturprofil des Extruders beeinflusst die Verarbeitbarkeit und auch die Viskositäten der beteiligten polymeren Komponenten, da die Viskosität temperaturabhängig ist. Die Viskositäten der Polymere im Fall einer Polymermischung sind wiederum bei der Ausbildung der Phasenmorphologie von Bedeutung. Jedoch hat das Temperaturprofil des Extruders und somit die Temperatur der Schmelze kaum einen Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften der Folie, wie beispielsweise auf den E-Modul [88].

Ein weiterer wichtiger Prozessparameter ist die Spaltweite im Blaskopf, die indirekt das Abzugsverhältnis bei Konstanthalten der Foliendicke beeinflusst [11,47,89,92,95]. Mit größer werdender Spaltweite und somit größerem Abzugsverhältnis nimmt die Durchstoßfestigkeit zum Beispiel von Blasfolien aus PE-LLD zu [95]. Diese Abhängigkeit wurde mit

einer Zunahme der Kristallitgröße in Zusammenhang gebracht. Zu ähnlichen Ergebnissen kamen *Patel et al.* [47], die zusätzlich die Abhängigkeit der Durchstoßfestigkeit vom Aufblasverhältnis untersuchten. Eine Vergrößerung der Spaltweite von 1,0 mm auf 2,5 mm bei gleichzeitiger Vergrößerung des Aufblasverhältnisses von 1:2 auf 1:3 bewirkt eine Erhöhung der Durchstoßfestigkeit einer PE-LLD-Folie um 60 %. Darüber hinaus hat *Desper* [52] an Blasfolien aus PE-LD beobachtet, dass mit einer Zunahme des Anteils an Transkristallisation (vgl. Bild 2.7) infolge geringerer Abkühlung eine Abnahme der Durchstoßfestigkeit einhergeht. Nach *Desper* [52] ist somit eine transkristallisierte Oberflächenschicht bruchanfälliger als eine Folienschicht ohne diese Orientierung.

Weiterhin wurde von *Patel et al.* [47] der Weiterreißwiderstand in Maschinenrichtung der Blasfolie bei dynamischer Beanspruchung in Abhängigkeit des Aufblasverhältnisses und der Spaltweite untersucht. Hierbei führt die Verstreckung der Molekülketten in MR durch Vergrößerung des Abzugsverhältnisses mittels Erhöhung der Spaltweite und Verminderung des Aufblasverhältnisses zu einem geringen Weiterreißwiderstand. Beispielsweise bewirkt eine Vergrößerung der Spaltweite von 1,0 mm auf 2,5 mm bei gleichzeitiger Verminderung des Aufblasverhältnisses von 1:3 auf 1:2 eine Verminderung des Weiterreißwiderstandes um 22 %.

Somit tragen sowohl das Aufblasverhältnis als auch das Abzugsverhältnis (bzw. indirekt über die Variation der Spaltweite) maßgeblich zur Ausbildung der werkstoffmechanischen Eigenschaften bei, wie auch *Small et al.* [94] feststellten, die eine Verminderung des E-Moduls mit steigendem ABV beobachteten.

Das ABV und das AZV beeinflussen insbesondere das Schrumpfverhalten der Blasfolie aufgrund der eingebrachten Orientierung [47,96]. Beispielsweise bewirkt eine Erhöhung des ABV und des AZV um 80 % bei PE-LLD-Folien eine Zunahme des Schrumpfes um 18 % [47].

Das Abzugsverhältnis kann nicht nur durch Veränderung der Spaltweite bei konstanter Foliendicke, sondern auch durch Variation der Abzugsgeschwindigkeit bei abnehmender Foliendicke variiert werden. Die Abzugsgeschwindigkeit wiederum beeinflusst die Frostlinienhöhe, bei der der vormals schmelzeflüssige Folienschlauch nahezu vollständig kristallisiert ist und somit die eingebrachten Orientierungen fixiert sind.

Neben dem ABV und dem AZV wird die Kühlung des Folienschlauches als ein integraler eigenschaftsbestimmender Prozessparameter angesehen [11,87–91,93,95]. Die Kühlung des Folienschlauches ist abhängig von der Temperatur, der Strömungsgeschwindigkeit und vom Anblaswinkel der Kühlluft [11,89,93]. Eine schnelle Abkühlung führt im Allgemeinen zu einer schnelleren Kristallisation und somit zu kleineren Kristalliten und Abnahme der Lamellendicke [97]. Hierdurch erscheint die Folie klarer und hat eine sehr niedrige Trübung [93]. Darüber hinaus geht mit einer niedrigeren Trübung auch eine glattere Oberflächenbeschaffenheit einher [98].

Die Prozessparameter beeinflussen nicht nur die werkstoffmechanischen Eigenschaften der Peelfolie, sondern auch die Peeleigenschaften des entsprechenden Peelsystems.

Die in der Literatur beschriebenen Untersuchungen zum Einflusses der Prozessparameter auf die Peeleigenschaften von Peelsystemen wurden hauptsächlich an adhäsiven [94,99–102] und weniger an kohäsiven Peelsystemen [4,103] durchgeführt.

Morris [100] untersuchte den Einfluss verschiedener Prozessparameter auf das Peelverhalten einer Ethylen-Acrylsäure-Copolymer-Folie, die von einem Aluminium-Substrat abgezogen wurde. Hierbei führte eine geringe Prozessgeschwindigkeit bei der Herstellung der Ethylen-Acrylsäure-Copolymer-Folie zu einer hohen Peelkraft beim Peelen vom Aluminium-Substrat.

Darüber hinaus wurde in [100] festgestellt, dass große Verstreckverhältnisse in Längs- und in Querrichtung bzw. große Spaltweiten eine niedrige Peelkraft verursachen. Im Gegensatz

dazu haben *Small et al.* [94] an PE-LLD/Polyisobutylen-Blasfolien (gegen sich selbst haftend) eine Erhöhung der Peelkraft um ca. 24 % mit zunehmendem Aufblasverhältnis von 1:1,5 auf 1:2,5 festgestellt.

Hwo [4] untersuchte an einem iPB-1/EVA-Peelfolienblendsystem den Einfluss der Foliendicke auf die Peelkraft, d.h. es wurde entweder das Abzugsverhältnis oder die Spaltweite variiert. Bei einer Zunahme der Foliendicke um ca. 58 %, und somit abnehmendem Abzugsverhältnis, wurde eine Erhöhung der Peelkraft um ca. 66 % beobachtet. Ähnliche Ergebnisse bezüglich der Abhängigkeit der Peeleigenschaften von der Foliendicke wurden von *Kamykowski* [99] an PP/PA-Folien für Schichtdelamination und auch von *Gardon* [103] für kleberbeschichtetes Cellophan und von *Park et al.* [101] und *Sargent* [102] für diverse Folien/Metall-Substrat-Peelsysteme gefunden.

Darüber hinaus wurde von *Tanoue et al.* [92] der Einfluss der Spaltweite auf den Schmelzfluss basierend auf theoretischen Überlegungen untersucht.

Für das spezielle PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem wurden bisher noch keine Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter auf die Peeleigenschaften durchgeführt.

Der Einfluss der Prozessparameter auf die werkstoffmechanischen Eigenschaften von Peelfolien und die Peeleigenschaften von Peelsystemen ist verallgemeinert in Bild 2.11 dargestellt.

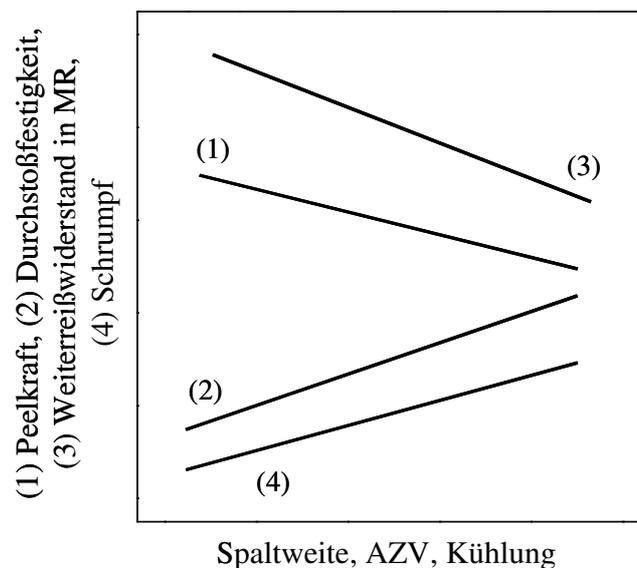


Bild 2.11: Schematische Darstellung des Einflusses der Spaltweite, des Abzugsverhältnisses (AZV) und der Kühlung auf die Peelkraft, die Durchstoßfestigkeit, den Weiterreißwiderstand in MR und das Schrumpfverhalten des Peelsystems bzw. der Peelfolie [4,47,52,95,100]

Mit größer werdender Spaltweite und folglich größerem AZV und stärkerer Kühlung werden sowohl die Peelkraft als auch der Weiterreißwiderstand in MR vermindert, wohingegen die Durchstoßfestigkeit der Peelfolie zunimmt. Darüber hinaus bewirkt ein großes AZV eine Erhöhung des Schrumpfes der Folie aufgrund der eingefrorenen starken Orientierung.

2.3.3 Einfluss der Siegelparameter

Die Peeleigenschaften werden maßgeblich durch die Qualität der Siegelnaht zweier zu versiegelnder Peelfolien bestimmt. Anhand des in Kapitel „2.1.2 Siegelverfahren“ beschriebenen Reptation-Modells wird deutlich, dass die molekularen Interdiffusionsprozesse in der schmelzflüssigen Grenzschicht zweier Folien von der Reptationszeit t_{rep} (vgl. Gl. 2.3) abhängig sind. Die Reptationszeit ist wiederum von der Temperatur (Siegeltemperatur) und der Siegelzeit abhängig.

Der Einfluss der Siegeltemperatur auf die Peeleigenschaften ist in der Literatur für verschiedene Peelfolienblendsysteme beschrieben [4,17,42,104–107]. Beispielsweise wurde für EVA/iPB-1 eine Erhöhung der Peelkraft um 50 % mit zunehmender Siegeltemperatur bis ca. 127 °C gefunden [4]. Oberhalb dieser, auch als Schwellenwert T_i bezeichneten, Temperatur wurde keine Veränderung der Peelkraft in Abhängigkeit der Siegeltemperatur gemessen. Für die Praxis ist besonders der siegeltemperaturunabhängige Bereich von großer Bedeutung, da hier auftretende Temperaturschwankungen beim Siegeln nicht zu einer Veränderung der Peeleigenschaften führen und somit eine konstante Qualität hinsichtlich der Peeleigenschaften gewährleistet werden kann. Zu gleichsinnigen Ergebnissen gelangten *Rist* [2] und *Roucourt* [42], die an PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystemen den Einfluss der Siegeltemperatur auf das Peelverhalten untersuchten. Für PE-LD/iPB-1 liegt der siegeltemperaturunabhängige Bereich zwischen 120 und 165 °C.

Die Abhängigkeit der Peelkraft von der Siegeltemperatur wurde darüber hinaus an adhäsiven und festversiegelnden Systemen untersucht, wobei für festversiegelnde Systeme wie beispielsweise PE-LD/PE-LLD [105] die Warm- bzw. Heißnahtpeelkraft von großer praktischer Bedeutung ist. Hierbei markiert der Schwellenwert T_i den Übergang vom nicht versiegelten zum festversiegelten Bereich, der beispielsweise für PE-LD/PE-LLD bei ca. 109 °C liegt [105].

Neben der Siegeltemperatur hat die Siegelzeit maßgeblichen Einfluss auf die Peeleigenschaften. *Yuan et al.* [105] ermittelten einen linearen Anstieg der Peelkraft mit zunehmender Siegelzeit im Bereich kleiner Siegelzeiten bis ca. 2 s. Für größere Siegelzeiten wurde ein konstantes Peelkraftniveau ermittelt. Darüber hinaus stellten *Meka et al.* [106] fest, dass der Einfluss der Siegelzeit auf das Peelverhalten bei höheren Siegeltemperaturen abnimmt.

Voraussetzung für den Siegelvorgang ist das Vorhandensein eines geringen Drucks der Siegelbacken auf die zu versiegelnden Folien. Der Siegeldruck hat jedoch keinen Einfluss auf die Peelkraft wie *Yuan et al.* [105] und *Berger et al.* [107] feststellten. Mit zunehmendem Siegeldruck wird mehr schmelzflüssiges Folienmaterial während des Siegelvorgangs an die Außenseiten der Siegelbacken gepresst. Daher wird die Anwendung eines geringen Drucks im Bereich < 200 kPa empfohlen [106].

In Bild 2.12 ist schematisch der Einfluss der Siegeltemperatur, der Siegelzeit und des Siegeldrucks auf die Peelkraft dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Peelkraft mit zunehmender Siegeltemperatur zunächst sprunghaft ansteigt und anschließend in einen Plateaubereich übergeht, bevor sie bei extremen Siegeltemperaturen erneut ansteigt. Die zunächst sehr niedrigen Peelkraftwerte deuten auf eine nicht ausreichende molekulare Beweglichkeit der Makromoleküle hin, so dass sich keine ausgeprägte Siegelnaht ausbilden kann. Mit zunehmender Siegeltemperatur wird die molekulare Beweglichkeit erhöht und erreicht zu Beginn des Plateaubereiches einen Schwellenwert T_i , der zur Ausbildung einer ausgeprägten Siegelnaht überschritten werden muss. Ist die Siegeltemperatur größer als der Schwellenwert T_i , können die Makromoleküle in Anlehnung an das Reptation-Modell diffundieren und eine Siegelnaht durch Verschlaufungen und Verhakungen der Makromoleküle in der Grenzschicht ausbilden.

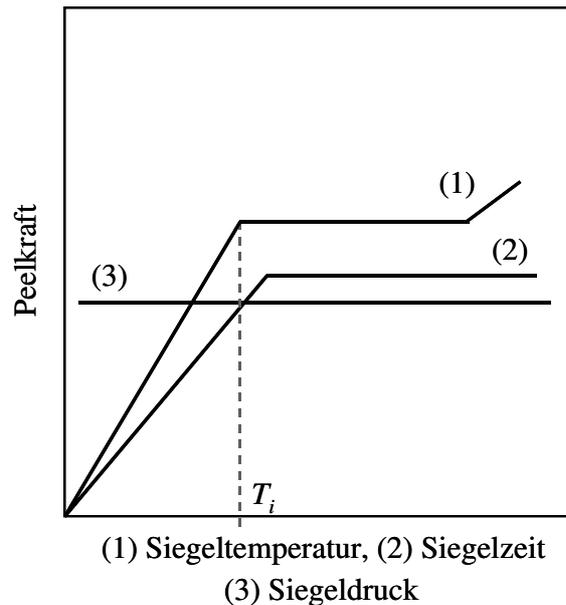


Bild 2.12: Schematische Darstellung des Einflusses der Siegelparameter auf die Peelkraft [4,17,42,104–107]

Mit größer werdender Siegelzeit nimmt die Peelkraft zu, d.h. die Anzahl an Verschlaufungen bzw. Verhakungen in der Siegelnaht (Grenzschicht) steigt an. Da in der Praxis niedrige Siegeltemperaturen und geringe Siegelzeiten zur Verkürzung der Zykluszeiten von Vorteil sind, ist eine Siegeltemperatur in der Nähe des Schwellenwertes T_i und eine Siegelzeit sehr viel kleiner als die Reptationszeit t_{rep} optimal [16,17].

Der Siegeldruck hat keinen Einfluss auf die Peeleigenschaften. Der Siegeldruck muss so gewählt werden, dass die zu versiegelnden Folien einen guten Kontakt besitzen und ihr Querschnittsprofil nicht oder nur geringfügig verändert wird. Bei zu hohem Druck können Quetschkanten infolge Materialvorschubs entstehen, an denen die Siegelnaht ungewollt aufreißt.

2.3.4 Einfluss anwendungstechnischer Aspekte

Neben der Rezeptur, den Prozess- und den Siegelparametern haben auch Aspekte, die nur vom Anwender des Endproduktes beeinflussbar sind, wie beispielsweise der Peelwinkel und die Peelgeschwindigkeit, einen großen Einfluss auf das Peelverhalten bzw. die Peeleigenschaften.

Sowohl für adhäsive [8,108] als auch für kohäsive Peelsysteme [103] wurde ein logarithmischer Zusammenhang zwischen dem Beanspruchungsparameter (Peelkraft oder Energiefreisetzungsrate) und der Peelgeschwindigkeit gefunden. Hierbei wurden die Geschwindigkeiten im quasistatischen Bereich von 1 mm/min bis 500 mm/min variiert.

Die Abhängigkeit des Beanspruchungsparameters vom Peelwinkel ist für adhäsive [8,109,110] und kohäsive Peelsysteme [9] stark unterschiedlich wie in Bild 2.13 schematisch dargestellt ist.

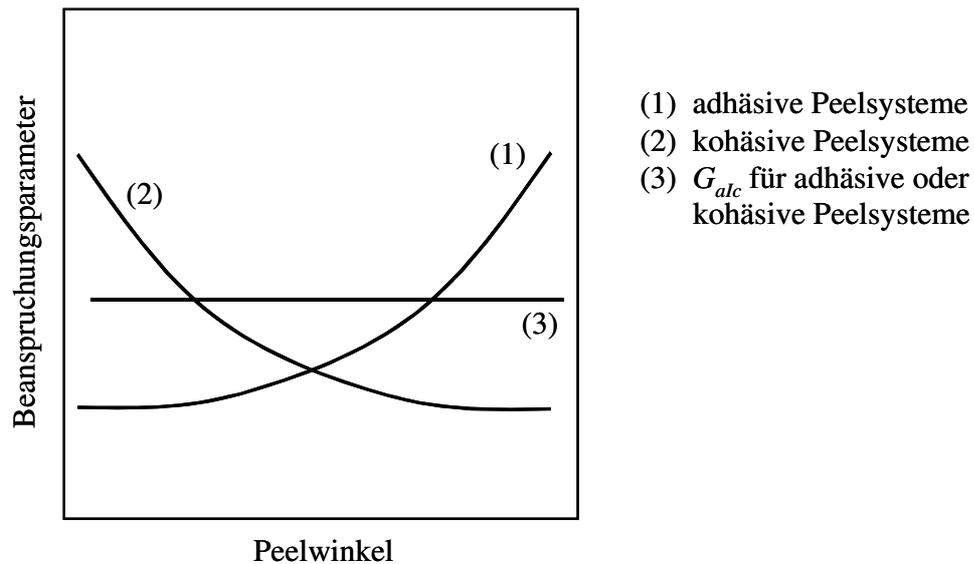


Bild 2.13: Schematische Darstellung der Abhängigkeit des Beanspruchungsparameters vom Peelwinkel für adhäsive und kohäsive Peelsysteme [8,9,109,110]

Für adhäsive Peelsysteme, wie beispielsweise das Peelen einer PE-Folie von einem Aluminium-Substrat [8], wurde eine Zunahme des Beanspruchungsparameters um ca. 40 % mit größer werdendem Peelwinkel von 60° auf 150° ermittelt, wohingegen für kohäsive Peelsysteme eine gleichsinnige Verminderung des Beanspruchungsparameters mit größer werdendem Peelwinkel beobachtet wurde. Die strukturellen Ursachen für diese Abhängigkeiten werden in der Literatur jedoch nicht aufgeklärt.

Darüber hinaus konnte jedoch sowohl für adhäsive als auch für kohäsive Peelsysteme nachgewiesen werden, dass die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} unabhängig vom Peelwinkel ist (vgl. Bild 2.13). Somit gilt die adhäsive Energiefreisetzungsrate bei vorausgesetzter Dickenunabhängigkeit beim Peelvorgang als geometrieunabhängige bruchmechanische Kenngröße.

2.4 Numerische Simulation des Peelvorgangs

Der Peelvorgang kann mit Hilfe einer numerischen Simulation, beispielsweise mit der Finite-Elemente-Methode (FEM), nachvollzogen werden. Darüber hinaus ermöglicht ein numerisches Modell des Peelvorgangs Parametervariationen ohne experimentellen Aufwand durchzuführen und somit Kosten zu sparen.

Das Finite-Elemente-Modell des Peelvorgangs muss so erstellt werden, dass eine Separierung von zwei versiegelten Folien durch Rissausbreitung möglich ist. Der theoretische Hintergrund zur numerischen Beschreibung einer Risspitzenzone, der für die Finite-Elemente-Simulation des Peelvorgangs notwendig ist, wird in den Arbeiten von *Dugdale* [111] und *Barenblatt* [112] diskutiert. Eine numerische Simulation des Peelvorgangs zweier versiegelter Folien kann mit Hilfe von Kohäsiv-Zonen-Elementen (KZE) erfolgen, die in ein Finite-Elemente-Modell implementiert werden [113,114]. Bild 2.14a zeigt ein Schema eines Kohäsiv-Zonen-Elementes, das mit Hilfe von deckungsgleichen Knotenpaaren beschrieben wird (1-4 und 2-3). Somit ist im unbeanspruchten Zustand der Abstand der beiden Folien Null.

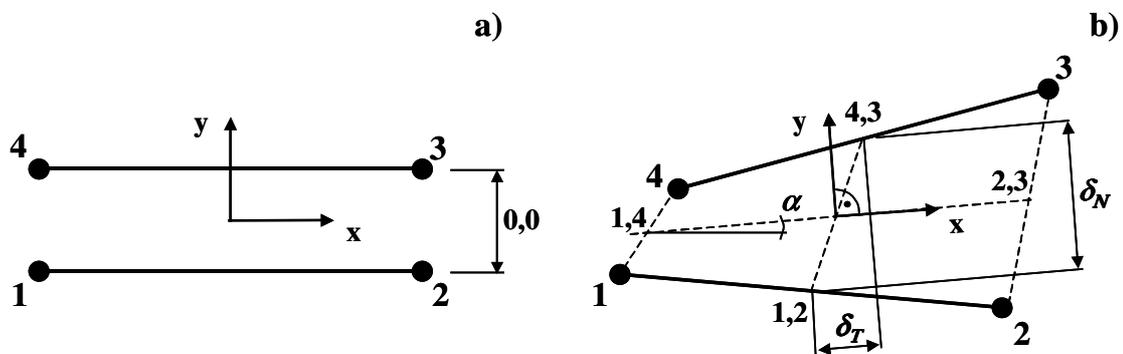


Bild 2.14: Unbeanspruchtes (a) und beanspruchtes (b) Kohäsiv-Zonen-Element bezogen auf das lokale x–y-Koordinatensystem [115]

Um den gesamten Peelvorgang der versiegelten Folien zu beschreiben, wird ein lokales x–y-Koordinatensystem bezogen auf eine virtuelle Mittelfläche eingeführt. Nun ist es in Abhängigkeit des aktuellen Beanspruchungszustandes möglich, die Relativverschiebung δ in einen normalen δ_N und einen tangentialen Teil δ_T zu zerlegen (Bild 2.14b). Im Fall eines symmetrischen Peelvorgangs der Folien wird der tangentialer Teil δ_T der Relativverschiebung Null. In diesem Fall entspricht die Relativverschiebung in Normalenrichtung δ_N der bruchmechanischen Kenngröße Rissöffnungsverschiebung, die zur spezifischen Beschreibung der Zähigkeit eines Materials verwendet werden kann.

Zur Simulation des Peelvorgangs unter Verwendung eines Modells mit Kohäsiv-Zonen-Elementen wird eine spezielle Beziehung zwischen Kohäsivspannung T und Relativverschiebung δ (traction–separation law, TSL) als experimenteller Input für das Kohäsiv-Zonen-Element benötigt (Bild 2.15). Hierbei muss eine kritische Kohäsivspannung T_c aufgebracht werden, um den Peelvorgang zu initiieren.

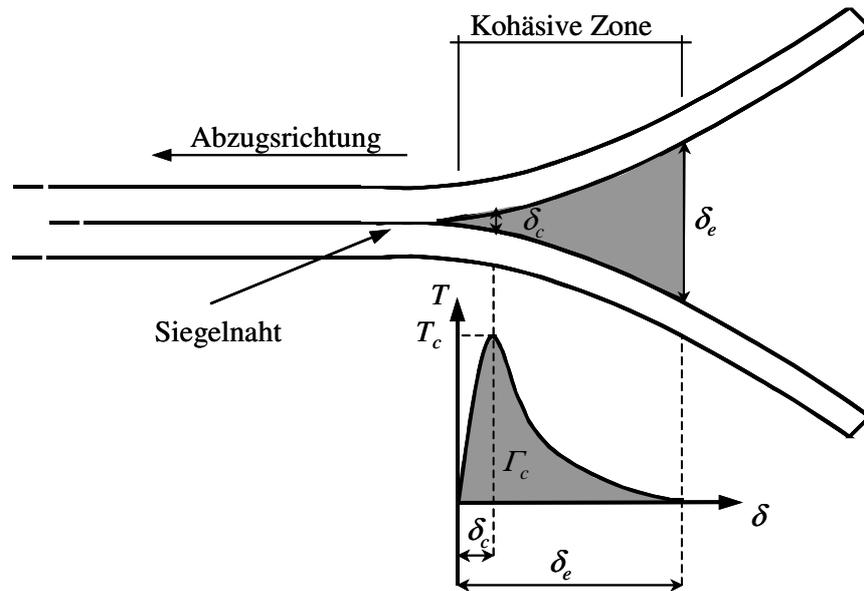


Bild 2.15: Schematische Darstellung des Peelvorgangs und des zugehörigen Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Diagramms; Γ_c – Kohäsivenergie

Somit startet der Peelvorgang bei δ_c und endet bei δ_e . Zusätzlich zur Abhängigkeit zwischen Kohäsivspannung und Relativverschiebung werden verschiedene Werkstoffkenngrößen wie Elastizitätsmodul und Querkontraktionszahl benötigt, um eine numerische Simulation des Peelvorgangs zu realisieren.

Beispielsweise wurde mit Hilfe der FEM das Peelverhalten eines adhäsiven Peelsystems (Polymer/Epoxidharz/Aluminium) [116] unter Verwendung von Kohäsiv-Zonen-Elementen erfolgreich simuliert.

Am Beispiel des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems kann mit Hilfe eines Finite-Elemente-Modells und entsprechender Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehung, die auf experimentellen Daten basiert, Zugang zu weiteren, experimentell schwierig ermittelbaren Kenngrößen und/oder Parametervariationen erhalten werden.

3 Experimentelles

3.1 Untersuchte Peelfolienblendsysteme

3.1.1 Herstellung im Blasfolienverfahren

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden verschiedene Peelfolienblendsysteme untersucht, die von der ORBITA-FILM GmbH, Weißandt-Göolzau zur Verfügung gestellt wurden. In Tabelle 3.1 sind Details zu den Rezepturen der entsprechenden Blasfolien zusammengestellt.

Tabelle 3.1: Angaben zu den untersuchten Werkstoffen

Bezeichnung	Matrix	Handelsname	Kat	Dichte (g cm ⁻³)	MFI * (g 10min ⁻¹)	Bemerkung	iPB-1-Anteil (M.-%)
PE-LD	PE-LD	Lupolen 2420F	ZN	0,923	0,8	Homopolymer	0
PE-LD/iPB-1	PE-LD	Lupolen 2420F	ZN	0,923	0,8	Blend	3
						Blend	6
						Blend	10
						Blend	15
						Blend	20
iPB-1 **	iPB-1	PB 8640 M	ZN	0,906	1,0	Copolymer (geringe Ethylenanteile < 2 M.-%)	100
EVA-4,5	EVA	ExxonMobil LD 362 ON	ZN	0,928	2,0	Copolymer (Vinylacetatanteil 4,5 M.-%)	0
EVA-4,5/ iPB-1	EVA	ExxonMobil LD 362 ON	ZN	0,928	2,0	Blend	10
EVA-9	EVA	Greenflex FF 35	ZN	0,931	0,7	Copolymer (Vinylacetatanteil 9 M.-%)	0
EVA-9/iPB-1	EVA	Greenflex FF 35	ZN	0,931	0,7	Blend	10
PE-LLD-C4	PE-LLD	Innovex LL 0209 AA	ZN	0,920	0,9	Homopolymer (Buten-Seitenketten)	0
PE-LLD-C4/ iPB-1	PE-LLD	Innovex LL 0209 AA	ZN	0,920	0,9	Blend	10
PE-LLD-C8	PE-LLD	Dowlex 5056 G	ZN	0,919	1,1	Homopolymer (Okten-Seitenketten)	0
PE-LLD-C8/ iPB-1	PE-LLD	Dowlex 5056 G	ZN	0,919	1,1	Blend	10
mPE-LLD-C8	PE-LLD	Exact 0201 FX	met	0,902	1,1	Homopolymer (Okten-Seitenketten)	0
mPE-LLD-C8/ iPB-1	PE-LLD	Exact 0201 FX	met	0,902	1,1	Blend	10

* MFI (melt flow index) gemessen bei 190 °C und 2,16 kg [117]; ** Vorliegen der Kristallmodifikation I
Kat – Katalysator; ZN – ziegler-natta-katalysiert; met – metallocen-katalysiert

Vorrangig wurde das PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem mit verschiedenen Gehalten an iPB-1 untersucht, wobei ein Gehalt von 20 M.-% iPB-1 im Blend die wirtschaftliche Obergrenze darstellt, da die Kosten für iPB-1 derzeit etwa dreimal höher als für PE-LD sind. Zusätzlich wurden weitere Matrixmaterialien wie Ethylvinylacetat und lineares Polyethylen niedriger Dichte mit iPB-1 als Peelkomponente untersucht. Hierbei kam EVA mit verschiedenen Vinylacetatanteilen und PE-LLD mit verschiedenen Comonomeranteilen (Buten, Okten) zum Einsatz. PE-LLD lag dabei sowohl ziegler-natta-katalysiert als auch metallocen-katalysiert vor. Darüber hinaus wurden auch die nicht peelfähigen reinen Homo- oder Copolymere untersucht. Die Folien hatten standardmäßig eine Dicke $d_F = 0,05$ mm.

Die verwendeten Folien wurden im Blasfolienverfahren bei der ORBITA-FILM GmbH im Technikum mit den in Tabelle 3.2 aufgeführten Standardprozessparametern hergestellt. Dabei wurde zwischen Prozessparametern des Extruders, des Blaskopfes und der Folienblase (insbesondere Schlauchbildungszone) unterschieden. Zur Herstellung der Folien im Blasfolienverfahren wurde ein Einschneckenextruder (Nutbuchsenextruder, Fa. Collin) mit einer 3-Zonenschnecke (Schneckendurchmesser $D = 30$ mm, Schneckenlänge $L_S = 30 D$) und einem rechtsgängigen Maddock-Scherteil (Länge $L_{ST} = 1 D$) bzw. einem rechtsgängigen Igel-Mischteil (Länge $L_{MT} = 1 D$) verwendet. Neben dem Extruder bestand die Blasfolienanlage aus dem Blaskopf (Fa. Collin), der Flachlegevorrichtung (Fa. Collin) und einem Wickler (Fa. Reifenhäuser).

Tabelle 3.2: Standardprozessparameter bei der Peelfolienherstellung und ihre Variationsgrenzen

	Prozessparameter	Standardwert	Variationsgrenzen
Extruder	Misch- und Scherelemente	Maddock-Misch- und Scherelemente	mit und ohne
	Schneckendrehzahl	100 min ⁻¹	60 ... 120 min ⁻¹
	Extruderzonentemperaturen	140-160-180-180-180 °C	130-150-170-170-170 ... 180-200-220-220-220 °C
Blaskopf	Blaskopffzonentemperaturen	180-180-180-180 °C	160-160-160-160 ... 220-220-220-220 °C
	Spaltweite	0,8 mm	0,8 ... 1,8 mm
Schlauchbildungszone	Einfrierzeit	1,8 s	1,2 ... 7,1 s
	Aufblasverhältnis	1:2	1:1,5 ... 1:3
	Abzugsverhältnis	1:7,85	1:1,9 ... 1:19,6

Wie in Tabelle 3.2 dargestellt, wurden zur Charakterisierung des Einflusses von Prozessparametern diese bei der Herstellung der Folien in bestimmten Grenzen variiert. Dabei fand zur Quantifizierung von unterschiedlichem Abkühlverhalten bisher die Frostlinienhöhe (FLH) Anwendung [11,89–91,95,118]. Nachteil dieser Größe ist, dass die Silhouette der Folienblase unberücksichtigt bleibt, da sich die FLH aus der Distanz zwischen Blaskopf und Frostlinie ergibt. Für unterschiedliche Aufblasverhältnisse (ABV-1 >> ABV-2) bei gleicher Frostlinienhöhe ist demnach das Abkühlverhalten stark unterschiedlich. Die Folie mit dem größeren

ABV-1 kühlt aufgrund des längeren Weges vom Blaskopf bis zur Frostlinie langsamer ab als die Folie mit ABV-2. Somit hat die Folie mit ABV-1 mehr Zeit für Relaxationsprozesse der Makromoleküle, was zur Ausbildung einer anderen physikalischen Struktur im Vergleich zur Folie mit ABV-2 führt. Demzufolge können die Auswirkungen von Prozessparametervariationen, insbesondere Variationen des Aufblasverhältnisses auf die Eigenschaften der Blasfolie, nicht eindeutig interpretiert werden, da für konkrete Eigenschaftsveränderungen infolge Variation des Aufblasverhältnisses bei gleicher FLH sowohl die veränderten Abkühlbedingungen als auch das unterschiedliche Verstreckverhältnis verantwortlich sein können. Aus diesem Grund wird in der vorliegenden Arbeit zur Charakterisierung des Abkühlverhaltens von Blasfolien die, die Foliensilhouette berücksichtigende, Messgröße „Einfrierzeit“ eingeführt. Die Einfrierzeit ist die Zeit, die von der schmelzeflüssigen Folie für den Weg vom Blaskopf bis zum Erstarren an der Frostlinie benötigt wird. Die Einfrierzeit t_E wird nach Gl. 3.1 berechnet.

$$t_E = \frac{s_S}{v_B} \quad (3.1)$$

mit s_S Länge der Foliensilhouette vom Blaskopf bis zur Frostlinie
 v_B mittlere Geschwindigkeit der Folienblase in der Schlauchbildungszone

Die für die Bestimmung der Einfrierzeit notwendige Länge der Foliensilhouette vom Schmelzeaustrittsspalt im Blaskopf bis zur Frostlinie s_S wurde durch optische Analyse der Blasenform ermittelt (Bild 3.1).

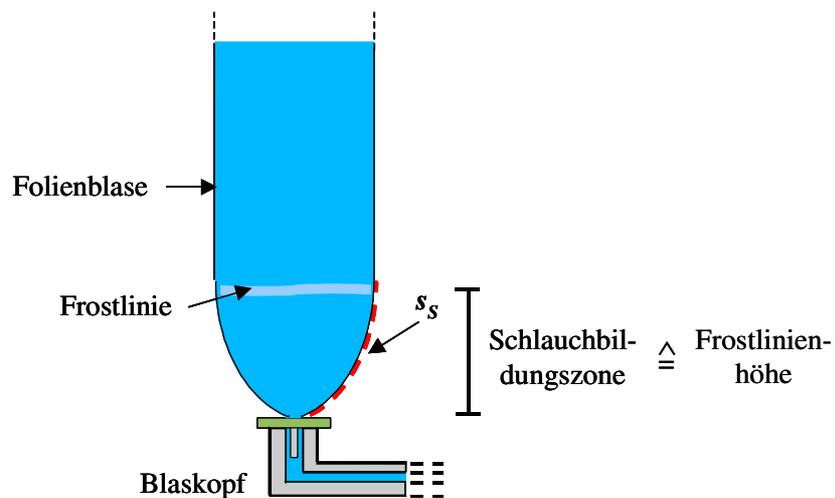


Bild 3.1: Schematische Darstellung der Länge der Foliensilhouette s_S vom Blaskopf bis zur Frostlinie

Zur Abschätzung der mittleren Geschwindigkeit der Folienblase v_B wurde der in Gl. 3.2 dargestellte lineare Ansatz verwendet [90]. Dabei wird davon ausgegangen, dass die Schmelze mit der Schmelzeaustrittsgeschwindigkeit v_E aus dem Spalt im Blaskopf austritt. Infolge Strangaufweitung wird die Geschwindigkeit kurzzeitig vermindert und nimmt anschließend bis zur Frostlinie auf den Wert der Abzugsgeschwindigkeit v_A zu.

$$v_B = \frac{v_A + v_E}{2} \quad (3.2)$$

3.1.2 Siegelung

Im Anschluss an den Blasfolienprozess wurden die zu untersuchenden Peelfolien mit Hilfe eines Siegelgerätes der Fa. Kopp gesiegelt (Bild 3.2).

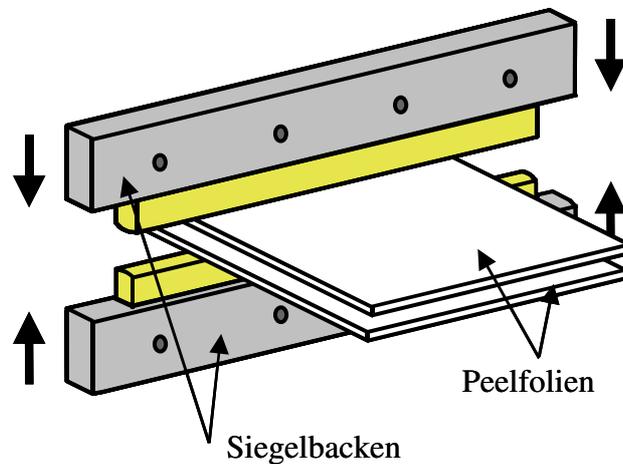


Bild 3.2: Schematische Darstellung eines Siegelgerätes zur Erzeugung einer Siegelnaht zwischen zwei Peelfolien

Dabei wurden die in Tabelle 3.3 aufgeführten Standardsiegelparameter verwendet. Zur Bewertung des Einflusses der Siegelparameter auf die Peeleigenschaften wurden die Siegelparameter innerhalb der in Tabelle 3.3 aufgeführten Grenzen variiert.

Tabelle 3.3: Standardsiegelparameter bei der Prüfkörperherstellung und ihre Variationsgrenzen

Siegelparameter	Standardwert	Variationsgrenzen
Siegeltemperatur	140 °C	100 ... 180 °C
Siegelzeit	2 s	0,5 ... 6 s
Siegeldruck	160 kPa	40 ... 280 kPa

Im Allgemeinen wurden zwei Folien (Folie 1 und Folie 2) gleichen Materialtyps und gleicher Zusammensetzung gegeneinander gesiegelt (Tabelle 3.4). Darüber hinaus wurden zur Untersuchung der physikalischen Bindungen zwischen Matrix und Peelkomponente die verwendeten Matrixmaterialien als Homopolymerfolie gegen eine Folie aus iPB-1 gesiegelt (vgl. Tabelle 3.4).

Tabelle 3.4: Überblick über die hergestellten Peelsysteme, wobei Folie 1 gegen Folie 2 gesiegelt wurde

Folie 1		Folie 2	
Bezeichnung	Blendzusammensetzung (M.-%)	Bezeichnung	Blendzusammensetzung (M.-%)
PE-LD/iPB-1	(97/3)	PE-LD/iPB-1	(97/3)
PE-LD/iPB-1	(94/6)	PE-LD/iPB-1	(94/6)
PE-LD/iPB-1	(90/10)	PE-LD/iPB-1	(90/10)
PE-LD/iPB-1	(85/15)	PE-LD/iPB-1	(85/15)
PE-LD/iPB-1	(80/20)	PE-LD/iPB-1	(80/20)
EVA-4,5/iPB-1	(90/10)	EVA-4,5/iPB-1	(90/10)
EVA-9/iPB-1	(90/10)	EVA-9/iPB-1	(90/10)
PE-LLD-C4/iPB-1	(90/10)	PE-LLD-C4/iPB-1	(90/10)
PE-LLD-C8/iPB-1	(90/10)	PE-LLD-C8/iPB-1	(90/10)
mPE-LLD-C8/iPB-1	(90/10)	mPE-LLD-C8/iPB-1	(90/10)
PE-LD	(100)	iPB-1	(100)
EVA-4,5	(100)	iPB-1	(100)
EVA-9	(100)	iPB-1	(100)
PE-LLD-C4	(100)	iPB-1	(100)
PE-LLD-C8	(100)	iPB-1	(100)
mPE-LLD-C8	(100)	iPB-1	(100)

3.1.3 Werkstoffmechanisches Eigenschaftsniveau

In den im Blasfolienprozess hergestellten Peelfolienblendsystemen tritt durch die Verbindung von unverträglichen Blendkomponenten eine Phasenseparation auf (Bild 3.3). Die sich dadurch je nach iPB-1-Gehalt ausbildende Matrix-Teilchen-Struktur hat wesentlichen Einfluss auf das Eigenschaftsniveau der Peelfolien.

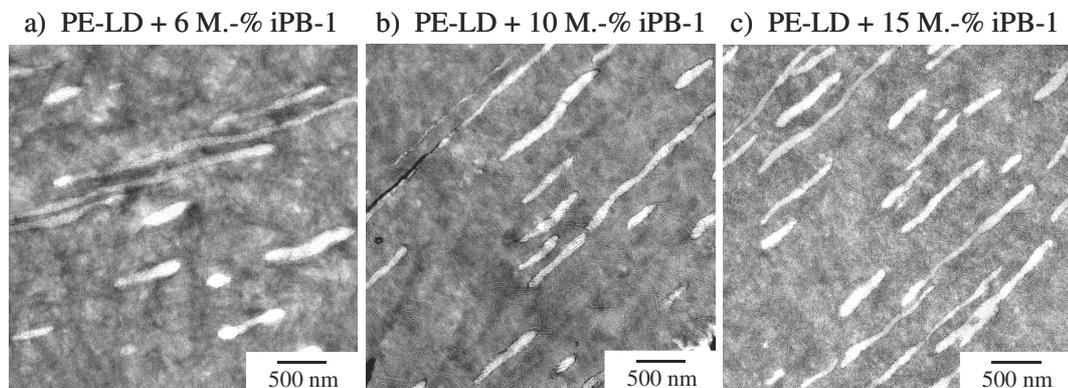


Bild 3.3: Phasenmorphologie der Blasfolien aus PE-LD/iPB-1-Blends mit unterschiedlichen iPB-1-Gehalten; die Längsausdehnung der iPB-1-Teilchen entspricht der Maschinenrichtung der Blasfolie; Schnitt-ebene: Maschinenrichtung-Querrichtung (MR-QR)

Die vom iPB-1-Gehalt unabhängige Lage der PE-LD-Peak-Schmelztemperatur schließt ein Vorhandensein von chemischen Wechselwirkungen zwischen PE-LD und iPB-1 aus (Bild 3.4).

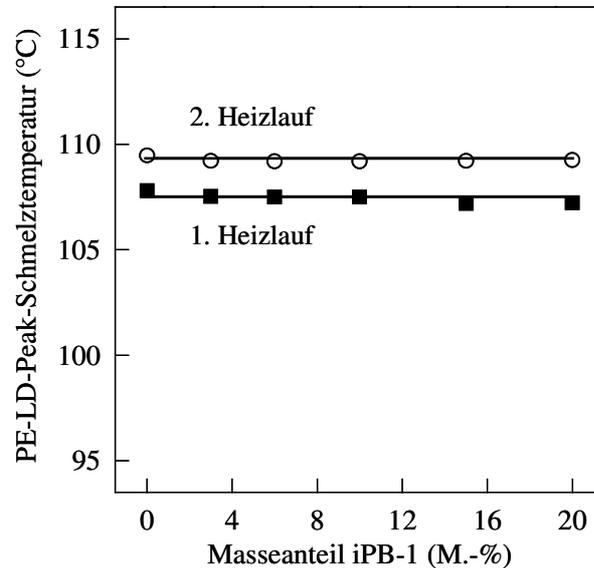


Bild 3.4: PE-LD-Peak-Schmelztemperatur in Abhängigkeit des iPB-1-Gehaltes als Ergebnis der Dynamischen Differenz-Thermoanalyse (Differential Scanning Calorimetry, DSC) durchgeführt nach DIN EN ISO 11357-1 [119]

Neben der thermodynamischen Unverträglichkeit kann man von physikalischen Bindungen, insbesondere Verschlaufungen und Verhakungen zwischen PE-LD- und iPB-1-Molekülen in einer Grenzschicht um die iPB-1-Teilchen ausgehen. Wie in Bild 3.5 dargestellt kommt es zum Hineinwachsen von PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen, was einen Beitrag zur Phasenhaftung zwischen PE-LD und iPB-1 infolge physikalischer Wechselwirkungen darstellt.

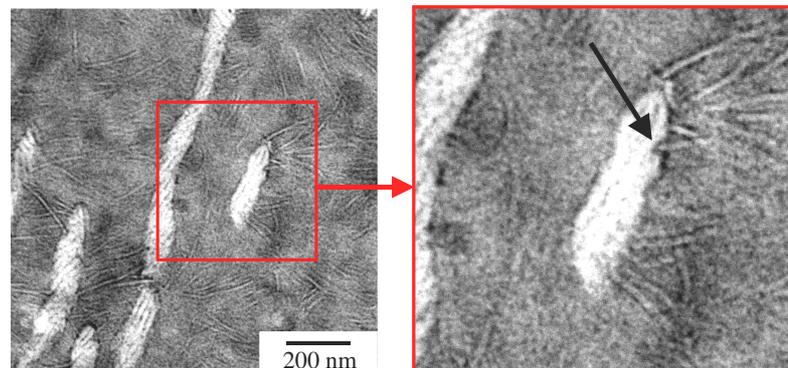


Bild 3.5: Phasenmorphologie einer Blasfolie aus PE-LD mit 10 M.% iPB-1 mit deutlich erkennbaren PE-LD-Lamellen (linkes Teilbild, Übersicht) und sichtbarem Einwachsen der PE-LD-Lamellen in ein iPB-1-Teilchen, markiert durch einen Pfeil (rechtes Teilbild, Detailansicht); Schnittebene: MR-QR

Das Hineinwachsen von PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen wird durch die sehr niedrige Kristallisationstemperatur von iPB-1 von ca. 40 °C ermöglicht. PE-LD kristallisiert im Wesentlichen bei ca. 90 °C, wenn iPB-1 noch schmelzflüssig, aber phasensepariert von PE-LD vorliegt. Somit kann PE-LD bei der Kristallisation lokal schmelzflüssiges iPB-1 verdrängen und in die iPB-1-Domänen hineinwachsen. Es kommt daher zu keiner gegenseitigen Behinderung der Kristallisation, da die Kristallisationsprozesse von PE-LD und iPB-1 nacheinander stattfinden. Deshalb ist der Kristallinitätsgrad von PE-LD bzw. iPB-1 im Blend mit dem im entsprechenden Homopolymer vergleichbar und beträgt für PE-LD ca. 38 % und für iPB-1 ca. 40 %.

In Tabelle 3.5 sind die mechanischen Eigenschaften wie Elastizitätsmodul, Zugfestigkeit, Weiterreißwiderstand, Kerbschlagzugzähigkeit und Durchstoßenergie in Abhängigkeit vom iPB-1-Masseanteil dargestellt. Der E-Modul nimmt sowohl bei einer Beanspruchung parallel als auch quer zur Maschinenrichtung mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil zu, was in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von *Gohil et al.* [85] ist (vgl. Bild 2.9). Die Zugfestigkeit nimmt mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil für eine Beanspruchung parallel zur MR um ca. 18 % zu und für eine Beanspruchung quer zur MR um ca. 20 % ab. Der vor allem zur Charakterisierung des Reißverhaltens von Verpackungsfolien verwendete Weiterreißwiderstand nimmt mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil für eine Beanspruchung parallel zur MR um ca. 14 % zu, da die in MR verstreckten iPB-1-Teilchen rissverzögernd wirken. Im Gegensatz dazu wird der Weiterreißwiderstand bei einer Beanspruchung quer zur MR mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil deutlich um ca. 25 % vermindert. Dies ist darauf zurückzuführen, dass sich der Riss an der Grenzfläche zwischen verstrecktem iPB-1-Teilchen und PE-LD-Matrix ausbreitet und somit die Unverträglichkeit der beiden Phasen PE-LD und iPB-1 eine Verminderung des Weiterreißwiderstandes bedingen. Der Verlauf der Kerbschlagzugzähigkeit ist gleichsinnig zum Verlauf des Weiterreißwiderstandes. Auch bei dynamischer Beanspruchung wirken die iPB-1-Teilchen bei einem Riss in Querrichtung rissverzögernd bzw. bei einem Riss in MR rissfördernd. Die zur Charakterisierung des Durchstoßverhaltens der Peelfolien ermittelte Energie bis zur Höchstkraft wird mit zunehmendem iPB-1-Gehalt vermindert. Es ist festzustellen, dass die Energieaufnahme des Prüfkörpers bei einer mehrachsigen dynamischen Beanspruchung wie im Durchstoßversuch gleichsinnig zu der bei einer einachsigen dynamischen Beanspruchung quer zur MR im Kerbschlagzugversuch verläuft. Somit ist bei einer mehrachsigen dynamischen Beanspruchung die Unverträglichkeit zwischen PE-LD und iPB-1 ausschlaggebend für das Energieaufnahmevermögen, d.h. die Grenzflächen zwischen PE-LD und iPB-1 wirken nicht nur in der Ebene, sondern auch als räumliche „Schwachstellen“.

In Tabelle 3.6 sind die für das Einsatzverhalten von Folien bedeutsamen Kennwerte Gleitreibungskoeffizient sowie Transmission und Trübung in Abhängigkeit vom iPB-1-Masseanteil dargestellt. Der Gleitreibungskoeffizient nimmt mit größer werdendem Masseanteil an iPB-1 um ca. 65 % zu. Da der Gleitreibungskoeffizient an glatten Oberflächen ermittelt wird und kohäsive Verbindungen zwischen den bei Raumtemperatur aufeinanderliegenden Folien ausgeschlossen sind, kann aus diesem Ergebnis geschlossen werden, dass iPB-1 deutlich größere Adhäsionskräfte als PE-LD bedingt. Die Transmission der PE-LD/iPB-1-Blasfolien nimmt entgegen dem subjektiven optischen Eindruck mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil nur geringfügig ab. Entsprechend wird die Trübung, d.h. der Anteil des Lichtes, der um mehr als 2,5° gegenüber der Längsachse des einfallenden Lichtstrahls gestreut wird, mit größer werdendem iPB-1-Gehalt linear um ca. 35 % erhöht.

Tabelle 3.5: Zusammenstellung ausgewählter mechanischer Eigenschaften in Abhängigkeit vom iPB-1-Gehalt

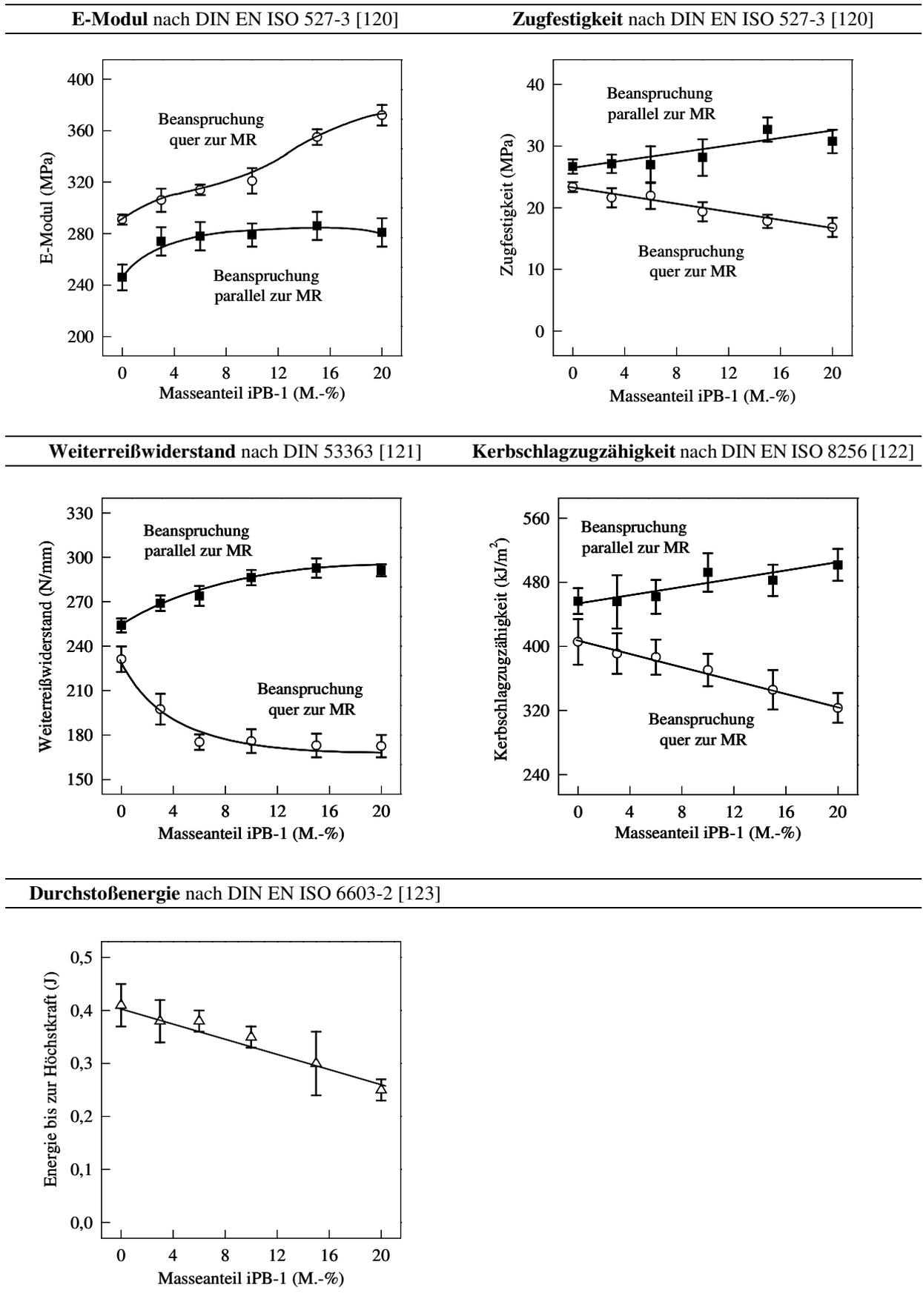
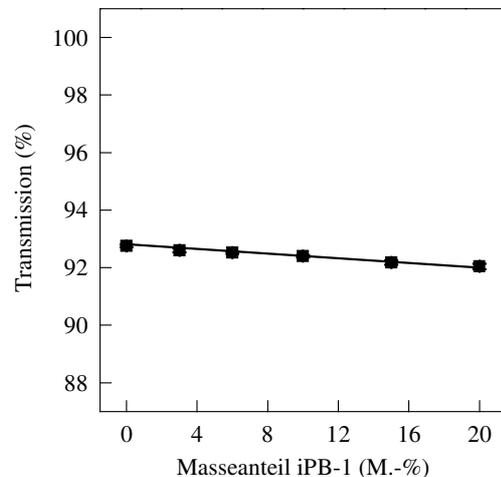
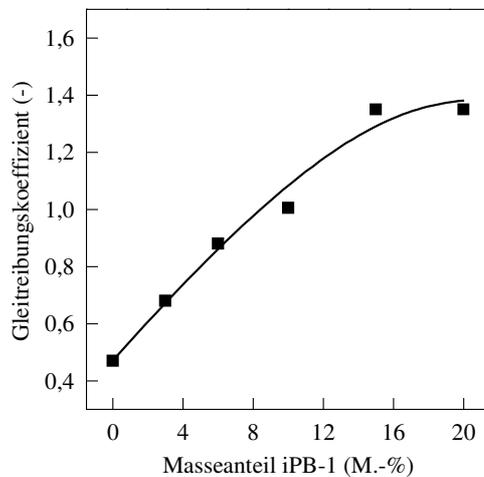
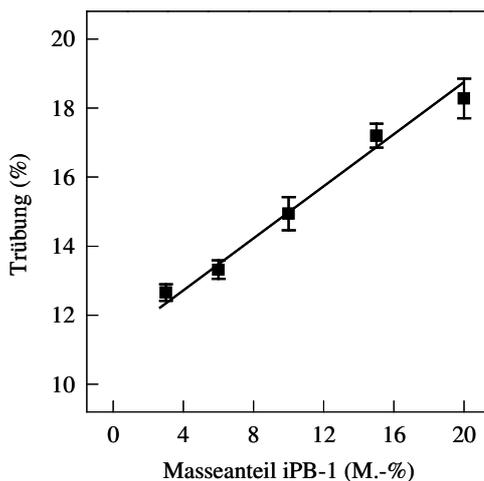


Tabelle 3.6: Zusammenstellung ausgewählter anwendungstechnischer Eigenschaften in Abhängigkeit vom iPB-1-Gehalt

Gleitreibungskoeffizient nach DIN EN ISO 8295 [124]	Transmission nach ASTM D 1003 [125]
--	--



Trübung nach ASTM D 1003 [125]



3.2 Untersuchungsmethoden der Peelfolienprüfung

3.2.1 Durchführung und Auswertung

Zur Charakterisierung des Peelverhaltens von Peelsystemen stehen im Wesentlichen der T-Peeltest und der Fixed-Arm Peeltest zur Verfügung. Beide Methoden trennen unter Registrierung der Kraft und des Weges den gesiegelten Bereich zwischen zwei Peelfolien.

T-Peeltest

Das Peelverhalten der vorliegenden Peelsysteme wurde mit Hilfe des in Bild 3.6 schematisch dargestellten T-Peeltests in Anlehnung an ASTM D 1876 [126] und DIN 55529 [127] untersucht. Die Bezeichnung „T“ zielt dabei auf das Vorhandensein zweier Peelarmler ab, die jeweils um 90° während des Peeltests gebogen werden, wodurch sich eine „T-Form“ ergibt.

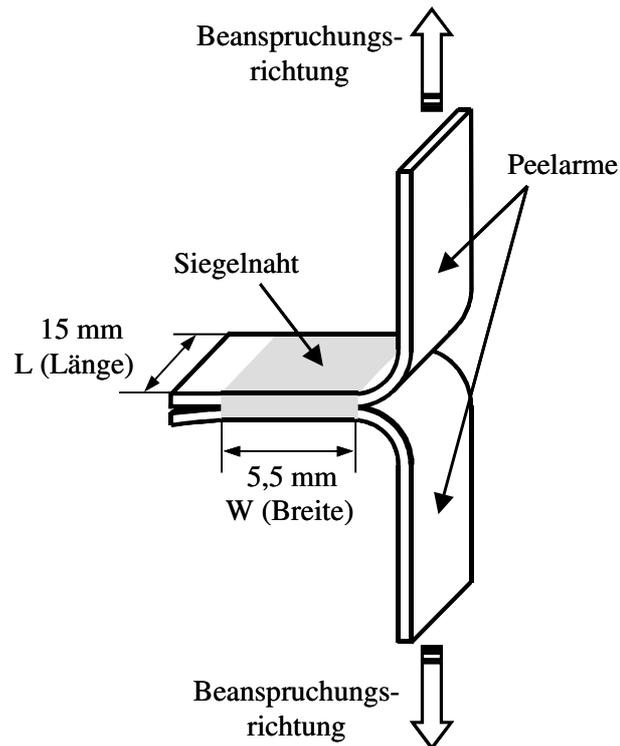


Bild 3.6: Schematische Darstellung des T-Peeltests; die Länge und die Breite der Siegelnaht wurden aufgrund der vorliegenden Abmaße im Vergleich zur Literatur vertauscht

Der T-Peeltest wurde an einer Z020 Universalprüfmaschine (Fa. Zwick) durchgeführt. Dabei betrug die Einspannlänge $l_0 = 50$ mm und die Peelgeschwindigkeit $v_T = 100$ mm/min. Ein mit Hilfe des T-Peeltests aufgezeichnetes Kraft-Weg-Diagramm (Peelkurve) ist in Bild 3.7 dargestellt. Das sich ausbildende charakteristische Plateau der Peelkurve zwischen 20 % und 80 % des Bruchweges l_B wurde zur Bestimmung der Messgröße Peelkraft F_{peel} herangezogen, die als Mittelwert der auftretenden Kräfte in diesem Bereich definiert wurde [128–130].

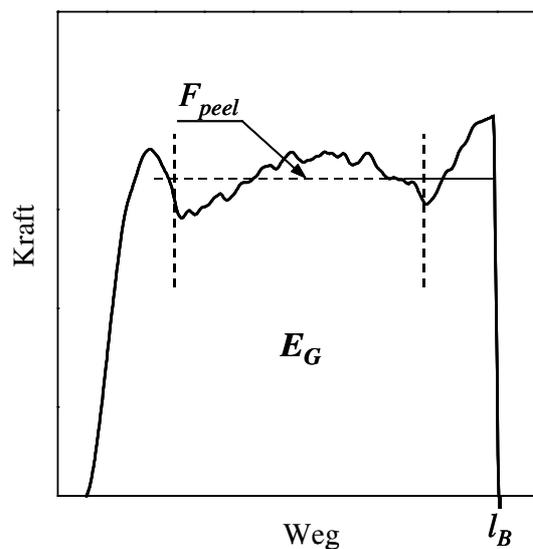


Bild 3.7: Kraft-Weg-Diagramm (Peelkurve) aus dem T-Peeltest, F_{peel} – Peelkraft; l_B – Bruchweg; E_G – Gesamtpeelenergie

Der Verlauf der Peelkurve weist zusätzlich zwei lokale Maxima auf, die auf die Geometrie der Siegelnaht zurückzuführen sind. Während des Siegelvorgangs werden Teile des aufgeschmolzenen Folienmaterials durch den Druck der Siegelbacken an den Siegelnahttrand gedrückt. Somit ist die aufzuwendende Kraft für den Peelvorgang aufgrund der geringfügig größeren Dicke in den Siegelnahttrandbereichen größer als für den mittleren Bereich der Siegelnaht.

Zusätzlich werden nach *Meka* und *Stehling* [106] bei der Durchführung des T-Peeltests die in Bild A.1 dargestellten Versagensarten unterschieden. Bei einer Beschreibung des Peelverhaltens ausschließlich mit Hilfe der Peelkraft werden jedoch auftretende Deformationen während des Peelvorganges nicht berücksichtigt, so dass für eine weiterführende Beschreibung des Peelverhaltens andere Auswerteverfahren, zum Beispiel unter Einbeziehung bruchmechanischer Konzepte, angewendet werden müssen.

Zur Beschreibung einer Rissausbreitung innerhalb eines Werkstoffs kann die Energiefreisetzungsrate G_{Ic} , basierend auf den Vorschlägen von *Irwin* [131], für linear-elastisches Werkstoffverhalten angewendet werden. Die Energiefreisetzungsrate nach *Irwin* [131] wird mit Gl. 3.3 berechnet.

$$G_{Ic} = \frac{1}{W} \frac{dU_{ext}}{da} \quad (3.3)$$

mit dU_{ext} von außen aufgebrauchte (externe) Arbeit
 W Breite des Prüfkörpers
 da infinitesimale Risslänge

Für Peelbeanspruchungen, beispielsweise beim Peelen einer Folie von einem Substrat, wird die Energiefreisetzungsrate in Anlehnung an die Vorschläge von *Rivlin* [132] nach Gl. 3.4 berechnet.

$$G_{Ic} = \frac{F_{peel}}{W} (1 - \cos \theta) \quad (3.4)$$

mit F_{peel} Peelkraft
 W Breite des Peelprüfkörpers
 θ Peelwinkel

Aus der Bestimmungsgleichung für G_{Ic} nach *Rivlin* [132] wird jedoch klar, dass diese spezielle Energiefreisetzungsrate nur von der Peelkraft und vom Peelwinkel abhängt, und somit auftretende Deformationsanteile während des Peelvorgangs nicht berücksichtigt werden. Daher wird in vielen Studien zur bruchmechanischen Charakterisierung von Peelvorgängen ein Energieansatz verwendet, mit dessen Hilfe die direkte Adhäsionsenergie U_a , die ausschließlich zum Trennen der versiegelten Folien oder Substrate nötig ist, ermittelt werden kann [8,9,43,110,133–144]. Diese direkte Adhäsionsenergie U_a wiederum wird verwendet, um die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} zu berechnen, die auch für elastisch-plastisches Materialverhalten anwendbar ist. Die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} , die bei vorausgesetzter Dickenunabhängigkeit eine geometrieunabhängige bruchmechanische Kenngröße darstellt, wird nach Gl. 3.5 berechnet.

$$G_{alc} = \frac{dU_a}{W \cdot da} = \frac{dU_{ext} - dU_S - dU_{dt} - dU_{db}}{W \cdot da} \quad (3.5)$$

mit	U_a	direkte Adhäsionsenergie
	da	infinitesimale Risslänge
	dU_{ext}	von außen aufgebrachte (externe) Arbeit
	dU_S	gespeicherte elastische Energie im Peelarm
	dU_{dt}	dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms
	dU_{db}	dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms

Sowohl die gespeicherte elastische Energie im Peelarm dU_S als auch die dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms dU_{dt} können mit Hilfe eines separaten Zugversuches an einem vergleichbaren Prüfkörper ermittelt [8,136,138] oder mit Hilfe von Modellvorstellungen [43,134,141] berechnet werden. Die dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms zum Erreichen des entsprechenden Peelwinkels dU_{db} kann ebenfalls berechnet werden [8,136]. Hierfür entwickelte *Kinloch* [8,136] spezielle Berechnungsvorschriften und unterschied dabei drei Fälle:

- (1) Es treten ausschließlich elastische Deformationen während des Biegevorgangs des Peelarms zum Erreichen des entsprechenden Peelwinkels und nach der Entlastung auf.
- (2) Beim anfänglichen Biegen des Peelarms sind plastische Deformationen zugelassen. Nach erfolgter Entlastung treten jedoch beim Biegen in die Ausgangslage nur elastische Deformationen auf.
- (3) Sowohl beim anfänglichen als auch beim abschließenden Biegevorgang nach Entlastung treten plastische Deformationen auf.

Im Gegensatz dazu wird in anderen Studien die dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms dU_{db} bei Verwendung von flexiblen Werkstoffen wie Folien vernachlässigt [9,43,141–143]. Bei Verwendung solcher Werkstoffe können plastische Deformationen während des Biegevorgangs des Peelarms ausgeschlossen werden, und die elastischen Deformationsanteile infolge Biegung treten sowohl beim Aufrichten des Peelarms als auch nach Entlastung auf, so dass sie keinen bleibenden Beitrag zur Gesamtenergie leisten.

Darüber hinaus ist es bei extremen Peelwinkeln von $<60^\circ$ möglich, dass zusätzlich zur Mode I-Beanspruchung eine Mode II-Beanspruchung (Scherung) auftritt. Jedoch unterscheidet sich der lokale Peelwinkel in der Nähe der Peelfront vom globalen Peelwinkel für die Anwendung flexibler Materialien. Hierbei kann der lokale Peelwinkel niemals solche extremen Werte annehmen wie der globale Peelwinkel, so dass eine Mixed-Mode-Analyse nicht notwendig ist [8].

Das spezielle PE-LD/iPB-1-Peelssystem ist im engeren Sinn ein kohäsives Peelsystem wie in Abschnitt 2.2 „Makroskopischer Aufbau und mikroskopische Struktur von Peelsystemen“ beschrieben. Da in der bruchmechanischen Betrachtung jedoch der ebene Spannungszustand für dünne Schichten vorausgesetzt wird, und somit in Dicken-Richtung keine Spannungen auftreten, kann die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} auch zur Beschreibung kohäsiver Peelsysteme bestehend aus Folien oder dünnen Schichten verwendet werden [145,146].

In der vorliegenden Arbeit wurden zur bruchmechanischen Charakterisierung des Peelvorgangs in Anlehnung an [8] energiedeterminierte bruchmechanische Kennwerte ermittelt. Unter der Annahme von linear-elastischem Materialverhalten während des Peelvorgangs wurde die Energiefreisetzungsrates nach *Irwin* [131] gemäß Gl. 3.6 berechnet.

$$G_{Ic} = \frac{E_G}{WL} \quad (3.6)$$

mit E_G Gesamtpeelenergie (entspricht der Fläche unter der Peelkurve)
 W Breite der Siegelnaht
 L Länge der Siegelnaht

Da während des Peelvorgangs jedoch elastisch-plastisches Werkstoffverhalten, insbesondere für geringe Peelkomponenten-Masseanteile dominiert, wurde in Anlehnung an [8,9,110, 136–140,143–145] ein Energieansatz verwendet, mit dessen Hilfe die direkte Adhäsionsenergie U_a (vgl. Gl. 3.5) unter Berücksichtigung der elastisch-plastischen Deformationsanteile ermittelt werden konnte. Im Gegensatz zu dem in der Literatur beschriebenen Energieansatz, müssen jedoch für die vorliegenden kohäsiven Peelsysteme die elastischen und/oder plastischen Energieanteile von Peelarm und gepeelter Siegelnaht infolge der thermischen Vorgeschichte durch Siegeln getrennt betrachtet werden. Somit wird die direkte Adhäsionsenergie U_a nach Gl. 3.7 berechnet.

$$dU_a = dU_{ext} - dU_{S,P} - dU_{S,S} - dU_{dt,P} - dU_{dt,S} - dU_{db,P} - dU_{db,S} \quad (3.7)$$

mit dU_{ext} von außen aufgebrachte (externe) Arbeit
 $dU_{S,P}$ gespeicherte elastische Energie im Peelarm
 $dU_{S,S}$ gespeicherte elastische Energie in der gepeelten Siegelnaht
 $dU_{dt,P}$ dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms
 $dU_{dt,S}$ dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung der gepeelten Siegelnaht
 $dU_{db,P}$ dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms
 $dU_{db,S}$ dissipierte Energie während des Biegevorgangs der gepeelten Siegelnaht

Die von außen aufgebrachte, externe Arbeit dU_{ext} ist im vorliegenden Fall mit der Gesamtpeelenergie E_G gleichzusetzen (vgl. Bild 3.7). Die gespeicherte elastische Energie im Peelarm $dU_{S,P}$ und die dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms $dU_{dt,P}$ können mit Hilfe eines separaten Zugversuches am vorliegenden Prüfkörper bei entsprechender Einhaltung der Geometrie ermittelt werden. Allerdings ist es nicht möglich die gespeicherte elastische Energie der gepeelten Siegelnaht $dU_{S,S}$ und die dissipierte Energie während der Zugbeanspruchung der gepeelten Siegelnaht $dU_{dt,S}$ in einem separaten Zugversuch zu ermitteln, da die gepeelte Siegelnaht bereits plastische Vorschädigungen aufweist und die geschlossene Siegelnaht im Zugversuch keine relevanten Informationen liefert.

Zur Berücksichtigung der einzelnen Energieanteile des Peelarms im T-Peeltest wurden Erkenntnisse aus der Durchführung des in-situ-Peeltests mit Umgebungs-Rasterelektronenmikroskopie (engl. environmental scanning electron microscopy, ESEM) genutzt [147]. Es wurde festgestellt, dass mit der Änderung des Anstieges bei $l_{d,P}$ der Abschluss der Rissfrontbildung über die Prüfkörperbreite einhergeht, was als eigentlicher Beginn des Peelvorgangs angesehen wird (Bild 3.8). Aufgrund dieses Ergebnisses kann davon ausgegangen werden, dass die Deformation bis $l_{d,P}$ vorrangig im Peelarm stattfindet. Somit entspricht die Fläche unter der Peelkurve bis $l_{d,P}$ der Deformationsenergie der Peelarme $E_{d,P}$, inklusive der gespeicherten elastischen Energie im Peelarm $dU_{S,P}$ und der dissipierten Energie während der Zugbeanspruchung des Peelarms $dU_{dt,P}$. Ein Vergleich der Deformationsenergie der Peelarme $E_{d,P}$, die einerseits im Peeltest und andererseits in einem separaten Zugversuch ermittelt wurde, ergab eine gute Übereinstimmung der beiden Energiewerte. Die im Peeltest in der vorliegenden Arbeit gemessenen Peelkräfte der entsprechenden Peelsysteme korrelieren generell mit dem elastischen Bereich des Spannungs-Dehnungs-Verhaltens des Peelarmmaterials. Darüber

hinaus wird davon ausgegangen, dass sämtliche Deformationen, die nach $l_{d,P}$ infolge Krafterhöhung stattfinden, von der gepeelten Siegelnaht und nicht mehr vom Peelarm aufgenommen werden, da die gepeelte Siegelnaht eine größere Neigung zur Deformation aufweist als die Peelarme. Diese größere Deformationsneigung der gepeelten Siegelnaht ist durch die thermische Vorbehandlung infolge Siegeln einerseits und durch die Bildung von Dünnstellen infolge „Zick-Zack-Bewegung“ des Risses andererseits gegeben.

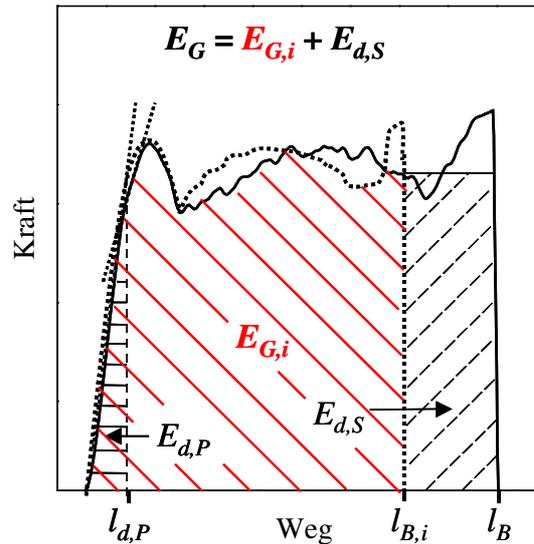


Bild 3.8: Darstellung des idealen Verlaufs der Peelkurve, d.h. ohne Deformation der Siegelnaht (gepunktete Kurve) im Vergleich zur realen Peelkurve (durchgehende Kurve); $l_{d,P}$ – Beginn des Peelvorgangs; l_B – Bruchweg; $l_{B,i}$ – Bruchweg beim idealen Peelversuch; $E_{d,P}$ – Deformationsenergie der Peelarme; $E_{d,S}$ – Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht und $E_{G,i}$ – ideale Gesamtpeelenergie bei zugelasener Deformation des Peelarms

Somit wird die Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,S}$ durch Subtraktion der idealen Gesamtpeelenergie $E_{G,i}$, d.h. der Gesamtpeelenergie beim Vorhandensein einer idealen Siegelnaht mit unendlichem E-Modul (gepunktete Peelkurve in Bild 3.8), von der Gesamtpeelenergie E_G gemäß Gl. 3.8 berechnet. Es sei vorausgesetzt, dass der Peelarm auch beim Vorhandensein einer idealen Siegelnaht Deformationen aufnehmen kann.

$$E_{d,S} = E_G - E_{G,i} \quad (3.8)$$

Es wird vorausgesetzt, dass die Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,S}$ nicht von der Deformationsenergie der Peelarme $E_{d,P}$ beeinflusst wird, so dass die beiden Deformationsprozesse, die Deformation der Peelarme und die Deformation der Siegelnaht, nacheinander erfolgen. Der exakte Zahlenwert der idealen Gesamtpeelenergie $E_{G,i}$ ist nicht berechenbar, dennoch kann die Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,S}$ nach Gl. 3.9 angenähert werden.

$$E_{d,S} = E_G - E_{G,i} \approx (l_B - l_{B,i}) F_{peel} \quad (3.9)$$

mit l_B Bruchweg beim realen Peelversuch
 $l_{B,i}$ Bruchweg beim idealen Peelversuch, d.h. ohne Deformationen der gepeelten Siegelnaht (vgl. Bild 3.8)

Das Versagen der Siegelnaht im idealen Peelversuch erfolgt nach entsprechender Dehnung der Peelarmer und anschließendem Peelen der Siegelnaht ohne Deformationen, so dass sich der Bruchweg beim idealen Peelversuch $l_{B,i}$ aus der Summe von $l_{d,P}$ und der doppelten Breite der Siegelnaht (gilt nur beim T-Peeltest mit Biegung der Peelarmer um 90°) zusammensetzt (Gl. 3.10).

$$l_{B,i} = l_{d,P} + 2W \quad (3.10)$$

mit $l_{d,P}$ Beginn des Peelvorgangs

Somit ergibt sich die Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,S}$, inklusive der gespeicherten elastischen Energie der gepeelten Siegelnaht $dU_{S,S}$ und der dissipierten Energie während der Zugbeanspruchung der gepeelten Siegelnaht $dU_{d,S}$, näherungsweise nach Gl. 3.11.

$$E_{d,S} \approx (l_B - l_{d,P} - 2W)F_{peel} \quad (3.11)$$

Darüber hinaus wurde die dissipierte Energie während des Biegevorgangs des Peelarms $dU_{ab,P}$ und der gepeelten Siegelnaht $dU_{ab,S}$ im Energieansatz zur Ermittlung der direkten Adhäsionsenergie U_a (vgl. Gl. 3.7) berücksichtigt. Mit Hilfe eines separaten Biegeversuches in einem Biegesteifigkeitsprüfgerät (Fa. Frank) wurden Biegeversuche am vorliegenden Prüfkörpermaterial bei entsprechender Einhaltung der Geometrie durchgeführt. Dabei wurde der Biegeradius so gewählt, dass er in Übereinstimmung mit dem des T-Peeltests ist. Es wurden Folien mit einer Dicke von $50 \mu\text{m}$ mit einer Geschwindigkeit von $5^\circ/\text{s}$ gebogen. Im Ergebnis des Biegeversuches wurde festgestellt, dass erst für Winkel $> 90^\circ$ plastische Deformationen beim Biegen der Folie auftreten. Die entsprechenden plastischen Deformationsanteile sind jedoch für den größtmöglichen Biegewinkel von 180° ca. 200-mal kleiner als die entsprechende Gesamtpeelenergie und können somit bei der Berechnung der direkten Adhäsionsenergie U_a vernachlässigt werden. Die auftretenden elastischen Deformationsanteile infolge Biegung der Folie liefern keinen bleibenden Beitrag zur Gesamtpeelenergie, da sie sowohl beim Aufrichten des Peelarms als auch nach Entlastung auftreten.

Nach der Aufklärung der einzelnen Energieanteile kann die ermittelte direkte Adhäsionsenergie U_a zur Berechnung der adhäsiven Energiefreisetzungsrates G_{alc} , die eine geometriunabhängige bruchmechanische Kenngröße darstellt, verwendet werden (Gl. 3.12).

$$G_{alc} = \frac{U_a}{WL} = \frac{E_G - E_{d,P} - E_{d,S}}{WL} \quad (3.12)$$

Die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} spiegelt ausschließlich den Energieanteil wider, der für die Trennung der beiden versiegelten Folien aufgewendet werden muss und ist bei elastisch-plastischem Werkstoffverhalten anwendbar.

Fixed-Arm Peeltest

Unter Verwendung des Fixed-Arm Peeltests in Anlehnung an den ESIS TC4 Normvorschlag „Peel Testing of Flexible Laminates“ [145] wurde der Einfluss des Peelwinkels auf das Peelverhalten der verwendeten Peelsysteme untersucht. Die Bezeichnung „Fixed-Arm“ bedeutet, dass einer der beiden Peelarmer einen unveränderlichen („festen“) Peelwinkel von 0° hat, während der Peelwinkel des zweiten Peelarms variabel einstellbar ist. In Bild 3.9 sind der Fixed-

Arm Peeltest und die Abmaße des verwendeten Prüfkörpers schematisch dargestellt. Ein Peelarm des Prüfkörpers wurde auf eine schmale Messingplatte aufgeklebt, wobei die Klebkraft um ein Vielfaches größer sein muss als die zu erwartende Peelkraft. Nach erfolgter Prüfkörperpräparation wurde die Messingplatte im Fixed-Arm Peeltester montiert und der verbleibende freie Peelarm in der Klemmvorrichtung eingespannt. Die Einspannlänge betrug $l_0 = 25$ mm und die Abzugsgeschwindigkeit war $v_T = 100$ mm/min. Der Peelwinkel wurde zwischen 70° und 180° variiert, wobei ein Peelwinkel von 70° die unterste Grenze für eine aussagekräftige Untersuchung der Peeleigenschaften der vorliegenden Peelsysteme in Abhängigkeit des Peelwinkels darstellt, da für Peelwinkel $< 70^\circ$ Scherung innerhalb der Siegelnaht als Versagensursache beobachtet wurde. Zur Realisierung eines konstanten Peelwinkels während des gesamten Peelvorgangs ist der Fixed-Arm Peeltester seitlich verschiebbar konstruiert worden.

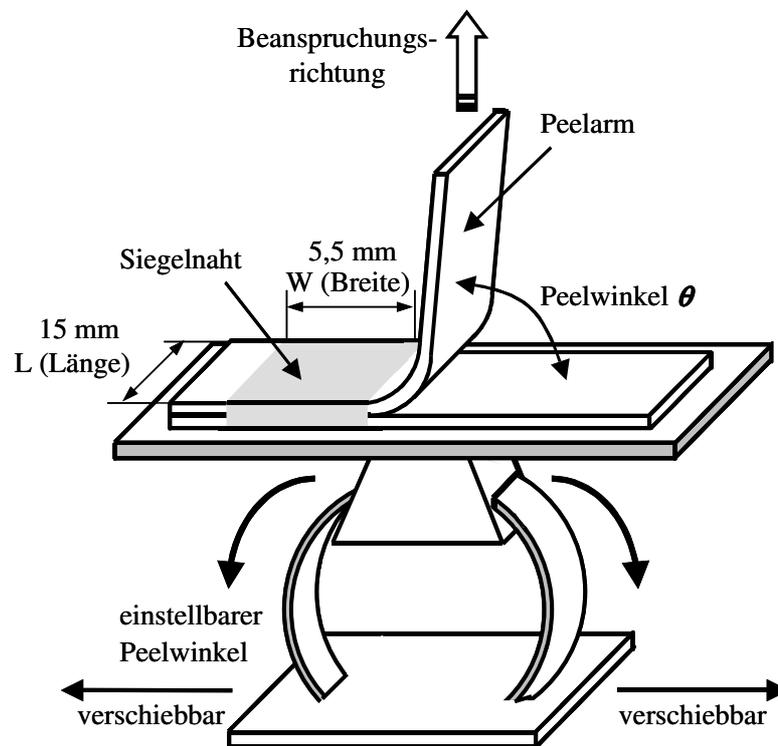


Bild 3.9: Schematische Darstellung des Fixed-Arm Peeltests

Die mit Hilfe des Fixed-Arm Peeltests aufgenommenen Kraft-Weg-Diagramme (Peelkurven) sind ähnlich denen, die mit dem T-Peeltest aufgenommen wurden (vgl. Bild 3.7). Die Bestimmung der Peelkraft F_{peel} im Fixed-Arm Peeltest erfolgt analog zur Bestimmung der Peelkraft im T-Peeltest.

Zur bruchmechanischen Charakterisierung des Peelvorgangs im Fixed-Arm Peeltest wurden ebenfalls die bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{Ic} nach Gl. 3.6 und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} nach Gl. 3.12 ermittelt [148]. Allerdings ist der Bruchweg beim idealen Peelversuch $l_{B,i}$, der zur Berechnung der Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,s}$ (vgl. Gl. 3.11) verwendet wurde, abhängig vom Peelwinkel θ . Der Bruchweg für einen idealen Peelversuch $l_{B,i}$ wird beim Fixed-Arm Peeltest nach Gl. 3.13 berechnet.

$$l_{B,i} = l_{d,P} + S \quad (3.13)$$

mit S Beitrag der Siegelnaht zum gemessenen Weg im Peelttest bei vollständiger Öffnung der Naht ohne Deformationen

Hierbei werden die in Bild 3.10 dargestellten Fälle für S unterschieden.

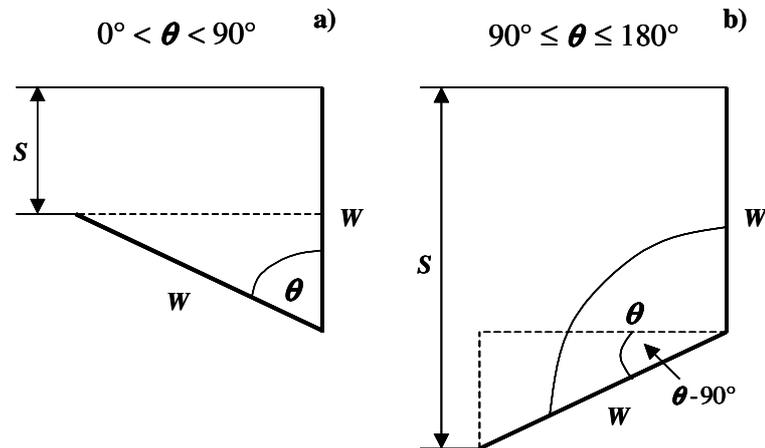


Bild 3.10: Schematische Darstellung zur Berechnung des Beitrages der Siegelnaht zum gemessenen Weg im Fixed-Arm Peelttest bei vollständiger Öffnung der Siegelnaht; θ – Peelwinkel

Der Beitrag der Siegelnaht zum gemessenen Weg im Peelttest bei vollständiger Öffnung der Naht ohne Deformationen S wird für $0^\circ < \theta < 90^\circ$ nach Gl. 3.14 und für $90^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ nach Gl. 3.15 berechnet.

$$S = W - W \cos \theta \quad (3.14)$$

$$S = W + W \sin(\theta - 90^\circ) \quad (3.15)$$

Der Ausdruck $\sin(\theta - 90^\circ)$ aus Gl. 3.15 kann mit Hilfe eines Additionstheorems in den Ausdruck $-\cos \theta$ überführt werden, so dass S in beiden in Bild 3.10 dargestellten Fällen nach Gl. 3.14 berechnet werden kann. Folglich wird der Bruchweg im idealen Peeltversuch $l_{B,i}$ bei Verwendung des Fixed-Arm Peelttests für $0^\circ < \theta \leq 180^\circ$ nach Gl. 3.16 ermittelt.

$$l_{B,i} = l_{d,P} + (W - W \cos \theta) \quad (3.16)$$

Die Deformationsenergie der gepeelten Siegelnaht $E_{d,S}$ ergibt sich näherungsweise nach Gl. 3.17 und ermöglicht die Berechnung der bruchmechanischen Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} gemäß Gl. 3.12.

$$E_{d,S} \approx (l_B - l_{d,P} - W + W \cos \theta) F_{peel} \quad (3.17)$$

In-situ-Peeltests

Zur Einordnung und Bewertung des mit Hilfe des T-Peeltests und des Fixed-Arm Peeltests untersuchten Peelverhaltens ist eine Aufklärung der strukturellen Vorgänge, insbesondere der Mikrodeformationen in der Siegelnaht während des Peelvorgangs sinnvoll.

Zu diesem Zweck wurde der Peeltest mit der Umgebungs-Rasterelektronenmikroskopie (Umgebungs-REM) [149,150] gekoppelt, die eine mikroskopische Untersuchung von nicht leitenden Prüfkörpern bei quasistatischer oder dynamischer Beanspruchung bzw. von flüssigen Proben aufgrund ihres speziellen Verfahrens zur Abbildung von Oberflächen ermöglicht [151,152]. Der in-situ-Peeltest ist den hybriden Verfahren der Kunststoffprüfung und -diagnostik zuzuordnen, da hierbei ein mechanischer bzw. bruchmechanischer Grundversuch mit einer zerstörungsfreien Prüfmethode gekoppelt wird [6], wodurch die Aussagefähigkeit der ermittelten mechanischen und bruchmechanischen Werkstoffkennwerte erhöht wird. Mit Hilfe des in-situ-Peeltests wurde eine Untersuchung des Peelvorgangs bei unterschiedlichem Peelfortschritt ermöglicht, so dass qualitative Morphologie-Eigenschafts-Korrelationen aufgestellt werden konnten.

Zur Kopplung des Peeltests mit der Umgebungs-REM war die Installation einer Mikrodeformationseinrichtung (MT5000; Fa. Deben, UK) innerhalb der Probenkammer des Umgebungs-REMs erforderlich. Beim in-situ-Peeltest wird in die sich öffnende Siegelnaht gesannt, wie Bild 3.11 veranschaulicht. Ein symmetrischer Peelvorgang mit zwei Kraftangriffspunkten gewährleistet eine exakte mikroskopische Beobachtung der sich öffnenden Siegelnaht.

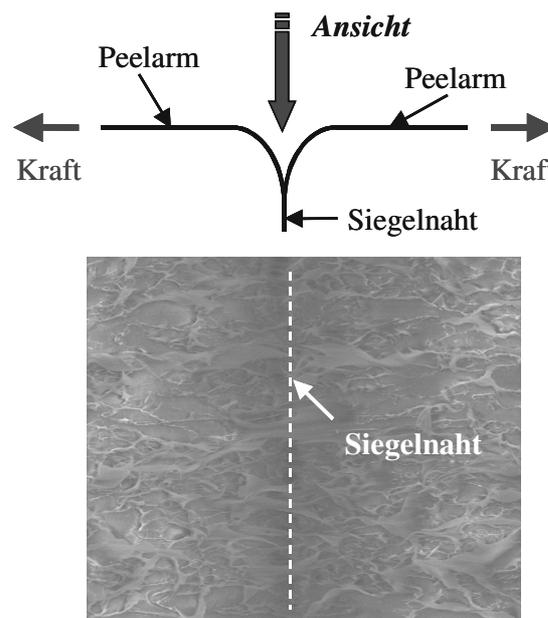


Bild 3.11: Schematische Darstellung des in-situ-Peeltests inklusive mikroskopischer Beobachtung des Peelvorgangs mit Hilfe der Umgebungs-REM

Beim in-situ-T-Peeltest betrug die Einspannlänge $l_0 = 42,5$ mm und die Peelgeschwindigkeit $v_T = 1$ mm/min. Die Abmaße der verwendeten Prüfkörper waren identisch zum T-Peeltest (vgl. Bild 3.6).

Beim in-situ-Fixed-Arm Peeltest wurde das Peelverhalten in Abhängigkeit zweier Winkel (90° und 180°) untersucht, für deren Realisierung jeweils spezielle experimentelle Anordnungen verwendet wurden (Bild 3.12). Bei einem Peelwinkel von 90° kam ein „T-Profil“ zum Einsatz, auf dessen Stirnseite die Unterseite des Peelfilms aufgeklebt wurde (Bild 3.12a), und bei einem Peelwinkel von 180° wurde ein „I-Profil“ verwendet, auf dessen Oberseite der

Peelfilm aufgeklebt wurde (Bild 3.12b). Dabei betrug die Einspannlänge $l_0 = 25$ mm und die Peelgeschwindigkeit $v_T = 1$ mm/min. Die Abmaße der verwendeten Prüfkörper waren für alle Peeltests identisch.

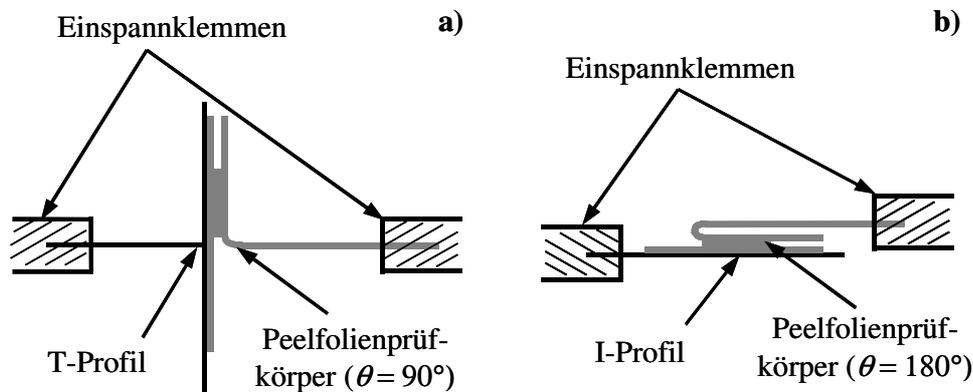


Bild 3.12: Schematische Darstellung der experimentellen Anordnungen im in-situ-Fixed-Arm Peeltest zur Realisierung der Peelwinkel 90° (a) und 180° (b)

In der vorliegenden Arbeit wurden die in-situ-Peeltests mit Umgebungs-REM mit einer angelegten Spannung von ca. 10 kV und mit Wasserstoff als Gas in der Probenkammer bei einem Druck von ca. 0,1 kPa durchgeführt.

Durch den direkten Kontakt des Elektronenstrahls mit der Prüfkörperoberfläche bei der Umgebungs-REM können Strahlenschäden (chemischer Abbau oder offensichtliche physikalische Schädigung) des Prüfkörpers nicht ausgeschlossen werden [153,154]. Deshalb ist eine Untersuchung des möglichen auftretenden Strahlenschadens für eine eindeutige Interpretation der Ergebnisse aus den in-situ-Peeltests mit Umgebungs-REM von großer Bedeutung. Das Ausmaß des Strahlenschadens ist abhängig von der Elektronenstrahldosis, von der Bestrahlungszeit (unter Berücksichtigung der Scangeschwindigkeit des Elektronenstrahls), von der Größe der bestrahlten Prüfkörperfläche (unter Berücksichtigung der Vergrößerung der mikroskopischen Beobachtung) und vom Typ des verwendeten Gases in der Probenkammer.

Für die Untersuchung des Strahlenschadens in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit der Prüfkörperoberfläche wurde eine hohe Vergrößerung (intensive Bestrahlung) ausgewählt. Zur Interpretation der Ergebnisse dieser Untersuchungen muss die Bestrahlungszeit, der eine definierte Prüfkörperoberfläche während des in-situ-Peeltests ausgesetzt ist, ermittelt werden. Anhand von in-situ-Peeltests wurde festgestellt, dass ein bestimmtes Strukturdetail ca. 25 s benötigt, um aus dem Einflussbereich des Elektronenstrahls herauszukommen. Daher stellt 30 s Bestrahlungszeit die Obergrenze für die Bestrahlung der Peelprüfkörper während des in-situ-Peeltests dar.

Eine sensitive Untersuchungsmethode zur Analyse der chemischen Veränderungen im Prüfkörper infolge des Strahlenschadens ist die Fourier-Transformations-Infrarot-Spektroskopie (FTIR) [153,154]. In Bild 3.13 sind vier FTIR-Spektren für unterschiedliche Bestrahlungszeiten dargestellt. Die IR-Absorptionsbande bei einer Wellenzahl von 965 cm^{-1} weist eine deutliche Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit auf. Parallel dazu zeigt die IR-Absorptionsbande bei einer Wellenzahl von 908 cm^{-1} eine gleichsinnige, aber weniger ausgeprägte Abhängigkeit. Die Intensität beider Absorptionsbanden nimmt mit größer werdender Bestrahlungszeit zu. Die Absorptionsbande bei 965 cm^{-1} deutet auf das Vorhandensein von aliphatischen Doppelbindungen in trans-Konformation hin, und die Absorptionsbande bei 908 cm^{-1} kennzeichnet die Existenz von Vinylendgruppen. Die detektierten aliphatischen Doppelbindungen (Absorptionsbande bei 965 cm^{-1}) können (1) durch Abspaltung zweier benachbarter

Wasserstoffatome von der Polymerkette oder (2) durch die Bildung von Vinylendgruppen durch Rekombinationsprozesse infolge Kettenspaltung und Radikaltransfer entstehen. Die Bildung von Vinylendgruppen wird als Hauptursache für das Vorhandensein von aliphatischen Doppelbindungen angesehen, da der Anstieg der Intensität der Absorptionsbande bei 908 cm^{-1} (Vinylendgruppen) mit zunehmender Bestrahlungszeit diese Behauptung stützt, und eine Abspaltung zweier benachbarter Wasserstoffatome als wenig wahrscheinlich gilt.

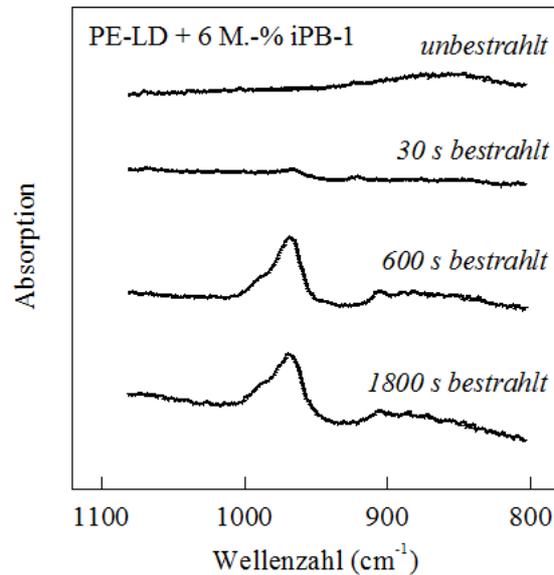


Bild 3.13: FTIR-Spektren von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1, aufgenommen nach verschiedenen Bestrahlungszeiten der Prüfkörperoberfläche

Die Intensität der Absorptionsbande bei 965 cm^{-1} wird in der vorliegenden Arbeit als Maß für den Strahlenschaden der entsprechenden Peelfolie definiert. In Bild 3.14 ist die Absorption bei einer Wellenzahl von 965 cm^{-1} in Abhängigkeit der Bestrahlungszeit des Prüfkörpers dargestellt.

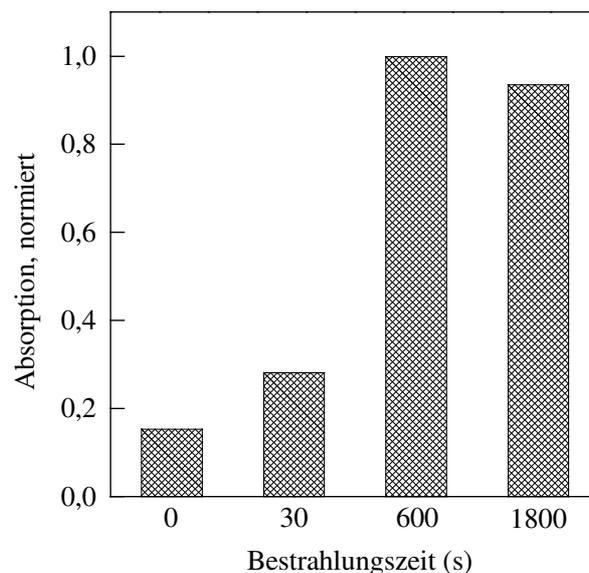


Bild 3.14: Intensität der Absorptionsbande bei 965 cm^{-1} in Abhängigkeit der Bestrahlungszeit des Elektronenstrahls für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1

Die Absorption nimmt mit ansteigender Bestrahlungszeit deutlich zu. Somit ist das Ausmaß des Strahlenschadens für die Bestrahlungszeiten von 600 s und 1800 s am größten. Die geringfügige Verminderung der Absorption bei 1800 s liegt innerhalb der Messtoleranz und wird nicht diskutiert. Darüber hinaus wird die Intensität der Absorptionsbande bei 965 cm^{-1} nach einer Bestrahlungszeit von 30 s nicht signifikant beeinflusst.

Somit weisen die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Prüfkörper nach oder während der Untersuchung im in-situ-Peeltest mit Umgebungs-REM keine signifikanten chemischen Veränderungen infolge Strahlenschädigung auf, da hierbei die Bestrahlungszeit weniger als 30 s beträgt. Auch ein Strahlenschaden durch physikalische Ursachen kann für das vorliegende Werkstoffsystem aufgrund der mikroskopischen Analysen ausgeschlossen werden.

3.2.2 Einfluss von experimentellen Parametern

Für eine Bewertung des Peelverhaltens mit Hilfe mechanischer und bruchmechanischer Kennwerte aus dem Peeltest ist die Kenntnis des Einflusses der Peeltestparameter (Peelgeschwindigkeit und Einspannlänge) sowie der veränderlichen Größen des Peelprüfkörpers (Prüfkörperbreite und Lage der Siegelnaht in Bezug zur MR der Folie) bei konstanten Herstellungsbedingungen von großer Bedeutung. Der Einfluss dieser Parameter wurde im Vorfeld für das PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem mit 6 M.-% iPB-1 untersucht.

In Bild 3.15 ist der Einfluss der Peelgeschwindigkeit auf die Peelkraft bzw. auf die Energiefreisetzungsrate und die adhäsive Energiefreisetzungsrate dargestellt.

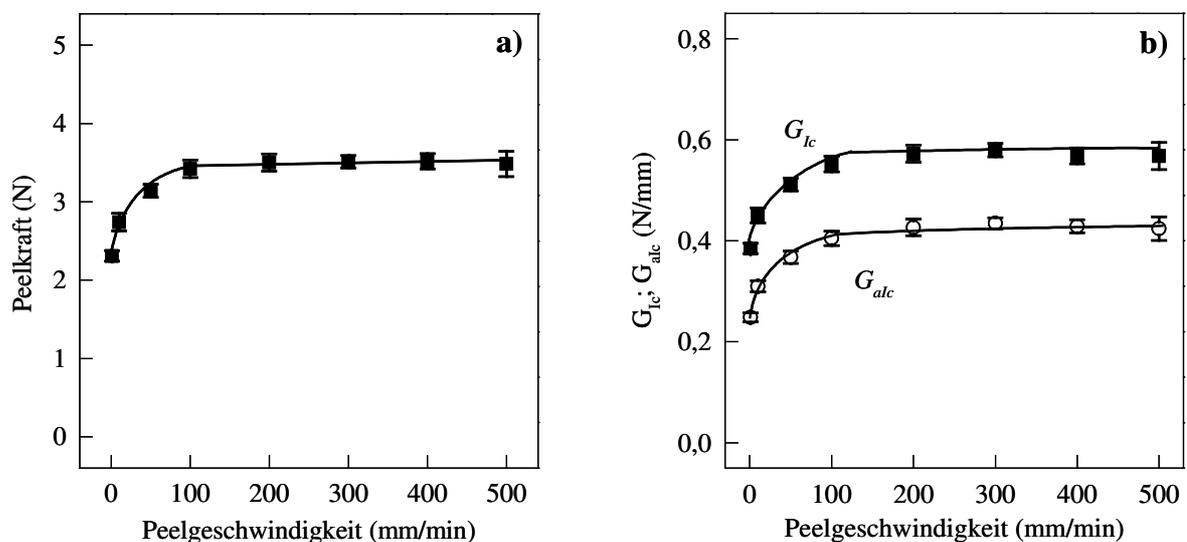


Bild 3.15: Darstellung der Peelkraft in Abhängigkeit der Peelgeschwindigkeit (a) und Einfluss der Peelgeschwindigkeit auf die Energiefreisetzungsrate G_{ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} für PE-LD + 6 M.-% iPB-1 (b); die Einspannlänge betrug standardmäßig $l_0 = 50\text{ mm}$ und die Prüfkörperbreite betrug standardmäßig $W = 15\text{ mm}$; die kleinste Peelgeschwindigkeit ist 1 mm/min

Es ist zu erkennen, dass die Peelkraft mit zunehmender Peelgeschwindigkeit bis 100 mm/min ansteigt und bei höheren Geschwindigkeiten zwischen 100 und 500 mm/min nahezu konstant bleibt (vgl. Bild 3.15a). Dieser exponentielle Zusammenhang zwischen Peelkraft

und Peelgeschwindigkeit wurde bereits von *Gardon* [103] an kleberbeschichtetem Cellophan und von *Hamed* [108] an Polyester/Styrol-Butadien-Styrol-Copolymer-Peelssystemen nachgewiesen. Die in Bild 3.15b dargestellte Abhängigkeit der bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} von der Peelgeschwindigkeit zeigt einen zur Peelkraft (vgl. Bild 3.15a) gleichsinnigen Verlauf. Es kann festgestellt werden, dass die geometrieunabhängige bruchmechanische Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} nur für Geschwindigkeiten ≥ 100 mm/min unabhängig von der Peelgeschwindigkeit ist. Daher wurde nachfolgend eine Peelgeschwindigkeit von 100 mm/min für die durchgeführten Peeltests verwendet.

Weiterhin wurde der Einfluss der Einspannlänge auf die Peeleigenschaften untersucht (Bild 3.16). Sowohl die Peelkraft als auch die bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} sind innerhalb des untersuchten Variationsbereiches unabhängig von der Einspannlänge. Somit wird standardmäßig eine Einspannlänge von 50 mm für den T-Peeltest in Anlehnung an die DIN 55529 [127] verwendet. Da beim Fixed-Arm Peeltest nur ein Peelarm beansprucht wird, beträgt die Einspannlänge hier 25 mm.

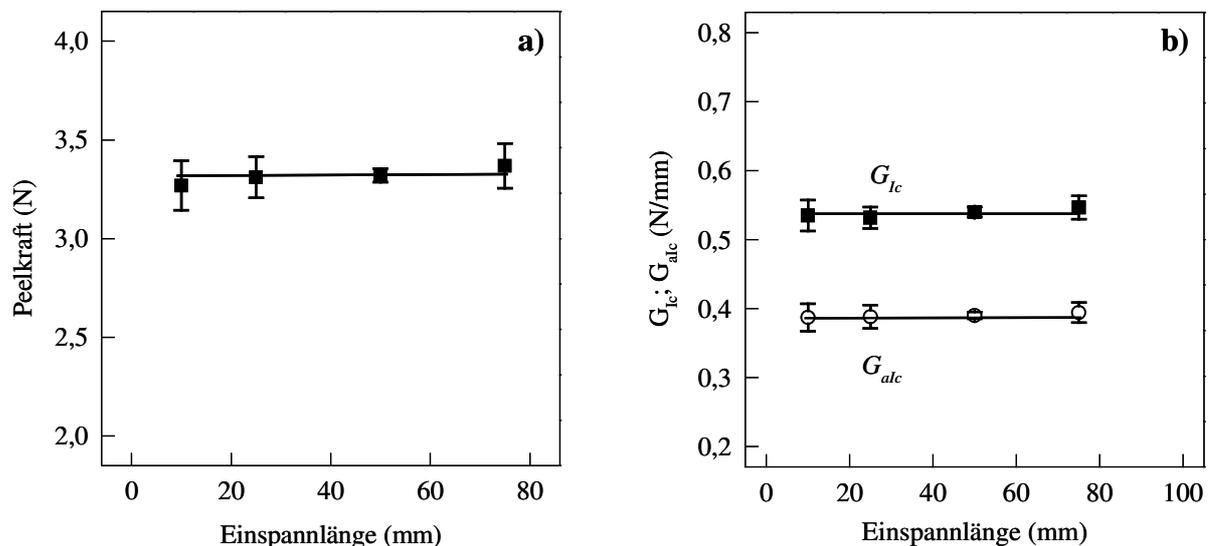


Bild 3.16: Darstellung der Peelkraft in Abhängigkeit der Einspannlänge (a) und Einfluss der Einspannlänge auf die Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} für PE-LD + 6 M.-% iPB-1 (b); die Peelgeschwindigkeit betrug standardmäßig $v_T = 100$ mm/min und die Prüfkörperbreite betrug standardmäßig $W = 15$ mm

Neben den Peeltestparametern wurde der Einfluss der veränderlichen Größen des Peelprüfkörpers, wie Prüfkörperbreite und Lage der Siegelnaht in Bezug zur MR der Folie untersucht. In Bild 3.17a ist die Geometrieabhängigkeit der Messgröße Peelkraft dargestellt. Die Peelkraft nimmt mit zunehmender Prüfkörperbreite für das Peelsystem PE-LD/iPB-1 linear zu. Bei der Bestimmung der bruchmechanischen Kenngrößen werden die Abmaße der Siegelnaht berücksichtigt, so dass die Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} unabhängig von der Geometrie der Siegelnaht sind (Bild 3.17b). In Anlehnung an DIN 55529 [127] werden 15 mm breite Streifenprüfkörper für den Peeltest verwendet.

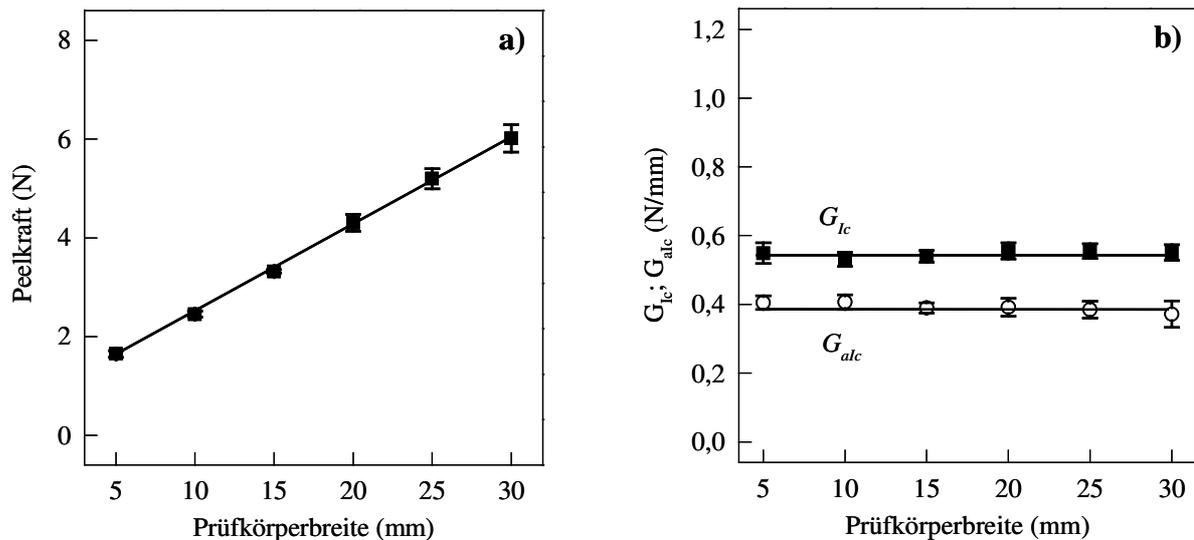


Bild 3.17: Darstellung der Peelkraft in Abhängigkeit der Prüfkörperbreite (a) und Einfluss der Prüfkörperbreite auf die Energiefreisetzungsrates G_{ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} für PE-LD + 6 M.-% iPB-1 (b); die Peelgeschwindigkeit betrug standardmäßig $v_T = 100$ mm/min und die Einspannlänge betrug standardmäßig $l_0 = 50$ mm

Darüber hinaus wurde der Einfluss der Lage der Siegelnaht in Bezug zur Maschinenrichtung auf das Peelverhalten untersucht. Aus der in Bild 3.18 dargestellten Abhängigkeit geht hervor, dass die Lage der Siegelnaht nur einen geringfügigen Einfluss auf das Peelverhalten hat. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die, infolge des Verstreckens der Peelfolie im Blasfolienverfahren, eingebrachten Orientierungen während des Siegelprozesses teilweise wieder relaxieren. Der Grad der Relaxation ist abhängig von der Siegeltemperatur und der Siegelzeit. Dennoch wird der größtmögliche Peeleffekt, d.h. die niedrigste Peelkraft, bei einer Siegelnaht quer zur Maschinenrichtung der Folie erzielt. Diese Lage der Siegelnaht entspricht der industriellen Praxis. Hier werden kohäsive Peelsysteme häufig durch eine Quernaht realisiert. Daher wird in der vorliegenden Arbeit der Fokus auf der Siegelnaht quer zur MR der Folie (vgl. Bild 3.18, schwarzer Balken) liegen.

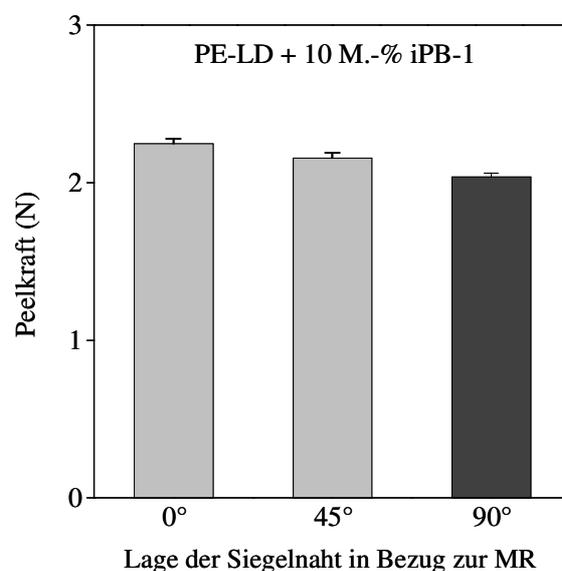


Bild 3.18: Peelkraft in Abhängigkeit der Lage der Siegelnaht in Bezug zur Maschinenrichtung der Folie

Zusammenfassend werden auf der Grundlage der Untersuchungen zum Einfluss experimenteller Parameter die in Tabelle 3.7 dargestellten experimentellen Bedingungen für nachfolgende Peelversuche angewendet.

Tabelle 3.7: Experimentelle Bedingungen durchgeführter Peelversuche

Peelgeschwindigkeit	100 mm/min
Einspannlänge im Peelttest	50 mm (T-Peelttest) bzw. 25 mm (Fixed-Arm Peelttest)
Prüfkörperbreite	15 mm
Lage der Siegelnaht in Bezug zur MR der Peelfolie	90° (quer zur MR)

3.3 Werkstoffanalytische Untersuchungsmethoden

Röntgenweitwinkelstreuung (RWWS)

Zur Analyse der *Orientierung der kristallinen Phase* der PE-LD/iPB-1-Peelfolien wurden zweidimensionale Röntgenflachfilmaufnahmen angefertigt. Hierfür wurde eine Furnas-Flachfilmkamera (Fa. Molecular Data Corporation, USA), welche mit einer 0,5 mm-Lochblende versehen war, verwendet. Die Wellenlänge der Röntgenstrahlen betrug 0,15418 nm und der Probe-Detektor-Abstand war ca. 30 mm. Die Flachfilmaufnahmen wurden für die Durchstrahlrichtungen Maschinenrichtung (MR), Querrichtung (QR) und Normalenrichtung (NR) der entsprechenden Folien angefertigt. Die Auswertung der Flachfilmaufnahme, die mittels Durchstrahlung der Folie parallel zur NR und somit Durchstrahlung der MR-QR-Ebene gewonnen wurde, erfolgte quantitativ hinsichtlich ihrer azimutalen Intensitätsverteilung mit der Software „FilmScan 3.0“ (Fa. Materials Data Inc., USA).

Röntgenkleinwinkelstreuung (RKWS)

Zur Analyse der *Orientierung der Lamellenstapel* innerhalb der kristallinen Bereiche der PE-LD/iPB-1-Peelfolien wurden zweidimensionale Röntgenflachfilmaufnahmen an der A2-Beamline des Hamburger Synchrotronstrahlungslabors (HASYLAB) angefertigt. Hierbei wurde Synchrotronstrahlung mit einer Wellenlänge von 0,15 nm verwendet, deren Intensität mit Hilfe eines Mar-CCD-Detektors registriert wurde. Der Probe-Detektor-Abstand betrug ca. 2900 mm. Die Flachfilmaufnahmen wurden für die Durchstrahlrichtungen MR (QR-NR-Ebene), QR (MR-NR-Ebene) und NR (MR-QR-Ebene) der entsprechenden Folien angefertigt.

Polarisationsmikroskopie

Mit Hilfe der Polarisationsmikroskopie wurde die *Vorzugsorientierung der Moleküle* in der MR-QR-Ebene der PE-LD/iPB-1-Peelfolien ermittelt. Dabei kam ein DMRX-Mikroskop (Fa. Leica) im Durchstrahlmodus zum Einsatz. Der Gangunterschied Γ wurde mit Hilfe eines Kippkompensators K 30 λ (Fa. Leica) bestimmt. Bei Kenntnis des Gangunterschiedes kann die Doppelbrechung Δn der Folien nach Gl. 3.18 berechnet werden [155].

$$\Delta n = \frac{\Gamma}{d_F} \quad (3.18)$$

mit Γ Gangunterschied
 d_F Dicke der Folie

Aus der Doppelbrechung wurde, nach Ermittlung des Vorzeichens (positiv oder negativ), auf den über die Folie gemittelten Orientierungszustand der Molekülketten geschlossen. Bei einer positiven Doppelbrechung sind die Molekülketten im Mittel in MR orientiert, und bei einer negativen Doppelbrechung entsprechend in QR. Darüber hinaus liegt bei kleinen Doppelbrechungswerten eine schwache Orientierung und bei großen Werten eine starke Orientierung der Molekülketten vor.

Transmissionselektronenmikroskopie (TEM)

Die *Phasenstruktur* und die *Morphologie* der PE-LD/iPB-1-Peelfolien wurde mittels der Transmissionselektronenmikroskopie unter Verwendung eines LEO 912-Mikroskops (Fa. Zeiss) analysiert. Die Folien wurden mit Rutheniumtetroxid RuO_4 kontrastiert. Anschließend wurden Dünnschnitte der MR-NR- und der QR-NR-Ebene der Peelfolien von ca. 80 nm Dicke angefertigt und untersucht.

4 Ergebnisse aus den experimentellen Untersuchungen

4.1 Der Aufbau – Struktur und Orientierungszustand des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems

4.1.1 Mikroskopische Struktur des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems

Eine Analyse der mikroskopischen Struktur während des Peelvorgangs ist für ein besseres Verständnis des Zusammenhangs zwischen Struktur und Peeleigenschaften sinnvoll. Zu diesem Zweck wurde exemplarisch für PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 in-situ eine Peelkurve registriert (Bild 4.1a) und parallel dazu an ausgewählten Stellen des Peelvorgangs Umgebungs-REM-Bilder aufgenommen (Bilder 4.1b–i).

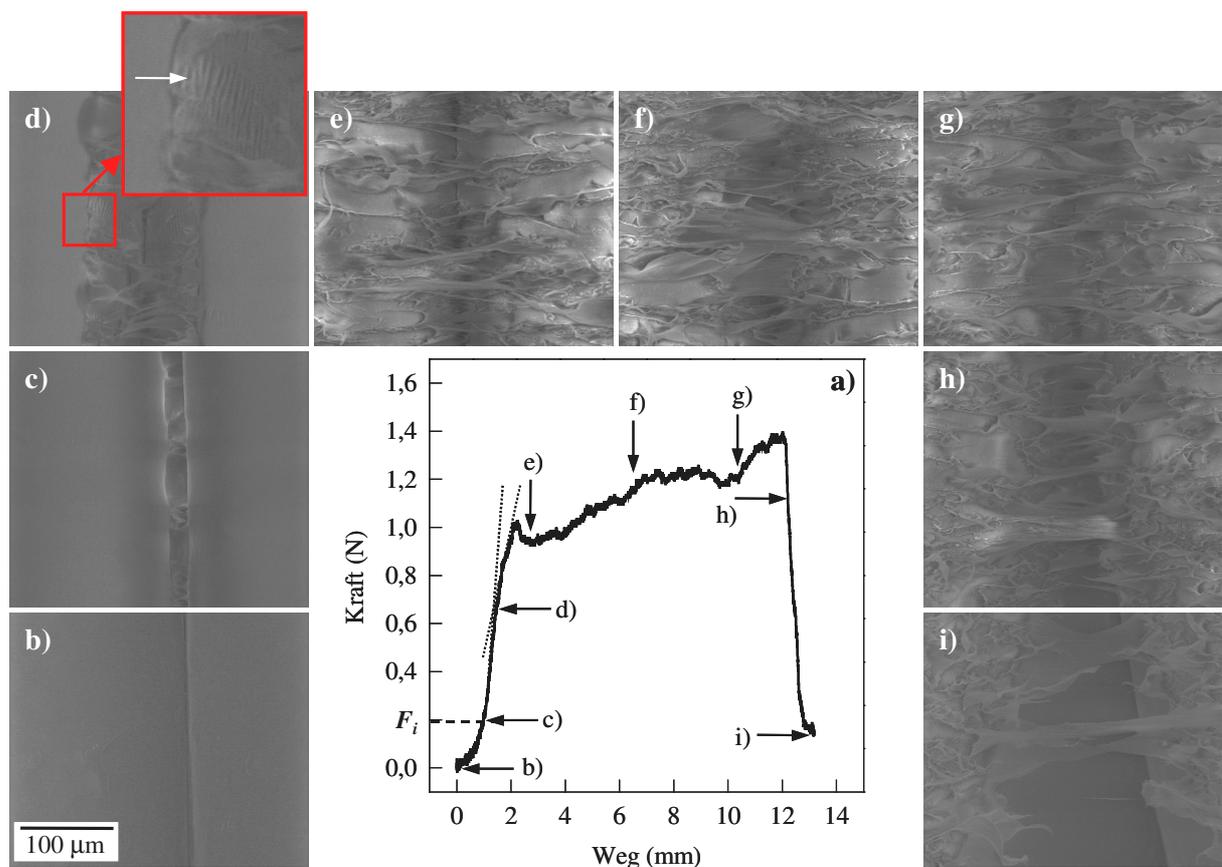


Bild 4.1: Kraft-Weg-Diagramm (Peelkurve) von PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 (a) und die zugehörigen Umgebungs-REM-Bilder bei unterschiedlichem Peelfortschritt (b–i); der in Bild 4.1b eingezeichnete Maßstab ist auch für die Bilder 4.1c–i zu verwenden

Zu Beginn des Peelvorgangs ist die vertikal liegende Siegelnaht (Bild 4.1b) vollständig geschlossen. Nach ca. 0,7–0,9 mm gemessenem Weg kann eine lokale Öffnung der Siegelnaht beobachtet werden (Bild 4.1c). Dieses Phänomen wurde mit „Peelinitiation“ bezeichnet, in Anlehnung an die Rissinitiation bzw. das Rissinitiationsverhalten von Polymeren [156–158]. Dabei stellt die Rissinitiation den Beginn des stabilen Risswachstums dar. Die Peelinitiation ist auf mikroskopischer Ebene ein lokales Phänomen aufgrund der nicht geradlinigen Siegelnahtbegrenzung, welche durch eine ungleichmäßige thermische Strahlung während

des Siegelvorgangs verursacht wird. Die zur Peelinitiierung zugehörige Kraft wird in der vorliegenden Arbeit als Peelinitiierungskraft F_i bezeichnet und kennzeichnet den ersten lokal beobachtbaren Beginn des Peelvorgangs. Für die Peelfolie PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 wurde anhand der in Bild 4.1a dargestellten Peelkurve die Peelinitiierungskraft $F_i = 0,2$ N ermittelt. Nach ca. 1,5 mm gemessenem Weg ändert sich der Anstieg der Peelkurve (gekennzeichnet durch die gepunkteten Linien in Bild 4.1a). Die Änderung des Anstieges der Peelkurve geht mit dem Ende des Peelfrontbildungsprozesses einher, d.h. der Peelvorgang wird nicht mehr lokal, sondern global initiiert (Bild 4.1d). Darüber hinaus sind in Bild 4.1d vertikal strukturierte Bereiche (markiert durch einen weißen Pfeil in der Detailansicht) zu erkennen, deren Entstehung auf lokale thermo-mechanische Beanspruchung infolge des Siegelvorgangs zurückzuführen ist. Nach erfolgtem globalen Beginn des Peelvorgangs geht der Verlauf der Peelkurve in einen Plateaubereich über, der für die Berechnung der Peelkraft ausgewertet wird. Im vorliegenden Fall beträgt die Peelkraft $F_{peel} = 1,15$ N. Zu Beginn des Plateaubereiches bei ca. 20 % des Bruchweges zeigt die Peelfolie einen kontinuierlichen Peelvorgang (Bild 4.1e). Es sind plastische Deformationen und ein hoher Strukturierungsgrad innerhalb der Siegelnaht erkennbar.

Allerdings ist es nicht möglich, die Matrix PE-LD optisch von der Peelkomponente iPB-1 mit Hilfe des Umgebungs-REM's zu unterscheiden. Die Probe (Peelprüfkörper) kann nicht selektiv wie in der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) kontrastiert werden, so dass am vorliegenden Peelsystem kein materialspezifischer Kontrast entsteht [159,160]. Jedoch ermöglicht die mikroskopische Beobachtung der Deformationsvorgänge ein tiefergehendes Verständnis des Peelvorgangs und des ablaufenden Schädigungsmechanismus, verbunden mit einer Zuordnung von strukturellen Ursachen zu mechanischen Eigenschaftsphänomenen.

Die Ähnlichkeit der auftretenden plastischen Deformationsbereiche zu Beginn (Bild 4.1e), in der Mitte (Bild 4.1f) und am Ende (Bild 4.1g) des Plateaubereiches belegt eine kontinuierliche und definierte Rissausbreitung durch die Siegelnaht der beiden versiegelten Peelfolien. Im Anschluss an das zweite lokale Maximum des Peelkurvenverlaufs kommt es zu einem Steilabfall der Peelkurve. Diese deutliche Kraftverminderung geht mit der Auflösung der Peelfront bei ca. 12,5 mm gemessenem Weg einher (Bild 4.1h). Das Vorhandensein eines Peelfrontauflösungsprozesses ist ähnlich dem Peelfrontbildungsprozess auf eine nicht geradlinige Siegelnahtbegrenzung und/oder auf eine nicht geradlinige Rissfront infolge lokal unterschiedlicher Rissgeschwindigkeiten zurückzuführen. Nach ca. 13 mm gemessenem Weg ist eine komplette Separation der beiden versiegelten Peelfolien zu beobachten (Bild 4.1i).

Der Peelttest in Kopplung mit der Umgebungs-REM ermöglicht eine simultane mechanische und mikroskopische Charakterisierung des sehr komplexen Peelvorgangs.

Der Peelvorgang ist mit einem stabilen Rissausbreitungsprozess gleichzusetzen, da für einen zu erzielenden Peelfortschritt die Zuführung von Energie bzw. Arbeit notwendig ist. Wird diese Zuführung von Energie bzw. Arbeit gestoppt, stoppt auch der Peelvorgang.

4.1.2 Physikalische Struktur und Orientierung der PE-LD/iPB-1-Peelfolien

Die sich infolge des Herstellungsprozesses ausbildende physikalische Struktur der Blasfolien hat großen Einfluss auf die werkstoffmechanischen Eigenschaften und die Peeleigenschaften des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems.

Wie anhand der TEM-Aufnahmen in Bild 3.5 zu sehen ist, liegen PE-LD und iPB-1 teilkristallin und phasensepariert im PE-LD/iPB-1-Blend vor. PE-LD kristallisiert in Form von Lamellen, wohingegen iPB-1 in Form von faserähnlichen orientierten Strukturen kristallisiert, die in Anlehnung an die Ergebnisse der analytischen Untersuchungen von *Gohil et al.* [63] und *Wenderoth et al.* [64] als Nadelkristalle interpretiert werden.

Für die Ausbildung der Eigenschaften der Blasfolie ist insbesondere die Orientierung der kristallinen Phase sowohl von PE-LD als auch von iPB-1 von großer Bedeutung [49,50,52, 53,56,61,85]. Zur Aufklärung der Orientierung der kristallinen Phase wurden Röntgenweitwinkelstreuungsmessungen durchgeführt. In Bild A.2 sind Röntgenweitwinkel-Flachfilmaufnahmen der durchstrahlten Folienebenen MR-QR, MR-NR und QR-NR von PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 zu sehen. Die Kristallisation von PE-LD ist durch die 110- und die 200-Interferenzen bei Streuwinkeln 2θ von $21,4^\circ$ und $23,7^\circ$ gekennzeichnet. Andererseits ist die Kristallisation von iPB-1 durch die 110-, 300- und 220-Interferenzen bei Streuwinkeln 2θ von $10,0^\circ$, $17,4^\circ$ und $20,2^\circ$ gekennzeichnet. Die 200-Interferenz von PE-LD, welche der Orientierung der a-Achse der orthorhombischen Elementarzelle von PE-LD entspricht, ist sowohl in der MR-QR- als auch in der MR-NR-Ebene bevorzugt in MR orientiert. Im Gegensatz dazu ist die 200-Interferenz von PE-LD in der QR-NR-Ebene annähernd isotrop verteilt. Somit liegt in der untersuchten Folie aus PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 eine uniaxiale a-Textur in der PE-LD-Phase vor, d.h. die überwiegende Mehrzahl der kristallographischen a-Achsen ist in MR orientiert. Zusätzlich ist Bild A.2 zu entnehmen, dass die 200-Interferenz eine relativ breite Verteilung aufweist. Somit existieren auch kristalline Bereiche, die mit ihrer a-Achse unter einem bestimmten Winkel in Bezug zur MR liegen. Die Ergebnisse zur Orientierung der kristallinen Bereiche der PE-LD-Phase stimmen mit denen von *Aggarwal et al.* [49], *Haberhorn et al.* [53], *Tagawa* [54] und *Walenta et al.* [55] überein. Die iPB-1-Interferenzen sind aufgrund des geringeren iPB-1-Masseanteils im Vergleich zum PE-LD-Masseanteil weniger deutlich ausgeprägt. Weiterhin ist die azimuthale Verteilung der 110-Interferenz von iPB-1 gleichsinnig zur Verteilung der 300-Interferenz von iPB-1, so dass zur Auswertung der Orientierung nachfolgend nur die, in ihrer Intensität deutlichere, 110-Interferenz herangezogen wird. Die 110-Interferenz scheint in der MR-QR-Ebene isotrop verteilt zu sein und weist sowohl in der MR-NR- als auch in der QR-NR-Ebene vier Reflexe auf.

Zur Absicherung des visuellen Eindrucks der Flachfilmaufnahmen wurden die 200-Interferenz von PE-LD und die 110-Interferenz von iPB-1 radial abgescannt. Die entsprechenden azimuthalen Intensitätsverteilungen sind in Bild 4.2 dargestellt. Die abgebildeten Scans bestätigen den visuellen Eindruck der Röntgenweitwinkel-Flachfilmaufnahmen und das Vorhandensein einer a-Textur in der PE-LD-Phase. Allerdings deuten sich im azimuthalen Scan der 200-Interferenz von PE-LD in der MR-NR-Ebene unter einem Winkel von $20\text{--}35^\circ$ in Bezug zur MR weitere Peaks an (Bild 4.2a, durch Pfeile markiert), die durch die Peaks bei 90° und 260° überlagert werden. Dies könnte auf eine zusätzliche Kristallpopulation unter einem bestimmten Winkel zur MR hindeuten, jedoch ist dieses Phänomen nicht sehr ausgeprägt, da es sich nur in der MR-NR-Ebene andeutet. Bei der in Bild 4.2b dargestellten Auswertung der 110-Interferenz von iPB-1 wird der Vorteil der azimuthalen Scans deutlich, da eine rein visuelle Auswertung der Flachfilmaufnahmen hier sicher zu Fehlinterpretationen geführt hätte.

Aus den azimuthalen Scans der 110-Interferenz von iPB-1 geht hervor, dass die (110)-Netzebenennormale bevorzugt in QR orientiert ist, was anhand der Scans der MR-QR- und der QR-NR-Ebene ersichtlich ist. Außerdem ist die (110)-Netzebenennormale in NR orientiert, wie die Scans der MR-NR- und der QR-NR-Ebene belegen. Da die c-Achse der hexagonalen Elementarzelle von iPB-1 (Kristallmodifikation I) senkrecht zur Normalen der (110)-Netzebene liegt [65,75], kann aus den abgeleiteten Orientierungen der (110)-Netzebenennormalen (vgl. Bild 4.2b) auf eine bevorzugte Orientierung der c-Achse der iPB-1-Kristallite in MR geschlossen werden. Allerdings lassen die azimuthalen Scans der 110-Interferenz auch weniger ausgeprägte Orientierungen der c-Achse der iPB-1-Kristallite in den anderen Raumrichtungen zu. Dennoch liegt in der untersuchten Folie aus PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 eine uniaxiale c-Textur in der iPB-1-Phase vor, was in Übereinstimmung mit den Untersuchungsergebnissen von *Fujiwara* [65] und *Hashimoto et al.* [66] ist.

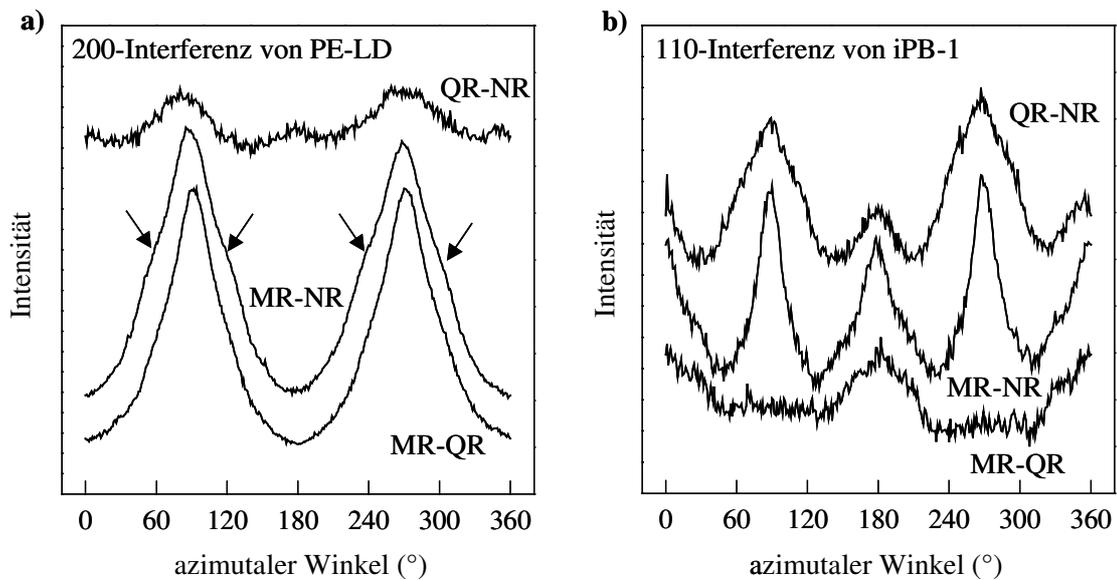


Bild 4.2: Azimutale Scans der 200-Interferenz von PE-LD (a) und der 110-Interferenz von iPB-1 (b) für die durchstrahlten Ebenen MR-QR, MR-NR und QR-NR von PE-LD mit 15 M.-% iPB-1; Die Winkel 90° und 260° entsprechen dabei der MR in der MR-QR- und in der MR-NR-Ebene, bzw. der QR in der QR-NR-Ebene. Die Winkel 180° und 360° entsprechen der NR in der QR-NR- und in der MR-NR-Ebene, bzw. der QR in der MR-QR-Ebene.

Zur Aufklärung des Einflusses des iPB-1-Masseanteiles auf die Ausbildung der kristallinen Struktur der PE-LD-Phase wurden azimutale Scans der 200-Interferenz von PE-LD/iPB-1 für unterschiedliche iPB-1-Masseanteile aufgenommen (Bild 4.3). Anhand der dargestellten azimutalen Scans ist zu erkennen, dass die Orientierung der a-Achse sich mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil bis 15 M.-% nicht verändert. Auch für einen iPB-1-Masseanteil von 20 M.-% ist eine ähnliche Orientierung der kristallographischen a-Achsen ersichtlich, wobei sich in diesem Scan weitere Peaks (Satellitenpeaks) unter $20\text{--}35^\circ$ in Bezug zur MR andeuten, die jedoch von den Peaks unter 90° und 260° überlagert werden.

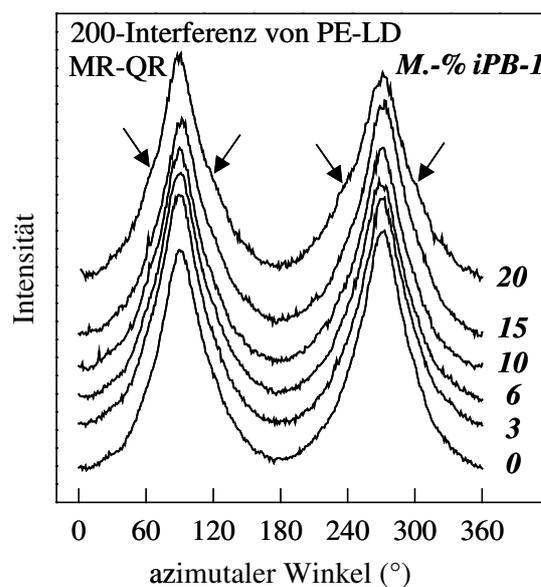


Bild 4.3: Azimutale Scans der 200-Interferenz von PE-LD für die MR-QR-Ebene von PE-LD/iPB-1 bei unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen; Die Winkel 90° und 260° entsprechen dabei der MR und die Winkel 180° und 360° entsprechen der QR.

Das Auftreten dieser Satellitenpeaks deutet auf das Vorhandensein eines geringfügigen Anteils eines weiteren Texturanteils hin, in welchem die a- und die c-Achse außerhalb der MR der Folie orientiert sind. Eine derartige Kristallorientierung wurde häufig an Blasfolien mit einem mittleren Verhältnis von Längs- zu Querverstreckung beobachtet und als Zwischenlagetextur bezeichnet [56,57].

Weitere Untersuchungen zur Orientierung der kristallinen PE-LD- bzw. iPB-1-Phase wurden anhand von Röntgenkleinwinkel-Flachfilmaufnahmen von PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 durchgeführt (Bild A.3). Aufgrund der Kristallisation von PE-LD in Form von Lamellen bzw. Lamellenstapeln, werden die Röntgenkleinwinkelreflexe als Abstand der Lamellen innerhalb der Lamellenstapel interpretiert. Somit entspricht die Lage des Röntgenkleinwinkelreflexes der Abstandsnormale, die für die PE-LD-Lamellenstapel mit der kristallographischen c-Achse übereinstimmt. Entgegen der, als Mittelwert über alle kristallinen PE-LD-Bereiche ermittelten, uniaxialen a-Textur sind die kristallinen Bereiche, die in Form von Lamellenstapeln vorhanden sind, mit ihrer c-Achse bevorzugt in MR orientiert, wie in Bild A.3 anhand der MR-QR- und der MR-NR-Ebene zu sehen ist. Darüber hinaus existieren auch Lamellenstapel, die in QR orientiert sind, wie die Flachfilmaufnahme der QR-NR-Ebene belegt. In den Röntgenkleinwinkel-Flachfilmaufnahmen ist ein weiterer Reflex erkennbar, der iPB-1 zugeordnet werden konnte. Dieser Reflex wurde als Abstand der iPB-1-Nadelkristalle interpretiert, da mikroskopische Aufnahmen (vgl. Bild 3.5) eine Kristallisation von iPB-1 in Form von Nadelkristallen ergaben. Somit ist für iPB-1 in Übereinstimmung mit den Röntgenweitwinkelaufnahmen eine bevorzugte Orientierung der kristallographischen c-Achsen in MR festzustellen.

Zur weiteren Aufklärung der, sich als sehr komplex andeutenden, physikalischen Struktur der PE-LD/iPB-1-Blasfolien wurde mit Hilfe der Polarisationsmikroskopie die Vorzugsorientierung der Molekülketten ermittelt. Hierbei kann nicht zwischen PE-LD- oder iPB-1-Phase bzw. zwischen kristalliner und amorpher Phase unterschieden werden. Somit wird ein integraler Wert über alle in der Blasfolie auftretenden molekularen Orientierungen erhalten. Es ist jedoch davon auszugehen, dass die Moleküle in den jeweiligen amorphen Phasen annähernd isotrop orientiert sind, so dass die, mit Hilfe der Polarisationsmikroskopie, ermittelte Vorzugsorientierung einer gemittelten Orientierung der in der Folie vorkommenden kristallinen Bereiche entspricht. Diese gemittelte Vorzugsorientierung ändert sich mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil, wie Bild 4.4 verdeutlicht. Bis 15 M.-% iPB-1 sind die Moleküle in der PE-LD/iPB-1-Blasfolie bevorzugt zwischen 75° und 90° in Bezug zur MR und demnach in Querrichtung orientiert. Für PE-LD/iPB-1 mit 20 M.-% iPB-1 wurde jedoch ein Umkippen der Orientierung ermittelt. Hier sind die Moleküle bevorzugt in MR orientiert. Allerdings wird der, für die reine PE-LD-Folie bereits sehr niedrige, Orientierungsgrad mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil bis ca. 0,7 % vermindert, so dass für PE-LD mit 20 M.-% von einer isotropen Orientierung der Moleküle ausgegangen werden muss.

Die Ergebnisse der polarisationsmikroskopischen Untersuchungen stehen im Einklang mit denen der Röntgenweitwinkel- und Röntgenkleinwinkeluntersuchungen. In der PE-LD-Phase der PE-LD/iPB-1-Blasfolien ist der überwiegende Teil der kristallinen Bereiche, vorzugsweise einzeln liegende Lamellen, mit seiner kristallographischen a-Achse in MR orientiert. Ein anderer, in seiner Anzahl geringerer, kristalliner Teil – die Lamellenstapel – ist mit der c-Achse bevorzugt in MR orientiert. Dieser Orientierungszustand erklärt die breite a-Achsenverteilung, die anhand der Röntgenweitwinkel-Flachfilmaufnahmen beobachtet wurde, und den relativ niedrigen Orientierungsgrad der reinen PE-LD-Blasfolie. Somit ist von einem Vorhandensein von zwei Kristallpopulationen in der PE-LD-Phase auszugehen. Zusätzlich erniedrigen die kristallinen Bereiche der iPB-1-Phase, die mit ihrer c-Achse bevorzugt in MR orientiert sind, den Orientierungsgrad der PE-LD/iPB-1-Blasfolie.

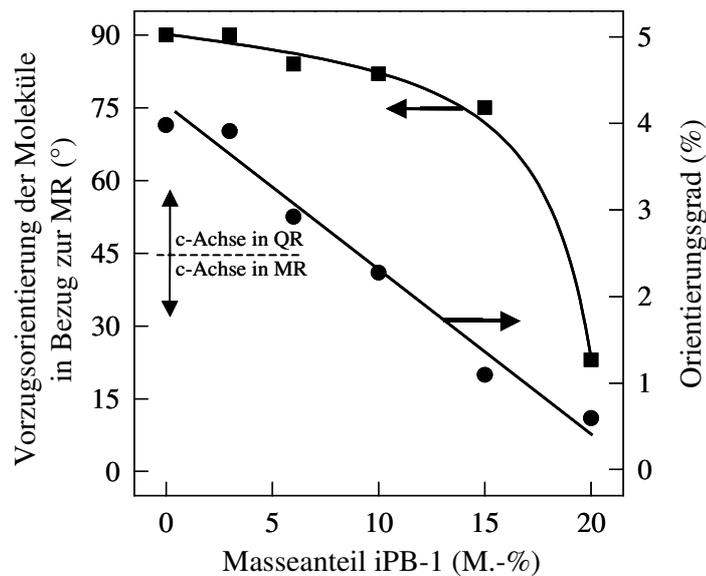


Bild 4.4: Vorzugsorientierung der Gesamtheit der Moleküle in Bezug zur MR und Orientierungsgrad in Abhängigkeit vom iPB-1-Masseanteil

Es ist davon auszugehen, dass sich die, über die PE-LD- und die iPB-1-Phase gemittelte, molekulare Vorzugsorientierung für iPB-1-Masseanteile größer 20 M.-% deutlich verändern wird, und die Mehrheit der Moleküle dann in MR orientiert ist.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass sich der Orientierungsgrad ϕ_{ges} der PE-LD/iPB-1-Blasfolien aus den, in Gl. 4.1 dargestellten, Anteilen zusammensetzt.

$$\phi_{ges} = \phi_{PE-LD}^{Lamellen} + \phi_{PE-LD}^{Lamellenstapel} + \phi_{iPB-1}^{Nadelkristalle} \quad (4.1)$$

- mit $\phi_{PE-LD}^{Lamellen}$ Vorzugsorientierung der einzeln liegenden kristallinen Bereiche (vorzugsweise Lamellen) in der PE-LD-Phase
- $\phi_{PE-LD}^{Lamellenstapel}$ Vorzugsorientierung der Lamellenstapel in der PE-LD-Phase
- $\phi_{iPB-1}^{Nadelkristalle}$ Vorzugsorientierung der kristallinen Bereiche (Nadelkristalle) in der iPB-1-Phase

Zur Überprüfung der Existenz zweier Kristallpopulationen¹ innerhalb der PE-LD-Phase mit jeweils unterschiedlicher Orientierung wurde die Dynamisch-Mechanische Analyse (DMA) von Peelfolien aus PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 in Abhängigkeit der Entnahmerichtung des Prüfkörpers aus der Blasfolie, d.h. in Abhängigkeit des Winkels zwischen der MR der Folie und der Längsachse des Prüfkörpers, durchgeführt (Bild A.4). Der Verlauf des Speichermoduls weist zwei lokale Maxima bei einem Winkel von 0° (MR) und 90° (QR) in Bezug zur MR auf, die das Vorhandensein zweier Kristallpopulationen, die einerseits in MR und mehrheitlich in QR orientiert sind, bestätigen. Bei diesen Überlegungen wurde davon ausgegangen, dass die amorphe Phase annähernd isotrop orientiert ist, und dass die kristalline Phase einen gewissen, wenn auch kleinen, aber eigenschaftsbestimmenden Anteil zum Speichermodul beiträgt.

¹ Als Kristallpopulation wird die Gesamtheit von Kristalliten mit gleichsinniger Orientierung innerhalb einer kristallinen Phase definiert.

Im Ergebnis der Untersuchungen zur Struktur und Orientierung der PE-LD/iPB-1-Blasfolien ergibt sich das in Bild 4.5 dargestellte Modell der physikalischen Struktur.

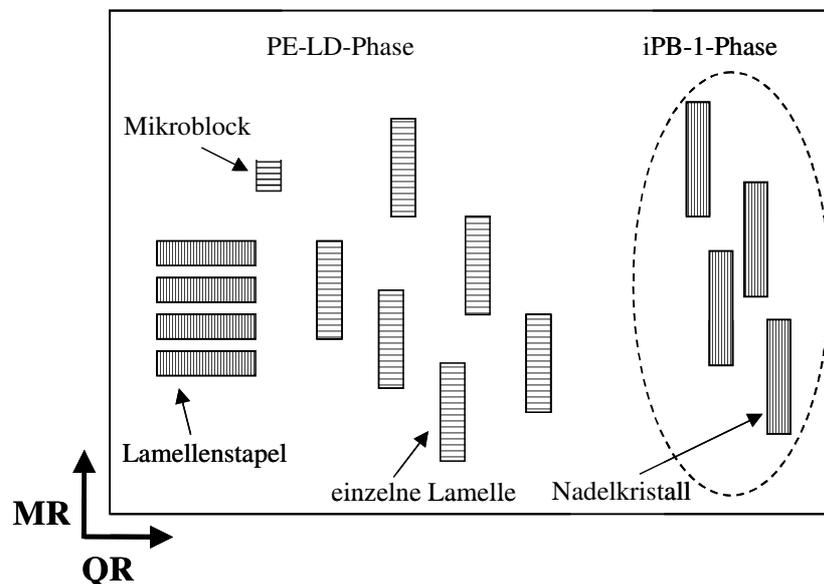


Bild 4.5: Zusammenfassende Darstellung des Orientierungszustandes der PE-LD/iPB-1-Blasfolien [161]; Striche innerhalb der kristallinen Bereiche entsprechen der c-Achse

In der PE-LD-Matrix sind die iPB-1-Teilchen dispergiert. Innerhalb der PE-LD-Phase ist eine Mehrheit von einzeln liegenden Lamellen oder weiteren kristallinen Bereichen (wie beispielsweise Mikrobločkchen) mit der a-Achse in MR und mit der c-Achse in QR orientiert. Ein kleinerer Anteil an Lamellenstapeln ist mit der c-Achse in MR orientiert. In der iPB-1-Phase dominieren die Nadelkristalle, deren c-Achse in MR ausgerichtet ist.

4.2 Die Rezeptur – Ergebnisse zur Variation der Matrix und des iPB-1-Gehaltes

4.2.1 Variation des Matrixtyps

Das Peelverhalten kohäsiver Peelsysteme wird insbesondere vom Matrixtyp beeinflusst, wie die in Bild 4.6 dargestellte Abhängigkeit der Peelkraft vom Peelfolienblendsystemtyp mit unterschiedlicher Matrix belegt. Es wurde festgestellt, dass nur die Peelfolienblendsysteme PE-LD/iPB-1, EVA-4,5/iPB-1 und EVA-9/iPB-1 peelfähig sind, während die übrigen Peelfolienblendsysteme festversiegelnd sind, d.h. es kam während des Peelversuches zu einem Versagen im Folienmaterial und nicht in der Siegelnaht. Somit kann eine praktische Anwendung von PE-LLD-C4/iPB-1, PE-LLD-C8/iPB-1 und mPE-LLD-C8/iPB-1 als Peelfolienblendsysteme ausgeschlossen werden.

Weiterhin ist ersichtlich, dass die Peelkraft für das Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1, in Übereinstimmung mit [4], am geringsten, und somit der Peeffekt in diesem System am ausgeprägtesten ist. Offensichtlich sind die physikalischen Bindungen in der Siegelnaht zwischen PE-LD und iPB-1 im Vergleich zu den anderen Peelfolienblendsystemen am schwächsten.

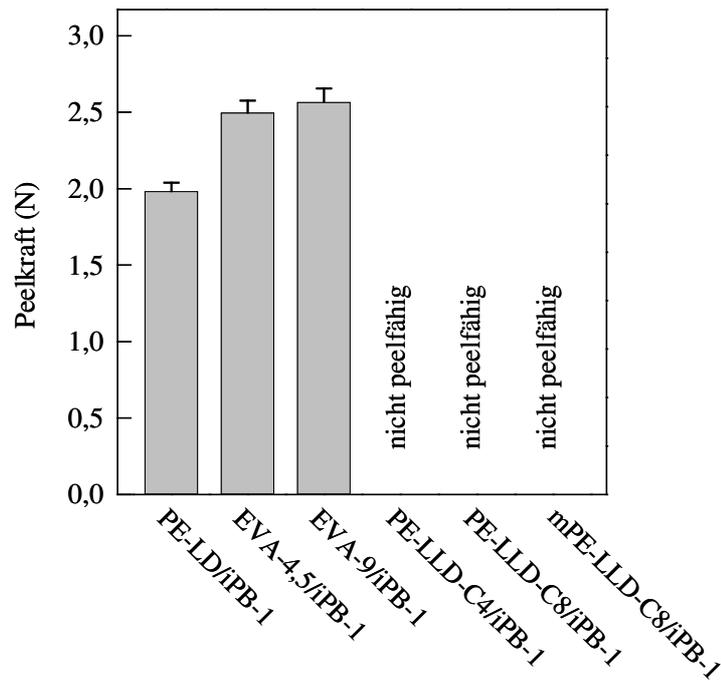


Bild 4.6: Ermittelte Peelkraft für unterschiedliche Peelsysteme mit einem konstanten iPB-1-Masseanteil von 10 M.-%

Für eine genauere Analyse der Affinität der einzelnen Matrixmaterialien zu iPB-1 wurden die entsprechenden reinen, unvermischten Matrixmaterialien gegen die iPB-1-Homopolymer-Blasfolie gesiegelt und im Peelttest untersucht. Anhand der in Bild 4.7 dargestellten Ergebnisse ist zu erkennen, dass sowohl die Peelkraft (Bild 4.7a) als auch die Energiefreisetzungsrate G_{lc} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (Bild 4.7b) für ein Peelen der Matrixmaterialien PE-LD, EVA-4,5 und EVA-9 von iPB-1 auf einem sehr niedrigen Niveau liegen und somit nur schwach ausgeprägte physikalische Bindungen zwischen Matrixwerkstoff und Peelkomponente iPB-1 bestehen.

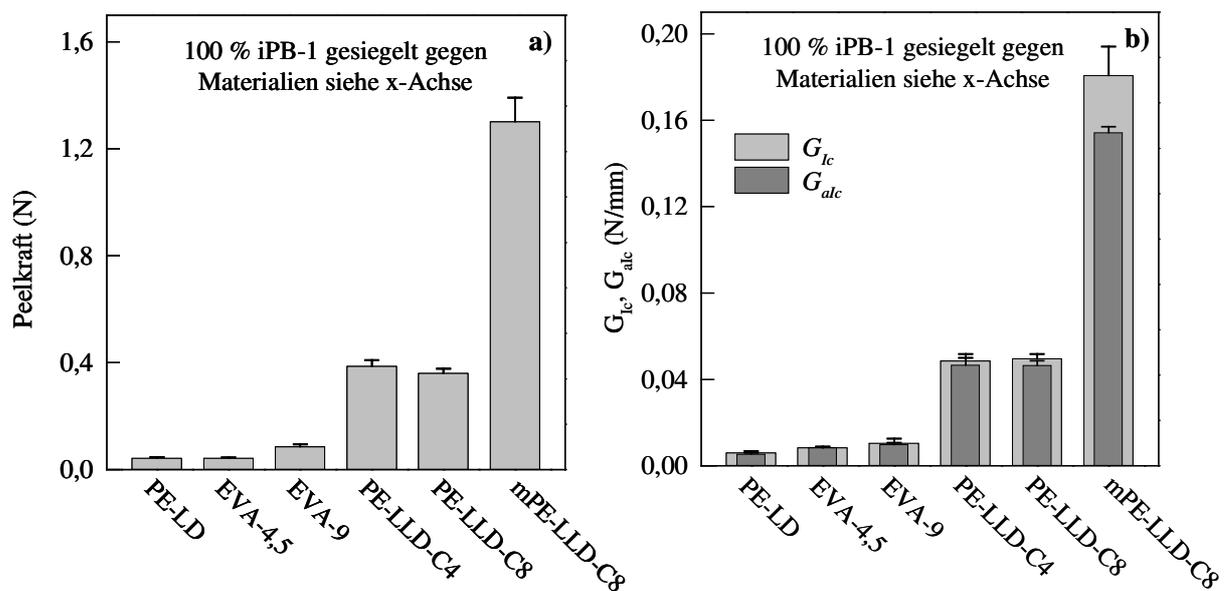


Bild 4.7: Ermittelte Peelkraft (a) sowie Energiefreisetzungsrate G_{lc} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (b) für verschiedene reine Matrixmaterialien, gesiegelt gegen reines iPB-1

Im Gegensatz dazu ist für die ziegler-natta-katalysierten linearen Polyethylene niederer Dichte eine wesentlich größere Affinität zu iPB-1 festzustellen. Die größte Peelkraft wurde jedoch für gegen iPB-1 gesiegeltes metallocen-katalysiertes lineares Polyethylen niederer Dichte gefunden. Wie *Guichon et al.* [59] und *Johnson et al.* [162] feststellten, hat metallocen-katalysiertes PE-LLD im Vergleich zu ziegler-natta-katalysiertem PE-LLD eine geringere Relaxationszeit und somit größere molekulare Beweglichkeit in der Schmelze. Aufgrund der größeren molekularen Beweglichkeit ist eine ausgeprägtere Reptation der Molekülketten in der Grenzschicht während des Siegelvorgangs zu erwarten. Somit wird geschlussfolgert, dass zwischen metallocen-katalysiertem PE-LLD und iPB-1 die meisten bzw. ausgeprägtesten physikalischen Bindungen bestehen.

Im Ergebnis der Untersuchungen zum Vergleich des Einflusses verschiedener Matrixtypen auf das Peelverhalten wurde festgestellt, dass sowohl das Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1 als auch EVA/iPB-1 als kohäsives Peelsystem genutzt werden können. Da jedoch aufgrund von Essigsäureabspaltung bei der Verarbeitung von EVA organoleptische Beeinträchtigungen des Verpackungs-Endproduktes nicht auszuschließen sind, wird für eine Anwendung in der Lebensmittelverpackung ausschließlich das Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1 empfohlen. Folglich lag der Schwerpunkt in der vorliegenden Arbeit auf dem Peelfolienblendsystem PE-LD/iPB-1.

4.2.2 Variation des Anteils der Peelkomponente iPB-1

In diesem Abschnitt wird der Einfluss des Anteils der Peelkomponente auf die Peeleigenschaften mit dem Ziel einer Rezepturoptimierung untersucht.

In Bild 4.8 ist eine Reihe ausgewählter Peelkurven für PE-LD mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen dargestellt. Die abgebildeten Kraft-Weg-Kurven weisen typischerweise zwei lokale Maxima auf, deren Vorhandensein auf den konkaven Querschnitt der Siegelnaht zurückzuführen ist. Weiterhin ist in den Peelkurven deutlich der zur Ermittlung der Messgröße Peelkraft verwendete Plateaubereich zu erkennen. Das Kraftniveau dieses Plateaubereiches und auch der Bruchweg l_B werden mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil vermindert.

Die aus diesen Kurven ermittelte Messgröße Peelkraft, die ausschließlich die Höhe des Peelkurvenplateaus berücksichtigt, ist in Bild 4.9a zu sehen. Die Peelkraft wird mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil exponentiell um ca. 75 % vermindert, was mit den Ergebnissen von *Hwo* [4] übereinstimmt. Eine deutliche Peelkraftverminderung über 20 M.-% iPB-1 hinaus ist aufgrund der Ergebnisse in [4] nicht zu erwarten. Somit stellt PE-LD mit einem Masseanteil von 20 M.-% iPB-1 die nutzbare Obergrenze des vorliegenden Peelsystems dar. Da die Peelkraft ausschließlich die Höhe des Peelkurvenplateaus widerspiegelt und auftretende Deformationen während des Peelvorgangs somit nicht berücksichtigt werden, sind für eine weiterführende Analyse des Zusammenhangs zwischen Peelverhalten und iPB-1-Masseanteil die bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrates G_{lc} und adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} berechnet worden (Bild 4.9b). Die Energiefreisetzungsrates G_{lc} , die den Gesamtenergieinput bestimmt, wird mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil exponentiell vermindert. Einen ähnlichen Verlauf weist die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} , die ausschließlich den Energieanteil zur Trennung der Siegelnaht widerspiegelt, auf. Allerdings wird der Anteil der in der Siegelnaht und im Peelarm auftretenden Deformationen, welcher sich

aus der Differenz von G_{Ic} und G_{alc} ergibt, erwartungsgemäß mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil verringert, und geht bei 20 M.-% iPB-1 gegen Null. Für PE-LD mit 3 M.-% iPB-1 ist der Anteil auftretender Deformationen ca. 48 % von der Gesamtpeelenergie E_G , und für PE-LD mit 20 M.-% iPB-1 nur noch 7 %. Demnach treten im Peelsystem PE-LD/iPB-1 bei einem Masseanteil von 20 M.-% iPB-1 kaum relevante Deformationen in der Siegelnaht und im Peelarm auf.

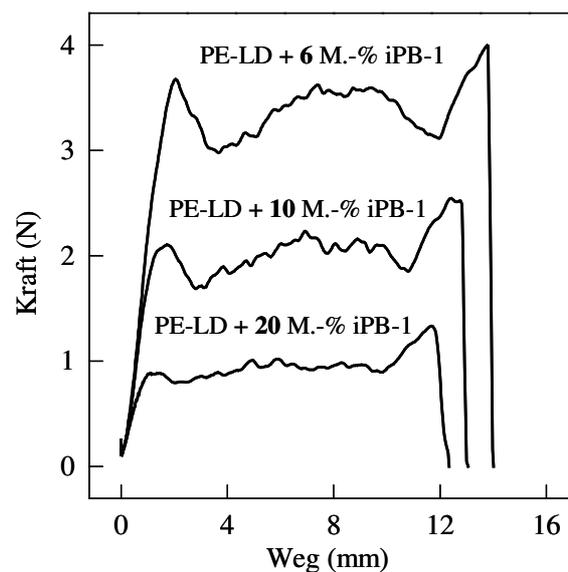


Bild 4.8: Darstellung ausgewählter Peelkurven von PE-LD mit 6, 10 und 20 M.-% iPB-1

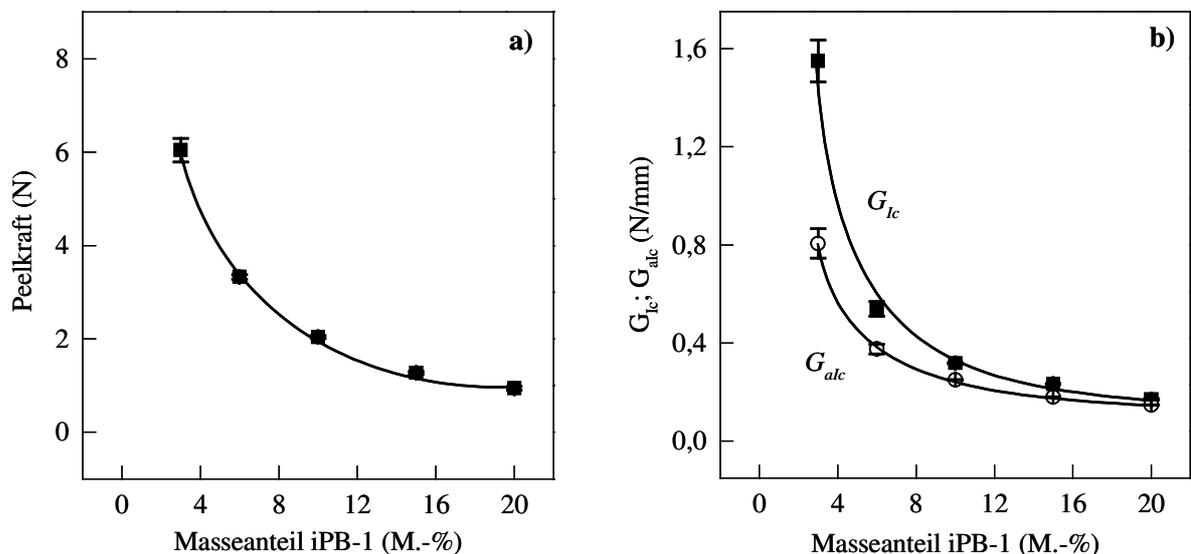


Bild 4.9: Abhängigkeit der Peelkraft (a) sowie der Energiefreisetzungsrates G_{Ic} und der adhäsiven Energiefreisetzungsrates G_{alc} (b) vom iPB-1-Masseanteil

Die gefundenen Abhängigkeiten können zur definierten Einstellung der Peelkraft verwendet werden, wodurch sich vielfältige Anwendungsmöglichkeiten in der Praxis für die unterschiedlichsten Verpackungsarten ergeben.

Eine Bewertung des Mikrodeformationsverhaltens der PE-LD/iPB-1-Peelfolien mit unterschiedlichem iPB-1-Masseanteil erfolgte anhand von in-situ-Peeltests mit Umgebungs-REM. Zunächst wurde das Peelinitiiierungsverhalten der Folien untersucht. Dazu wurde in-situ die Kraft beim ersten Auftreten einer Schädigung durch Peelen gemessen und in Abhängigkeit des iPB-1-Masseanteils dargestellt (Bild 4.10). Die Peelinitiiierungskraft F_i nimmt exponentiell um ca. 80 % mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil ab. Somit ist das Peelinitiiierungsverhalten erwartungsgemäß durch den iPB-1-Masseanteil bestimmt.

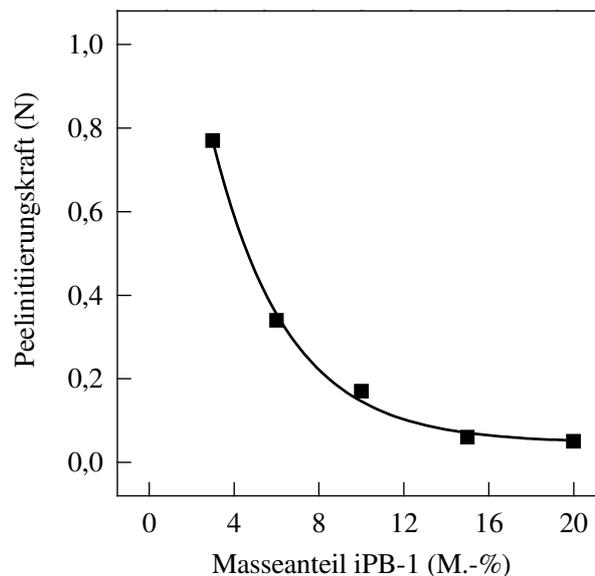


Bild 4.10: Peelinitiiierungskraft F_i in Abhängigkeit des iPB-1-Masseanteils, im in-situ-T-Peeltest ermittelt

In Bild 4.11 sind Umgebungs-REM-Aufnahmen des Peelvorgangs für PE-LD/iPB-1-Peelfolien mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen dargestellt. Deutlich zu erkennen sind fibrilläre Strukturen, welche die bereits teilweise geöffneten Siegelnahtbereiche miteinander verbinden. Diese fibrillären Strukturen resultieren aus einer Verstreckung von Teilen des Matrixmaterials der sich öffnenden Siegelnaht. Die verstreckten Bereiche können sowohl aus PE-LD als auch aus PE-LD/iPB-1 bestehen. Ursprünglich waren diese Bereiche von einer Anzahl von vordefinierten Schwachstellen, der Grenzschicht zwischen den unverträglichen Komponenten PE-LD und iPB-1, umgeben. Eine Anhäufung und/oder günstige Anordnung solcher Schwachstellen resultiert in einer definierten Schwächungszone, die den bevorzugten Weg für einen eingeleiteten Riss darstellt. Die Schwächungszone ist umso ausgeprägter, je größer der Masseanteil an iPB-1 ist. Darüber hinaus sind Fehlstellen der fibrillären Strukturen für PE-LD mit 3 M.-% iPB-1 zu erkennen (Bild 4.11a). Die Fehlstellen sind mit Pfeilen markiert und konnten ausschließlich für diesen iPB-1-Gehalt beobachtet werden. Daraus resultiert ein diskontinuierlicher und „fehlerbehafteter“ Peelvorgang für PE-LD mit 3 M.-% iPB-1, während für iPB-1-Masseanteile ≥ 6 M.-% (Bilder 4.11b–d) ein kontinuierlicher und „fehlerfreier“ Peelvorgang beobachtet wurde. In der Praxis ist neben der Funktionalität der Siegelnaht auch der optische Eindruck der gepeelten Siegelnaht wichtig, so dass mikroskopisch beobachtbare Fehlstellen bzw. Imperfektionen zu makroskopisch sichtbaren, unerwünschten Inhomogenitäten führen können.

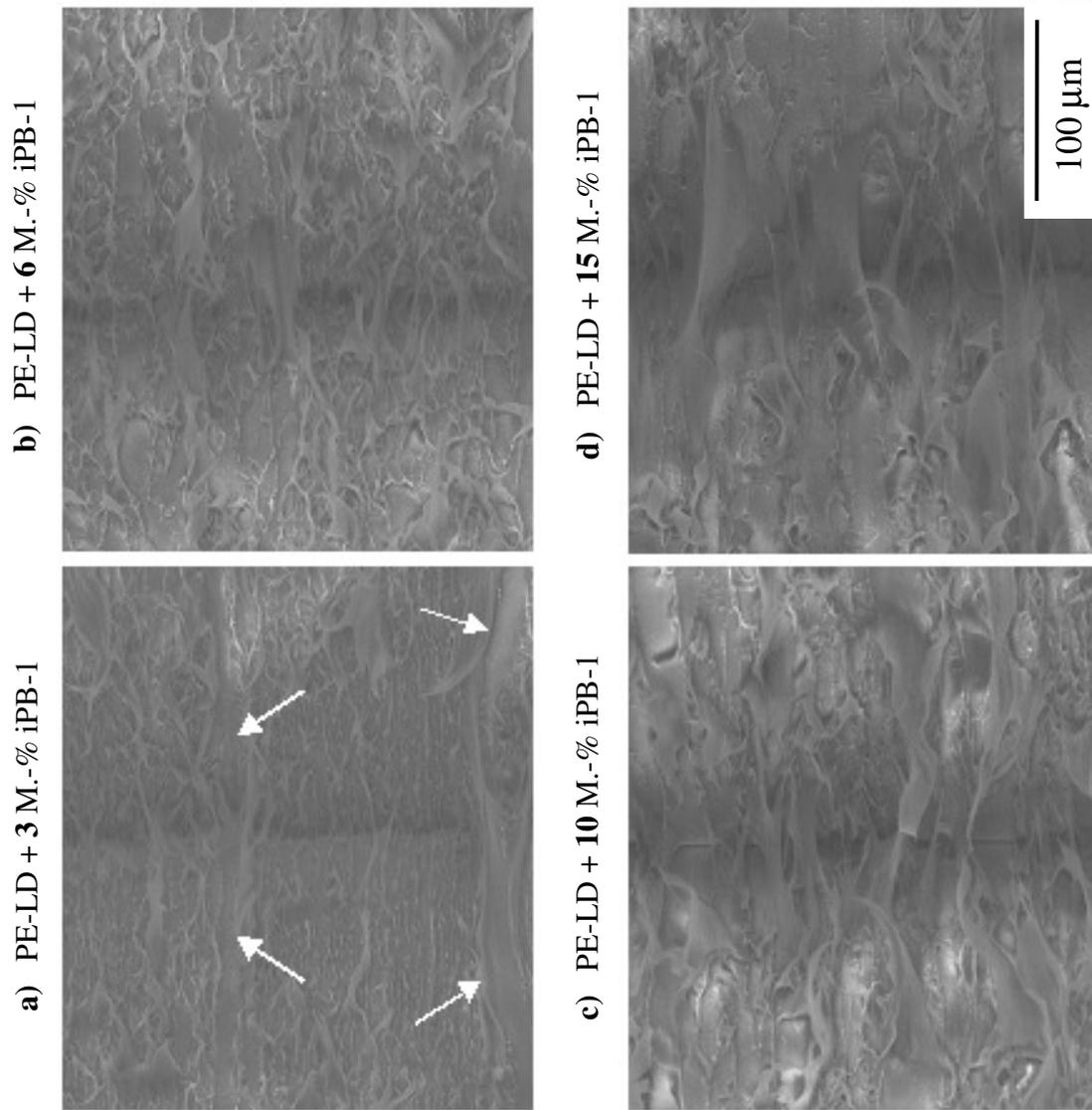


Bild 4.11: Umgebungs-REM-Aufnahmen des Peelvorgangs bei ca. 50 % l_{β} für PE-LD mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen (die weißen Pfeile markieren Fehlstellen)

Zur weiteren Aufklärung der strukturellen Ursache der auf mikroskopischer Ebene beobachteten Imperfektionen bei PE-LD mit 3 M.-% iPB-1 wurden TEM-Aufnahmen angefertigt (Bild 4.12). Mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil ist sowohl eine Erhöhung der Anzahl als auch eine Vergrößerung der iPB-1-Teilchen zu beobachten (Bilder 4.12a–c). Die Vergrößerung der iPB-1-Teilchen ist auf Agglomerationen infolge des Aufschmelzens während des Siegelvorgangs zurückzuführen. Darüber hinaus sind deutliche Unterschiede in der Verteilung bzw. im Verlauf der iPB-1-Teilchen zu sehen. Während für 3 M.-% iPB-1 separierte iPB-1-Teilchen (weiße Pfeile) zu erkennen sind, sind für die iPB-1-Masseanteile 6 M.-% und 15 M.-% durchgehende Bänder bestehend aus iPB-1 zu finden. Somit wird ein Abweichen des Risses vom erwarteten Rissverlauf zwischen iPB-1-Teilchen und PE-LD-Matrix für iPB-1-Masseanteile ≥ 6 M.-% erschwert, was der in den Bildern 4.11b–d dargestellte kontinuierliche und „fehlerfreie“ Peelvorgang bestätigt. Im Gegensatz dazu führen offensichtlich die separierten iPB-1-Teilchen in der Siegelnaht (vgl. Bild 4.12a) teilweise zum Ausreißen bzw. Abweichen des Risses vom Nahtzentrum, was sich in einem diskontinuierlichen und „fehlerbehafteten“ Peelvorgang (vgl. Bild 4.11a) äußert.

Weiterhin ist für PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 eine Ausbildung von iPB-1-Bändern ausschließlich im Zentrum der Siegelnaht (vgl. Bild 4.12c) und weniger im Randbereich der Siegelnaht (vgl. Bild 4.12d) zu erkennen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass PE-LD zwar ein schlechter Wärmeleiter aber ein guter Wärmespeicher ist. Während des Siegelvorgangs besteht zwischen Siegelnahttrand und Siegelnahtzentrum eine Temperaturdifferenz von bis zu 5 K. Nach Beendigung des Siegelvorgangs kühlt die Siegelnaht von innen nach außen nur langsam ab, so dass im Siegelnahtzentrum eine hohe Mobilität der iPB-1-Teilchen gewährleistet ist, was in diesem Bereich zur Ausbildung derartiger iPB-1-Bänder führt.

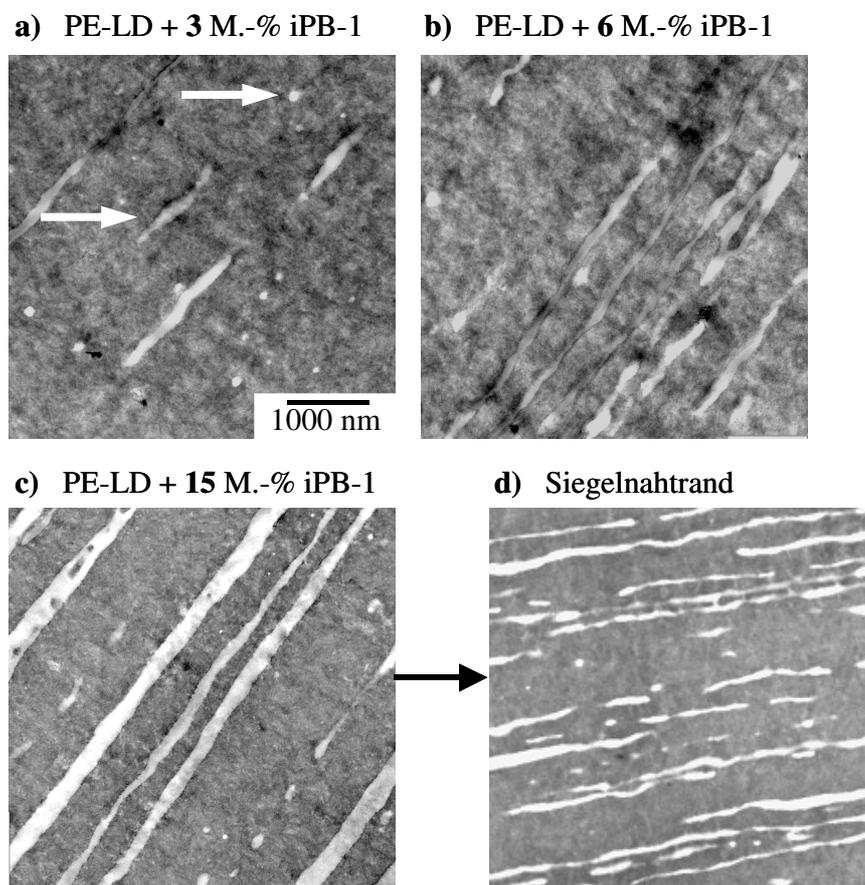


Bild 4.12: TEM-Aufnahmen der MR-NR-Ebene der Siegelnaht (Siegelnahtzentrum) für PE-LD mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen (a–c) und TEM-Aufnahme der MR-NR-Ebene vom Siegelnahttrand (d)

Zur Visualisierung des Rissverlaufs zwischen PE-LD-Matrix und iPB-1-Teilchen wurde eine teilweise geöffnete Siegelnaht fixiert und mittels TEM untersucht (Bild 4.13). Deutlich erkennbar ist der Rissverlauf entlang des iPB-1-Teilchens. Die durch physikalische Wechselwirkungen an das iPB-1-Teilchen gekoppelten PE-LD-Lamellen reißen direkt ab (Bild 4.13a, durch einen Pfeil markiert). Weiterhin ist erkennbar, dass die gerade bzw. kammartig in das iPB-1-Teilchen eingewachsenen PE-LD-Lamellen nahezu rückstandsfrei abreißen (A in Bild 4.13a). Im Gegensatz dazu kann für die ungeordnet eingewachsenen PE-LD-Lamellen nach dem Abreißen ein Rückstand des iPB-1-Teilchens beobachtet werden (B in Bild 4.13b). Somit wirkt offensichtlich ein gerades Einwachsen der PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen rissfördernd.

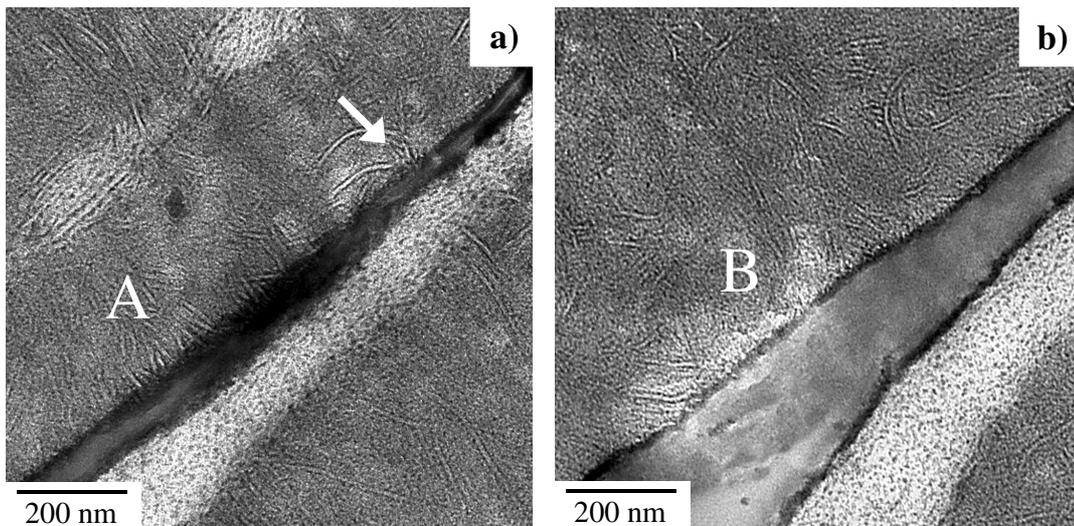


Bild 4.13: TEM-Aufnahmen einer teilweise geöffneten Siegelnaht von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1; Risspitze (a), Rissflanken (b); PE-LD-Matrix: grau, iPB-1-Teilchen: weiß

Bezüglich der Optimierung des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems kann ein iPB-1-Masseanteil von ≥ 6 M.-% als günstig angesehen werden, da ab diesem Gehalt die iPB-1-Teilchen im Zentrum der Siegelnaht ein nahezu durchgehendes Band ausbilden. Somit wäre ein Abweichen des Risses vom Siegelnahtzentrum ausgeschlossen und ein definiert kontinuierlicher Peelvorgang gewährleistet. Da man aus Wirtschaftlichkeitsgründen bestrebt ist, den iPB-1-Masseanteil aufgrund seiner derzeit höherer Kosten im Vergleich zu PE-LD niedriger zu wählen, gilt für das PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem hinsichtlich Kosten und Peelverhalten ein iPB-1-Masseanteil von 6 M.-% als optimal.

4.3 Die Verarbeitung – Einfluss der Prozess- und Siegelparameter auf die Peeleigenschaften

4.3.1 Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter

Eine zusätzliche Möglichkeit zur definierten Einstellung der Peeleigenschaften stellt die Variation der Prozessparameter dar. Als Ergebnis vieler Studien der letzten 40 Jahre über Blasfolien aus Polyethylen ist bekannt, dass die Prozessparameter einen erheblichen Einfluss auf die mechanischen Eigenschaften dieser PE-Folie haben [11,15,89,95]. Sowohl das Temperaturprofil des Extruders als auch die Spaltweite und vor allem die Kühlung sowie das Aufblas- und Abzugsverhältnis der Blasfolie konnten als eigenschaftsbestimmende Prozessparameter identifiziert werden. In diesem Zusammenhang wird nachfolgend der Einfluss verschiedener in Tabelle 3.2 aufgeführter Prozessparameter auf das Peelverhalten von **PE-LD mit 6 M.-% iPB-1** diskutiert.

Die Prozessparameter wurden entlang der Prozesslinie – Extruder, Blaskopf und Folienblase (insbesondere Schlauchbildungszone) – variiert (Bild 4.14).

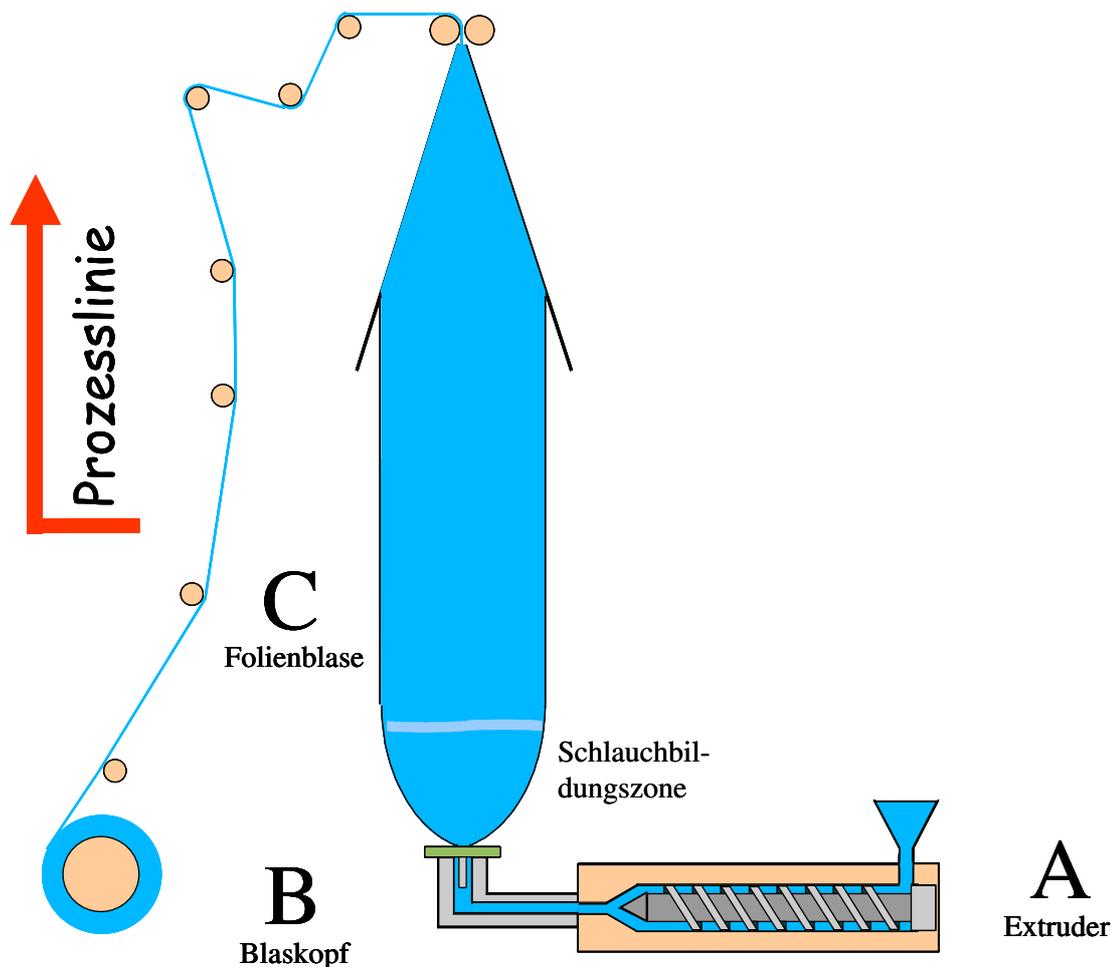


Bild 4.14: Schematische Darstellung der Prozesslinie bei der Blasfolienherstellung, Die Prozessparameter wurden entlang der Prozesslinie (Extruder, Blaskopf, Folienblase) variiert.

(A) Variation der Prozessparameter des Extruders

Zuerst wurde der Einfluss der Extruder-Parameter auf das Peelverhalten untersucht. Die Peelfolien wurden mit bzw. ohne Verwendung von *Maddock-Misch- und Scherelementen*, die zu einer homogenen Verteilung der Peelkomponente beitragen, hergestellt. In Bild A.5 sind exemplarisch die Peelkurven zweier PE-LD/iPB-1-Peelfolien, die mit bzw. ohne Misch-/Scherteil hergestellt wurden, dargestellt. Es wird deutlich, dass der Peelvorgang einer Peelfolie, die ohne Misch-/Scherteil hergestellt wurde, unkontrolliert verläuft. Als Ursache für dieses Verhalten kann die Tatsache angesehen werden, dass der Grad der Verteilung der iPB-1-Teilchen nicht beeinflusst wurde. Somit kann eine peelfähige Folie nur unter Verwendung von Misch- und Scherelementen realisiert werden.

Als Nächstes wurde die *Schneckendrehzahl* und das *Temperaturprofil der Extruderzonen* (resultierend in einer messbaren Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders) variiert.

In Bild 4.15 ist der Zusammenhang zwischen Peelkraft und Schneckendrehzahl dargestellt. Die Schneckendrehzahl hat keinen signifikanten Einfluss auf die Peelkraft. Wird die Schneckendrehzahl erhöht, vergrößert sich zwar die Scherung im Extruder, jedoch verringert sich auch die Verweilzeit. Bei einer Variation der Schneckendrehzahl in üblichen Bereichen sind diese beiden Prozesse gegenläufig. Bei einer extremen Erhöhung der Schneckendrehzahl wird die Aufschmelzzone des Extruders überfahren, was zu einer sehr eingeschränkten Misch- und Scherwirkung führt.

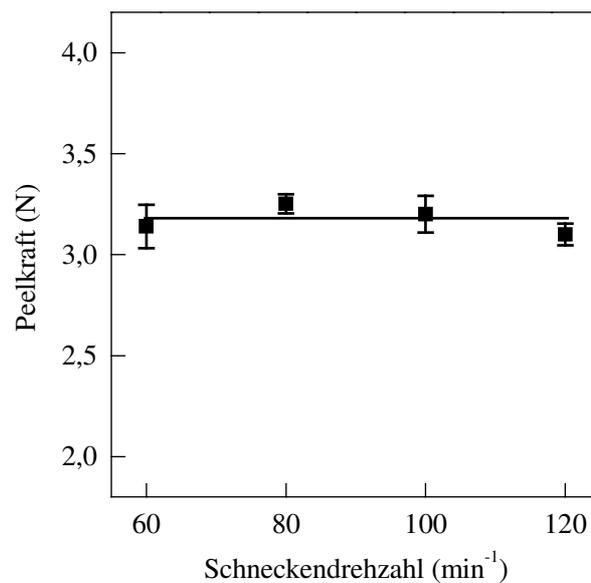


Bild 4.15: Peelkraft in Abhängigkeit der Schneckendrehzahl

Im Gegensatz dazu werden die Peeleigenschaften durch Veränderung der Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders beeinflusst, wie Bild 4.16 zeigt. Die Peelkraft wird mit ansteigender Temperatur der Schmelze von 165 auf 210 °C um ca. 13 % erhöht (Bild 4.16a). Parallel dazu ist auch ein Ansteigen der bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrates G_{Ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} zu beobachten (Bild 4.16b). Der Anstieg der Energiefreisetzungsrates ist stärker als der der adhäsiven Energiefreisetzungsrates, d.h. der Anteil der Deformation im Peelarm und in der Siegelnaht nimmt mit größer werdender Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders zu. Die zugehörigen TEM-Aufnahmen zeigen keinen offensichtlichen Unterschied der PE-LD/iPB-1-Grenzfläche zwischen der kleinsten und der größten Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders bei geringer Vergrößerung. Die Einfrierzeit t_E ist in beiden Fällen identisch, so dass auch die Zeit für mögliche Relaxationsprozesse gleich ist. Somit kann davon ausgegangen werden, dass sich die physikali-

schen Bindungen zwischen PE-LD und iPB-1 durch die höhere Mobilität der Molekülketten in der Schmelze bei 210 °C stärker ausbilden können als bei 165 °C. Dieser Vorgang wird anhand der TEM-Aufnahmen bei höherer Vergrößerung bestätigt, da die PE-LD-Lamellen bei einer Temperatur der Schmelze von 210 °C tiefer in die iPB-1-Teilchen eindringen (durch Pfeile markiert) als bei einer Temperatur von 165 °C. Somit sind die physikalischen Bindungen zwischen PE-LD und iPB-1 für Peelfolien, die bei einer Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders von 210 °C hergestellt sind, größer und folglich ist auch die Peelkraft und die adhäsive Energiefreisetzungsrate höher. Dementsprechend führt eine Variation der Temperatur der Schmelze zu unterschiedlich einstellbaren Peelkräften.

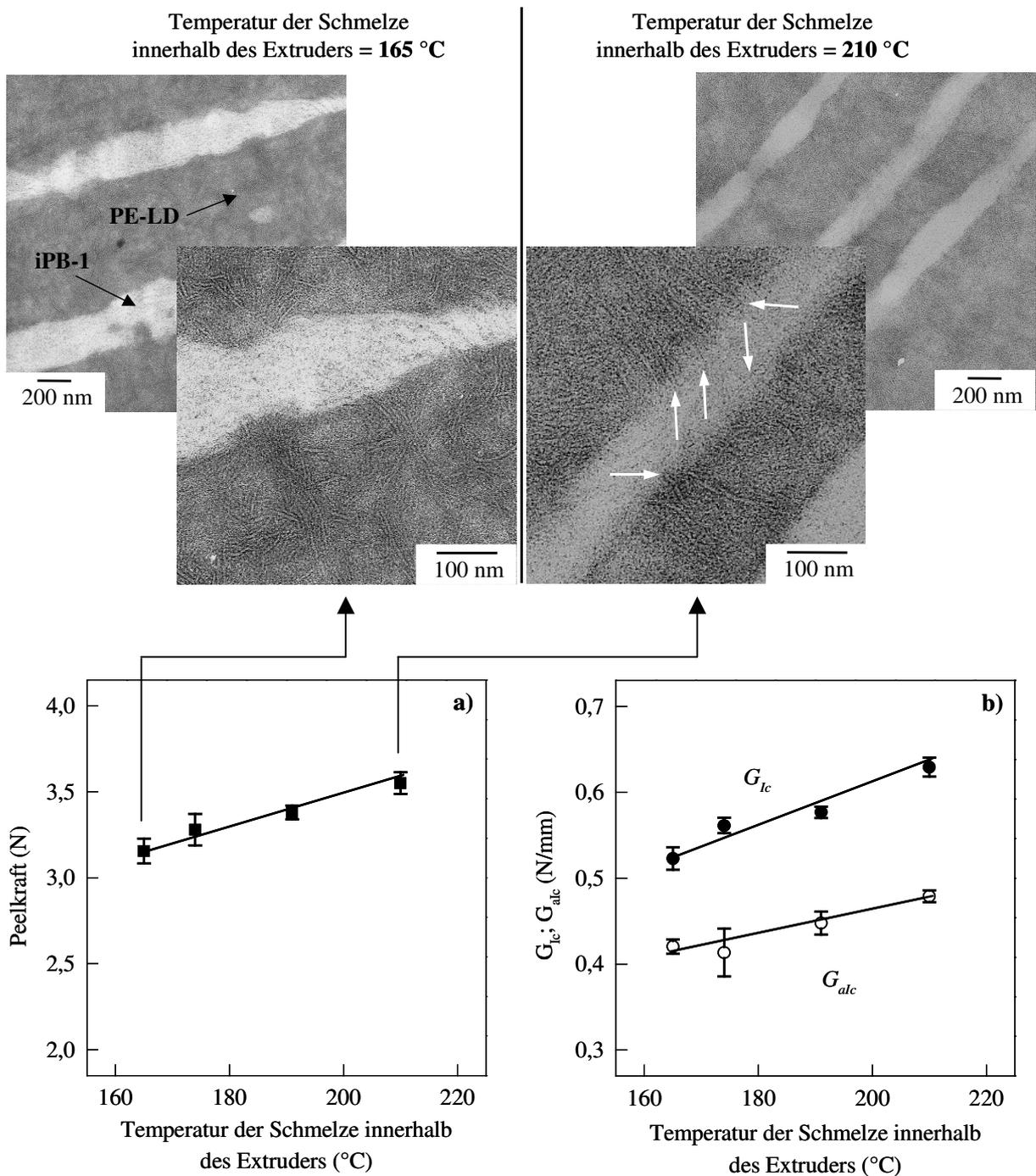


Bild 4.16: Peelkraft (a) sowie Energiefreisetzungsrate G_{lc} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (b) in Abhängigkeit der Temperatur der Schmelze innerhalb des Extruders und zugehörige TEM-Aufnahmen; Die Pfeile markieren das Ende der in die iPB-1-Teilchen eingewachsenen PE-LD-Lamellen.

(B) Variation der Prozessparameter des Blaskopfes

In einem weiteren Schritt wurde der Einfluss der Prozessparameter des Blaskopfes auf die Peeleigenschaften untersucht. Zu diesem Zweck wurden das *Temperaturprofil der Blaskopfzonen* (resultierend in einer messbaren Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes) und die Spaltweite variiert.

In Tabelle 4.1 ist die Peelkraft sowie die Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} in Abhängigkeit der *Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes* zu sehen. Sowohl die Messgröße Peelkraft als auch die Kenngrößen Energiefreisetzungsrate und adhäsive Energiefreisetzungsrate sind bei einer Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes von 171 °C am geringsten. Mit zunehmender Temperatur ist auch eine Zunahme der Peelkraft und der bruchmechanischen Kenngrößen festzustellen, wobei oberhalb von 190 °C keine deutlichen Veränderungen zu sehen sind.

Tabelle 4.1: Peelkraft, Energiefreisetzungsrate und adhäsive Energiefreisetzungsrate bei unterschiedlichen Temperaturen der Schmelze innerhalb des Blaskopfes (Die Standardabweichung liegt unterhalb von 5 %.)

Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes (°C)	Peelkraft (N)	Energiefreisetzungsrate (N/mm)	adhäsive Energiefreisetzungsrate (N/mm)
171	3,0	0,50	0,39
181	3,2	0,54	0,42
190	3,3	0,56	0,45
209	3,3	0,55	0,44

Parallel zur Abhängigkeit des Peelverhaltens von der Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes konnte ein Einfluss auf die optischen Eigenschaften durch Messung der Trübung nachgewiesen werden. Die Trübung der PE-LD/iPB-1-Peelfolie vermindert sich von 16,2 % für eine Temperatur der Schmelze von 171 °C auf 9,7 % für 209 °C (Tabelle A.3). Dies entspricht einer Abnahme der Trübung um 45 %.

Neben der Temperatur des Blaskopfes wurde die *Spaltweite* variiert und ihr Einfluss auf das Peelverhalten untersucht (Bild 4.17). Die Peelkraft wird mit größer werdender Spaltweite und somit größer werdendem Abzugsverhältnis um ca. 40 % vermindert (Bild 4.17a). Einen gleichsinnigen Verlauf zeigen die bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (Bild 4.17b). Die zugehörigen TEM-Aufnahmen zeigen, dass die iPB-1-Teilchen bei einer Spaltweite von 0,8 mm größer und weniger separiert sind als bei 1,2 mm, was eine höhere Peelkraft zur Folge hat. Die iPB-1-Teilchen sind somit unter Verwendung einer Spaltweite von 1,2 mm besser verteilt und verursachen durch diese günstigere Dispersion eine, in dieser Höhe nicht erwartete, Peelkraftverminderung. Die Größe und die günstige Verteilung der iPB-1-Teilchen bei einer Spaltweite von 1,2 mm im Vergleich zu einer Spaltweite von 0,8 mm muss in Zusammenhang mit dem, bei konstanter Foliendicke von 50 µm größerem Abzugsverhältnis betrachtet werden. Unter Berücksichtigung der stark unterschiedlichen Kristallisationstemperaturen von PE-LD ($T_c, PE-LD \sim 90$ °C) und iPB-1 ($T_c, iPB-1 \sim 40$ °C), die einen deutlich größeren Zeitraum an Kettenmobilität im schmelzeflüssigen Zustand für iPB-1 ermöglichen, ist eine Verteilung von iPB-1 auch

nach oder während erfolgter Kristallisation von PE-LD möglich. Die TEM-Aufnahme für die größere Spaltweite illustriert die Separation der iPB-1-Teilchen infolge der Verstreckung in MR. Die Einschnürung ist durch einen Pfeil markiert.

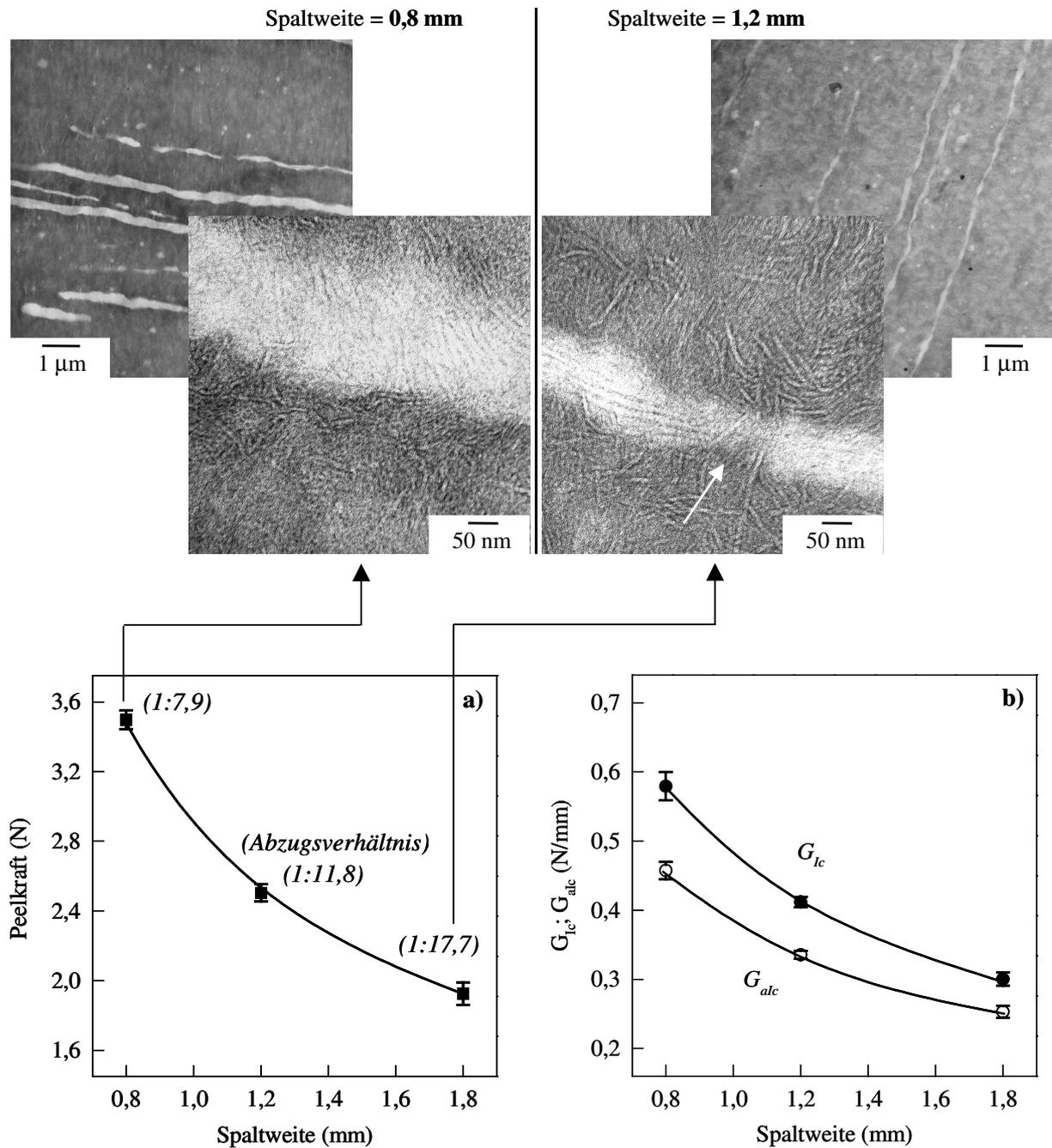


Bild 4.17: Peelkraft (a) sowie Energiefreisetzungsrate G_{ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (b) in Abhängigkeit der Spaltweite und zugehörige TEM-Aufnahmen

Eine weitere Ursache für die bessere Dispergierung der Teilchen durch Vergrößerung der Spaltweite ist am Beispiel von PE-HD in der Literatur zu finden [163]. Darin wird der Effekt des Wandhaftens und Wandgleitens von einer PE-HD-Schmelze in einer zylinderförmigen Düse diskutiert. Die ermittelte Scherrate, die mit der erzielbaren Dispergierung korreliert, ist für den Prozess des Wandhaftens der Schmelze deutlich größer als für Wandgleiten. Beim Fließen einer Schmelze durch eine zylindrische Düse treten immer beide Prozesse, sowohl Wandhaften als auch Wandgleiten auf. Im Allgemeinen kommt es zuerst zum Wandhaften und anschließend zum Wandgleiten. Die Intensität des jeweiligen Prozesses hängt von den Prozessparametern, insbesondere vom Volumendurchsatz ab. Für einen Volumendurchsatz von $\leq 3 \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ wird die Intensität bzw. Länge des Bereiches des Wandgleitens mit zunehmendem Düsendurchmesser erhöht. Folglich wird die Scherrate vergrößert, was wiederum zu einer besseren Dispergierung, beispielsweise von in der Schmelze befindlichen Teilchen, führt. Somit kann die Ursache der Peelkraftverminderung infolge Spaltweitenvergrößerung in einer besseren Dispergierung (1) infolge des ebenfalls veränderten Abzugsverhältnisses oder (2) infolge erhöhter Scherung durch Intensivierung des Prozesses des Wandhaftens liegen. Einen weiteren Beitrag zur Aufklärung leisten die Untersuchungen zur Variation des Abzugsverhältnisses im nächsten Abschnitt.

(C) Variation der Prozessparameter der Schlauchbildungszone

Im letzten Schritt der Untersuchungen zum Einfluss der Verarbeitung auf das Peelverhalten wurden die Prozessparameter an der Folienblase, insbesondere in der Schlauchbildungszone untersucht. Innerhalb der Schlauchbildungszone können die Kühlung, das Aufblasverhältnis und das Abzugsverhältnis variiert werden.

Der Einfluss des Abkühlverhaltens auf das Peelverhalten wurde unter Verwendung des neu entwickelten Parameters *Einfrierzeit* (vgl. Gl. 3.1) [164] untersucht (Bild 4.18). In Bild 4.18a ist die Abhängigkeit der Peelkraft von der Einfrierzeit für zwei ausgewählte Aufblasverhältnisse von 1:2 und 1:2,5 dargestellt. Die Einfrierzeit wurde durch Veränderung der zugeführten Kühlluftmenge variiert. Die Peelkraft wird mit zunehmender Einfrierzeit um ca. 15–17 % für beide Aufblasverhältnisse erhöht. Im vorliegenden Fall zweier unterschiedlicher Aufblasverhältnisse wird der Vorteil des Parameters Einfrierzeit, der die Silhouette der Folienblase berücksichtigt, deutlich. In Tabelle A.4 ist die bei gleicher Frostlinienhöhe (FLH) gemessene Einfrierzeit für unterschiedliche Aufblasverhältnisse dargestellt. Eine Bewertung des Abkühlverhaltens mit Hilfe der FLH für Folien unterschiedlichen Aufblasverhältnisses würde zu Fehlinterpretationen führen, wie das dargestellte Beispiel dokumentiert, da hier die FLH bei unterschiedlichen Aufblasverhältnissen gleich ist und nur mit Hilfe der Einfrierzeit eine Quantifizierung des Abkühlverhaltens möglich ist.

Die in Bild 4.18b dargestellte bruchmechanische Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} wird mit zunehmender Einfrierzeit linear erhöht, und somit hat die Einfrierzeit einen direkten Einfluss auf die zur Trennung der Siegelnaht benötigte Energie. Die Energiefreisetzungsrate G_{lc} zeigt einen ähnlichen Verlauf mit einem erwartungsgemäß größeren Anstieg.

Die Morphologie der Peelfolien mit unterschiedlichen Einfrierzeiten von 1,2 s und 7,1 s ist in den zugehörigen TEM-Aufnahmen zu sehen. Generell ist davon auszugehen, dass die PE-LD-Lamellen leicht in die iPB-1-Teilchen hineinwachsen und somit physikalische Bindungen in einer schmalen Grenzschicht um die iPB-1-Teilchen ausbilden. Die TEM-Aufnahmen zeigen eine deutlich unterschiedliche Anordnung der PE-LD-Lamellen für die beiden Einfrierzeiten. Für eine geringe Einfrierzeit von 1,2 s ist ein hoher Ordnungsgrad und eine kammartige Struktur der PE-LD-Lamellen an den iPB-1-Teilchen zu erkennen, während für eine große Einfrierzeit von 7,1 s eine ungeordnete Struktur der PE-LD-Lamellen an den iPB-1-Teilchen vorherrscht. Wie auch schon anhand von Bild 4.16 festgestellt wurde, wirkt die starke Orientierung der PE-LD-Lamellen und das nahezu senkrechte Hineinwachsen in die iPB-1-Teilchen rissausbreitungsfördernd.

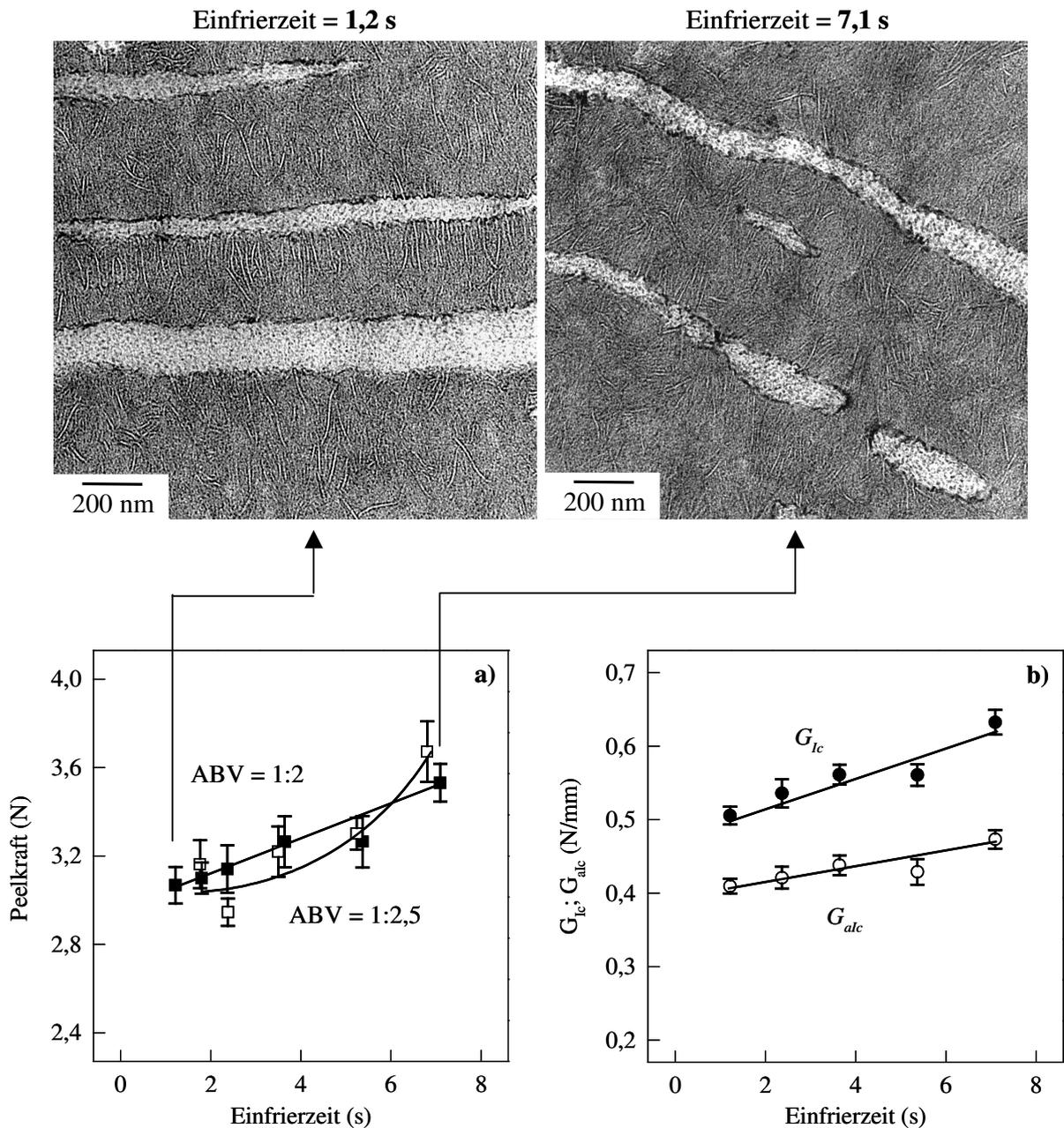


Bild 4.18: Peelkraft für zwei unterschiedliche Aufblasverhältnisse von 1:2 und 1:2,5 (a) sowie Energiefreisetzungsrate G_{lc} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (b) für ein Aufblasverhältnis von 1:2 in Abhängigkeit der Einfrierzeit und zugehörige TEM-Aufnahmen; Der Kristallinitätsgrad von PE-LD ist bei den untersuchten Einfrierzeiten gleich.

Eine Überprüfung des Grades an Orientierung der PE-LD-Lamellen wurde mittels Röntgenweitwinkelstreuung vorgenommen. Es wurden Flachfilmaufnahmen von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 bei unterschiedlichen Einfrierzeiten aufgenommen und anschließend die 200-Interferenz von PE-LD ausgewertet. Die aus den azimutalen Scans ermittelte relative Intensität ist in Abhängigkeit der Einfrierzeit in Bild 4.19 dargestellt. Es ist eine deutliche Abnahme der relativen Intensität und damit einhergehend der Orientierung der PE-LD-Phase um bis zu 20 % mit zunehmender Einfrierzeit von 1,2 s auf 7,1 s festzustellen. Somit ist der aus den TEM-Aufnahmen, die einen lokalen Eindruck der Struktur wiedergeben, gewonnene Eindruck einer stärkeren Orientierung der PE-LD-Lamellen für eine geringere Einfrierzeit für das gesamte Probenvolumen nachgewiesen.

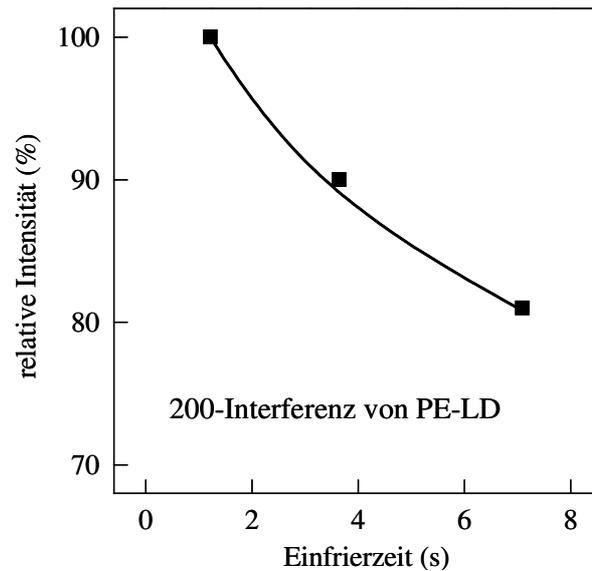


Bild 4.19: Relative Intensität der 200-Interferenz von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 in Abhängigkeit der Einfrierzeit

Neben verschiedenen indirekten Methoden und/oder Berechnungsmöglichkeiten zur Quantifizierung des Abkühlverhaltens kann mit Hilfe der Thermografie auch eine direkte Charakterisierung vorgenommen werden. In Bild 4.20 ist ein mit Hilfe einer Wärmebildkamera aufgenommenes thermografisches Bild bei der Herstellung von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 abgebildet. Es ist zu erkennen, dass die Folienblase bereits kurz nach Verlassen des Blaskopfes eine Temperatur weit unterhalb der Verarbeitungstemperatur von 180 °C aufweist. Darüber hinaus ist zu sehen, dass an der Frostlinie eine Temperatur von ca. 55 °C (grünes Temperaturfeld) herrscht. Der wellenförmige Verlauf der Frostlinie ist auf den iPB-1-Anteil zurückzuführen, da iPB-1 eine andere Wärmekapazität als PE-LD aufweist und somit ein anderes Wärmeabstrahlverhalten zeigt.

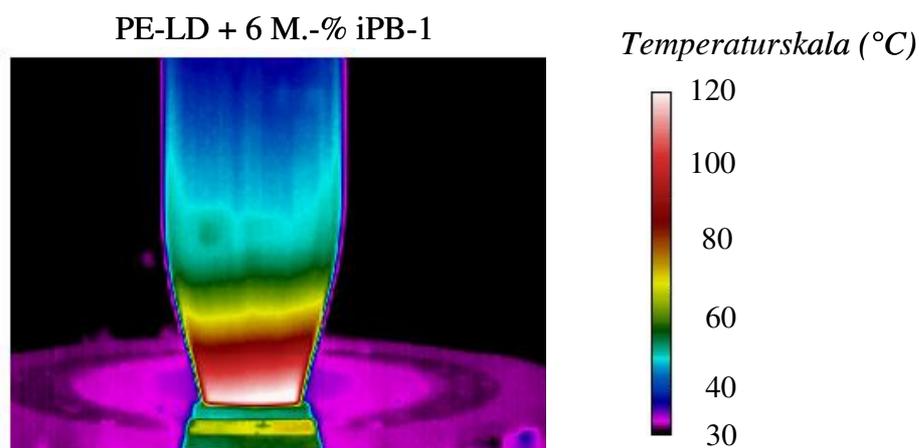


Bild 4.20: Wärmebild der Labor-Blasfolienanlage bei der Herstellung von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1

Als Nächstes wurde der Einfluss des *Aufblasverhältnisses* auf die Peeleigenschaften untersucht. Das Aufblasverhältnis konnte im Labormaßstab jedoch nur sehr begrenzt zwischen 1:1,5 und 1:3 aufgrund des Konstanthaltens der übrigen Prozessparameter variiert werden. In Tabelle 4.2 sind die Peelkraft, die Energiefreisetzungsrates und die adhäsive Energiefreisetzungsrates für unterschiedliche Aufblasverhältnisse dargestellt. Sowohl die Peelkraft als auch die bruchmechanischen Kenngrößen nehmen mit zunehmendem Aufblasverhältnis geringfügig ab. Es ist zu vermuten, dass es bei einem größeren Aufblasverhältnis zu einer Separation der iPB-1-Teilchen und somit besserer Dispergierung kommt, was eine geringere adhäsive Energiefreisetzungsrates zur Folge hat.

Tabelle 4.2: Peelkraft, Energiefreisetzungsrates und adhäsive Energiefreisetzungsrates bei unterschiedlichen Aufblasverhältnissen (Die Standardabweichung liegt unterhalb von 5 %.)

Aufblasverhältnis	Peelkraft (N)	Energiefreisetzungsrates (N/mm)	adhäsive Energiefreisetzungsrates (N/mm)
1:1,5	3,2	0,49	0,43
1:2,0	3,1	0,48	0,42
1:2,5	3,0	0,46	0,40
1:3,0	2,9	0,44	0,38

Neben dem Aufblasverhältnis ist das *Abzugsverhältnis* ein weiterer wichtiger Prozessparameter. In Bild 4.21 ist die Peelkraft als Funktion des Abzugsverhältnisses für eine konstante Spaltweite dargestellt. Aufgrund des Konstanthaltens der Spaltweite verringert sich die Dicke der Peelfolie mit zunehmendem Abzugsverhältnis. Die Messgröße Peelkraft vermindert sich exponentiell mit größer werdendem Abzugsverhältnis von 1:2 bis 1:19,6 um ca. 80 %. Es existieren zwei Möglichkeiten das Abzugsverhältnis bei einer konstanten Spaltweite zu variieren. Die erste Möglichkeit ist eine Variation der Schneckendrehzahl bei konstanter Abzugsgeschwindigkeit und die zweite Möglichkeit ist ein Konstanthalten der Schneckendrehzahl bei variierender Abzugsgeschwindigkeit. Beide Möglichkeiten führen zu einer identischen Abhängigkeit der Peelkraft vom Abzugsverhältnis. Der Grund für die deutliche Peelkraftverminderung in Bild 4.21 liegt in einer Verstreckung und auch besseren Dispergierung der iPB-1-Teilchen mit zunehmendem Abzugsverhältnis wie anhand der TEM-Aufnahmen in Bild 4.22 zu sehen ist.

Für ein Abzugsverhältnis von 1:2,45 (Bild 4.22a) sind deutlich größere und weniger fein dispergierte iPB-1-Teilchen im Vergleich zu einem Abzugsverhältnis von 1:7,8 (Bild 4.22b) zu sehen. Als Ursache für die bessere Dispergierung der iPB-1-Teilchen bei einem AZV von 1:7,8 kann die, aufgrund der niedrigeren Kristallisationstemperatur von iPB-1 von 40 °C größere Mobilität der iPB-1-Teilchen im Vergleich zur PE-LD-Matrix angesehen werden. Die bessere Verteilung von iPB-1 führt dazu, dass zusätzliche PE-LD/iPB-1-Grenzflächen und somit zusätzliche Schwächungszonen erzeugt werden, die zu einer Verminderung der Peelkraft beitragen.

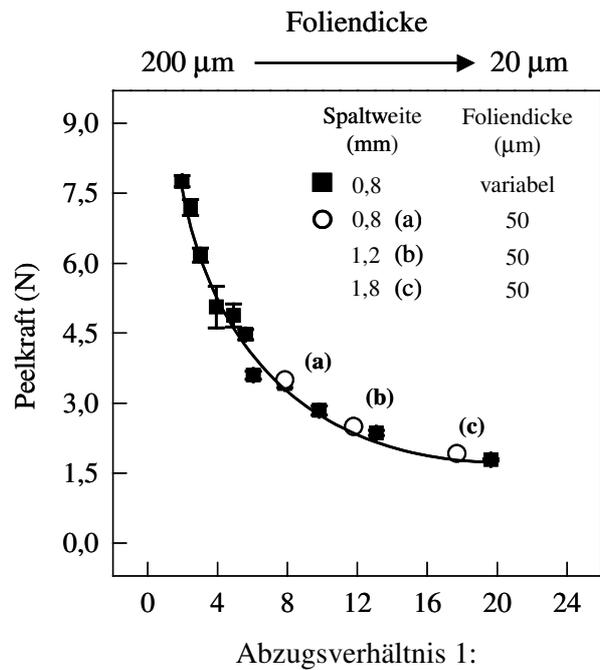


Bild 4.21: Peelkraft in Abhängigkeit des Abzugsverhältnisses bei variierter Foliendicke und ermittelte Wertepaare aus der Spaltweitenvariation bei konstanter Foliendicke

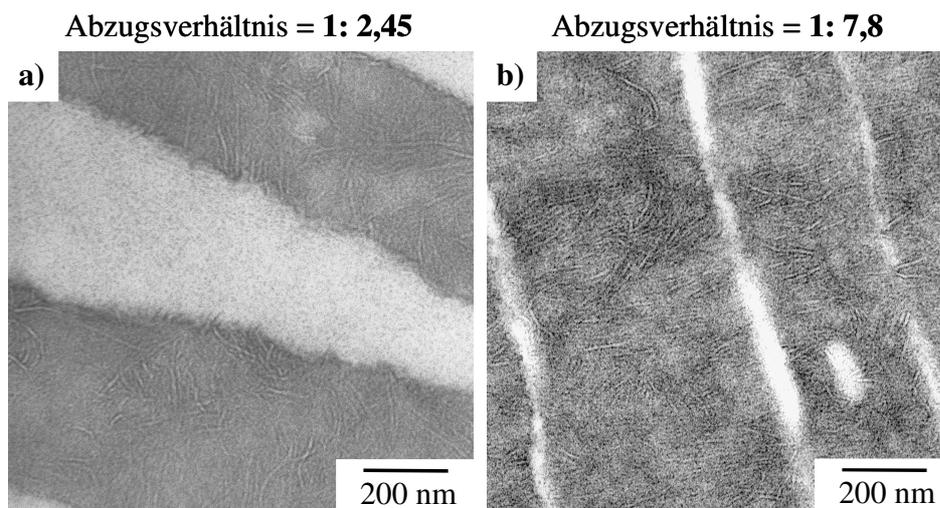


Bild 4.22: TEM-Aufnahmen von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1, hergestellt bei einem Abzugsverhältnis von 1:2,45 (a) bzw. 1:7,8 (b)

Zu Vergleichszwecken ist die Abhängigkeit der Peelkraft von der Spaltweite unter einem variierenden Abzugsverhältnis (vgl. Bild 4.17) in die Darstellung in Bild 4.21 einbezogen worden. Sie steht in guter Übereinstimmung mit der Abhängigkeit der Peelkraft vom Abzugsverhältnis für eine konstante Spaltweite und damit variierter Foliendicke. Aufgrund dieser direkten Korrelation kann festgestellt werden, dass die Ursache der Peelkraftverminderung durch Spaltweitenvergrößerung in einer besseren Dispergierung infolge des ebenfalls veränderten Abzugsverhältnisses liegt. Eine bessere Dispergierung infolge Scherung kann als Sekundärprozess dennoch nicht ausgeschlossen werden, jedoch wird die beobachtete Separierung der iPB-1-Teilchen infolge Verstreckens in MR als Hauptursache favorisiert.

Das Abzugsverhältnis beeinflusst direkt die Peelkraft, unabhängig davon, ob die unterschiedlichen Abzugsverhältnisse durch variierte Spaltweiten oder durch variierte Foliendicken hervorgerufen werden.

Im Ergebnis der Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter auf das Peelverhalten kann festgestellt werden, dass eine definierte Einstellung der anwendungstechnischen Größe Peelkraft durch gezielte Variation der Prozessparameter möglich ist.

Auf der Grundlage der erzielten Ergebnisse werden die beschriebenen Einflussfaktoren des Blasfolienprozesses in ihrer Wirkung auf das Peelverhalten des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems in Tabelle 4.3 zusammengefasst.

Tabelle 4.3: Zusammenfassende Darstellung der Einflussfaktoren des Blasfolienprozesses auf die Peelkraft

Prozessparameter	peelkraft- vermindernd	peelkraft- erhöhend	Ursache
Temperatur der Schmelze	-	+	Hinweinwachsen der PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen
Einfrierzeit	-	+	Orientierung bzw. Struktur der PE-LD-Lamellen an den iPB-1-Teilchen
Spaltweite	+	-	indirekte Beeinflussung des AZV, Dispergierung der iPB-1-Teilchen
Aufblasverhältnis	+	-	Dispergierung der iPB-1-Teilchen
Abzugsverhältnis	+	-	Dispergierung der iPB-1-Teilchen

+ hoher Wert; - niedriger Wert

4.3.2 Untersuchungen zum Einfluss der Siegelparameter und des Siegelprozesses

Einfluss der Siegelparameter

In der technologischen Abfolge schließt sich an die Herstellung im Blasfolienverfahren das Siegeln der Peelfolien an. In diesem Abschnitt wird der Einfluss der Siegelparameter und des Siegelprozesses auf das Peelverhalten diskutiert.

Eine Optimierung bzw. Ausrichtung des Siegelprozesses auf eine bestimmte zu erzielende Peelkraft kann nur bei Kenntnis des physikalischen Zusammenhangs zwischen Peeleigenschaften und Siegelparametern erfolgen. Bei der industriellen Befüllung und anschließender Versiegelung von Verpackungen sind im Allgemeinen niedrige Siegeltemperaturen und geringe Siegelzeiten erwünscht.

Bild 4.23 zeigt eine normierte Darstellung der Abhängigkeit der Peelkraft und der bruchmechanischen Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} von der *Siegeltemperatur* für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1. Während die bruchmechanischen Kennwerte in Abhängigkeit der Siegeltemperatur stetig ansteigen, wird beim Verlauf der Peelkraft zwischen 110 und 150 °C ein plateauähnlicher Bereich beobachtet. Innerhalb dieses Bereiches, der als Siegeltemperaturbereich bezeichnet wird, nimmt die Peelkraft nur geringfügig mit ansteigender Siegeltemperatur zu. Darüber hinaus kann festgestellt werden, dass im Siegeltemperaturbereich eine Zunahme der Deformationsanteile von Peelarm und Siegelnaht erfolgt, da die bruchmechanischen Kennwerte, die unter Registrierung von Peelkraft und Verformung ermittelt werden, zunehmen. Das analysierte Siegeltemperaturverhalten des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems steht tendenziell in guter Übereinstimmung mit den Resultaten von *Hwo* [4], *Yuan et al.* [105] und *Meka et al.* [106].

Eine Siegeltemperatur im Bereich von 110 bis 150 °C kann als günstig angesehen werden, da hier auftretende Siegeltemperaturschwankungen den geringsten Einfluss auf die Peelkraft haben. Da beim Siegeln mit geringer Taktzeit die Schmelztemperatur des Matrixwerkstoffs deutlich überschritten werden sollte, wurde 140 °C als Standard-Siegeltemperatur festgelegt.

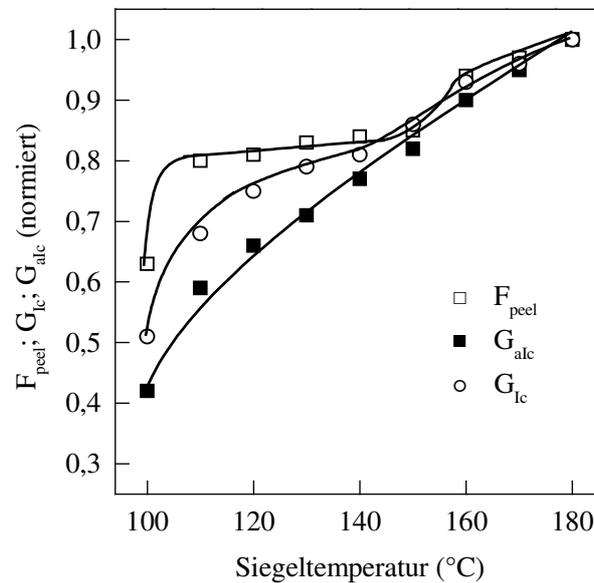


Bild 4.23: Normierte Darstellung der Peelkraft, der Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und der adhäsiven Energiefreisetzungsrate G_{alc} in Abhängigkeit der Siegeltemperatur für PE-LD + 6 M.-% iPB-1

Als Nächstes wurde die Abhängigkeit der Peeleigenschaften von der *Siegelzeit* untersucht (Bild 4.24). In Übereinstimmung mit [4,16,20] konnte ein Ansteigen der Peelkraft mit zunehmender Siegelzeit ermittelt werden, wobei sich bei 5 s Siegelzeit ein Maximum der Messgröße ausbildet. Einen zur Peelkraft gleichsinnigen Verlauf zeigen die Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} . Es wird deutlich, dass die Siegelzeit zum gezielten Einstellen der Peelkraft verwendet werden kann. Allerdings wird aus Kostengründen in der Praxis meist eine geringe Siegelzeit bevorzugt.

Der *Siegeldruck* hat nach Hwo [4] für geringe Druckvariationen keinen Einfluss auf die Peelkraft. Ein gewisser Siegedruck wird lediglich zum kontrollierten Zusammenbringen der beiden zu versiegelnden Peelfolien benötigt. Die in Bild 4.25 abgebildete normierte Darstellung der Abhängigkeit der Peelkraft und der bruchmechanischen Kenngrößen vom Siegedruck zeigt bis ca. 160 kPa in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Hwo [4] keinen Einfluss des Siegedrucks. Für höhere Drücke ist eine geringfügige Verminderung sowohl der Peelkraft als auch der Energiefreisetzungsrate G_{Ic} und der adhäsiven Energiefreisetzungsrate G_{alc} festzustellen. Die geringfügig verminderten Werte sind auf eine Ausdünnung der Siegelnaht, infolge Materialverdrängens durch einen höheren Druck, zurückzuführen. Daher kann ein Siegedruckbereich von 40 bis 160 kPa als günstig angesehen werden, wobei höhere Drücke zu einer optisch ansprechenderen Siegelnaht führen, so dass 160 kPa als Standard-Siegedruck festgelegt wurde.

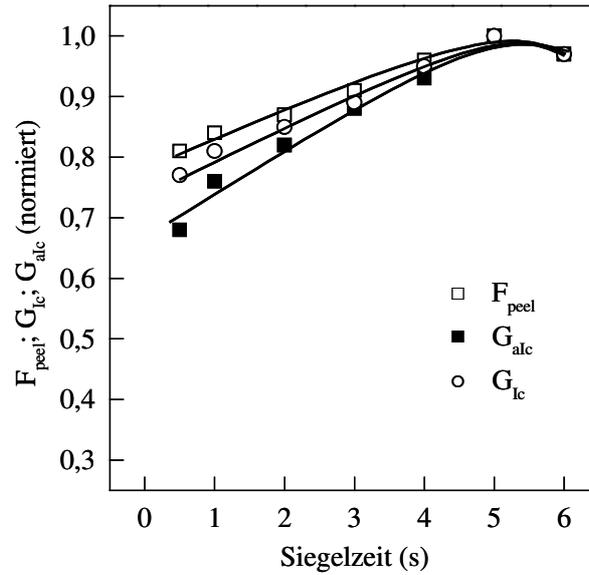


Bild 4.24: Normierte Darstellung der Peelkraft, der Energiefreisetzungsrates G_{lc} und der adhäsiven Energiefreisetzungsrates G_{alc} in Abhängigkeit der Siegelzeit für PE-LD + 6 M.-% iPB-1

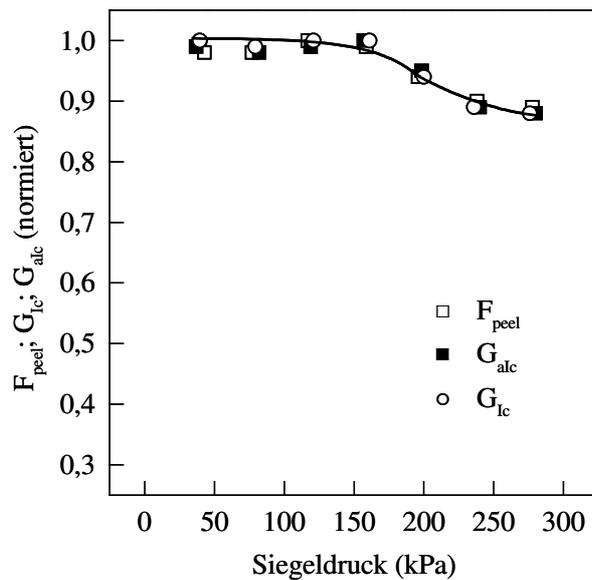


Bild 4.25: Normierte Darstellung der Peelkraft, der Energiefreisetzungsrates G_{lc} und der adhäsiven Energiefreisetzungsrates G_{alc} in Abhängigkeit des Siegeldrucks für PE-LD + 6 M.-% iPB-1

Auf der Grundlage der erzielten Ergebnisse werden die beschriebenen Einflussfaktoren des Siegelprozesses in ihrer Wirkung auf das Peelverhalten des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems in Tabelle 4.4 zusammengefasst.

Tabelle 4.4: Zusammenfassende Darstellung der Einflussfaktoren des Siegelprozesses auf die Peelkraft

Prozessparameter	peelkraft- vermindernd	peelkraft- erhöhend	Ursache
Siegeltemperatur	-	+	Grad der molekularen Interdiffusion in der Grenzschicht zweier Folien, wobei sich bei PE-LD/iPB-1 ein Siegeltemperaturbereich ausbildet
Siegelzeit	-	+	Grad der molekularen Interdiffusion in der Grenzschicht zweier Folien
Siegeldruck	o	o	kein direkter Einfluss nachweisbar, ein zu hoher Siegeldruck führt zur Ausdünnung der Siegelnaht und somit zu einer niedrigen Peelkraft

+ hoher Wert; - niedriger Wert; o keinen Einfluss

Die Untersuchungen zum Einfluss der Siegelparameter auf das Peelverhalten haben gezeigt, dass mit Hilfe der Peelkraft und bruchmechanischer Kennwerte sinnvolle Variationsgrenzen der Siegelparameter gefunden werden konnten.

Einfluss des Siegelprozesses

Da zur Realisierung einer Siegelnaht zwischen zwei PE-LD/iPB-1-Peelfolien ein lokales Aufschmelzen der Folien nötig ist, kommt es bei der Re-Kristallisation in der iPB-1-Phase zur Ausbildung der Kristallmodifikation II mit anschließender II→I-Umwandlung.

Diese Umwandlung wird durch die zwei Röntgenweitwinkel-Diffraktometer-Scans in Bild 4.26 von PE-LD mit 20 M.-% iPB-1, aufgenommen 2 h und 240 h nach dem Siegeln, verdeutlicht. Die dargestellten Röntgenweitwinkeldaten zeigen eine separate Kristallisation von PE-LD und iPB-1. Die Kristallisation von PE-LD ist durch die Peaks bei Streuwinkeln 2θ von $21,4^\circ$ (110-Interferenz) und $23,7^\circ$ (200-Interferenz) gekennzeichnet. Weitere Peaks können bei Streuwinkeln 2θ von $10,0^\circ$, $11,8^\circ$, $17,4^\circ$, $18,3^\circ$ und $20,2^\circ$ beobachtet und der Kristallmodifikation I bzw. II von iPB-1 zugeordnet werden. Dabei werden die Peaks bei $10,0^\circ$ (110-Interferenz), $17,4^\circ$ (300-Interferenz) und $20,2^\circ$ (220-Interferenz) durch Streuung der hexagonalen Kristallmodifikation I hervorgerufen. Die Peaks bei $11,8^\circ$ (200-Interferenz) und $18,3^\circ$ (213-Interferenz) werden durch die tetragonale Kristallmodifikation II erzeugt. Es ist zu erkennen, dass 2 h nach dem Siegeln (dünne Kurve) Kristallmodifikation II dominiert und 240 h nach dem Siegeln die zu Kristallmodifikation II zugehörigen Peaks nahezu verschwunden sind. Daraus folgt, dass in der Peelkomponente des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems eine II→I-Umwandlung stattfand.

Somit ist es notwendig den Einfluss der II→I-Umwandlung auf die Peelkraft zu untersuchen. Zu diesem Zweck wurde die Differenz der Peelkräfte, die 2 h bzw. 240 h nach dem Siegeln ermittelt wurden, in Abhängigkeit des iPB-1-Masseanteils bestimmt, wie in Bild 4.27 dargestellt ist. Es wurde ein linearer Anstieg der auftretenden Differenz der Peelkräfte mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil gefunden. Die Peelkraftverminderung infolge der II→I-Umwandlung ist umso größer, je größer der iPB-1-Masseanteil ist. Demnach liegt die Peelkraftverminderung 240 h nach dem Siegeln im Vergleich zu 2 h nach dem Siegeln in der II→I-Umwandlung der Peelkomponente iPB-1 begründet.

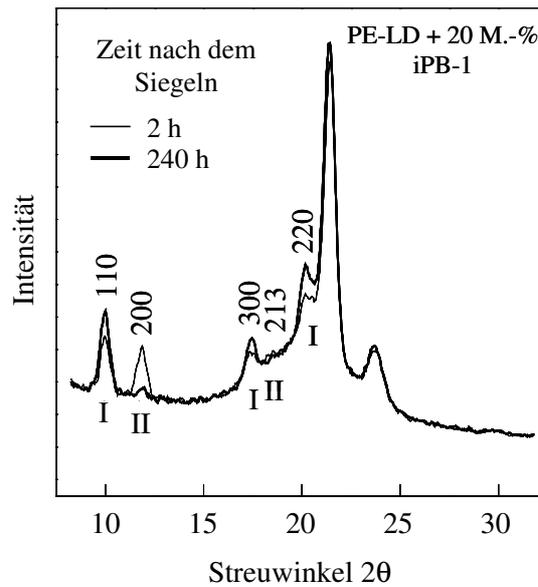


Bild 4.26: Röntgenweitwinkel-Diffraktometer-Scans von PE-LD mit 20 M.-% iPB-1, ermittelt 2 h und 240 h nach dem Siegeln der Folien

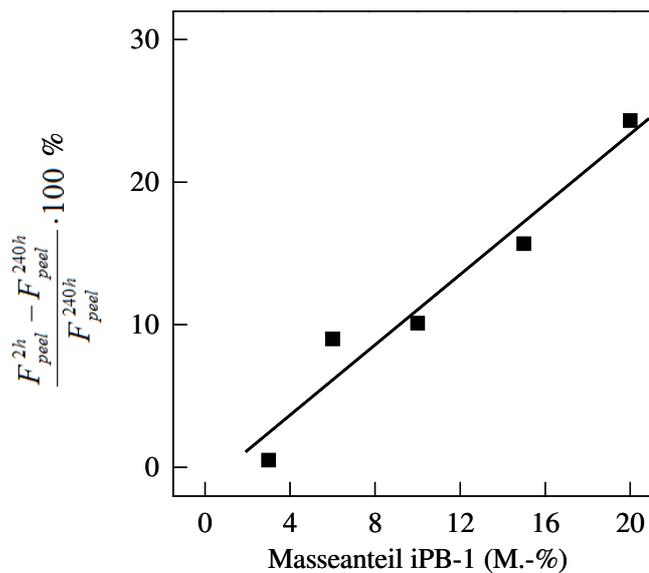


Bild 4.27: Normierte Darstellung der Differenz der Peelkraft, ermittelt 2 h bzw. 240 h nach dem Siegeln; F_{peel}^{2h} – Peelkraft, gemessen 2 h nach dem Siegeln und F_{peel}^{240h} – Peelkraft, gemessen 240 h nach dem Siegeln

Zum besseren Verständnis und zur Berücksichtigung der auftretenden Peelkraftverminderung bei der Auslegung bzw. Einstellung der Peelfolien bei der Herstellung ist es notwendig die Kinetik der II→I-Umwandlung zu analysieren. Es wurden Diffraktometer-Scans in definierten Zeitabständen nach dem Siegeln der Folien aufgezeichnet und die Peaks bei 10,0° (Kristallmodifikation I) und bei 11,8° (Kristallmodifikation II) als Funktion der Zeit nach dem Siegeln ausgewertet (Bild 4.28). Die Peaks bei Streuwinkeln 2θ von 17,4°, 18,3° und 20,5° wurden zur Analyse der Umwandlungskinetik nicht herangezogen, da ihre Intensität gering ist und sie teilweise durch andere Peaks überlagert werden, was eine Auswertung erschwert.

Parallel dazu wurde die Peelkraft als Funktion der Zeit nach dem Siegeln ermittelt und zusätzlich in Bild 4.28 dargestellt. In Abhängigkeit von der Zeit kommt es zu einer Verminderung der Intensität der Kristallmodifikation II bei gleichzeitiger Zunahme der Intensität der Kristallmodifikation I. Gemäß dem Verlauf der Intensität kann davon ausgegangen werden, dass die II→I-Umwandlung in den untersuchten Folien nach 50 h abgeschlossen ist. Gleichzeitig wird die Peelkraft exponentiell um ca. 20 bis 30 % vermindert, was im Anwendungsfall zum unerwünschten Öffnen der versiegelten Verpackungsfolie führen kann. Mit Hilfe der Kenntnis des Zusammenhangs zwischen Peelkraft und der Zeit nach dem Siegeln kann ein möglicher Peelkraftverlust abgeschätzt und im Vorfeld der Folienherstellung eine höhere Peelkraft zugrunde gelegt werden.

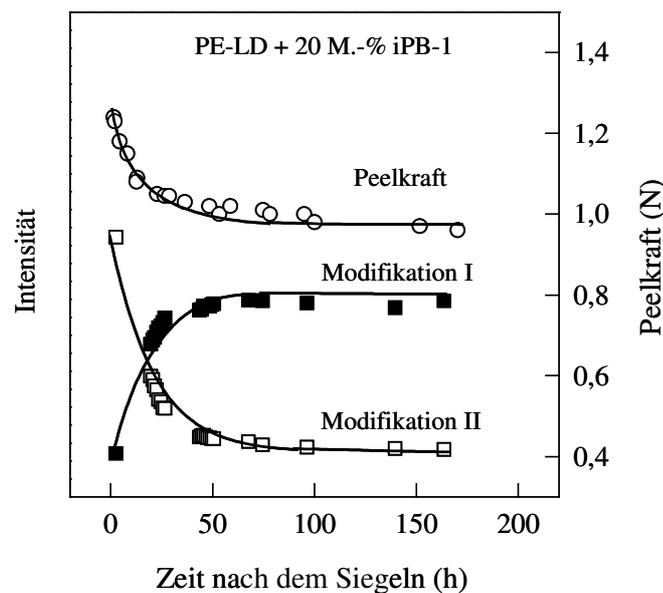


Bild 4.28: Relative Intensität der Peaks bei $10,0^\circ$ (Kristallmodifikation I) und bei $11,8^\circ$ (Kristallmodifikation II) sowie Peelkraft in Abhängigkeit der Zeit nach dem Siegeln

Die II→I-Umwandlung ist mit einer Volumenreduktion der iPB-1-Kristallite um ca. 5 % verbunden [75]. Dieser Volumenschrumpf der iPB-1-Kristallite setzt die physikalischen Bindungen zwischen PE-LD und iPB-1, die aufgrund des Einwachsens der PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen beobachtet wurden (vgl. Bild 3.5), unter Spannung. Dadurch wird ein leichteres Ablösen der PE-LD-Bereiche von den iPB-1-Teilchen möglich, was die niedrigere Peelkraft bedingt.

Die II→I-Umwandlung verläuft beim vorliegenden PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem mit 50 h schneller ab als erwartet. In [77–79] wird eine abgeschlossene II→I-Umwandlung erst nach 100–200 h beobachtet. Die schnellere II→I-Umwandlung ist auf die gegebene molekulare Charakteristik des in dieser Arbeit untersuchten PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems zurückzuführen, da ein umwandlungsbeschleunigender Effekt durch die Anwesenheit von PE-LD ausgeschlossen werden kann, wie Bild A.6 belegt. Hier ist die relative Intensität des Peaks bei $10,0^\circ$ (Kristallmodifikation I) in Abhängigkeit der Zeit nach dem Siegeln für das zuvor untersuchte PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem und für das verwendete iPB-1-Homopolymer dargestellt. In beiden Fällen ist die II→I-Umwandlung nach ca. 50 h nahezu abgeschlossen.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Peelkraftverminderung auf die II→I-Umwandlung der Kristallmodifikation in der iPB-1-Phase des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems zurückzuführen ist, da die Kinetik beider Vorgänge nachweislich identisch ist [165].

Andere Gründe für die Peelkraftverminderung wie Relaxation der amorphen Phase sowohl von PE-LD als auch von iPB-1 können ausgeschlossen werden, da die entsprechenden Glasübergangstemperaturen deutlich niedriger als die Anwendungstemperatur sind (Tabelle A.5). Darüber hinaus können in der PE-LD-Phase auftretende Kristallumlagerungsprozesse als mögliche Ursache der Peelkraftverminderung ebenso ausgeschlossen werden, da diese bereits nach ca. 5 h abgeschlossen sind, wie die Abhängigkeit der scheinbaren spezifischen Wärmekapazität von der Zeit für PE-LD als Ergebnis der temperaturmodulierten dynamischen Differenzkalorimetrie [166,167] belegt (Bild A.7).

Als Konsequenz aus den Untersuchungen zur II→I-Umwandlung wurde festgelegt, dass in der vorliegenden Arbeit die Peelprüfkörper nach erfolgter Siegelung 10 Tage bei Raumtemperatur konditioniert werden, um eine nahezu vollständige II→I-Umwandlung zu gewährleisten.

4.4 Der Peelvorgang – Ergebnisse zur Variation des Peelwinkels

4.4.1 Inter- und translaminarer Rissmechanismus

Da bei der Nutzung von Peelsystemen anwendungsbedingt unterschiedliche Peelwinkel auftreten, ist eine Untersuchung des Zusammenhangs zwischen Peeleigenschaften und Peelwinkel notwendig. Zur Variation des Peelwinkels wurde der Fixed-Arm Peelttest herangezogen.

In Bild 4.29a sind für die Peelwinkel 90° und 130° sowie 160° und 180° die im Fixed-Arm Peelttest registrierten Peelkurven dargestellt. Während für die Peelwinkel 90° und 130° ein ausgeprägtes Plateau der Peelkraft ab ca. 2 mm gemessenem Weg zu erkennen ist, wird für 160° und 180° ein derartiges Plateau als Grundlage für einen gleichmäßigen Peelprozess nicht gefunden. Die Peelkurven bei 160° und 180° Peelwinkel zeigen im Vergleich zu denen bei 90° und 130° ein stark verformungsabhängiges Verhalten der Peelkraft. In Bild 4.29b ist die aus den Peelkurven ermittelte Peelkraft in Abhängigkeit des Peelwinkels für Peelfolien mit unterschiedlichem iPB-1-Gehalt dargestellt. Die Peelkraft zeigt eine deutliche Abhängigkeit vom Peelwinkel. Sie weist im Bereich von 120° bis 130° ein Minimum auf und nimmt ausgehend von 130° mit größer und kleiner werdenden Peelwinkeln stetig zu. Eine Verminderung der Peelkraft mit zunehmendem Peelwinkel bis ca. 120° wurde auch von *Williams et al.* [9] für das Abziehen eines Cellophantagepes von Polytetrafluorethylen (PTFE) ermittelt.

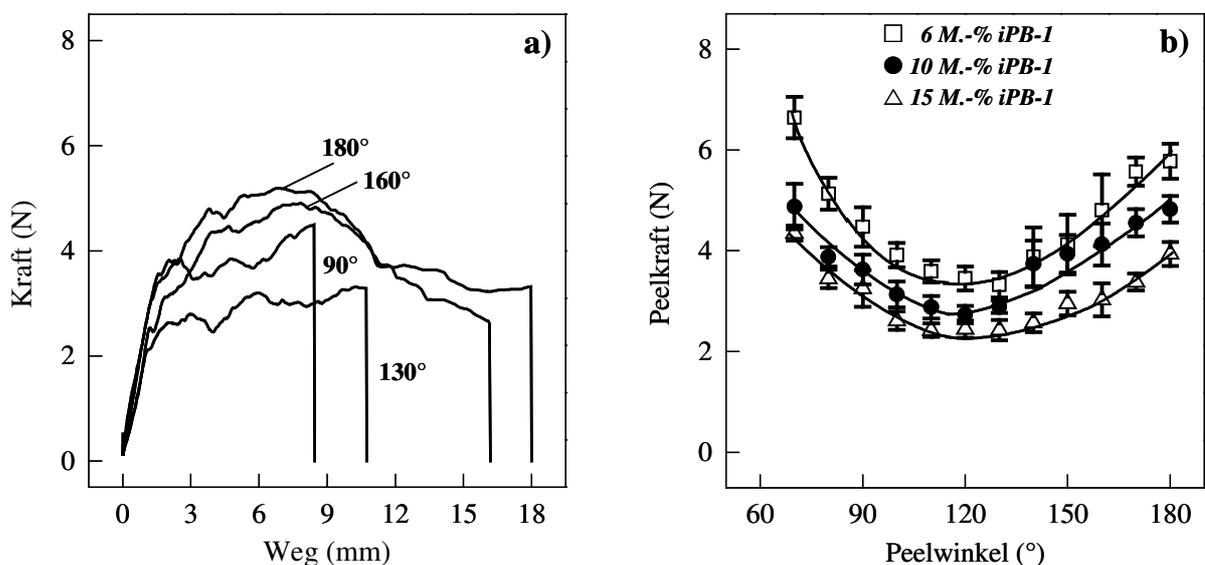


Bild 4.29: Peelkurven aus dem Fixed-Arm Peelttest für unterschiedliche Peelwinkel (a) und Abhängigkeit der Peelkraft vom Peelwinkel für PE-LD mit 6, 10 und 15 M.-% iPB-1 (b)

Zur Berücksichtigung des ausgeprägten Deformationsverhaltens bei großen Peelwinkeln wurden die Kenngrößen Energiefreisetzungsrate G_{lc} und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} zur bruchmechanischen Charakterisierung des Peelvorgangs bei definierten Peelwinkeln herangezogen. Die Energiefreisetzungsrate und die adhäsive Energiefreisetzungsrate sind in Bild 4.30 in Abhängigkeit vom Peelwinkel für das Peelfolienblendensystem PE-LD/iPB-1 mit einem iPB-1-Gehalt von 6, 10 und 15 M.-% zu sehen. Die in Bild 4.30a dargestellte Energiefreisetzungsrate G_{lc} wird zwischen 70° und $120^\circ/130^\circ$ geringfügig vermindert und nimmt für größere Peelwinkel ähnlich dem Verlauf der Peelkraft (vgl. Bild 4.29b) deutlich zu. Im Gegensatz dazu wurden die Wertepaare der adhäsiven Energiefreisetzungsrate G_{alc} durch eine bi-lineare Funktion angenähert (Bild 4.30b). Somit weist die dargestellte Abhängigkeit zwei charakteristische Bereiche auf, die durch einen Übergangsbereich θ_T von 120° bis 140° Peelwinkel verbunden sind. Im Bereich von 70° bis 120° Peelwinkel weist der Verlauf der adhäsiven Energiefreisetzungsrate in Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Kinloch *et al.* [8] keine Unterschiede auf. G_{alc} ist in diesem Bereich unabhängig vom Peelwinkel und kann somit bei vorausgesetzter Dickenunabhängigkeit als geometrieunabhängiger Werkstoffparameter angesehen werden [8,139]. Im Bereich von 140° bis 180° Peelwinkel wird G_{alc} deutlich erhöht, obwohl der Einfluss des Peelwinkels berücksichtigt wurde. Jedoch ändert sich in diesem zweiten Bereich das Peelverhalten drastisch, wie die Ergebnisse des in-situ-Peeltests mit Umgebungs-REM bestätigen.

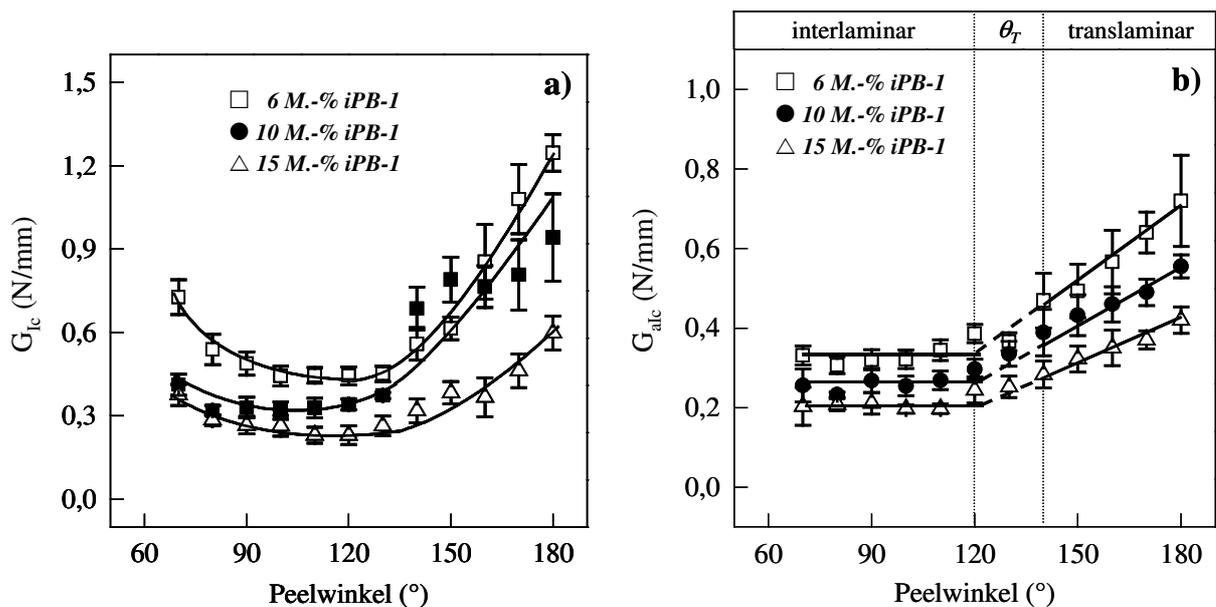


Bild 4.30: Energiefreisetzungsrate G_{lc} (a) und adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} (b) in Abhängigkeit des Peelwinkels

Im Bereich von 70° bis 120° Peelwinkel breitet sich der Riss entlang der Siegelnaht aus, d.h. der Peelvorgang ist überwiegend *interlaminar* (Bild 4.31a,b). Für Peelwinkel größer als 140° breitet sich der Riss über den Querschnitt der Peelfolien aus und führt zum vorzeitigen Abreißen des Peelarms (Bild 4.31c,d) bzw. zum unkontrollierten Ausbreiten des Risses. Hier ist ein *translaminarer* Verlauf des Risses zu beobachten.

Durch die Beobachtung und Aufklärung der ablaufenden Schädigungsvorgänge mit Hilfe des in-situ-Fixed-Arm Peeltests mit Umgebungs-REM wird eine Einteilung der charakteristischen Verformungsenergiebereiche in *inter-* und *translaminar* möglich (vgl. Bild 4.30b).

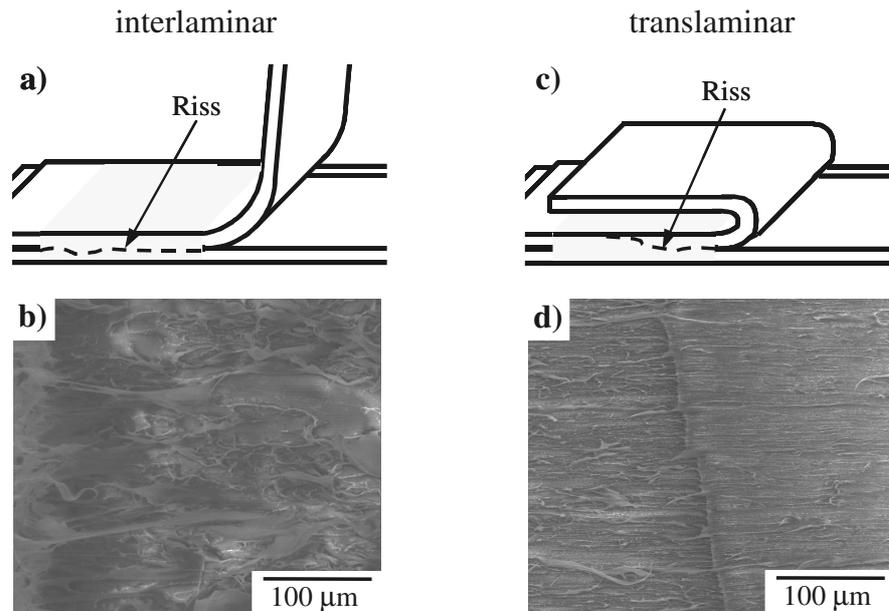


Bild 4.31: Schematische Darstellung eines interlaminaren Rissverlaufs (a) und des zugehörigen Umgebungs-REM Bildes bei 90° Peelwinkel (b), sowie schematische Darstellung eines translaminaren Rissverlaufs (c) und zugehörige Umgebungs-REM-Aufnahme bei 180° Peelwinkel (d)

Für die Anwendung kann ein Peelwinkel von 120° als günstig angesehen werden, da hier die Peelkraft für einen konstanten iPB-1-Masseanteil am geringsten ist und sich eine interlaminare Rissausbreitung vorhersagen lässt [129].

Der translaminare Peelvorgang ist bei praktischen Anwendungen im Verpackungssektor unerwünscht. Daher soll eine detailliertere Untersuchung zur Vermeidung des translaminaren Peelvorgangs beitragen.

Zur Darstellung eines translaminaren Rissverlaufs zeigen die Bilder 4.32a–d den Rissausbreitungsvorgang von PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 für einen Peelwinkel $\theta = 180^\circ$. Deutlich erkennbar ist der Peelarm mit der zugehörigen Foliendicke d_{F1} und die lokale Peelinitiierung (physikalische Rissinitiierung) sowie die durch eine unterbrochene Linie hervorgehobene Rissfront (Bild 4.32a). In Bild 4.32b sind nach 3 mm gemessenem Weg die für einen interlaminaren Rissverlauf typischen Deformationsgebiete mit ausgeprägten plastischen Deformationen zu sehen. Nach 9 mm gemessenem Weg (Bild 4.32c) kann der Übergang vom interlaminaren zum translaminaren Rissverlauf beobachtet werden, da hier die plastischen Deformationsgebiete weit weniger ausgeprägt sind und der Peelarm dünner als in den vorherigen Rissphasen ist. Dies lässt auf einen Rissverlauf über den Querschnitt des Peelarms schließen. Dieser Trend setzt sich nach 15 mm gemessenem Weg fort (Bild 4.32d). Hier ist zusätzlich zu den schwach ausgeprägten Deformationsstrukturen eine deutlich geneigte Rissfront und ein nur noch sehr dünner Peelarm (d_{F4}) erkennbar. Die hier dargestellte Siegelnaht befindet sich kurz vor dem Versagen durch translaminare Rissausbreitung.

Die Abnahme der Dicke des Peelarms mit voranschreitendem Peelvorgang ist in Bild 4.33 dargestellt. Anhand des Verlaufs wird deutlich, dass dieser Prozess allmählich und nicht abrupt abläuft. Demnach liegt auch bei einem Peelwinkel von 180° zunächst ein interlaminarer Rissverlauf vor, der nach Durchlaufen eines Übergangsbereiches Φ in einen translaminaren Rissverlauf übergeht. Es ist zu erwarten, dass die Lage dieses inter-/translaminaren Übergangsbereiches Φ vom iPB-1-Masseanteil abhängig ist.

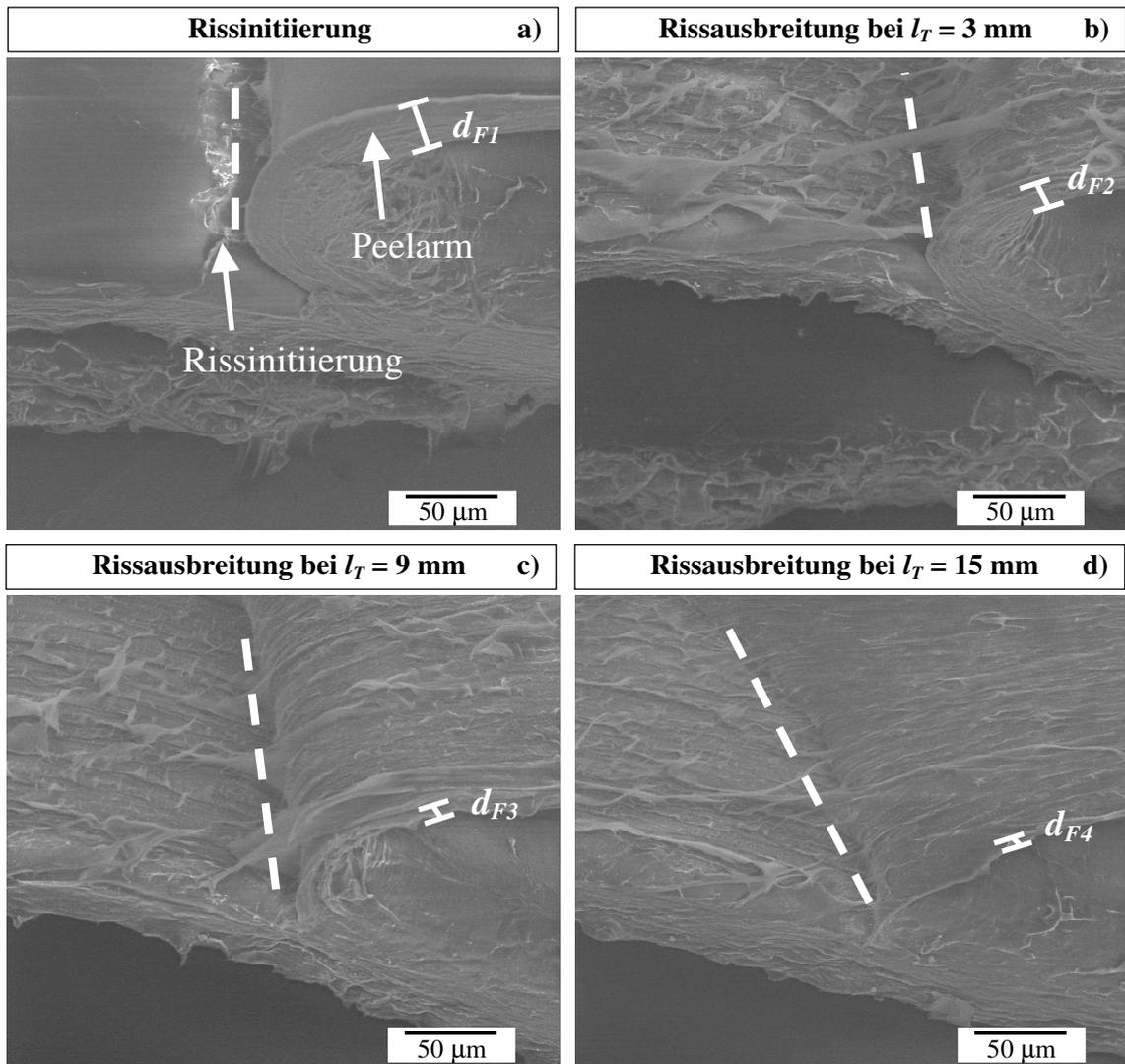


Bild 4.32: Umgebungs-REM-Aufnahmen einer translaminaren Rissausbreitung bei 180° Peelwinkel; Rissinitiierung (a), Rissausbreitung (b bis d); Ansicht 30° geneigt, l_T – gemessener Weg im Peeltest

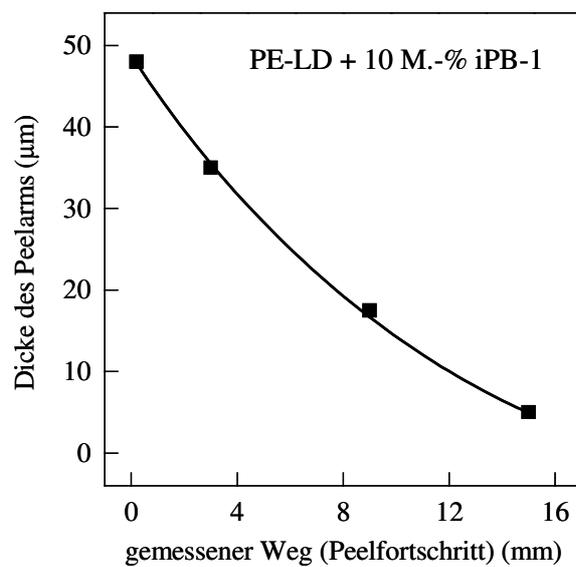


Bild 4.33: Darstellung der Abnahme der Dicke des Peelarms mit zunehmendem Peelfortschritt für PE-LD mit 10 M.-% iPB-1

Zur Überprüfung dieser Abhängigkeit wurden in-situ-Fixed-Arm Peeltests mit Umgebungs-REM an PE-LD mit 6, 10 und 15 M.-% iPB-1 durchgeführt und bei verschiedenen Peelfortschritten mikroskopische Aufnahmen angefertigt. Die entsprechenden Umgebungs-REM-Aufnahmen sind in Bild A.8 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass bei Position (1) generell ein interlaminares Peelvorgang vorliegt. Darüber hinaus wird der Übergang vom inter- zum translaminaren Rissverlauf für PE-LD mit 6 M.-% am schnellsten vollzogen. Hier sind bei Position (2) bereits die typischen Deformationen eines translaminaren Rissverlaufs zu beobachten. Für PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 wird bei Position (2) gerade der Übergang von inter- zu translaminar vollzogen, so dass erst bei Position (3) ein translaminarer Rissverlauf vorliegt. Ein ähnliches Verhalten zeigt auch PE-LD mit 15 M.-% iPB-1. Auch hier kann erst bei Position (3) eindeutig ein translaminarer Peelvorgang beobachtet werden.

Somit wird für PE-LD mit geringen iPB-1-Masseanteilen der Übergang vom inter- zum translaminaren Peelvorgang bei deutlich kleinerem Peelfortschritt vollzogen als bei größeren iPB-1-Masseanteilen.

4.4.2 Delamination

Ein in der Praxis auftretendes Problem bei der Anwendung von Mehrschichtfolien ist das Schichtenablösen oder die Delamination beispielsweise infolge *translaminaren Rissverlaufs*. Beim Peelvorgang kommt es im Falle einer 3-Schichtfolie hierbei zum ungewollten Ablösen der Peelschicht von der Mittelschicht und nicht wie vorgesehen zum Peelen der Peelschicht von der aufgesiegelten separaten PE-Folie (Bild 4.34).

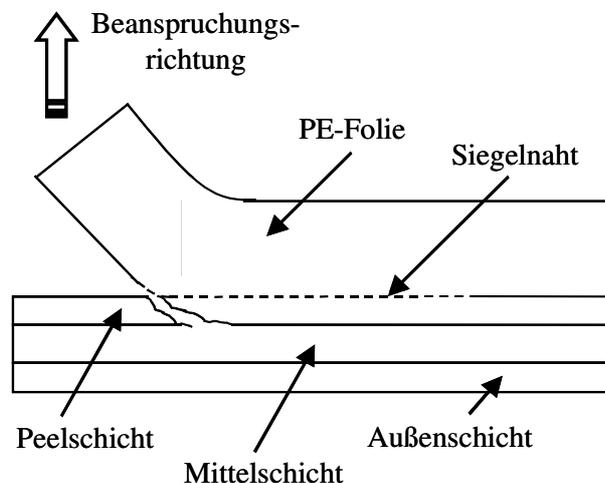


Bild 4.34: Schematische Darstellung des Delaminationsvorgangs an einer 3-Schichtfolie mit aufgesiegelter PE-Folie

Um Delamination zu vermeiden muss die Delaminationskraft F_{Dela} größer sein als die entsprechende Peelkraft F_{peel} . Die Bewertung von unterschiedlichen Einflussfaktoren auf das Delaminationsverhalten kann jedoch nur erfolgen, wenn in einem System permanent Delamination auftritt und die Delaminationskraft in Abhängigkeit dieser Einflussfaktoren gemessen wird. Üblicherweise neigt dann das System mit der höchsten gemessenen Delaminationskraft unter Anwendungsbedingungen **nicht** zum Delaminieren. Zur Realisierung einer erzwungenen Delamination kann das Ergebnis der Untersuchungen zum Einfluss des Peelwinkels auf das Peelverhalten herangezogen werden. Hier wurde festgestellt, dass ein translaminarer

Peelvorgang im Bereich von 140° bis 180° Peelwinkel vorliegt. Somit führt der Peelvorgang an einer Mehrschichtfolie in diesem Peelwinkelbereich zu einer erzwungenen Delamination, da der translaminare Rissverlauf durch die Peelschicht führt und sich anschließend entlang der Grenzfläche Peelschicht/Mittelschicht fortpflanzt.

Zur Untersuchung des Delaminationsverhaltens einer ausgewählten PE-LD/iPB-1-Mehrschicht-Peelfolie (Schichtzusammensetzung: 1. Schicht PE-LD/iPB-1 mit 15 M.-% iPB-1, 2. Schicht PE-LD, 3. Schicht PE-LD) wurde der Fixed-Arm Peelttest in Anlehnung an den entsprechenden Versuch zur Charakterisierung der Einschicht-Peelfolien angewendet [168]. In Bild 4.35 ist ein Kraft-Weg-Diagramm des Peelvorgangs mit auftretender Delamination nach durchlaufenem inter-/translaminarem Übergangsbereich Φ dargestellt. Die Delaminationskraft F_{Dela} wurde als Mittelwert der auftretenden Kräfte im Bereich der Delamination ermittelt.

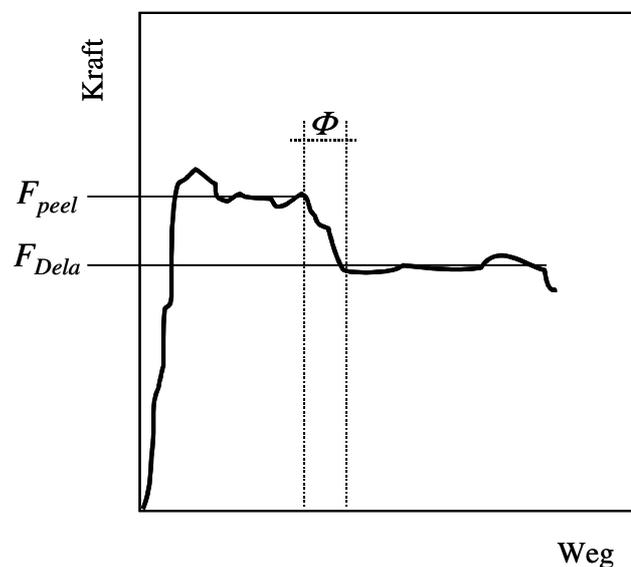


Bild 4.35: Kraft-Weg-Diagramm aus dem Fixed-Arm Peelttest zur Charakterisierung des Delaminationsvorgangs

Als möglicher Einflussfaktor wurde das Einmischen von linearem Polyethylen niedriger Dichte in die aus PE-LD bestehende Mittelschicht einer 3-Schicht-Peelfolie untersucht. Bild 4.36 zeigt die Abhängigkeit der Delaminationskraft vom PE-LLD-Masseanteil der Mittelschicht. Die Zunahme der Delaminationskraft mit größer werdendem PE-LLD-Masseanteil um ca. 13 % ist auf die größere Affinität von iPB-1 zu PE-LLD im Vergleich zu PE-LD zurückzuführen, wie auch die Untersuchungsergebnisse aus Abschnitt 4.2.1 „Variation des Matrixtyps“ (vgl. Bild 4.7) bestätigen.

Als weitere Einflussfaktoren auf das Delaminationsverhalten sind die Schichtdickenverteilung innerhalb der Mehrschichtfolie, der iPB-1-Gehalt und die Prozessparameter des Herstellungsprozesses zu nennen, die jedoch im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht näher untersucht wurden.

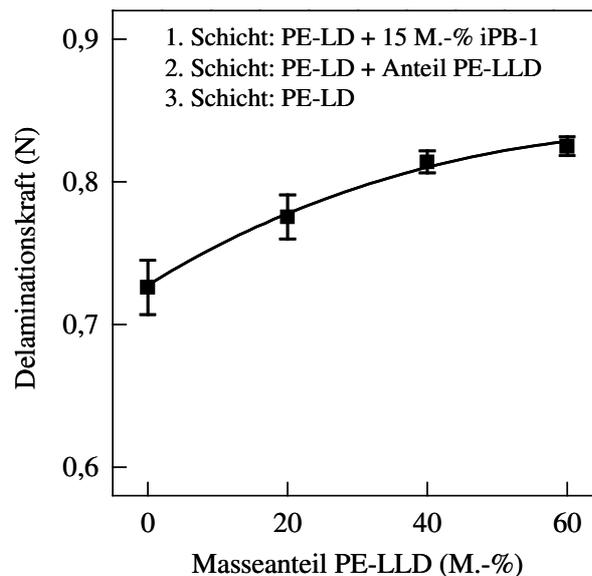


Bild 4.36: Abhängigkeit der Delaminationskraft vom PE-LLD-Masseanteil in der Mittelschicht

4.5 Technologische Schlussfolgerungen

Die Peeleigenschaften, insbesondere die Peelkraft, werden durch die Rezeptur, die Prozess- und Siegelparameter sowie den Peelwinkel bei der Anwendung beeinflusst.

Anhand der in Bild 4.37 dargestellten Abhängigkeit ist zu sehen, dass die Prozessparameter und auch der Peelwinkel mit jeweils 30 % den größten Einfluss auf die Peeleigenschaften haben. Einen etwas geringeren Einfluss auf die Peeleigenschaften hat die Rezeptur der Peelfolien, wobei hier nicht von einem konstanten iPB-1-Masseanteil ausgegangen worden ist. Für einen konstanten iPB-1-Masseanteil ist der Einfluss der Rezeptur unter Berücksichtigung der Polymorphie von iPB-1 für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten Peelsysteme sehr gering, wie die Ergebnisse zur Variation des Matrixmaterials (vgl. Bild 4.7) zeigen. Den geringsten Einfluss haben jedoch die Siegelparameter, wobei hier von einer Siegelzeit-Siegeltemperatur-Äquivalenz ausgegangen wird, d.h., dass der die Peeleigenschaften beeinflussende Strukturparameter in gleicher Weise durch die Siegelzeit und die Siegeltemperatur beeinflusst wird.

Als Schlussfolgerung aus den Untersuchungen zum Einfluss des iPB-1-Gehaltes auf die Peeleigenschaften konnte ein optimaler iPB-1-Masseanteil von 6 M.-% für das PE-LD/iPB-1-Peelssystem abgeleitet werden, da hier der Peelvorgang aufgrund der vorliegenden Mikrostruktur reproduzierbar ist und die aufzuwendenden Kosten gering sind. Aufgrund dieser Erkenntnis ist in der Praxis ein konstanter iPB-1-Masseanteil und somit auch eine feststehende Rezeptur erwünscht. Darüber hinaus hat auch der Siegelvorgang einen direkten Einfluss auf die Kosten, daher werden aus Wirtschaftlichkeitsgründen meist eine niedrige Siegeltemperatur und eine geringe Siegelzeit und demzufolge konstante Siegelparameter bevorzugt. Unter der Annahme eines variablen, für den Anwender nicht festlegbaren, Peelwinkels kann eine definierte Einstellung der Peelkraft durch Variation der Prozessparameter erzielt werden.

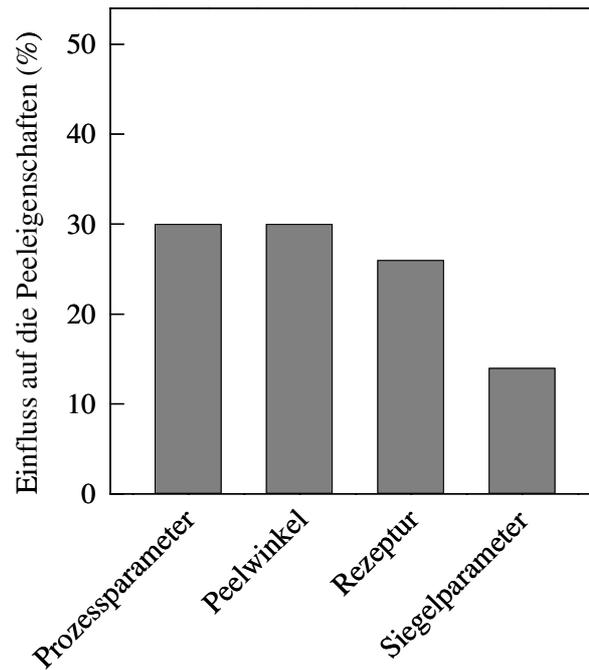


Bild 4.37: Darstellung des Einflusses auf die Peeleigenschaften von Prozessparametern, Peelwinkel, Rezeptur und Siegelparametern

Die Prozessparameter können im engeren Sinn in maschinenunabhängige und maschinenabhängige Prozessparameter unterteilt werden. Beispielsweise zählen die Schneckendrehzahl, die Frostlinienhöhe und die Spaltweite zu den maschinenabhängigen Prozessparametern. Als maschinenunabhängige Prozessparameter werden in der vorliegenden Arbeit die Temperatur der Schmelze, die Einfrierzeit, das Aufblasverhältnis und das Abzugsverhältnis der Folie angesehen. Das in Bild 4.38 dargestellte Pareto-Diagramm verdeutlicht den Einfluss der einzelnen, in der vorliegenden Arbeit evaluierten maschinenunabhängigen Prozessparameter für einen konstanten iPB-1-Masseanteil von 6 M.-% und die Verwendung von Standardsiegelparametern. Es ist die maximal erzielbare Peelkraftdifferenz innerhalb der untersuchten Variationsgrenzen bei Veränderung der entsprechenden maschinenunabhängigen Prozessparameter und ihr prozentualer Anteil dargestellt. Dabei kann davon ausgegangen werden, dass die einzelnen, die Peeleigenschaften beeinflussenden, strukturellen Effekte unabhängig voneinander sind (vgl. Tabelle 4.3). Eine Erhöhung des Abzugsverhältnisses hat eine Separierung der iPB-1-Teilchen vorzugsweise in MR bei gleichzeitiger Bildung neuer PE-LD/iPB-1-Grenzflächen zur Folge. Für das Aufblasverhältnis ist ein ähnlicher Effekt in QR der Folie zu beobachten. Die Einfrierzeit wirkt sich auf die Orientierung der PE-LD-Lamellen an den iPB-1-Teilchen aus und die Temperatur der Schmelze hat Einfluss auf die Kettenmobilität und bedingt ein stärkeres oder schwächeres Einwachsen von PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen. Somit sind die genannten Effekte synergistisch bezüglich ihrer Wirkung auf die Peeleigenschaften wie beispielsweise die Peelkraft. Weiterhin ist in Bild 4.38 zu erkennen, dass bereits ca. 80 % der möglichen Peelkraftdifferenz durch die Variation des Abzugsverhältnisses bei konstanter Foliendicke und durch die Variation der Einfrierzeit realisiert werden kann. Somit kommt diesen beiden Prozessparametern die größte Bedeutung zu. Im Gegensatz dazu macht die kombinierte Variation der Temperatur der Schmelze (sowohl innerhalb des Extruders als auch innerhalb des Blaskopfes) und des Aufblasverhältnisses nur ca. 20 % der maximal erzielbaren Peelkraftdifferenz aus.

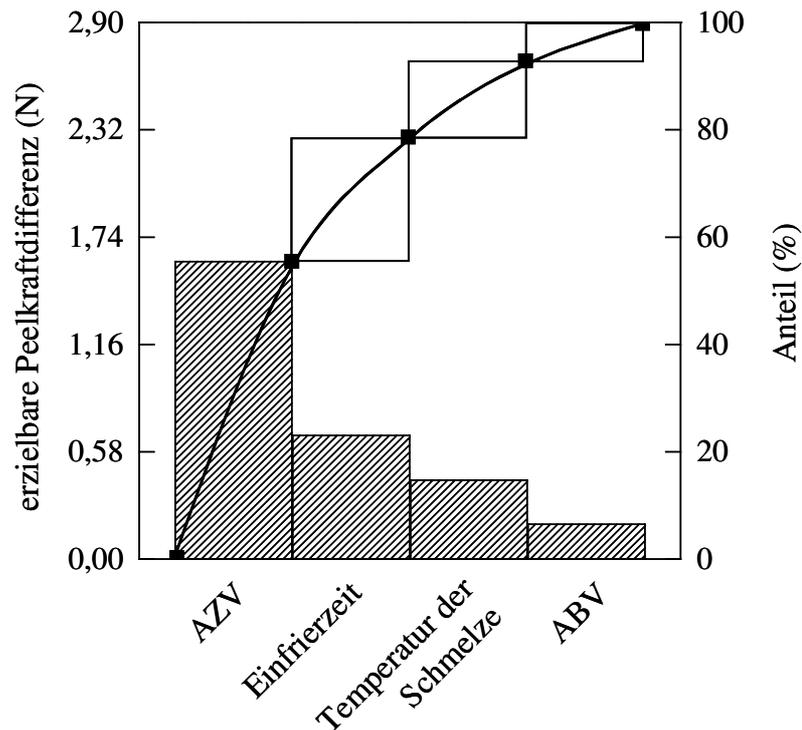


Bild 4.38: Pareto-Diagramm zum Einfluss der Prozessparameter auf die erzielbare Peelkraftdifferenz

Aus diesen Gründen kann für die Praxis unter Zugrundelegung einer Peelfolie mit feststehender Rezeptur und konstanter Foliendicke sowie feststehenden Siegelparametern ein Fokussieren auf die Prozessparameter Abzugsverhältnis (realisiert durch Spaltweitenvariation) und Einfrierzeit empfohlen werden.

Darüber hinaus wurden durch Anwendung der energiebestimmten struktursensitiven bruchmechanischen Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrates die interlaminaire und translaminare Rissausbreitung charakterisiert. Es wurde festgestellt, dass ab einem Peelwinkel von ca. 130° ein translaminarer und somit undefinierter Rissverlauf auftritt. Dieses Ergebnis kann neben der Charakterisierung des Delaminationsverhaltens von Mehrschichtfolien beispielsweise in Form einer Negativprüfung dazu beitragen, dass Peelfolien entwickelt werden, die auch bei Peelwinkeln $> 130^\circ$ einen interlaminairen Rissverlauf zeigen.

Des Weiteren kann auf Grundlage dieses Ergebnisses die bestehende Prüfpraxis beim T-Peeltest entscheidend verbessert werden. Im Allgemeinen ist die Siegelnaht des Peelprüfkörpers im T-Peeltest freihängend, so dass infolge von, über die Länge der Siegelnaht ungleichmäßig auftretenden, Deformationen ein Wegkippen der Siegelnaht aus der horizontalen Lage (90° in Bezug zum Peelarm) beobachtet werden kann. In einem solchen Fall würde es bei entsprechenden Peelwinkeln $> 130^\circ$ (zutreffend für einen der beiden Peelarme) zu einer translaminaren Rissausbreitung kommen, die wiederum eine höhere Peelkraft verursacht. Ein solches Ergebnis eines Peeltests würde zu Fehlinterpretationen bezüglich der Bewertung des Peelverhaltens der untersuchten Peelfolie führen. Es wird daher vorgeschlagen die Siegelnaht während des Peelvorgangs berührungslos mitzuführen, so dass permanent ein Winkel von 90° je Peelarm gewährleistet werden kann. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Durchführung des Peelversuches in einer Universalprüfmaschine mit sich symmetrisch bewegenden Traversen. Da die Siegelnaht in einem solchen Fall während des gesamten Peelvorgangs (unter Voraussetzung gleicher Deformationsanteile in den beiden Peelarmen) an einer Stelle lokalisiert ist, könnte sie in einer entsprechenden Nut gehalten werden, wodurch ein konstanter Peelwinkel gewährleistet ist.

5 Möglichkeiten der Modellierung des Peelverhaltens

5.1 Finite-Elemente-Modell

Eine Möglichkeit den Peelvorgang auf numerischem Weg nachzuvollziehen, besteht in der Erstellung eines Simulationsmodells auf Basis der Finite-Elemente-Methode (FEM). Ein solches Modell ermöglicht beispielsweise den Zugang zu experimentell schwierig ermittelbaren Kenngrößen und trägt zur Begrenzung des experimentellen Aufwands bei.

Das Ablösen zweier Schichten kann unter Verwendung kohäsiver Elemente mit Hilfe der Finite-Elemente-Methode simuliert werden [113,116,169,170].

Im Rahmen der Finite-Elemente-Simulation kam in der vorliegenden Arbeit ein zweidimensionales Modell mit 6500 Elementen und ca. 14500 Verschiebungsfreiheitsgraden zur Anwendung [171]. Eine effiziente Nutzung der Elementanzahl führte zu einer groben Diskretisierung im Bereich der Peelarme mit den Elementabmaßen Höhe/Länge = 1/5 und einer feinen Diskretisierung im Bereich der Siegelnaht mit den Elementabmaßen Höhe/Länge = 1/1 (Bild 5.1) bei einer gegebenen Länge der Siegelnaht von 15 mm.

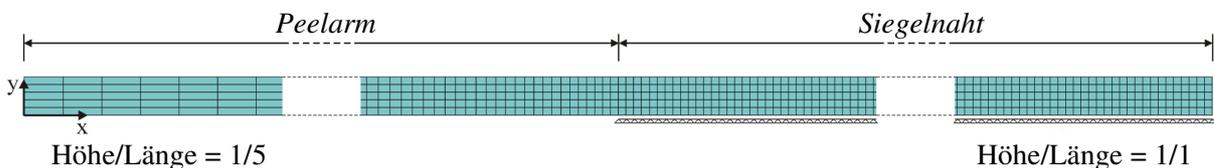


Bild 5.1: Finite-Elemente-Modell des Peelprüfkörpers

Zur numerischen Simulation des Peelvorgangs benötigt das FE-Modell, neben den charakteristischen Eigenschaften des Folienmaterials, verschiedene experimentelle Daten als Input, insbesondere eine Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehung als Grundlage der numerischen Berechnung mit Hilfe von Kohäsiv-Zonen-Elementen wie in Abschnitt 2.4 „Numerische Simulation des Peelvorgangs“ beschrieben wurde. Auf Basis der experimentellen Ergebnisse wird vereinfacht von linear-elastischem Werkstoffverhalten für die Abbildung des Folienmaterials im FE-Modell ausgegangen. Nachfolgend werden die Schritte zur Ermittlung der Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehung für das PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen erläutert.

Im ersten Schritt wurde die Kohäsivenergie Γ_c , die der Fläche unter der Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Kurve (vgl. Bild 2.15) entspricht, nach Gl. 5.1 berechnet.

$$\Gamma_c = \frac{E_G}{2A} \quad (5.1)$$

mit A Siegelnahtfläche

In einem weiteren Schritt wurde die maximale Kohäsivspannung T_{max} nach Gl. 5.2 berechnet.

$$T_{max} = \frac{F_{peel}}{B} \quad (5.2)$$

mit B Querschnitt der Folie

Anschließend wurde unter Verwendung der Kohäsivenergie Γ_c und der maximalen Kohäsivspannung T_{max} die Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehung mit Hilfe eines Polynoms dritten Grades erstellt. In Bild 5.2 sind die Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehungen für PE-LD mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen dargestellt. Sowohl die Kohäsivenergie Γ_c als auch die maximale Kohäsivspannung T_{max} und die maximale Relativverschiebung δ_e werden mit zunehmendem iPB-1-Masseanteil vermindert. Den größten Einfluss auf die Form der Kurve und somit auf den simulierten Peelvorgang hat dabei die Kohäsivenergie Γ_c [171]. Die ermittelten Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Beziehungen können nun vom FE-Modell zur Simulation des Peelvorgangs der einzelnen kohäsiven Elemente verwendet werden. Zusätzlich müssen verschiedene Werkstoffparameter wie Elastizitätsmodul und Querkontraktionszahl des verwendeten Prüfkörpermaterials im FE-Modell ergänzt werden.

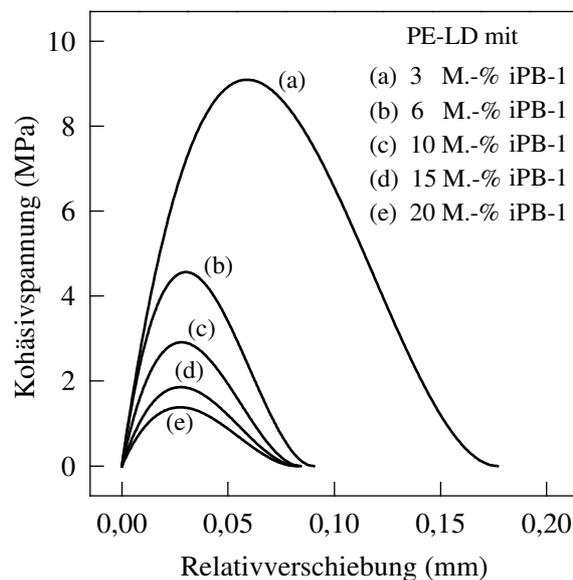


Bild 5.2: Kohäsivspannungs-Relativverschiebungs-Kurven von PE-LD mit verschiedenen iPB-1-Masseanteilen

In Bild 5.3a ist eine aus der Finite-Elemente-Simulation errechnete Peelkurve und eine im T-Peeltest registrierte Peelkurve exemplarisch für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 vergleichend dargestellt. Im Gegensatz zur experimentell ermittelten Peelkurve verläuft die simulierte Peelkurve stetig aufgrund der perfekten Trennung der entsprechenden Kohäsiv-Zonen-Elemente. Die aus der simulierten Peelkurve ermittelte Peelkraft ist in guter Übereinstimmung mit der auf experimentellen Daten basierenden Peelkraft. Ein weiterer Unterschied der beiden Peelkurven ist am Ende des Peelvorgangs zu beobachten. Bei der auf experimentellen Werten basierenden Peelkurve wird der Peelfrontauflösungsprozess in Form einer Kraftverminderung berücksichtigt. Die simulierte Peelkurve endet abrupt, da über die Länge der Siegelnaht die kohäsiven Elemente am Ende des Peelvorgangs gleichzeitig versagen. Aufgrund dessen, dass die Peelarme nicht gelagert sind, wird die numerische Rechnung im Falle des gleichzeitigen Ablösens der letzten kohäsiven Elemente instabil und bricht ab. Dennoch ist eine zufriedenstellende Simulation des Peelvorgangs erreicht worden wie auch der Vergleich der Peelkräfte, ermittelt auf der Basis von simulierten und experimentell ermittelten Peelkurven, in Bild 5.3b zeigt.

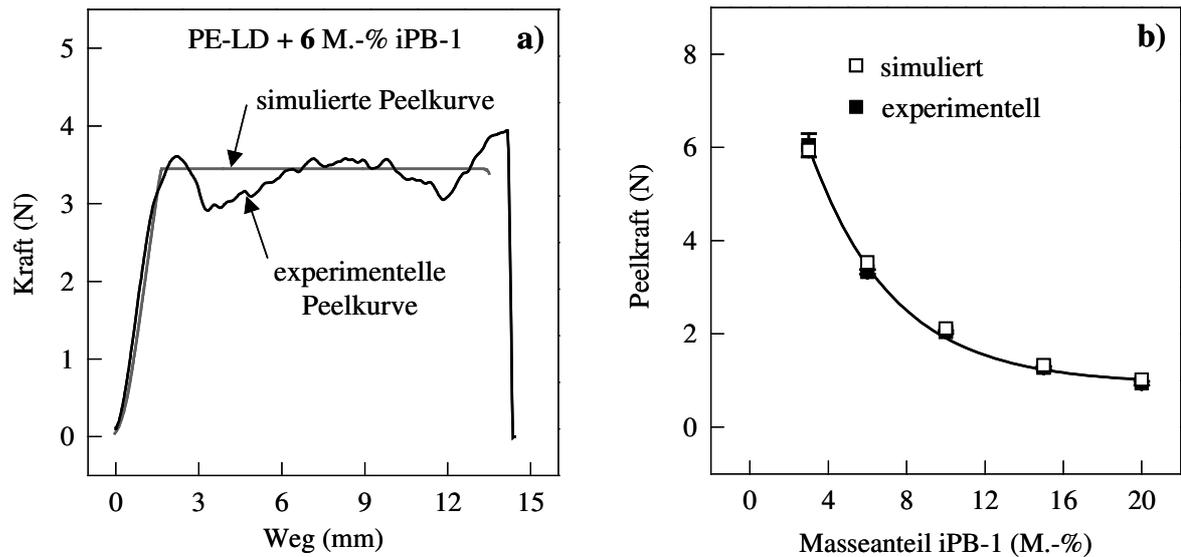


Bild 5.3: Simulierte und experimentell ermittelte Peelkurve für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 (a) und Peelkraft in Abhängigkeit vom iPB-1-Masseanteil basierend auf simulierten und experimentell ermittelten Werten (b)

Ein weiterer Schwerpunkt der Modellierung des Peelvorgangs war die Implementierung der Peelratenabhängigkeit (Peelgeschwindigkeitsabhängigkeit) in das bestehende FE-Modell. In Bild 5.4 ist die Peelkraft in Abhängigkeit der Peelgeschwindigkeit für PE-LD mit 10 M.-% iPB-1 dargestellt. Die auf simulierten Werten basierende Kurve ist in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen und zeigt einen exponentiellen Kurvenverlauf, der auch in anderen Studien zur Ratenabhängigkeit (Geschwindigkeitsabhängigkeit) mechanischer Eigenschaften gefunden wurde [172]. Somit wurde das FE-Modell des Peelvorgangs der PE-LD/iPB-1-Peelfolien um die Peelgeschwindigkeitsabhängigkeit erweitert.

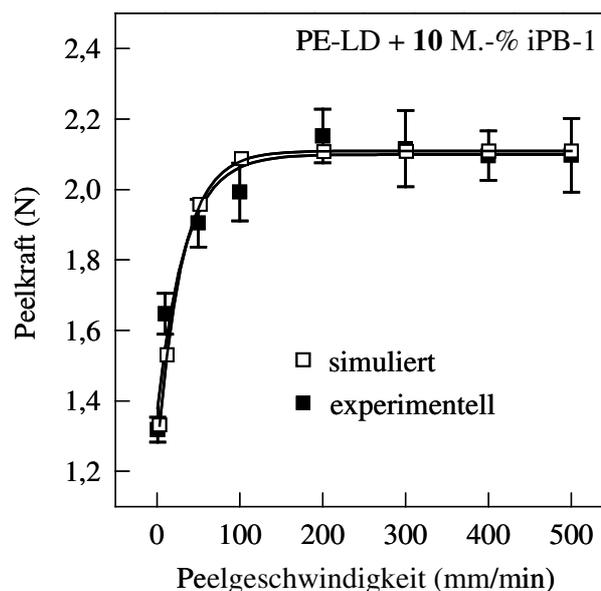


Bild 5.4: Peelkraft in Abhängigkeit der Peelgeschwindigkeit basierend auf simulierten und experimentell ermittelten Werten für PE-LD mit 10 M.-% iPB-1

Dieses sehr komplexe FE-Modell des Peelvorgangs kann nun unter anderem zur Visualisierung der Spannungsverteilung im Peelprüfkörper verwendet werden (Bild 5.5). Es ist zu erkennen, dass beim Biegevorgang des Peelarms in der Nähe der Peelfront erwartungsgemäß sowohl Zug- als auch Druckspannungen auftreten. Im Gegensatz dazu ist im oberen Teil des Peelarms nur eine geringfügige Zugspannung zu sehen. Der über die Länge der Siegelnaht beobachtete symmetrische Spannungsverlauf macht deutlich, dass die größten Spannungen in der Mitte der Siegelnaht auftreten und somit auch dort die größte Peelgeschwindigkeit und der größte Peelfortschritt zu erwarten sind. Die im Vergleich zum Siegelnahttrand auftretende größere Spannung in der Mitte der Siegelnaht ist auf die Verformungsbehinderung an dieser Stelle zurückzuführen. In der Mitte der Siegelnaht liegt lokal der ebene Dehnungszustand vor. Im Vergleich dazu kann zum Siegelnahttrand hin eine starke Verminderung der Spannung beobachtet werden. Hier herrscht keine Verformungsbehinderung, so dass die Spannungen abnehmen und daher lokal der ebene Spannungszustand vorliegt².

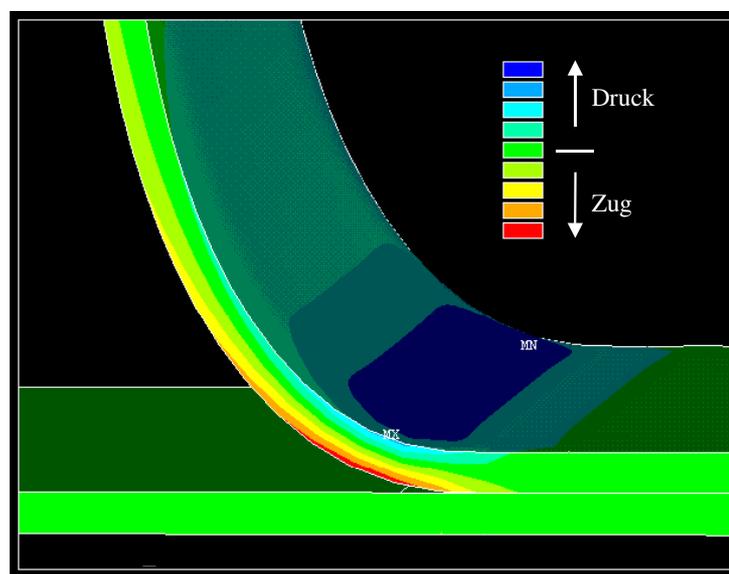


Bild 5.5: Visualisierung der Spannungsverteilung im Peelprüfkörper und qualitative Erfassung von Zug- und Druckspannungen

Darüber hinaus können mit dem FE-Modell des Peelvorgangs verschiedene Parameter variiert und deren Einfluss auf das Peelverhalten analysiert werden. Beispielsweise ist die Steifigkeit von Folien für verschiedene Anwendungen wie zum Beispiel Standbodenbeutel von besonderer Bedeutung. Da das PE-LD/iPB-1-Peelssystem häufig als eine funktionale Schicht innerhalb einer Mehrschichtfolie vorliegt, wird die für die Anwendung erforderliche Steifigkeit im Allgemeinen durch eine der anderen Schichten realisiert. Somit kann der Gesamt-Elastizitätsmodul der Folie je nach Anwendung, trotz des Konstanthaltens der Rezeptur und der Abmaße der Peelschicht, variieren.

Zur Abschätzung des Einflusses unterschiedlicher Steifigkeiten auf das Peelverhalten wurde der Peelversuch exemplarisch für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 für unterschiedliche E-Moduln

² Da Folien im Allgemeinen relativ dünn sind, wird davon ausgegangen, dass in Normalenrichtung (Dickenrichtung) der Folie keine Verformungsbehinderung stattfinden kann und somit bezogen auf die gesamte Folie der ebene Spannungszustand vorliegt [146].

des verwendeten Peelfolienmaterials simuliert. In Bild 5.6a ist eine Serie von Peelkurven für Peelfolien mit unterschiedlichem E-Modul abgebildet. Trotz der Variation des E-Moduls im Bereich von 150 bis 350 MPa konnte keine Veränderung der Peelkraft festgestellt werden. Somit kann das PE-LD/iPB-1-Peelssystem für unterschiedlichste Anwendungen eingesetzt werden und zeigt keine Veränderung der Peeleigenschaften bei variierendem E-Modul. Allerdings verändert sich der Onset des Peelkurvenplateaus in Abhängigkeit des E-Moduls (Bild 5.6b). Der Onset des Peelkurvenplateaus nimmt mit größer werdendem Elastizitätsmodul exponentiell ab, d.h. der Peelvorgang wird mit ansteigendem E-Modul vorzeitig initiiert. Dieser Effekt erscheint bei Betrachtung der Kohäsiv-Zonen-Elementverteilung in der Siegelnaht logisch. Mit zunehmender Steifigkeit der Folie wird der Krümmungsradius in der Nähe der Peelfront erhöht. Somit lösen sich bei erfolgter Beanspruchung mehr Elemente gleichzeitig ab als bei entsprechend kleinerem E-Modul und somit geringerem Krümmungsradius.

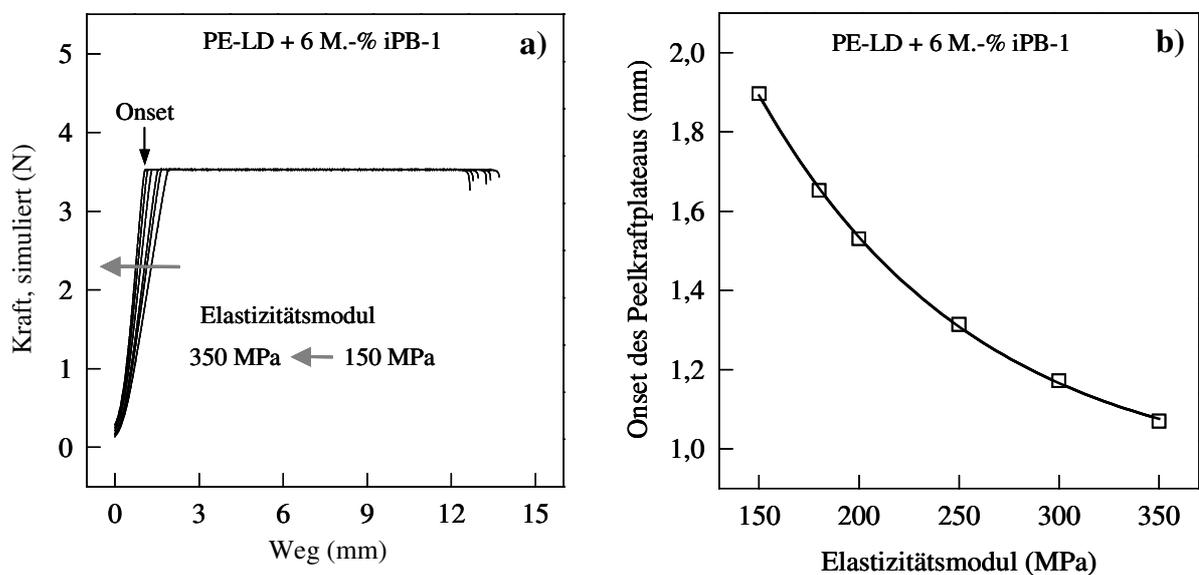


Bild 5.6: Peelkurven für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 bei unterschiedlichen E-Moduln des verwendeten Peelfolienmaterials (a) und Onset des Peelkraftplateaus in Abhängigkeit des Elastizitätsmoduls (b)

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass das FE-Modell des Peelvorgangs eine vollständige Betrachtung des Parameterraumes ohne zusätzliche Experimente (neben denen, die zur Erstellung des FE-Modells notwendig sind) ermöglicht.

5.2 Mathematisch-statistisches Modell

Eine weitere Möglichkeit zur Modellierung des Peelvorgangs besteht in der Erstellung eines mathematisch-statistischen Modells auf Grundlage der experimentell ermittelten Abhängigkeiten [10,173,174].

Das mathematisch-statistische Modell beschreibt die Zusammenhänge zwischen den Ein- und Ausgangsgrößen rein mathematisch. Hierzu muss nur bedingt Kenntnis über die zu Grunde liegenden physikalischen Zusammenhänge bestehen. Zum Aufstellen des statistischen Modells werden zunächst die notwendigen Ein- und Ausgangsgrößen festgelegt und anschließend die zugehörigen Abhängigkeiten experimentell ermittelt. Danach wird die entsprechende Berechnungsgleichung formuliert, die neben den Eingangsgrößen als Variablen noch zu bestimmende, das Modell kalibrierende, Faktoren enthält.

Als Nachteil der statistischen Modellbildung ist zu nennen, dass sich die ermittelten Berechnungsgleichungen in der Regel lediglich auf das beobachtete Prozessfenster der gemessenen Eingangsgrößen beziehen und nicht ohne Weiteres auf andere ähnliche Eingangsgrößen übertragbar sind.

Werden die Maschinenparameter als Eingangsgrößen eines statistischen Modells gewählt, so wäre das Modell auf die Blasfolienanlage beschränkt, auf der es ermittelt worden ist. In einem solchen Fall wäre das statistische Modell nicht übertragbar und somit nicht allgemein gültig. Werden hingegen die maschinenunabhängigen Prozessparameter als Eingangsgrößen eines statistischen Modells gewählt, so bildet das Modell den Zusammenhang zwischen Prozesszustand und Peelverhalten ab. Ein derartiges statistisches Modell wäre bezüglich der Blasfolienanlage allgemein gültig und übertragbar, jedoch an das entsprechende Material und seine chemische Struktur gebunden.

Für das vorliegende PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem wird der Zusammenhang zwischen den maschinenunabhängigen Prozessparametern als Eingangsgröße und der Peelkraft als Ausgangsgröße formuliert. Hierbei wird von der als optimal ermittelten Rezeptur PE-LD mit 6 M.-% iPB-1 ausgegangen. Das Modell berücksichtigt die sich infolge polymorpher Kristallumwandlung von iPB-1 verändernde Peelkraft. Darüber hinaus wird vorausgesetzt, dass die entsprechenden Peelfolien bei Standardsiegelparametern gesiegelt wurden. Somit wird das Peelverhalten nach Gl. 5.3 berechnet.

$$F_{peel} = F_{peel}^{MW6} + f(AZV) - F_{peel,AZV} + f(t_E) - F_{peel,tE} + f(T_S) - F_{peel,TS} + f(ABV) - F_{peel,ABV} + f(t) - F_{peel,t} \quad (5.3)$$

mit	F_{peel}^{MW6}	Mittelwert der Peelkräfte bei Standardprozess- und Standardsiegelparametern aus den jeweils untersuchten Abhängigkeiten für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1
	$f(AZV)$	funktionaler Zusammenhang zwischen Peelkraft und AZV
	$F_{peel,AZV}$	Peelkraft bei Standard-AZV
	$f(t_E)$	funktionaler Zusammenhang zwischen Peelkraft und Einfrierzeit
	$F_{peel,tE}$	Peelkraft bei Standard-Einfrierzeit
	$f(T_S)$	funktionaler Zusammenhang zwischen Peelkraft und Temperatur der Schmelze
	$F_{peel,TS}$	Peelkraft bei Standard-Temperatur der Schmelze
	$f(ABV)$	funktionaler Zusammenhang zwischen Peelkraft und ABV
	$F_{peel,ABV}$	Peelkraft bei Standard-ABV
	$f(t)$	funktionaler Zusammenhang zwischen Peelkraft und Zeit nach dem Siegeln
	$F_{peel,t}$	Peelkraft bei Standardkonditionierungszeit (im Allgemeinen 10 Tage)

Alle aufgeführten Abhängigkeiten haben einen gemeinsamen Messpunkt der Peelkraft bei dem jeweiligen Standardparameter. Im Idealfall ist davon auszugehen, dass die entsprechenden Peelkräfte bei Standardparametern identische Werte aufweisen, so dass sich Gl 5.3 unter Berücksichtigung eines Kalibrierfaktors bzw. Kalibrierterms K zu Gl. 5.4 vereinfacht.

$$F_{peel} = f(AZV) + f(t_E) + f(T_S) + f(ABV) + f(t) - 4F_{peel}^{MW6} + K \quad (5.4)$$

Der Kalibrierterm wurde mit $K = 0,0985$ N ermittelt.

Zur Überprüfung des vorgestellten mathematisch-statistischen Modells wurden experimentelle Ergebnisse mit errechneten Werten auf Basis des Modells verglichen. In Bild 5.7a ist die Peelkraft in Abhängigkeit der Temperatur der Schmelze zu sehen. Die mit Hilfe des mathematisch-statistischen Modells errechneten Peelkraftwerte stehen in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen. Der durch das Modell hervorgerufene mittlere Fehler beträgt lediglich 1,7 %. Auch die in Bild 5.7b dargestellte Abhängigkeit der Peelkraft von der Einfrierzeit zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellen und errechneten Werten, so dass der durch die Modellierung gemachte mittlere Fehler nur 2,6 % beträgt.

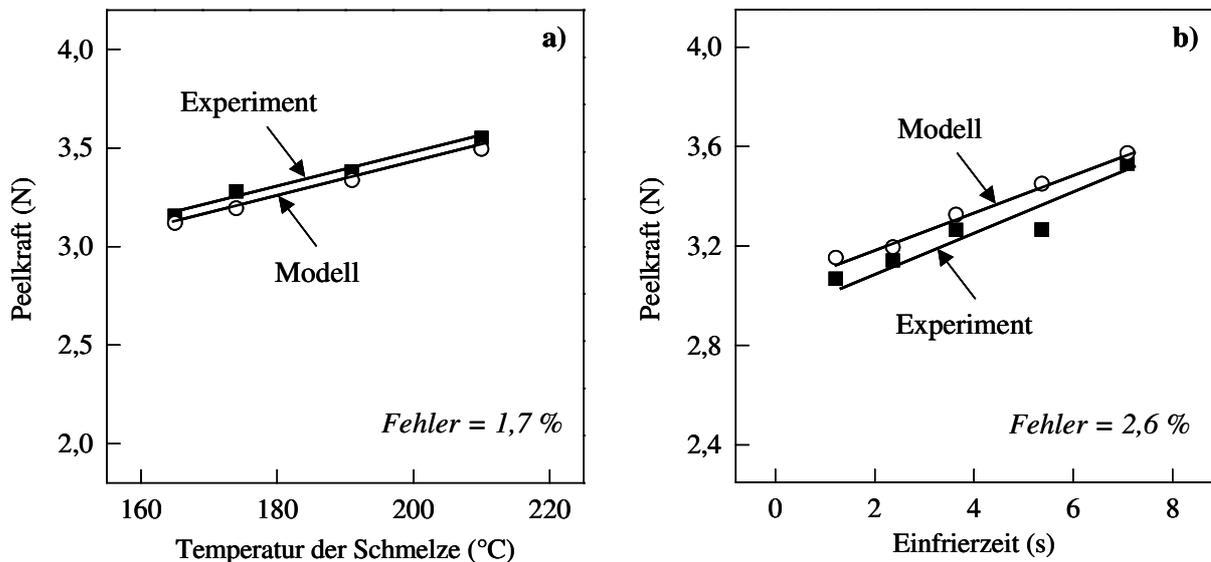


Bild 5.7: Peelkraft als Funktion der Temperatur der Schmelze (a) und der Einfrierzeit (b) für PE-LD mit 6 M.-% iPB-1, basierend auf experimentellen Daten und dem mathematisch-statistischen Modell; Die übrigen Prozessparameter haben Standard-Werte.

Das vorgeschlagene mathematisch-statistische Modell ist somit erfolgreich überprüft worden und gibt sehr genau die physikalischen Zusammenhänge wieder. Es kann daher auch für weitere, **experimentell noch nicht ermittelte, Parametervariationen** verwendet werden.

Auf Grundlage des Modells wird nachfolgend der Einfluss der Einfrierzeit auf die Peelkraft bei einem Abzugsverhältnis von 1:16 ermittelt bzw. prognostiziert. Die entsprechende Abhängigkeit ist in Bild 5.8 dargestellt. Aufgrund des erhöhten Abzugsverhältnisses kann bei niedrigen Einfrierzeiten eine Peelkraft von rund 2 N realisiert werden. Das entspricht unter Zugrundelegung der Abhängigkeit der Peelkraft vom iPB-1-Masseanteil (vgl. Bild 4.9) einem iPB-1-Gehalt von 10 M.-%. Somit kann in der Praxis der iPB-1-Masseanteil von 10 M.-% auf 6 M.-% gesenkt werden und bei entsprechender Prozessparametervariation bleibt die Peelkraft auf dem Niveau von 10 M.-% iPB-1 (vgl. Bild 5.8).

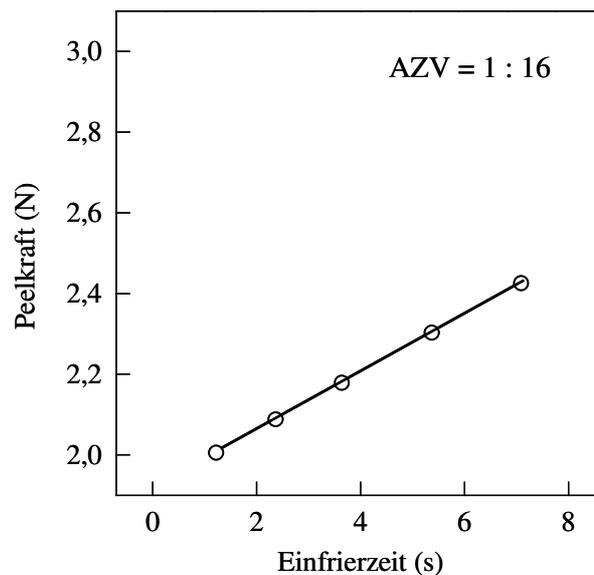


Bild 5.8: Peelkraft in Abhängigkeit der Einfrierzeit, bei einem AZV von 1:16, berechnet nach dem mathematisch-statistischen Modell, die übrigen Prozessparameter haben Standard-Werte

Davon ausgehend, dass die Kosten für iPB-1 derzeit etwa 3-mal höher als für PE-LD sind, würde eine Verminderung des iPB-1-Masseanteils im PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystem von 10 M.-% iPB-1 auf 6 M.-% iPB-1 eine Gesamtkostenersparnis von 7 % ausmachen.

Das vorgestellte mathematisch-statistische Modell bietet eine komfortable Möglichkeit der Modellierung des Peelverhaltens auf Basis der ermittelten experimentellen Abhängigkeiten. Unter Verwendung des Modells können Prognosen zur Abhängigkeit der Peelkraft von den Prozessparametern erstellt werden, die jedoch nur innerhalb der in dieser Arbeit verwendeten Variationsgrenzen der Prozessparameter gültig sind. Darüber hinaus ist das Modell auch für Prognosen auf anderen Blasfolienanlagen bei Verwendung der gleichen Peelfolienmaterialien übertragbar, da dem Modell ausschließlich maschinenunabhängige Prozessparameter zugrunde liegen.

6 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der *Charakterisierung des Peelverhaltens* ausgewählter kohäsiver Peelsysteme, wobei vorrangig das Peelfolienblendsystem *PE-LD/iPB-1* Gegenstand der Untersuchungen war.

Das *Ziel der Untersuchungen* bestand in der Bewertung des Einflusses der Rezeptur, der Prozess- und Siegelparameter sowie des Peelwinkels auf das mechanische und bruchmechanische Peeleigenschaftsniveau. Darüber hinaus war die Entwicklung einer Möglichkeit zur Bestimmung der bruchmechanischen Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrate für Peelsysteme mit unterschiedlichen Deformationsanteilen in Peelarm und Siegelnaht ein weiterer Schwerpunkt dieser Arbeit. Des Weiteren wurden mit Hilfe des in-situ-Peeltests mit Umgebungs-Rasterelektronenmikroskopie, als neuartige hybride Methode der Werkstoffprüfung und -diagnostik, direkte qualitative *Morphologie-Eigenschafts-Korrelationen* erstellt. Ein weiterer Schwerpunkt war die Modellierung des Peelverhaltens mit Hilfe der FEM.

Im Rahmen der *werkstoffmechanischen Charakterisierung* des untersuchten PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems wurde festgestellt, dass eine Zunahme des iPB-1-Masseanteils mit einer Verbesserung der Steifigkeit und entsprechender Verminderung der Zähigkeit bei einer Beanspruchung parallel zur MR einhergeht. Außerdem werden durch iPB-1 die Gleitreibung und die Trübung deutlich erhöht.

Zur *Bewertung des Peelverhaltens* der untersuchten Peelsysteme kamen vorrangig der *T-Peeltest* und der *Fixed-Arm Peeltest* zur Anwendung. Dabei wurde die praxisnahe Messgröße Peelkraft F_{peel} als Mittelwert der im Peelkurvenplateau zwischen 20 % und 80 % des Bruchweges auftretenden Kräfte bestimmt. Eine bruchmechanische Charakterisierung des Peelvorgangs erfolgte beispielsweise unter Verwendung der Energiefreisetzungsrate G_{Ic} , die den Gesamtenergieinput für den Peelvorgang widerspiegelt. Da aufgrund der thermo-mechanischen Vorbelastung der Siegelnaht während des Siegelns plastische Deformationen in der gepeelten Siegelnaht auftreten, wurde als bruchmechanische Kenngröße für *elastisch-plastisches Materialverhalten* die *adhäsive Energiefreisetzungsrate* G_{alc} berechnet. Die adhäsive Energiefreisetzungsrate spiegelt ausschließlich den Energieanteil wider, der zur Trennung der versiegelten Folien notwendig ist. Dabei kam in Anlehnung an den in der Literatur vorgeschlagenen Energieansatz eine neue Verfahrensweise zur Anwendung, die es ermöglicht, sowohl die Deformation des Peelarms als auch die der gepeelten Siegelnaht zu berücksichtigen. Zur Aufklärung struktureller Phänomene während des Peelvorgangs wurden beide *Peelversuche in-situ* durch Kopplung mit der Umgebungs-REM durchgeführt.

Da die Werkstoffeigenschaften in hohem Maße von der Struktur des Werkstoffs abhängen wurde zunächst die *Struktur* und die *Orientierung der PE-LD/iPB-1-Peelfolien* untersucht. Die Struktur der Folien setzt sich aus der durch die Polymersynthese gegebenen chemischen (molekularen) Struktur und der physikalischen (übermolekularen) Struktur zusammen. Bei der Untersuchung der physikalischen Struktur der Peelfolien wurden das Mischungsverhältnis im Blend, die Phasenstruktur, d.h. das Vorhandensein einer homogenen oder heterogenen oder co-kontinuierlichen Phase(n), die Größe der in der Matrix dispergierten Partikel, der Kristallinitätsgrad und die Gestalt der sich ausbildenden übermolekularen Struktur sowie die Orientierung der kristallinen Phase berücksichtigt. Neben *separierten Phasen* konnte ein *Kristallisieren* der *PE-LD-Phase* in Form von *Lamellen* und ein *Kristallisieren* der *iPB-1-Phase* in Form von *Nadelkristallen* festgestellt werden. Von besonderem Interesse für die Ausbildung der werkstoffmechanischen Eigenschaften ist die Orientierung der kristallinen

Bereiche der Folie. Im Ergebnis der röntgenographischen Untersuchungen konnte unter Zuhilfenahme weiterer analytischer Methoden, wie beispielsweise der Polarisationsmikroskopie und auch der TEM, die komplizierte Textur der Peelfolie aufgeklärt werden. In der Summe ist ein Zusammenspiel von Orientierungen verschiedener Kristallpopulationen zu beobachten. Es konnte eine *a-Textur* in der *PE-LD-Phase* nachgewiesen werden, die jedoch durch einen geringeren Anteil an, in MR orientierten, Lamellenstapeln eine relativ breite Verteilung aufweist. Hinzu kommt, dass in der *iPB-1-Phase* eine *c-Textur* vorliegt, so dass die Textur der PE-LD/iPB-1-Folie, d.h. die bevorzugte Orientierung der Gesamtheit der kristallographischen Achsen, für iPB-1-Masseanteile > 20 M.-% von einer a-Textur in eine c-Textur übergeht.

Im Ergebnis der Untersuchungen zum *Einfluss der Rezeptur auf das Peelverhalten* wurden ausgeprägte physikalische Wechselwirkungen von metallocen-katalysiertem PE-LLD und iPB-1 aufgrund der großen Kettenmobilität im PE-LLD an der PE-LLD/iPB-1-Grenzfläche festgestellt. Wesentlich geringer war die Affinität zwischen ziegler-natta-katalysiertem PE-LD und iPB-1 bzw. EVA und iPB-1. Als *optimales Peelfolienblendsystem* kann *PE-LD/iPB-1* angesehen werden, da hier die physikalischen Wechselwirkungen zwischen den Blendphasen am geringsten sind, und der Peeleffekt somit am größten ist.

Weiterhin wurde der *Einfluss der Peelkomponente iPB-1 auf die Peeleigenschaften* untersucht. Die adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} wird mit größer werdendem iPB-1-Masseanteil *exponentiell vermindert*. Anhand der gefundenen Abhängigkeit ist es möglich, die Peeleigenschaften durch Variation des iPB-1-Masseanteils definiert einzustellen. Darüber hinaus wurde die Mikrostruktur der PE-LD/iPB-1-Peelfolien mit unterschiedlichen iPB-1-Masseanteilen untersucht. Hierbei konnte für iPB-1-Masseanteile ≥ 6 M.-% die Ausbildung von durchgehenden, bandartigen iPB-1-Strukturen im Zentrum der Siegelnaht beobachtet werden. Dieser *kontinuierliche Verlauf der iPB-1-Teilchen* für iPB-1-Masseanteile ≥ 6 M.-% erschwert ein Abweichen des Risses vom Siegelnahtzentrum und gewährleistet somit einen reproduzierbaren und definierten Peelvorgang. Im Gegensatz dazu konnte für iPB-1-Masseanteile < 6 M.-% eine derartige kontinuierliche iPB-1-Struktur als Grundlage für einen reproduzierbaren Peelvorgang nicht gefunden werden. Für geringe iPB-1-Masseanteile dominiert eine diskontinuierliche Struktur der iPB-1-Teilchen, die zu Imperfektionen im Erscheinungsbild der gepeelten Siegelnaht führt, wie in-situ-Peeltests mit Umgebungs-REM bestätigten. Somit konnte aus den Untersuchungen zum Einfluss der Peelkomponente iPB-1 auf die Peeleigenschaften ein *Masseanteil von 6 M.-% iPB-1 als Optimum* abgeleitet werden, da hinsichtlich der Kosten ein niedriger iPB-1-Masseanteil bevorzugt wird, und für 6 M.-% bereits ein definierter Rissverlauf infolge kontinuierlicher iPB-1-Teilchenausbildung beobachtet werden kann.

Der Ergebnisteil der vorliegenden Arbeit umfasst weiterhin die *Diskussion des Einflusses der Prozess- und Siegelparameter auf die Peeleigenschaften* für PE-LD mit einem optimalen und konstanten iPB-1-Masseanteil von 6 M.-%. Im Ergebnis der Untersuchungen konnte festgestellt werden, dass die *Schneckendrehzahl* im untersuchten Variationsbereich keinen Einfluss auf die Peeleigenschaften hat. Im Gegensatz dazu wird durch eine Erhöhung der *Temperatur der Schmelze* (innerhalb des Extruders oder innerhalb des Blaskopfes) die Peelkraft erhöht, was in der Ausbildung stärkerer physikalischer Bindungen zwischen PE-LD und iPB-1 infolge des tieferen Einwachsens der PE-LD-Lamellen in die iPB-1-Teilchen begründet ist. Des Weiteren hat die *Kühlung* der Folienblase, die durch den neu entwickelten Parameter *Einfrierzeit* quantifiziert wird, einen großen Einfluss auf das Peelverhalten. Je geringer die Einfrierzeit ist, desto kleiner ist beispielsweise die Peelkraft. Eine Analyse der strukturellen Ursache verdeutlichte, dass kleine Einfrierzeiten eine kammartige Struktur der PE-LD-

Lamellen an den iPB-1-Teilchen verursachen, was im Gegensatz zur ungeordneten Struktur der PE-LD-Lamellen für große Einfrierzeiten rissausbreitungsfördernd wirkt. Darüber hinaus beeinflusst das *Abzugsverhältnis* deutlich die Peeleigenschaften. Das Abzugsverhältnis kann auf verschiedene Art und Weisen variiert werden. Bei konstanter Foliendicke wird das AZV durch Variation der Spaltweite verändert. Bei variabler Foliendicke kann das Abzugsverhältnis beispielsweise durch Variation der Abzugsgeschwindigkeit verändert werden. Die strukturelle Ursache der Peelkraftabhängigkeit vom AZV liegt darin begründet, dass mit größer werdendem AZV eine Separation der iPB-1-Teilchen infolge Verstreckung und somit Bildung neuer PE-LD/iPB-1-Grenzflächen stattfindet. Diese neu gebildeten Grenzflächen wirken als zusätzliche Schwächungszonen und vermindern die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} . Somit können aus den Untersuchungen zum Einfluss der Prozessparameter die *Einfrierzeit*, das AZV und das ABV sowie die Temperatur der Schmelze als *peeleigenschaftenbestimmende Parameter* abgeleitet werden.

Ein weiterer Untersuchungsgegenstand war die *Bewertung des Einflusses der Siegelparameter und des Siegelprozesses auf die Peeleigenschaften*. Für die Abhängigkeit der adhäsiven Energiefreisetzungsrates von der *Siegelzeit* wurde ein linearer Zusammenhang gefunden. Mit zunehmender Siegelzeit wird die Peelkraft erhöht, da bei einer größeren Siegelzeit eine größere Anzahl an grenzflächennahen Molekülen interdiffundieren kann. Darüber hinaus kann von einer *Siegelzeit-Siegeltemperatur-Äquivalenz* ausgegangen werden, d.h., dass der die Peeleigenschaften beeinflussende Strukturparameter in gleicher Weise durch die Siegelzeit und die Siegeltemperatur beeinflusst wird. Eine Abhängigkeit der Peeleigenschaften vom *Siegeldruck* konnte nicht gefunden werden. Allerdings wird beispielsweise die adhäsive Energiefreisetzungsrates G_{alc} bei großen Siegeldrücken vermindert, was mit einer lokalen Ausdünnung der Siegelnaht infolge des höheren Siegeldrucks erklärt wird.

Die *iPB-1-Phase* innerhalb des PE-LD/iPB-1-Peelfolienblendsystems *vollzieht* im direkten Anschluss an den Siegelvorgang eine *II→I-Kristallmodifikationsumwandlung*. Parallel zu dieser Umwandlung konnte eine *Verminderung der Peelkraft* mit einem ähnlichen funktionellen Zusammenhang beobachtet werden. Die Verminderung der Peelkraft mit zunehmender Zeit nach dem Siegeln ist umso größer, je größer der entsprechende iPB-1-Masseanteil ist. Die Ursache für die auftretende Peelkraftverminderung infolge der II→I-Umwandlung liegt in einem durch die Kristallmodifikationsumwandlung hervorgerufenen Volumenschrumpfung der iPB-1-Kristallite begründet, was zu Spannungen in den bestehenden physikalischen Bindungen zwischen PE-LD und iPB-1 führt und ein leichteres Ablösen der beiden Peelfolienanteile zur Folge hat.

Im Ergebnis der Untersuchungen zum *Einfluss des Peelwinkels* konnte eine deutliche Abhängigkeit der Peelkraft vom Peelwinkel beobachtet werden. Die Peelkraft weist im Bereich von 120° ein Minimum auf und nimmt für größere und kleinere Peelwinkel stetig zu. Darüber hinaus wurden durch Anwendung der energiebestimmten Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrates die *interlaminaeren* und *translaminaeren* Rissausbreitungsmöglichkeiten charakterisiert und mit Hilfe eines in-situ-Verfahrens morphologisch analysiert. Aus den Untersuchungen mit Hilfe des Fixed-Arm Peeltests wurde ein *optimaler Peelwinkel von 120°* für die Anwendung abgeleitet, da hier die Peelkraft für einen konstanten iPB-1-Masseanteil am geringsten ist und sich eine interlaminaere Rissausbreitung vorhersagen lässt. Zusätzlich kann das Ergebnis aus den Untersuchungen mit Hilfe des Fixed-Arm Peeltests, dass bei Peelwinkeln > 130° eine erzwungene translaminaere Rissausbreitung auftritt, zur *Bewertung des Delaminationsverhaltens von Mehrschichtfolien* genutzt werden. Für eine Charakterisierung der

Delamination wird die Delaminationskraft F_{Dela} herangezogen, die bei erzwungener translaminarer Rissausbreitung möglichst groß sein muss, um im Anwendungsfall bei weniger extremen Randbedingungen die Delamination zu vermeiden.

Im Rahmen einer *Finite-Elemente-Simulation des Peelvorgangs* wurde eine gute Übereinstimmung der aus dem T-Peeltest ermittelten experimentellen und der simulierten Ergebnisse erzielt. Das verwendete FE-Modell des Peelvorgangs konnte um die Peelgeschwindigkeitsabhängigkeit erweitert werden. Darüber hinaus wurde auf Basis des FE-Modells eine *Unabhängigkeit der Peeleigenschaften vom E-Modul* des Peelfolienwerkstoffs *prognostiziert*.

Eine *weitere Möglichkeit der Modellierung des Peelvorgangs* besteht in der Erstellung eines *mathematisch-statistischen Modells*. Ein solches Modell basiert ausschließlich auf den ermittelten experimentellen Abhängigkeiten, so dass bei der Prognose eine Beschränkung auf die während der Experimente verwendeten Variationsgrenzen besteht. Jedoch kann das Modell, basierend auf den experimentellen Zusammenhängen der maschinenunabhängigen Prozessparameter, auch auf andere Blasfolienanlagen übertragen werden. Eine entsprechende Modellierung des Peelvorgangs zeigte eine *gute Übereinstimmung* zu experimentell ermittelten Werten.

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit tragen zur *Aufklärung der Zusammenhänge* zwischen *Herstellungsbedingungen, übermolekularer Struktur* und den *Eigenschaften von Peelfolien* bei. Durch die Charakterisierung des Peelverhaltens mit Hilfe der struktursensitiven bruchmechanischen Kenngröße adhäsive Energiefreisetzungsrate G_{alc} wurde ein *Fortschritt* bei der Bewertung des Peelverhaltens erzielt, der mit der herkömmlichen anwendungstechnischen Messgröße Peelkraft F_{peel} nicht möglich war. Weiterhin führte die Anwendung *hybrider Methoden* der Werkstoffprüfung und -diagnostik, wie der in-situ-Peeltest mit Umgebungs-REM, zu einem *Informationszuwachs* bei der Bewertung des Peelverhaltens im Vergleich zur Anwendung konventioneller Methoden. Darüber hinaus leistet die vorliegende Arbeit mit dem vorgestellten *Modell* zur physikalischen *Struktur der Blasfolie* und der Quantifizierung des Abkühlverhaltens mit Hilfe des neu entwickelten Parameters Einfrierzeit sowie den Ergebnissen zur Untersuchung des *translaminaren Rissverlaufs* einen Beitrag zur Grundlagenforschung.

Aus *wirtschaftlicher Sicht* können die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zu einer *Kostenreduzierung* beitragen, da durch gezielte Variation der Prozessparameter für eine konstante Peelkraft ein geringerer iPB-1-Masseanteil notwendig ist. Da iPB-1 zur Zeit kostenintensiver als PE-LD ist, lassen sich die entstehenden Gesamtkosten der Peelfolienproduktion unter Verwendung der diskutierten Abhängigkeiten reduzieren.

Im *weiteren Verlauf* der Forschung an Peelsystemen soll der Schritt vom Monopeelfoliensystem hin zum Mehrschichtpeelfoliensystem vollzogen werden. Darüber hinaus ist die experimentelle Überprüfung der Übertragbarkeit der Ergebnisse der Laborblasfolienanlage auf Blasfolienanlagen unter Produktionsbedingungen geplant.

7 Anhang

Tabelle A.1: Allgemeine Anwendungseigenschaften ausgewählter Matrixmaterialien für Folien [14,31,33,35–39]

Polymer	Anwendungseigenschaften
Polyethylen (PE)	undurchlässig für Wasserdampf, jedoch durchlässig für Sauerstoff und Kohlendioxid, gute Chemikalienbeständigkeit
Polypropylen (PP)	ähnlich den Eigenschaften des PE, jedoch härter, steifer und auch spröder als PE
Polyamid (PA)	Barrierewirkung gegen Sauerstoff und andere Chemikalien, hohe Festigkeit auch bei hohen Temperaturen
Polyethylenterephthalat (PET)	geruchs- und geschmacksfrei, enthält keine Weichmacher, gute Chemikalienbeständigkeit
Polystyrol (PS)	gute Warmformbarkeit und Tiefziehfähigkeit, jedoch durchlässig für die meisten Gase
Polyvinylchlorid (PVC)	durchlässig für Sauerstoff, gute optische Eigenschaften
Ethylen-Vinylacetat (EVA)	Verbesserung der Warmnahtsiegelfestigkeit, und Herabsetzung der Siegelinitiiertemperatur (für Folienanwendungen wird EVA mit geringen Vinylacetatanteilen verwendet)

Tabelle A.2: Schmelztemperaturen und Streuwinkel 2θ für alle iPB-1-Kristallmodifikationen [69,70,73,75,83]

Polymorphe Kristallmodifikation	Elementarzelle	Helix-Konformation	Schmelztemperatur	Streuwinkel, 2θ (°)
I	hexagonal	3_1 (twinned)	120–135	10,1 / 17,4 / 20,5
I'	hexagonal	3_1 (untwinned)	90–100	10,1 / 17,4 / 20,5
II	tetragonal	11_3	110–120	11,7 / 16,7 / 18,2
II'	tetragonal	11_3	90–105	11,7 / 16,7 / 18,2
III	orthorhombisch	4_1	90–100	12,2 / 17,2 / 18,6

Tabelle A.3: Trübung bei unterschiedlichen Temperaturen der Schmelze innerhalb des Blaskopfes; SA – Standardabweichung

Temperatur der Schmelze innerhalb des Blaskopfes (°C)	Trübung (%)	SA (%)
171	16,2	0,6
209	9,7	0,1

Tabelle A.4: Darstellung der bei gleicher FLH gemessenen Einfrierzeit für unterschiedliche Aufblasverhältnisse am Beispiel von PE-LD mit 6 M.-% iPB-1

Aufblasverhältnis	FLH (cm)	Einfrierzeit (s)
1:2,0	144	2,0
1:2,5	146	2,4
1:3,0	146	2,7

Tabelle A.5: Ausgewählte Eigenschaften von PE-LD und iPB-1 [14,31,32]

Eigenschaft	Einheit	PE-LD	iPB-1
Molmasse	(g/mol)	$6 \cdot 10^5$	$7 \cdot 10^5$ – $30 \cdot 10^5$
Dichte	(g/cm ³)	0,915–0,935	0,910–0,930
Kristallinitätsgrad	(%)	40–50	40–50
Schmelztemperatur	(°C)	105–118	120–135
Glasübergangstemperatur	(°C)	-100	-20
Kristallisationstemperatur	(°C)	90	40
Streckspannung	(MPa)	8–10	15–25

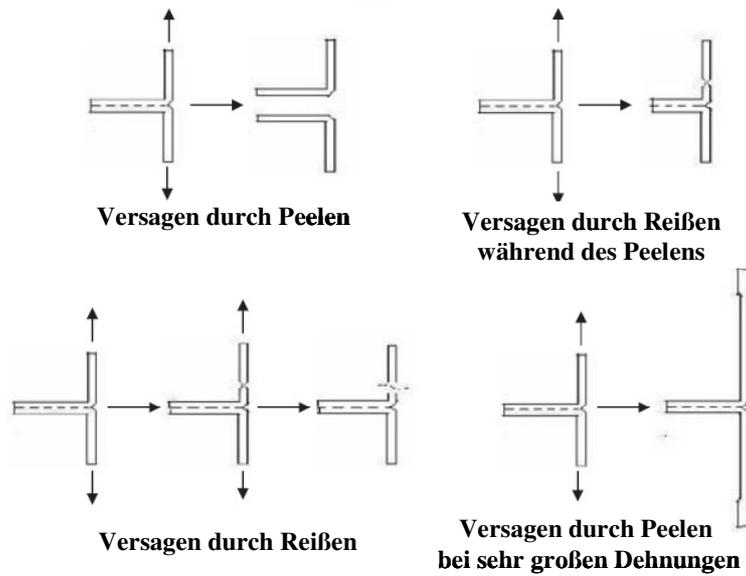


Bild A.1: Schematische Darstellung möglicher Versagensarten bei der Durchführung des T-Peeltests [106]

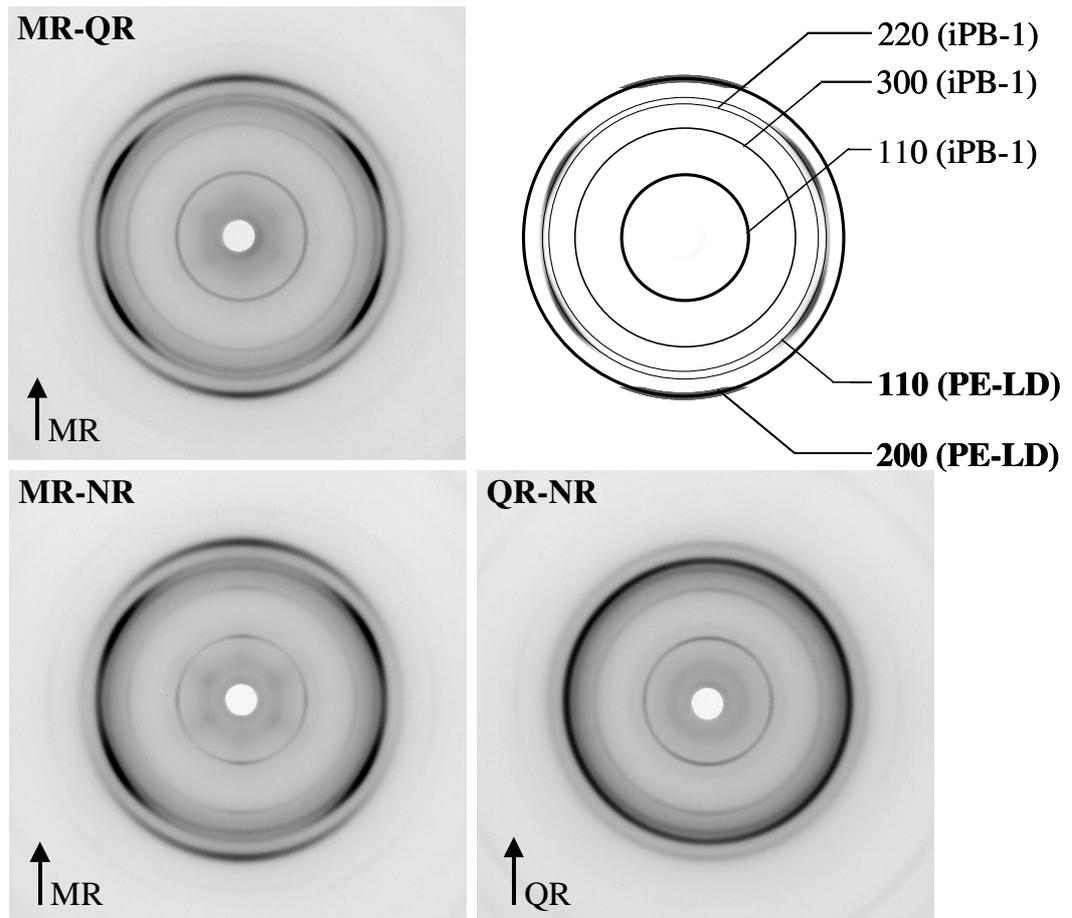


Bild A.2: Röntgenweitwinkel-Flachfilmaufnahmen der durchstrahlten Folienebenen MR-QR (oben, links), MR-NR (unten, links) und QR-NR (unten, rechts) von PE-LD mit 15 M.-% iPB-1 mit zugehörigem Schema der auftretenden Interferenzen von PE-LD (110 und 200, fett gedruckt) und von iPB-1 (110, 300 und 220, normal gedruckt)

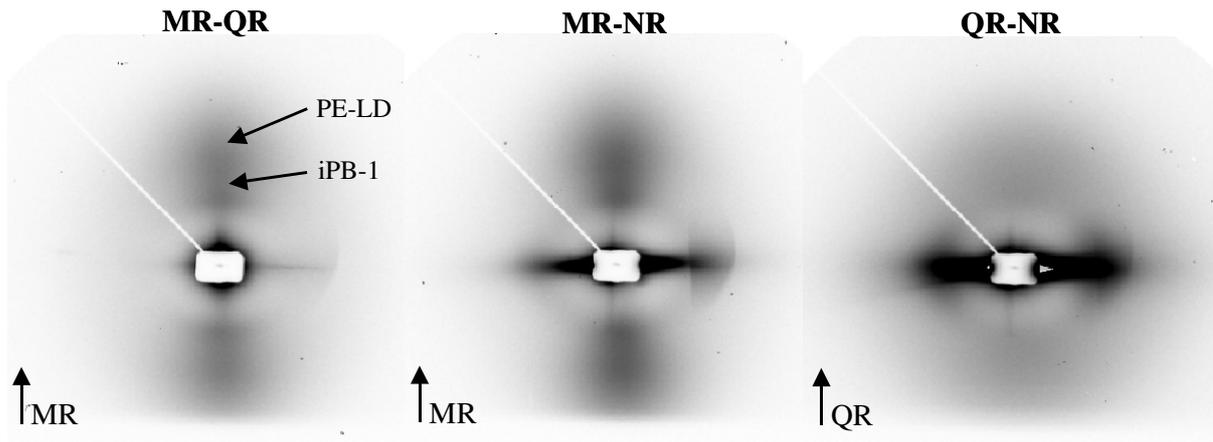


Bild A.3: Röntgenkleinwinkel-Flachfilmaufnahmen der durchstrahlten Folienebenen MR-QR (links), MR-NR (Mitte) und QR-NR (rechts) von PE-LD mit 15 M.-% iPB-1; Die auftretende Schwärzung im Zentrum der Aufnahmen der MR-NR- und der QR-NR-Ebene ist auf Totalreflexion an den Grenzflächen der auf eine bestimmte Dicke gestapelten Folienproben zurückzuführen.

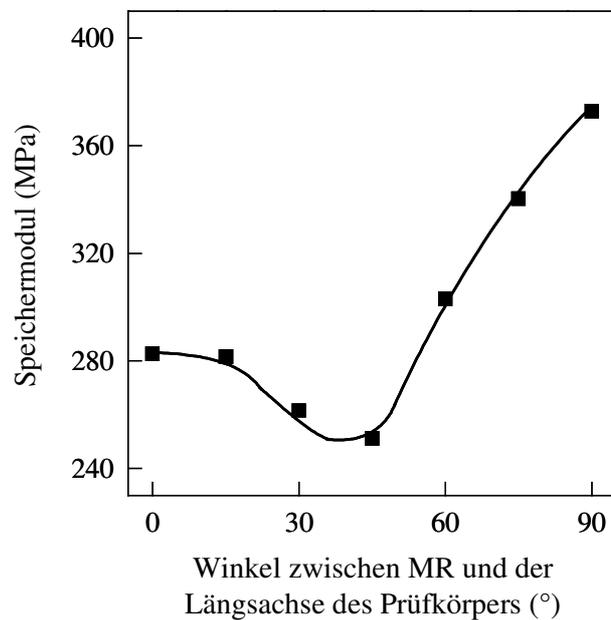


Bild A.4: Speichermodul in Abhängigkeit der Entnahmerichtung des Prüfkörpers aus der Blasfolie PE-LD mit 15 M.-% iPB-1, ermittelt bei einer Frequenz von 1 Hz und bei Raumtemperatur mit einem Mark 3-DMA-Gerät (Fa. Rheometric Scientific)

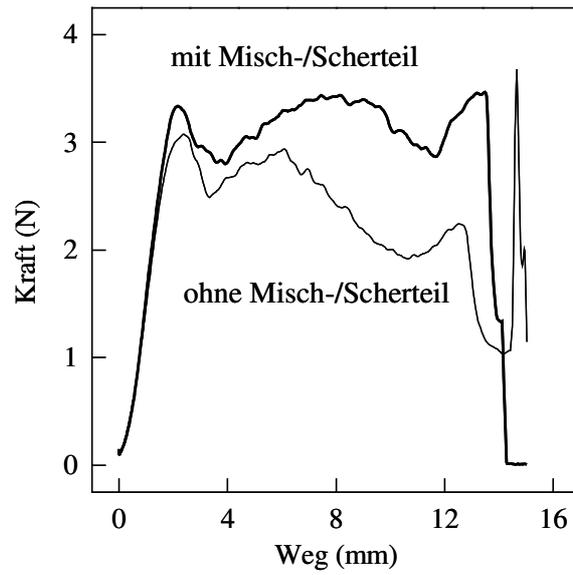


Bild A.5: Peelkurve zweier Peelfolien, einerseits mit andererseits ohne Misch-/Scherteil hergestellt

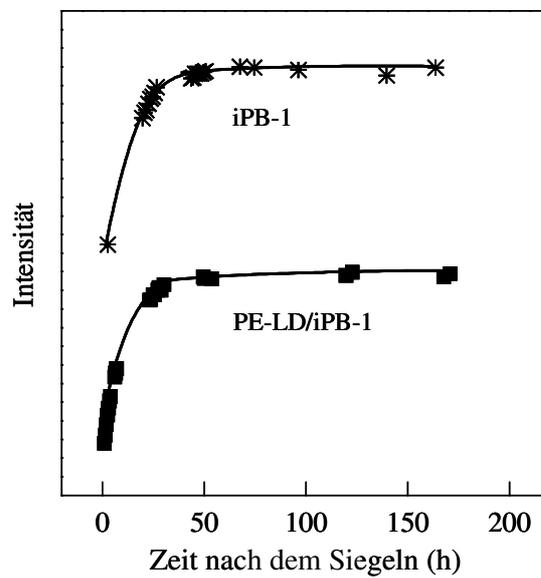


Bild A.6: Relative Intensität des Peaks bei $10,0^\circ$ (Kristallmodifikation I) in Abhängigkeit der Zeit nach dem Siegeln für das PE-LD/iPB-1-Blend und für reines iPB-1

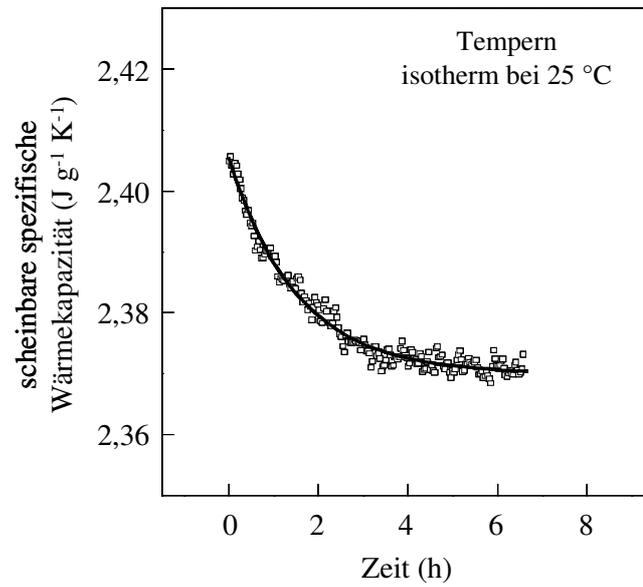


Bild A.7: Scheinbare spezifische Wärmekapazität in Abhängigkeit der Zeit für eine quasi-isotherme Untersuchung bei 25 °C

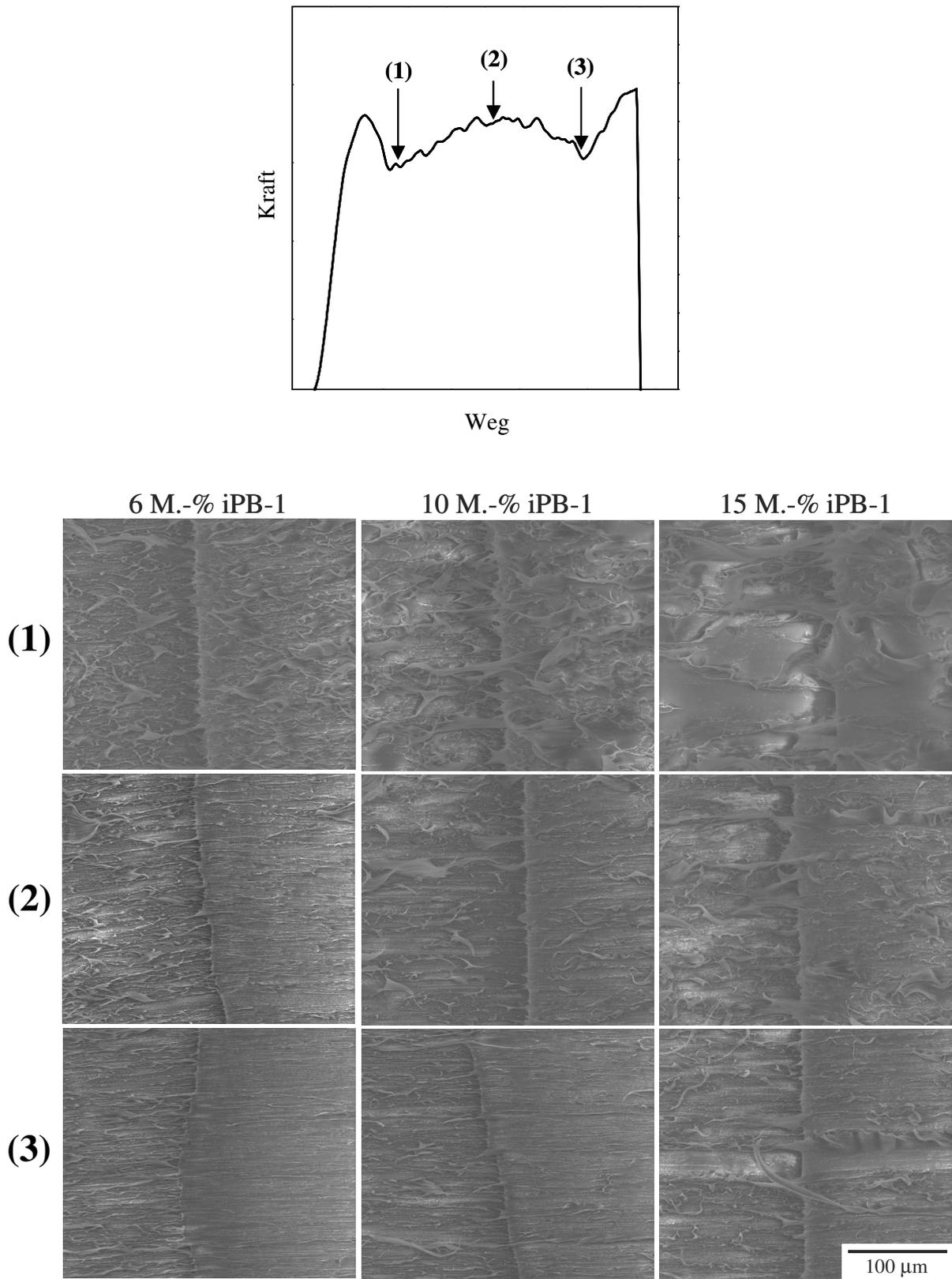


Bild A.8: Peelkurve (oberes Teilbild) und zugehörige Umgebungs-REM-Aufnahmen für unterschiedliche iPB-1-Masseanteile (unteres Teilbild)

8 Literatur

- [1] Schüler, K. (GVM): *Der Markt für Verpackungsfolien: Struktur und Trends*. VDI-Fachtagung Extrusionstechnik 2008, Bonn (2008), Tagungsband S. 1–24.
- [2] Rist, H.: *Leicht und ruckfrei aufreißen*. Neue Verpackung, 4 (2005), 182–184.
- [3] Stober, P., Rist, H.: *Leicht und gefahrlos öffnen*. Kunststoffe, 6 (2004), 66–69.
- [4] Hwo, C.C.: *Polybutylene Blends as Easy Open Seal Coats for Flexible Packaging and Lidding*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 3 (1987), 245–260.
- [5] Grellmann, W., Seidler, S. (Hrsg.): *Deformation und Bruchverhalten von Kunststoffen*. Springer Verlag, Berlin (1998).
- [6] Grellmann, W., Seidler, S. (Hrsg.): *Kunststoffprüfung*. Carl Hanser Verlag, München Wien (2005).
- [7] Langer, B., Bierögel, C., Grellmann, W.: *Eigenschaften von Polypropylen gezielt bewerten*. Kunststoffe, 5 (2008), 87–94.
- [8] Kinloch, A.J., Lau, C.C., Williams, J.G.: *The Peeling of Flexible Laminates*. International Journal of Fracture, 66 (1994), 45–70.
- [9] Williams, J.A., Kauzlarich, J.J.: *The Influence of Peel Angle on the Mechanics of Peeling Flexible Adherends with Arbitrary Load-Extension Characteristics*. Tribology International, 38 (2005), 951–958.
- [10] Ohlendorf, F.: *Vorhersagen der mechanischen Folieneigenschaften bei der Schlauchfolienextrusion*. Dissertation, Rheinisch-Westphälische Hochschule Aachen (2004).
- [11] Wagner, M.H.: *Das Folienblasverfahren als rheologisch-thermodynamischer Prozess*. Rheol. Acta, 15 (1976), 40–51.
- [12] Abdel-Bary, E.M. (Ed.): *Handbook of Plastic Films*. Rapra Technology Limited, Shrewsbury (2003).
- [13] Hensen, F., Knappe, W., Potente, H.: *Handbuch der Kunststoff-Extrusionstechnik, Band I: Grundlagen*. Carl Hanser Verlag, München Wien (1989).
- [14] Ehrenstein, G., Riedel, G., Trawiel, P. (Hrsg.): *Praxis der thermischen Analyse von Kunststoffen*. Carl Hanser Verlag, München Wien (2003).
- [15] Pelcz, A., Illés, T., Horváth, Z.: *Folienproduktion mit geöffnetem Schlauch*. Kunststoffe, 10 (2007), 295–299.
- [16] Wool, R.P., Yuan, B.L., McGarel, O.J.: *Welding of Polymer Interfaces*. Polymer Engineering and Science, 29 (1989), 1340–1367.
- [17] Stehling, F.C., Meka, P.: *Heat Sealing of Semicrystalline Polymer Films. II. Effect of Melting Distribution on Heat-Sealing Behavior of Polyolefins*. Journal of Applied Polymer Science, 51 (1994), 105–119.
- [18] Barbari, E.: *Ultraschallschweißen von Thermoplasten – Möglichkeiten der Einsatzoptimierung*. Dissertation, Rheinisch-Westphälische Hochschule Aachen (1988).
- [19] Cole, P.J., Macosko, C.W.: *Polymer-Polymer Adhesion in Melt-Processed Layered Structures*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 16 (2000), 213–222.
- [20] Bonten, C., Schmachtenberg, E.: *A New Hypothesis to Describe the Mechanisms Acting in a Welded Joint of Semicrystalline Thermoplastics*. Polymer Engineering and Science, 41 (2001), 475–483.
- [21] deGennes, P.G.: *Reptation of a Polymer Chain in the Presence of Fixed Obstacles*. Journal of Chemical Physics, 55 (1971), 572–576.
- [22] deGennes, P.G.: *Scaling Concepts in Polymer Physics*. Cornell University Press, New York (1979).
- [23] Doi, M., Edwards, S.F.: *The Theory of Polymer Dynamics*. Oxford Scientific Publications, New York (1986).
- [24] des Cloizeaux, J.: *Double Reptation VS. Single Reptation of Polymer Melts*. Europhysical Letters, 5 (1988), 437–442.
- [25] Elias, H.G.: *Polymere – Von Monomeren und Makromolekülen zu Werkstoffen*. Hüthig und Wepf Verlag, Heidelberg (1996).
- [26] Cowie, J.M.G.: *Chemie und Physik der synthetischen Polymeren*. Vieweg Verlag, Wiesbaden (1997).
- [27] Voyutskii, S.S.: *Autohesion and Adhesion of High Polymers*. John Wiley & Sons, New York (1963).
- [28] Scholten, F.L., Oesterholt, D.J.A.: *Schweißbeignung und Kerbunempfindlichkeit von Rohren aus vernetztem Polyethylen (PE-Xa)*, Report GDT/MAT96319/Sch/052.V, Gastec N.V., Apeldoorn, Niederlande (1996).
- [29] Bonton, C.: *Beitrag zur Erklärung des Wirkmechanismus in Schweißverbindungen aus teilkristallinen Thermoplasten*. Dissertation, Rheinisch-Westphälische Technische Hochschule Aachen (1999).
- [30] Nentwig, J.: *Kunststoff-Folien*. Carl Hanser Verlag, Berlin (1994).
- [31] Woebcken, W. (Hrsg.): *Kunststoff-Lexikon*. Carl Hanser Verlag, München Wien (1998).
- [32] <http://en.wikipedia.org/wiki/Polyethylene>
- [33] Oberbach, K., Baur, E., Brinkmann, S., Schmachtenberg, E. (Hrsg.): *Kunststoff-Taschenbuch*. Carl Hanser Verlag, München Wien (2004).
- [34] Hering, E., Modler, K.-H. (Hrsg.): *Grundwissen des Ingenieurs*. Fachbuchverlag Leipzig, München Wien (2007).

- [35] <http://en.wikipedia.org/wiki/Polypropylene>
- [36] Langer, B.: *Bruchmechanische Bewertung von Polyamid-Werkstoffen*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg (1998).
- [37] Jarus, D., Hiltner, A., Baer, E.: *Barrier Properties of Polypropylene/Polyamide Blends Produced by Microlayer Coextrusion*. *Polymer*, 43 (2002), 2401–2408.
- [38] http://en.wikipedia.org/wiki/Polyethylene_terephthalat
- [39] <http://en.wikipedia.org/wiki/Polyvinylchloride>
- [40] Littek, W.: *Sicher umhüllt - Nanoteilchen machen Durethan-Folien dicht*. Bayer Research 15 (2004).
- [41] Katschorek, H.: *Optimierung der Barriereigenschaften hybridpolymerer Beschichtungssysteme*. Dissertation, Bayrische Julius-Maximilians-Universität Würzburg (2005).
- [42] Roucourt, I.: *The Use of Polybutene-1 in Film Applications*. Internationale Fachtagung “Dubai Plast Pro 2007”, Dubai, Vereinigte Arabische Emirate, (23.–25.04.2007).
- [43] Podio-Guidugli, P.: *Peeling Tapes*. In: Steinmann, P., Maugis, G.A.: *Mechanics of Material Forces*, Chapter 25, Springer Science+Business Media, Inc., Boston (2005).
- [44] McNally, G.M., Small, C.M., Murphy, W.R., Garrett, G.: *The Effect of Vinyl Acetate Content and Polyisobutylene Concentration on the Properties of Metallocene Polyethylene-Ethyl Vinyl Acetate Coextruded Film for Stretch and Cling Film Applications*. *Journal of Plastic Film and Sheeting*, 21 (2005), 69–83.
- [45] Michler, G. (Hrsg.): *Kunststoff-Mikromechanik*. Carl Hanser Verlag, München Wien (1992).
- [46] Wunderlich, B. (Ed.): *Macromolecular Physics*, Vol. 1. Academic Press, Inc., New York (2005).
- [47] Patel, R.M., Butler, T.I., Walton, K.L., Knight, G.W.: *Investigation of Processing-Structure-Properties Relationships in Polyethylene Blown Films*. *Polymer Engineering and Science*, 34 (1994), 1506–1514.
- [48] Holmes, D.R., Palmer, R.P.: *The Orientation of the Crystalline and Amorphous Regions in Polyethylene*. *Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics*, 31 (1958), 345–358.
- [49] Aggarwal, A.L., Tilley, G.P., Sweeting, O.J.: *Orientation in Extruded Polyethylene Films*. *Journal of Applied Polymer Science*, 1 (1959), 91–100.
- [50] Lindenmeyer, P.H., Lustig, S.: *Crystallite Orientation in Extruded Polyethylene Film*. *Journal of Applied Polymer Science*, 9 (1965), 227–240.
- [51] Keller, A., Machin, M.J.: *Oriented Crystallization in Polymers*. *Journal of Macromolecular Science, Part B: Physics*, B1 (1) (1967), 41–91.
- [52] Desper, C.R.: *Structure and Properties of Extruded Polyethylene Film*. *Journal of Applied Polymer Science*, 13 (1969), 169–191.
- [53] Haberkorn, H., Hendus, H., Kanig, G.: *Zur Struktur von Schlauchfolien aus Polyethylen*. *Die Angewandte Makromolekulare Chemie*, 40/41 (1974), 325–360.
- [54] Tagawa, T.: *Piled-Lamellae Structure in Polyethylene Film and its Deformation*. *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*, 18 (1980), 971–979.
- [55] Walenta, E., Janke, A., Hofmann, D., Fanter, D., Geiss, D.: *Zur übermolekularen Struktur von Blasfolien aus Polyethylen niedriger Dichte*. *Acta Polymerica*, 37 (1986), 557–563.
- [56] Marinow, S., Michler, G., Walther, C., Naumann, I.: *Struktur- und Eigenschaftsbeeinflussung von PE-HD Blasfolien durch Einarbeiten geringer Mengen eines Elastomerzusatzes - I. Untersuchungen zur Aufklärung von Struktur und Textur der Blasfolien*. *Plaste und Kautschuk*, 35 (1988), 159–165.
- [57] Hofmann, D., Geiss, D., Janke, A., Michler, G.H., Fiedler, L.: *Structure Investigations on Drawn High-Density Blown PE Films*. *Journal of Applied Polymer Science*, 39 (1990), 1595–1611.
- [58] Pazur, R.J., Prud'homme, R.E.: *X-ray Pole Figure and Small Angle Scattering Measurements on Tubular Blown Low-Density Poly(ethylene) Films*. *Macromolecules*, 29 (1996), 119–128.
- [59] Guichon, O., Séguéla, R., David, L., Vigier, G.: *Influence of the Molecular Architecture of Low-Density Polyethylene on the Texture and Mechanical Properties of Blown Films*. *Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics*, 41 (2003), 327–340.
- [60] Breese, D.R., Beaucage, G.: *A Review of Modeling Approaches for Oriented Semi-Crystalline Polymers*. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 8 (2004), 439–448.
- [61] Aji, A., Zhang, X., Elkoun, S.: *Biaxial Orientation in LLDPE Films: Comparison of Infrared Spectroscopy, X-ray Pole Figures, and Birefringence Techniques*. *Polymer Engineering and Science*, 46 (2006), 1182–1189.
- [62] Marinow, S., Michler, G., Walther, C., Naumann, I.: *Struktur- und Eigenschaftsbeeinflussung von PE-HD Blasfolien durch Einarbeiten geringer Mengen eines Elastomerzusatzes - II. Untersuchungen zur Erfassung der Strukturänderungen*. *Plaste und Kautschuk*, 35 (1988), 212–216.
- [63] Gohil, R.M., Petermann, J.: *Application of Discontinuous Fibre-Reinforced Composite Theory to Polybutene-1 Films Containing Needle Crystals*. *Journal of Materials Science*, 18 (1983), 1719–1724.
- [64] Wenderoth, K., Karbach, A., Petermann, J.: *Characterization of the Matrix of Polybutene-1 Films Containing Needle Crystals*. *Colloid and Polymer Science*, 263 (1985), 301–305.

- [65] Fujiwara, Y.: *II-I Phase Transformation of Melt-Crystallized Oriented Lamellae of Polybutene-1 by Shear Deformation*. Polymer Bulletin, 13 (1985), 253–258.
- [66] Hashimoto, T., Todo, A., Murakami, Y., Kawai, H.: *Light Scattering from Crystalline Superstructure in Tubular-Extruded Polybutene-1 Films*. Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, 15 (1977), 501–521.
- [67] Petraccone, V., Pirozzi, B., Frasci, A., Corradini, P.: *Polymorphism of Isotactic Poly-1-Butene: Conformational Analysis of the Chain and Crystalline Structure of Form 2*. European Polymer Journal, 12 (1976), 323–327.
- [68] Nakafuku, C., Miyaki, T.: *Effect of Pressure on the Melting and Crystallization Behavior of Isotactic Polybutene-1*. Polymer, 24 (1983), 141–148.
- [69] Kopp, S., Wittmann, C., Lotz, B.: *Epitaxial Crystallization and Crystalline Polymorphism of Poly(1-Butene): Forms III and II*. Polymer, 35 (1994), 908–915.
- [70] Kopp, S., Wittmann, C., Lotz, B.: *Epitaxial Crystallization and Crystalline Polymorphism of Poly(1-Butene): Form I'*. Polymer, 35 (1994), 916–924.
- [71] Tosaka, M., Kamijo, T., Tsuji, M., Kohjiya, S., Ogawa, T., Isoda, S., Kobayashi, T.: *High-Resolution Transmission Electron Microscopy of Crystal Transformation in Solution-Grown Lamellae of Isotactic Polybutene-1*. Macromolecules, 33 (2000), 9666–9672.
- [72] Danusso, F., Gianotti, G.: *Isotactic Polybutene-1: Formation and Transformation of Modification 2*. Die Makromolekulare Chemie, 88 (1965), 149–158.
- [73] Boor, J., Mitchell, J.C.: *Kinetics of Crystallization and a Crystal-Crystal Transition in Poly-1-butene*. Journal of Polymer Science, (1963), 59–84.
- [74] Kalay, G., Kalay, C.R.: *Compounding and Injection Molding of Polybutene-1/Polypropylene Blends*. Journal of Applied Polymer Science, 88 (2003), 806–813.
- [75] Kopp, S., Wittmann, C., Lotz, B.: *Phase II to Phase I Crystal Transformation in Polybutene-1 Single Crystals: A Reinvestigation*. Journal of Materials Science, 29 (1994), 6159–6166.
- [76] Kaszonyiova, M., Rybnikar, F., Geil, P.H.: *Polymorphism of Isotactic Poly(Butene-1)*. Journal of Macromolecular Science, Part B: Physics, 44 (2005), 377–396.
- [77] Alfonso, G.C., Azzurri, F., Castellano, M.: *Analysis of Calorimetric Curves Detected During the Polymorphic Transformation of Isotactic Polybutene-1*. Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, 66 (2001), 197–207.
- [78] Azzurri, F., Flores, A., Alfonso, G.C., Baltá Calleja, F.J.: *Polymorphism of Isotactic Poly(1-butene) as Revealed by Microindentation Hardness. I. Kinetics of the Transformation*. Macromolecules, 35 (2002), 9069–9073.
- [79] Marigo, A., Marega, C., Cecchin, G., Collina, G., Ferrara, G.: *Phase Transition II to I in Isotactic Poly-1-Butene: Wide- and Small Angle X-ray Scattering Measurements*. European Polymer Journal, 36 (2000), 131–136.
- [80] Hong, K.B., Spruiell, J.E.: *The Effect of Certain Processing Variables on the Form II to Form I Phase Transformation in Polybutene-1*. Journal of Applied Polymer Science, 30 (1985), 3163–3188.
- [81] Goldbach, G.: *Spannungsinduzierte Modifikationsumwandlung II nach I von Polybuten-1*. Die Angewandte Makromolekulare Chemie, 39 (1974), 175–188.
- [82] Boor, J., Mitchell, J.C.: *Apparent Nucleation of a Crystal-Crystal Transition in Poly-1-Butene*. Journal of Applied Polymer Science, 62 (1962), 70–73.
- [83] Shieh, Y.T., Lee, M.S., Chen, S.A.: *Crystallization Behavior, Crystal Transformation, and Morphology of Polypropylene/Polybutene-1 Blends*. Polymer, 42 (2001), 4439–4448.
- [84] Wanjale, S.D., Jog, J.P.: *Crystallization and Phase Transformation Kinetics of Poly(1-butene)/MWCNT Nanocomposites*. Polymer, 47 (2006), 6414–6421.
- [85] Gohil, R.M., Petermann, J.: *Strain Induced Oriented Polymer Blending: Morphology-Property Relationship in Polyethylene-Polybutene-1 Systems*. Colloid and Polymer Science, 260 (1982), 312–318.
- [86] Schatt, W., Worch, H. (Hrsg.): *Werkstoffwissenschaft*. Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Stuttgart (1996).
- [87] Kusnezow, N.A., Nossalewitsch, I.M., Pacharenko, W.A.: *Untersuchung zum Einfluss der molekularen Kennwerte und der Kühlbedingungen auf die übermolekulare Struktur von Polyethylen*. Plaste und Kautschuk, 28 (1981), 333–336.
- [88] Berger, W., Gräfe, F., Kammer, H.W.: *Zur Extrusion von Polyethylen hoher Dichte im festen Zustand*. Acta Polymerica, 35 (1984), 504–508.
- [89] Kanai, T., White, J.L.: *Kinematics, Dynamics and Stability of the Tubular Film Extrusion of Various Polyethylenes*. Polymer Engineering and Science, 24 (1984), 1185–1201.
- [90] Huang, T.A., Campbell, G.A.: *Deformational History of LLDPE/LDPE Blends on Blown Film Equipment*. Advances in Polymer Technology, 5 (1985), 181–192.

- [91] Lohse, G., Marinow, S.: *Modell des Folienblasprozesses zur Beschreibung von elastischen Deformationen III - Lösung und experimentelle Überprüfung des Modells*. Plaste und Kautschuk, 33 (1986), 221–226.
- [92] Tanoue, S., Iemoto, Y.: *Effect of Die Gap Width on Annular Extrudates by the Annular Extrudate Swell Simulation in Steady-States*. Polymer Engineering and Science, 39 (1999), 2172–2180.
- [93] Ghaneh-Fard, A.: *Effects of Film Blowing Conditions on Molecular Orientation and Mechanical Properties of Polyethylene Films*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 15 (1999), 194–218.
- [94] Small, C.M., McNally, G.M., Marks, A., Murphy, W.R.: *The Effect of Extrusion Processing Conditions and Polyisobutylene Concentration on the Properties of Polyethylene for Stretch and Cling Film Applications*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 18 (2002), 245–258.
- [95] Elkoun, S., Huneault, M.A., McCormick, K., Puterbaugh, F., Kale, L.: *LLDPE-Based Mono- and Multi-layer Blown Films: Effect of Processing Parameters on Properties*. Polymer Engineering and Science, 45 (2005), 1214–1221.
- [96] Lohse, G., Marinow, S.: *Modell des Folienblasprozesses zur Beschreibung von elastischen Deformationen I - Modell des Folienblasprozesses*. Plaste und Kautschuk, 33 (1986), 106–110.
- [97] Beerbaum, H.: *Ermittlung strukturbezogener bruchmechanischer Werkstoffkenngrößen an Polyethylen-Werkstoffen*. Dissertation, Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg (1999).
- [98] Patel, R., Ratta, V., Saavedra, P., Li, J.: *Surface Haze and Surface Morphology of Blown Film Compositions*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 21 (2005), 217–231.
- [99] Kamykowski, G.W.: *Factors Affecting Adhesion of Tie Layers between Polypropylene and Polyamides*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 16 (2000), 237–246.
- [100] Morris, B.A.: *Influence of Stress on Peel Strength of Acid Copolymers to Foil*. Journal of Reinforced Plastics and Composites, 21 (2002), 1243–1255.
- [101] Park, I.S., Yu, J.: *An X-ray Study on the Mechanical Effects of the Peel Test in a Cu/Cr/Polyimide System*. Acta Materialia, 46 (1998), 2947–2953.
- [102] Sargent, J.P.: *Microextensometry, the Peel Test, and the Influence of Adherent Thickness on the Measurement of Adhesive Fracture Energy*. International Journal of Adhesion and Adhesives, 18 (1998), 215–224.
- [103] Gardon, J.L.: *Peel Adhesion. I. Some Phenomenological Aspects of the Test*. Journal of Applied Polymer Science, 7 (1963), 625–641.
- [104] Aithani, D., Lockhart, H., Auras, R., Tanprasert, K.: *Predicting the Strongest Peelable Seal for 'Easy-Open' Packaging Applications*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 22 (2006), 247–263.
- [105] Yuan, C.S., Hassan, A., Ghazali, M.I.H., Ismail, A.F.: *Heat Sealability of Laminated Films with LLDPE and LDPE as the Sealant Materials in Bar Sealing Applications*. Journal of Applied Polymer Science, 104 (2007), 3736–3745.
- [106] Meka, P., Stehling, F.C.: *Heat Sealing of Semicrystalline Polymer Films. I. Calculation and Measurement of Interfacial Temperatures: Effect of Process Variables on Seal Properties*. Journal of Applied Polymer Science, 51 (1994), 89–103.
- [107] Berger, K.R., Knoelke, M., Welt, B.: *Influence of Sample Preparation and Instrument Settings on Hot Tack Measurements of Thin Sealant Films*. Journal of Plastic Film and Sheeting, 20 (2004), 55–63.
- [108] Hamed, G.R.: *Stress Relaxation in Peel Adhesion*. Journal of Adhesion, 13 (1981), 101–105.
- [109] Omiya, M., Kishimoto, K.: *Interfacial Strength of Ceramic Thin Film on Polymer Substrate*. In: Proceedings of the 16th European Conference of Fracture, Alexandroupolis, Greece (July 3–7, 2006).
- [110] Moore, D.R.: *Peel Strength and Adhesive Fracture Toughness*. In: Moore, D.R. (Ed.): The Application of Fracture Mechanics to Polymers, Adhesives and Composites, pp. 131–136, Elsevier, Oxford (2004).
- [111] Dugdale, D.S.: *Yielding of Steel Sheets Containing Slits*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 8 (1960), 100–104.
- [112] Barenblatt, G.I.: *The Mathematical Theory of Equilibrium Cracks in Brittle Fracture*. Advances in Applied Mechanics, 7 (1962), 55–129.
- [113] Needleman, A.: *A Continuum Model for Void Nucleation by Inclusion Debonding*. Journal of Applied Mechanics, 54 (1987), 525–531.
- [114] Rahulkumar, P., Jagota, A., Bennison, S.J., Saigal, S., Muralidhar, S.: *Polymer Interfacial Fracture Simulations Using Cohesive Elements*. Acta Materialia, 47 (1999), 4161–4169.
- [115] Users Manual, ANSYS® Version 10.0, (2007).
- [116] Sargent, J.P.: *Durability Studies for Aerospace Applications Using Peel and Wedge Tests*. International Journal of Adhesion and Adhesives, 25 (2005), 247–256.
- [117] DIN EN ISO 1133: *Bestimmung der Schmelze-Massefließrate (MFR) und der Schmelze-Volumenfließrate (MVR) von Thermoplasten*, 2002.
- [118] Petrie, C.J.S.: *A Comparison of Theoretical Predictions with Published Experimental Measurements on the Blown Film Process*. American Institute of Chemical Engineers Journal, 21 (1975), 275–282.

- [119] DIN EN ISO 11357-1: *Kunststoffe – Dynamische Differenz-Thermoanalyse (DSC) – Teil 1: Allgemeine Grundlagen*, 1997.
- [120] DIN EN ISO 527-3: *Kunststoffe – Bestimmung der Zugeigenschaften – Teil 3: Prüfbedingungen für Folien und Tafeln*, 2003.
- [121] DIN 53363: *Prüfung von Kunststoff-Folien – Weiterreißversuch an trapezförmigen Proben mit Einschnitt*, 2003.
- [122] DIN EN ISO 8256: *Kunststoffe – Bestimmung der Schlagzugzähigkeit*, 2005.
- [123] DIN EN ISO 6603-2: *Kunststoffe – Bestimmung des Durchstoßverhaltens von festen Kunststoffen – Teil 2: Instrumentierter Schlagversuch*, 2002.
- [124] DIN EN ISO 8295: *Kunststoffe – Folien und Bahnen – Bestimmung der Reibungskoeffizienten*, 2004.
- [125] ASTM D 1003: *Standard Test Method for Haze and Luminous Transmittance of Transparent Plastics*, 2007.
- [126] ASTM D 1876: *Standard Test Method for Peel Resistance of Adhesives (T-Peel Test)*, 2001.
- [127] DIN 55529: *Verpackung – Bestimmung der Siegelnahtfestigkeit von Siegelungen aus flexiblen Packstoffen*, 2005.
- [128] Nase, M., Langer, B., Baumann, H.J., Grellmann, W., Geißler, G., Kaliske, M.: *Evaluation and Simulation of the Peel Behavior of Polyethylene/Polybutene-1 Peel Systems*. *Journal of Applied Polymer Science*, 111 (2009), 363–370.
- [129] Grellmann, W., Langer, B., Nase, M., Baumann, H.J.: *Fixed-Arm Peeltest – Bewertung von Grenzflächen in Polyethylen/Polybuten-1 Peelsystemen*. Internationale Tagung Werkstoffprüfung „Fortschritte der Kennwertermittlung für Forschung und Praxis“, Bad Neuenahr (2006), Tagungsband S. 439–444.
- [130] Nase, M., Langer, B., Grellmann, W.: *Bruchmechanische Kennwertermittlung im T-Peeltest und im Fixed-Arm Peeltest*. Internationale Tagung Werkstoffprüfung „Herausforderung neuer Werkstoffe an die Forschung und Werkstoffprüfung“, Berlin (2008), Tagungsband S. 223–228.
- [131] Irwin, G.R.: *Onset of Fast Crack Propagation in High Strength Steel and Aluminium Alloys*. Internationale Tagung Sagamore Research Conference, Sagamore (1956), Tagungsband S. 289–305.
- [132] Rivlin, R.S.: *The Effective Work of Adhesion*. *Journal of Paint Technology*, 9 (1944), 215–216.
- [133] Wei, Y., Hutchinson, J.W.: *Interface Strength, Work of Adhesion and Plasticity in the Peel Test*. *International Journal of Fracture*, 93 (1998), 315–333.
- [134] Rahulkumar, P., Jagota, A., Bennison, S.J., Saigal, S.: *Cohesive Element Modeling of Viscoelastic Fracture: Application to Peel Testing of Polymers*. *International Journal of Solids and Structures*, 37 (2000), 1873–1897.
- [135] Breslauer, E., Troczynski, T.: *Determination of the Energy Dissipated During Peel Testing*. *Material Science and Engineering A*, 302 (2001), 168–180.
- [136] Kinloch, A.J., Williams, J.G.: *The Mechanics of Peel Tests*. In: Dillard, D.A., Pocius, A.V.: *Adhesion Science and Engineering - 1 - The Mechanics of Adhesion* (Chapter 8), pp. 273–301, Elsevier, New York (2002).
- [137] Song, J.Y., Jin, Y.: *Analysis of the T-peel Strength on a Cu/Cr/Polyimide System*. *Acta Materialia*, 50 (2002), 3985–3994.
- [138] Georgiou, I., Hadavinia, H., Ivankovic, A., Kinloch, A.J., Tropsa, V., Williams, J.G.: *Cohesive Zone Models and the Plastically Deforming Peel Test*. *The Journal of Adhesion*, 79 (2003), 239–265.
- [139] Blackman, B.R.K., Hadavinia, H., Kinloch, A.J., Williams, J.G.: *The Use of a Cohesive Zone Model to Study the Fracture of Fibre Composites and Adhesively-Bonded Joints*. *International Journal of Fracture*, 119 (2003), 25–46.
- [140] Hadavinia, H., Kawashita, L., Kinloch, A.J., Moore, D.R., Williams, J.G.: *A Numerical Analysis of the Elastic-Plastic Peel Test*. *Engineering Fracture Mechanics*, 73 (2006), 2324–2335.
- [141] Thouless, M.D., Jensen, H.M.: *Elastic Fracture Mechanics of the Peel Test Geometry*. *Journal of Adhesion*, 38 (1992), 185–197.
- [142] Song, R., Chiang, M.Y.M., Crosby, A.J., Karim, A., Amis, E.J., Eidelman, N.: *Combinatorial Peel Tests for the Characterization of Adhesion Behavior of Polymeric Films*. *Polymer*, 46 (2005), 1643–1652.
- [143] Ren, F.Z., Liu, P., Jia, S.G., Tian, B.H., Su, J.H.: *Adhesion Strength of Ni Film on Ti Substrate Characterized by Three-Point Bend Test, Peel Test and Theoretic Calculation*. *Material Science and Engineering: A*, 419 (2006), 233–237.
- [144] Kinloch, A.J.: *Adhesion and Adhesives*. Chapman and Hall, London (1987).
- [145] Moore, D.R., Williams, J.G.: *Peel Testing of Flexible Laminates*. In: Moore, D.R., Pavan, A., Williams, J.G. (Eds.): *ESIS TC4 Publication 28 – Fracture Mechanics Testing Methods for Polymers Adhesives and Composites*, pp. 203–223, Elsevier, Amsterdam (2001).
- [146] Anderson, T.L.: *Fracture Mechanics*. Taylor & Francis, Boca Raton (2005).

- [147] Nase, M., Zankel, A., Langer, B., Baumann, H.J., Grellmann, W., Poelt, P.: *Investigation of the Peel Behavior of Polyethylene/Polybutene-1 Peel Films Using In-Situ Peel Tests with Environmental Scanning Electron Microscopy*. *Polymer*, 49 (2008), 5458–5466.
- [148] Nase, M., Langer, B., Baumann, H.J., Grellmann, W.: *Fracture Mechanics on Polyethylene/Polybutene-1 Peel Films*. *Polymer Testing*, 27 (2008), 1017–1025.
- [149] Michler, G., Lebek, W.: *Ultramikrotomie in der Materialforschung*. Carl Hanser Verlag, München (2004).
- [150] Zankel A, Poelt P, Gahleitner M, Ingolic E, Grein C.: *Tensile Tests of Polymers at Low Temperatures in the Environmental Scanning Electron Microscope: An Improved Cooling Platform*. *Scanning*, 29 (2007), 261–269.
- [151] Rattenberger, J.: *Advanced Investigations of Electron-Gas Interaction in an ESEM Used for Contrast Formation*. Master Thesis, Graz University of Technology (2006).
- [152] <http://de.wikipedia.org/wiki/ESEM>
- [153] Egerton, R.F., Li, P., Malac, M.: *Radiation Damage in the TEM and SEM*. *Micron*, 35 (2004), 399–409.
- [154] Zankel, A., Chernev, B., Brandl, C., Poelt, P., Wilhelm, P., Nase, M., Langer, B., Grellmann, W., Baumann, H.J.: *Assessment of Beam Damage in Polymers Caused by In Situ ESEM Analysis Using IR Spectroscopy*. *Macromolecular Symposia*, 256 (2008), 156–165.
- [155] Alexander, L.E.: *X-Ray Diffraction Methods in Polymer Science*. John Wiley & Sons, New York (1969).
- [156] Grellmann, W., Seidler, S. (Hrsg.): *Deformation and Fracture Behavior of Polymers*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (2001).
- [157] Grellmann, W., Seidler, S., Jung, K., Kotter, I.: *Crack-Resistance Behavior of Polypropylene Copolymers*. *Journal of Applied Polymer Science*, 79 (2001), 2317–2325.
- [158] Starke, J.U., Michler, G.H., Grellmann, W., Seidler, S., Gahleitner, M., Fiebig, J., Nezbedova, E.: *Fracture Toughness of Polypropylene Copolymers: Influence of Interparticle Distance and Temperature*. *Polymer*, 39 (1998), 75–82.
- [159] Goldstein, J.I., Newbury, D.E., Echlin, P., Joy, D.C., Lyman, C.E., Lifshin, E., Sawyer, L.C., Michael, J.R.: *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*. Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York (2003).
- [160] Sawyer, L.C., Grubb, D.T.: *Polymer Microscopy*. Chapman and Hall, London (1996).
- [161] Nase, M., Funari, S.S., Michler, G., Langer, B., Grellmann, W., Androsch, R.: *Structure of Blown Films of Polyethylene/Polybutene-Blends*. *Polymer Engineering and Science* (2009), submitted.
- [162] Johnson, M.B., Wilkes, G.L., Sukhadia, A.M., Rohlfing, D.C.: *Optical Properties of Blown and Cast Polyethylene Films: Surface Versus Bulk Structural Considerations*. *Journal of Applied Polymer Science*, 77 (2000), 2845–2864.
- [163] Uhland, E.: *Modell zur Beschreibung des Fließens wandgleitender Substanzen durch Düsen*. *Rheol. Acta*, 15 (1976), 30–39.
- [164] Nase, M., Langer, B., Baumann, H.J., Grellmann, W.: *Influence of Processing Conditions on the Peel Behavior of Polyethylene/Polybutene-1 Peel Systems*. *Journal of Plastic Film and Sheeting* (2008), submitted.
- [165] Nase, M., Androsch, R., Langer, B., Baumann, H.J., Grellmann, W.: *Effect of Polymorphism of Isotactic Polybutene-1 on Peel Behavior of Polyethylene/Polybutene-1 Peel Systems*. *Journal of Applied Polymer Science*, 107 (2008), 3111–3118.
- [166] Androsch, R., Wunderlich, B.: *A Study of Annealing of Poly(ethylene-co-octene) by Temperature-Modulated and Standard Differential Scanning Calorimetry*. *Macromolecules*, 32 (1999), 7238–7247.
- [167] Androsch, R.: *Melting and Crystallization of Poly(ethylene-co-octene) Measured by Modulated D.S.C. and Temperature-Resolved X-ray Diffraction*. *Polymer*, 40 (1999), 2805–2812.
- [168] Nase, M., Langer, B., Grellmann W.: *Abschlussbericht an die Max-Buchner-Forschungstiftung – Untersuchung des Deformationsverhaltens von Peelfolien aus thermoplastischen Werkstoffsystemen für Anwendungen in der Lebensmittelindustrie und Medizintechnik*, (2006–2008).
- [169] Geißler, G., Kaliske, M.: *A Cohesive Element Approach for Viscoelastic Interface Properties*. *Proceedings in Applied Mathematics and Mechanics*, 4 (2004), 187–188.
- [170] Gerlach, S., Fiolka, M., Matzenmiller, A.: *Modelling and Analysis of Adhesively Bonded Joints with Interface Elements for Crash Analysis*. *LS-DYNA Anwenderforum, Bamberg* (2005), Tagungsband 35–44.
- [171] Geißler, G., Kaliske, M., Nase, M., Grellmann, W.: *Peel Process Simulation of Polymeric Films – Computational Modelling of Experimental Results*. *Engineering Computations*, 24 (2007), 586–607. [Gewinner des “Outstanding Paper Award” 2008 des Emerald Literati Network.]

-
- [172] Schoßig, M., Bierögel, C., Grellmann, W., Bardenheier, R., Mecklenburg, T.: *Effect of Strain Rate on Mechanical Properties of Reinforced Polyolefins*. European Conference of Fracture (ECF 16), Alexandroupolis, Greece (2006), Conference Proceedings Section P 1–6.
- [173] Ahrens, H., Bellmann, K.: *Ein mathematisch-statistisches Modell polygener Modifikatorsysteme*. Biometrische Zeitschrift, 12 (2007), 113–126.
- [174] Reinsch, E.A. (Hrsg.): *Mathematik für Chemiker*. Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden (2004).

Danksagung

Diese Arbeit ist im Ergebnis meiner Tätigkeit im Rahmen des Forschungsprojektes „*Untersuchung der Zusammenhänge zwischen Herstellungsbedingungen, übermolekularer Struktur und den Eigenschaften von Peelfolien*“ unter der Leitung von Herrn Prof. Dr. rer. nat. habil. Wolfgang Grellmann entstanden. Die innerhalb des Forschungsprojektes kooperierenden Partner waren das Institut für Polymerwerkstoffe e.V. und die Polymer Service GmbH als An-Institute an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg sowie die ORBITA-FILM GmbH als Industriepartner.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Wolfgang Grellmann für die interessante Aufgabenstellung, seine stete Unterstützung und die konstruktiven Hinweise und Diskussionen, die entscheidend zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ich möchte mich ganz herzlich bei Frau Dr.-Ing. Beate Langer für die wertvolle wissenschaftliche Betreuung meiner Arbeit und die hilfreichen Anregungen und Hinweise sowie für ihr Verständnis für verschiedene „Last-Minute-Aktionen“ bedanken. Ohne ihre Hilfe und Förderung meiner wissenschaftlichen Entwicklung wäre diese Arbeit nicht entstanden.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Dipl.-Ing. Reinhard Händel (Geschäftsführer ORBITA-FILM GmbH) für das Zustandekommen des Forschungsprojektes. Weiterhin möchte ich Herrn Dr. rer. nat. Hans Joachim Baumann (ehem. Geschäftsführer ORBITA-FILM GmbH) für sein Engagement bei der Bewältigung des Projektes und seine konstruktiven Hinweise sowie für seine moralische Unterstützung herzlich danken. In diesem Zusammenhang möchte ich der ORBITA-FILM GmbH, insbesondere Herrn Dr. rer. nat. Gottfried Weyhe, Herrn Dipl.-Ing. Norbert Krüger, Herrn Manfred Cebulla und Herrn Mathias Welke für die Herstellung des Prüfkörpermaterials und die Hilfen bei technischen Problemstellungen danken.

Ich möchte mich besonders bei Herrn PD Dr.-Ing. habil. René Androsch, Zentrum für Ingenieurwissenschaften der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg für die Zusammenarbeit bei der Durchführung und Auswertung der röntgenographischen Untersuchungen und für die vielen fachlichen Diskussionen und wertvollen Hilfestellungen bedanken.

Ganz herzlich möchte ich mich bei Herrn PD Dr.-Ing. habil. Peter Poelt, Herrn Dr.-Ing. Armin Zankel und Frau Dr.-Ing. Elisabeth Ingolič für die zwei angenehmen und zum Gelingen dieser Arbeit maßgeblich beigetragenen Gastaufenthalte am Zentrum für Elektronenmikroskopie in Graz, Österreich und die gute Zusammenarbeit bedanken. Unvergessen bleiben die in-situ-Untersuchungen mit Umgebungs-REM bis tief in die Nacht hinein.

Darüber hinaus möchte ich Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Michael Kaliske und Herrn Dr.-Ing. Gordon Geißler, Institut für Statik und Dynamik der Tragwerke der Technischen Universität Dresden für die Zusammenarbeit bei der Erstellung eines FE-Modells für den Peelvorgang ganz herzlich danken.

Weiterhin gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. rer. nat. Goerg H. Michler und Frau Dipl.-Ing. (FH) Sylvia Görlitz, Institut für Physik der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg für die Anfertigung der TEM-Aufnahmen, ohne die eine Bewertung der auftretenden mechanischen Effekte nicht möglich gewesen wäre.

Ich möchte außerdem ganz herzlich allen Kollegen der Arbeitsgruppe „Werkstoffdiagnostik/Werkstoffprüfung“ dafür danken, dass sie mich bei meiner Arbeit stets unterstützt haben und mir mit Rat und Tat zur Seite standen.

Meinen Eltern möchte ich von ganzem Herzen für die Ermöglichung meines Bildungsweges und die tatkräftige moralische Unterstützung beim Anfertigen dieser Arbeit danken.

Erklärung

Ich erkläre, dass ich die vorliegende Dissertation selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe.

Diese Dissertation wurde bisher an keiner anderen Hochschule oder Universität vorgelegt.

Halle, 14.04.2009

Michael Nase

Lebenslauf

Allgemeine Angaben zur Person

Name: Michael Nase
Geburtstag: 24.09.1979
Geburtsort: Halle (Saale), Sachsen-Anhalt
Geschlecht: männlich
Staatsangehörigkeit: BRD
Akademischer Grad: Diplom-Ingenieur
Anschrift: Bernhardystraße 28
D-06110 Halle

Schulbildung

09/1986–05/1998 Besuch der N.K. Krupskaja Schule in Halle (Saale), später Christian-Wolff-Gymnasium

05/1998 Abitur,
Prädikat „gut“

Hochschulbildung

10/1999–04/2005 Studium der Werkstoffwissenschaften mit der Vertiefungsrichtung Kunststofftechnik an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg

04/2005 Diplomarbeit mit dem Thema „Deformations- und Bruchverhalten von glasfaserverstärkten PA 6/PA 66-Blends“,
Prädikat „sehr gut“

seit 05/2005 Promotionsvorhaben mit dem Thema „Zusammenhang zwischen Herstellungsbedingungen, übermolekularer Struktur und Eigenschaften von Peelfolien“

09/2005–10/2005 Gastaufenthalt am Institut für Dynamik und Statik der Tragstrukturen in Leipzig (jetzt in Dresden)

06/2006–06/2008 Max-Buchner-Stipendiat (DECHEMA e.V.)

10/2008 Gewinner des “Outstanding Paper Award” 2008 des Emerald Literati Network

05/2009 Träger des Professor-Hans-Henning-Kausch-Preises 2008 der Akademie Mitteldeutsche Kunststoffinnovationen

Berufstätigkeit

seit 05/2008 Mitarbeiter bei der ORBITA-FILM GmbH im Bereich Forschung und Entwicklung