

## 5 Diskussion der Ergebnisse

### 5.1 Einfluss der Strukturparameter auf das Zähigkeitsverhalten von PE-HD-Werkstoffen

Für eine umfassende bruchmechanische Beurteilung des Zähigkeitsverhaltens von teilkristallinen Kunststoffen ist die kombinierte Betrachtung der Einflüsse von Molekulargewicht, Kristallinität und strukturellen Größen im Nanometerbereich erforderlich. Das Molekulargewicht stellt einen stark bestimmenden Parameter für die Zähigkeit dar, jedoch haben im Bereich mittlerer Molmassen Parameter wie die Kristallinität und die kristalline Strukturausbildung einen Einfluss auf die ablaufenden Zähigkeitsmechanismen. Sie sind im Bezug auf die Optimierung der Zähigkeitseigenschaften vor allem bei stabiler Rissausbreitung im untersuchten Molmassenbereich von 100-300 kg/mol bei erwünschter günstiger Verarbeitbarkeit von entscheidender Bedeutung.

Das Zähigkeitsverhalten bei instabiler Rissausbreitung der PE-HD-Werkstoffe ist im gesamten untersuchten Molekulargewichtsbereich von 90 bis 550 kg/mol energiedeterminiert. Für die hier untersuchten PE-HD-Werkstoffe wurde gleichsinniges Verhalten vom festigkeitsbestimmten Spannungsintensitätsfaktor  $K_{Qd}$  und von der verformungsbestimmten kritischen Rissöffnungsverschiebung  $d_{ld}$  und damit auch für den energiebestimmten J-Integral-Wert  $J^{ST}$  in Abhängigkeit vom Molekulargewicht nachgewiesen (Bild 4.14). Energiedeterminiertes Zähigkeitsverhalten bedeutet, dass sich hohe Kräfte und Verformungen gleichermaßen auf die Zähigkeit auswirken.

Die Zunahme der Zähigkeit, charakterisiert durch den J-Integral-Wert und die Rissöffnungsverschiebung (Bild 4.14), mit ansteigendem Molekulargewicht unterstreicht die Bedeutung der Molmasse und damit der Länge der Molekülketten und der Anzahl der Tie-Moleküle für das Zähigkeitsverhalten von Kunststoffen. Die Entschlaufungsrate wird durch die längeren Ketten und die höhere Tie-Molekül-Dichte, die im untersuchten Molekulargewichtsbereich von 0,16 auf 1,22 ansteigt (Bild 3.8), wesentlich vermindert. Der bestimmende Strukturparameter im Nanometerbereich für die Zähigkeit der PE-HD-Werkstoffe bei instabiler Rissausbreitung ist die Tie-Molekül-Dichte. Mit zunehmender Anzahl an Tie-Molekülen wird das Zähigkeitsverhalten als Widerstand gegenüber instabiler Rissausbreitung erhöht und ist ebenfalls energiedeterminiert (Bild 4.23).

Durch die Verminderung der Entschlaufungsrate vollzieht sich bei hohen Molekulargewichten und Tie-Molekül-Dichten eine gröbere Fibrillierung im Crazegebiet vor der Risspitze und es überwiegt der Anteil an Scherdeformation (Bild 4.33B). Die Zunahme der energiedissipativen

Prozesse in Form von Scherfließen bei höheren Molekulargewichten (500 u. 550 kg/mol), die durch die Bruchflächenuntersuchungen nachgewiesen werden konnten (Bild 4.33B), wird durch das Ansteigen der dissipierten Energie und des plastischen Energieanteils bestätigt (Bild 4.4 u. 4.13).

Die Werte für die Streckgrenze bei Schlagbeanspruchung werden im untersuchten Molmassenbereich nicht beeinflusst (Bild 4.12). Dies deutet darauf hin, dass bei hohen Molekulargewichten (ab 360 kg/mol) keine Kristallit-Festigkeitsmechanismen für die Erhöhung der Zähigkeit zum Tragen kommen. In Abhängigkeit von der Tie-Molekül-Dichte liegt für den E-Modul und die Streckgrenze bei Schlagbeanspruchung ein Minimum bei etwa 0,8 vor (Bild 4.22). Bei geringeren Tie-Molekül-Dichten überwiegt der Einfluss der Langperiode auf das mechanische Festigkeitsverhalten (Bild A32), da bei großen Langperioden eine geringe Wahrscheinlichkeit zur Bildung von Tie-Molekülen besteht.

Bei einem Molekulargewicht von 90 kg/mol ist die Zähigkeit bei schlagartiger Beanspruchung vergleichsweise gering. Es trat bei diesem Molekulargewicht linear-elastisches Werkstoffverhalten mit einem sehr geringen Widerstand gegenüber Rissinitiierung auf. Auf Grund des sehr geringen Anteils an stabilem Risswachstum bei diesem Molekulargewicht konnte keine Risswiderstandskurve bei einer Prüfgeschwindigkeit von 1,5 m/s aufgenommen werden. Dieser Werkstoff weist wegen seiner Molmasse die geringste berechnete Tie-Molekül-Dichte und eine mittlere Kristallinität von 68,7 % auf. Die Entschlafung wird nicht wesentlich behindert und es tritt kaum Lochbildung und Crazing auf (siehe Bild 4.28). Der Werkstoff weist bei den gewählten Prüfbedingungen keine plastischen Energieanteile auf.

Während sich das Zähigkeitsverhalten bei instabiler Rissausbreitung der PE-HD-Werkstoffe im untersuchten Molekulargewichtsbereich als energiedeterminiert darstellt, ist es in Abhängigkeit von der Kristallinität verformungs determiniert. Die allgemeingültige Annahme, eine hohe Kristallinität hat eine geringe Zähigkeit bei instabiler Rissausbreitung zur Folge, wird durch die Untersuchungen im Kristallinitätsbereich  $a_2$  von 53,3 bis 75,1 % bestätigt. Mit steigender Kristallinität nimmt die Verformungsbehinderung, charakterisiert durch die Rissöffnungsverschiebung (Bild 4.18), infolge der Vergrößerung der Lamellendicke mit zunehmender Kristallinität (siehe Tabelle A4) zu. Während der festigkeitsdeterminierte Spannungsintensitätsfaktor  $K_{Qd}$  mit steigender Kristallinität zunimmt und die verformungs determinierte Rissöffnungsverschiebung  $d_{ld}$  abnimmt, zeigt der energiedeterminierte J-Integral-Wert  $J^{ST}$  eine Abnahme mit steigender Kristallinität (Bild 4.19). Die Abnahme des J-Integral-Wertes resultiert demnach aus dem

Verformungsverhalten der Werkstoffe.

Risskriterium bei verformungsdeterminierten Bruchvorgängen ist dabei eine kritische Rissöffnungsverschiebung  $d_c$  an der Rissspitze und damit eine kritische Verlängerung der Fibrillen im Grund des Risses. Die Deformierbarkeit der Lamellen ist für das Verformungsverhalten bestimmend. Eine steigende Lamellendicke bedeutet eine höhere Festigkeit der Kristallite, jedoch auch eine geringere Deformierbarkeit des teilkristallinen Phasensystems bei instabilem Risswachstum auf Grund einer geringeren Dicke der amorphen Bereiche. Die Risszähigkeiten als Widerstand gegenüber instabiler Rissausbreitung verhalten sich in Abhängigkeit von der Langperiode  $L_{Pexp}$  und der Lamellendicke  $L_{cTEM}$  wie für die Kristallinität (Bild A35), währenddessen mit zunehmender Dicke der amorphen Bereiche  $L_{atheo}$  bei gleichbleibendem Molekulargewicht von 220 kg/mol die Rissöffnungsverschiebung  $d_{ld}$  als Risszähigkeit gegenüber instabiler Rissausbreitung erhöht wird (Bild A35).

Die höheren Kristallitfestigkeiten auf Grund von größeren Langperioden und größeren Lamellendicken (siehe Tabelle 3.4 u. A4) werden bei allen PE-HD-Werkstoffe unabhängig vom Molekulargewicht mit ansteigender Kristallinität und Langperiode durch die Erhöhung von E-Modul und Streckgrenze bei schlagartiger Beanspruchung (Bild 4.16 u. A32) nachgewiesen.

Für die bruchmechanischen Untersuchungen des Zähigkeitsverhaltens als Widerstand gegenüber instabiler Rissausbreitung von Polyethylen-Werkstoffen hoher Dichte wurden Seitenkerben verwendet, da durch sie eine ebene Rissfront und instabiles Risswachstum ohne große Rissverzögerungen gefördert werden.

Bei den Werkstoffen mit hohem Molekulargewicht (PE-HD D550 u. D500) und hoher Kristallinität (PE-HD M60) sind jedoch auch bei Prüfkörpern mit Seitenkerben große Rissverzögerungsenergien in den Schlagkraft-Durchbiegungs-Diagrammen zu quantifizieren (Bild 4.3 und 4.4). Diese Zähigkeitsreserve zeigt sich in der Abhängigkeit der dissipierten Energie, die mit steigendem Molekulargewicht und bei hoher Kristallinität von 75,1 % ansteigt (siehe Bild 4.13 und 4.17). Die wesentlichen Zähigkeitsprozesse laufen über die Zunahme der Rissverzögerungsenergie  $A_R$  ab.

In Bild 5.1 sind die Abhängigkeiten von Duktilitäts-Index  $D.I.$  und Duktilitäts-Ratio  $D.R.$ , die nach Gl. 45 u. 46 aus dem Verhältnis von Rissverzögerungsenergie zur totalen Energie bzw. Gesamtenergie bestimmt wurden, von der Kristallinität für die PE-HD-M-Werkstoffe mit gleicher Molmasse (220 kg/mol) im Kristallinitätsbereich von 53,3 bis 85,4 % dargestellt. Es zeigt sich eine deutliche Zunahme der Duktilität des teilkristallinen Polymers mit ansteigender

Kristallinität. Der Werkstoff mit der höchsten Kristallinität von 85,4 % weist reines, stabiles Risswachstum auf. Bei den anderen PE-HD-M-Werkstoffen ist ein Steilabfall der Kraft zu beobachten, der mit unterschiedlich starker Rissverzögerung verbunden ist und für die PE-HD-Werkstoffe mit 71,4 u. 75,1 % zu einem Risswachstumsverhalten ohne vollständigen Bruch der Prüfkörper führt.

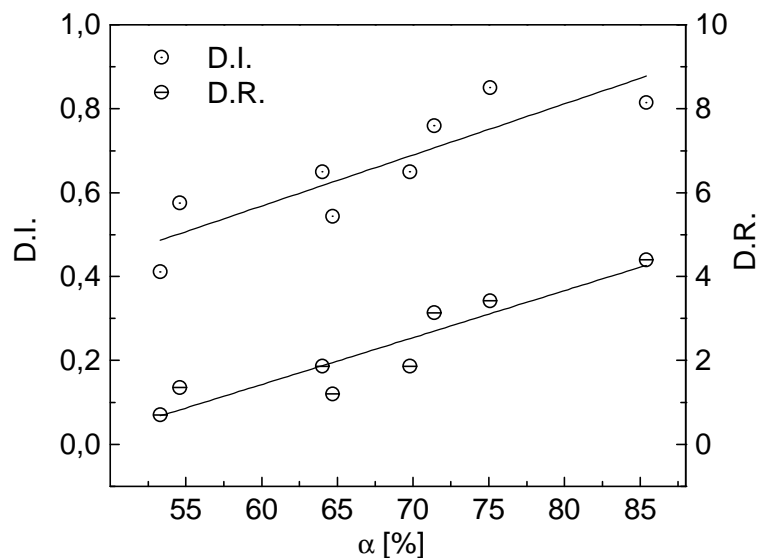


Bild 5.1: Duktilität in Abhängigkeit von der Kristallinität für die PE-HD-M-Werkstoffe ( $a/W = 0,45$ , ohne Seitenkerben)

Die Zunahme der Duktilität mit steigender Kristallinität wird durch die Zähigkeitskennwerte als Risszähigkeiten gegenüber instabiler Rissausbreitung nicht beschrieben (Bild 4.18 u. 4.19), findet sich jedoch im Risswiderstand gegenüber stabiler Rissausbreitung der **d**-R-Kurven wieder (Bild 4.21). Der Werkstoff mit höchster Kristallinität (PE-HD M60L) weist einen höheren Risswiderstand gegenüber stabiler Rissausbreitung auf, charakterisiert durch  $T_{\delta}^{0,2}$  (Bild 4.21). Bei einer hohen Kristallinität von etwa 85 % besitzen die Kristallite höhere Lamellendicken. Der plastische Anteil an der Verformung ist gering, da die Lochbildung in den amorphen Bereichen vermindert ist. Durch die höhere Festigkeit der Lamellen bei größerer Dicke kommt es zu einem höheren Widerstand gegenüber Lochwachstum und beim Kraftmaximum zur Verfestigung der Fibrillen. Die orientierten Fibrillen beeinflussen das Risswachstum. Es tritt kein Bruch sondern dominant stabiles Risswachstum auf. Die dissipierte Energie ist sehr hoch (Bild A36).

Der Einfluss einer zweiten Phase mit anderem Schmelzpunkt oder eines Comonomers auf das Zähigkeitsverhalten lassen sich anhand der DSC-Kurven der PE-HD-Werkstoffe, die im Anhang A1 dargestellt sind, ausschließen. Alle PE-HD-Werkstoffe lassen sich als ein reines

Homopolymer mit einem Schmelzpunkt (ein Peak) identifizieren. Die Breite der Schmelzpeaks charakterisiert die Verteilung der Kristallitdicke im teilkristallinen Kunststoff.

Die technischen Rissinitiierungswerte bei stabiler Rissausbreitung werden im Kristallinitätsbereich von 64 % bis etwa 75 % nicht beeinflusst (Bild 4.20), während bei niedrigen Kristallinitäten um die 55 % die technischen Rissinitiierungswerte höher als bei hoher Kristallinität von etwa 85 % sind (Bild 4.20). Ähnlich verhalten sich die technischen Rissinitiierungswerte in Abhängigkeit von der Langperiode (Bild 4.24).

Die technischen Rissinitiierungswerte  $J_{0,2}$  und  $d_{0,2}$  für stabile Rissausbreitung erweisen sich auf Grund der Streuungen auch als relativ unempfindlich gegenüber Änderungen des Molekulargewichtes im Bereich von 90 bis 550 kg/mol (Bild 4.15). In Abhängigkeit von der Tie-Moleküldichte zeigt sich ebenfalls nur ein geringer Anstieg bei geringer Anzahl an Tie-Molekülen und mit zunehmender Tie-Moleküldichte eine Konstanz (Bild 4.25). Die PE-HD-Werkstoffe unterscheiden sich vor allem in ihrem Rissausbreitungsverhalten nicht in ihrem Rissinitiierungsverhalten.

Ein Einfluss auf die technischen Rissinitiierungswerte kann nur für die Dicke der amorphen Bereiche  $L_{\text{athco}}$  nachgewiesen werden (Bild 5.2). Der Anstieg vor allem der technischen  $J$ -Rissinitiierungswerte mit zunehmender Dicke der amorphen Bereiche kann über die stärkere Lochbildung in den amorphen Bereichen erklärt werden. Bei großen Dicken der amorphen Bereiche kann durch eine größere Anzahl an Verschlaufungen und Verhakungen mehr Energie und Verformung aufgenommen werden und es kann eine größere Anzahl an Löchern entstehen. Die Verstreckung der amorphen Bereiche wird durch die Verschlaufungen behindert. Diese Verstreckung erfolgt vor dem stabilen Risswachstum und beeinflusst so die Rissinitiierungswerte für stabile Rissausbreitung.

Ab einem Molekulargewicht von 360 kg/mol wird das Energieaufnahmevermögen sowie das Verformungsaufnahmevermögen bei stabiler Rissausbreitung der PE-HD-Werkstoffe vergrößert, charakterisiert durch das Produkt  $JT_1$  und  $dT_8$  (Bild 4.15 u. A30). Für die Tie-Moleküldichte ist eine Zunahme des Energieaufnahme- und Verformungsaufnahmevermögens ebenfalls erst ab einer Tie-Moleküldichte von etwa 1,0 zu verzeichnen (Bild 4.25 u. A34).

Diese Zunahme an Energiedissipation ab einem Molekulargewicht von 360 kg/mol verläuft, da die Entschlaufung durch die hohe Tie-Moleküldichte behindert ist, durch scherfließartige Deformationsprozesse vor der Risspitze (Bild 4.33B u. 4.36B).

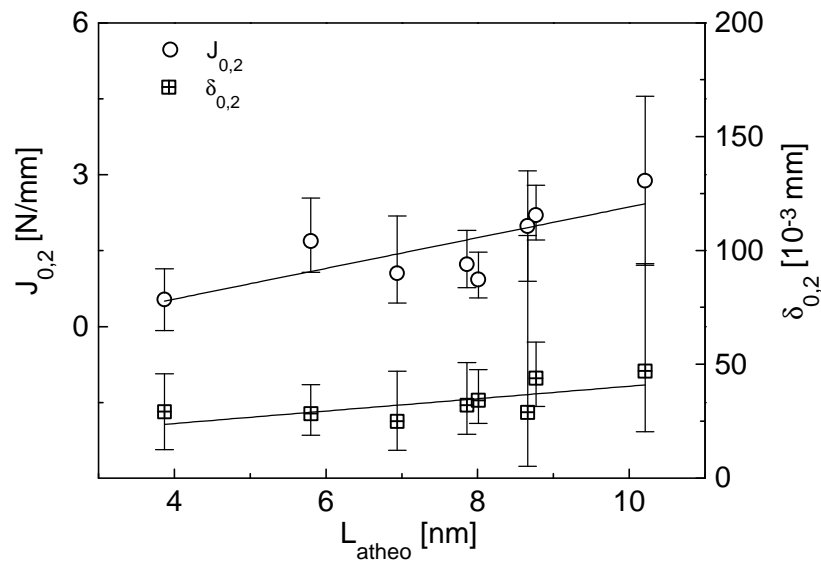


Bild 5.2: Einfluss der Dicke der amorphen Bereiche auf die technischen Rissinitiierungswerte bei stabiler Rissausbreitung

Diese scherfließartigen Deformationsprozesse zeigen sich auf den Bruchflächen als Weißfärbungszonen und sind durch geringere Lochbildung gekennzeichnet (Bild 4.33, 4.36 u. 5.3).

Bei einer hohen Tie-Molekül-Dichte (PE-HD D550) und einer geringen Anzahl an Tie-Molekülen pro Molekülkette (PE-HD M60L) wird ein größerer Risswiderstand gegenüber stabiler Rissausbreitung  $T_{\delta}^{0,2}$  registriert (Bild A34). Im Bereich mittlerer Tie-Moleküle-Anzahl pro Molekülkette besteht kein Einfluss der Tie-Molekül-Dichte auf den Risswiderstand gegenüber stabiler Rissausbreitung  $T_J^{0,2}$  und  $T_{\delta}^{0,2}$  (Bild 4.25 u. A34). Die Erhöhung des Risswiderstandes bei stabiler Rissausbreitung  $T_{\delta}^{0,2}$  bei niedrigen Tie-Molekül-Dichten wird nicht durch den  $T_J^{0,2}$ -Wert bestätigt. Dies deutet darauf hin, dass das Zähigkeitsverhalten bei stabiler Rissausbreitung verformungsdeterminiert ist. Damit wird bestätigt, dass bei geringen Tie-Moleküldichten der Einfluss der Kristallinität auf das Verformungsverhalten überwiegt.

Mit steigender, experimentell ermittelter Langperiode  $L_{\text{pexp}}$  lässt sich feststellen, dass sich der Risswiderstand gegenüber einem stabil laufenden Riss, charakterisiert durch  $T_{\delta}^{0,2}$ , mit steigender Langperiode im untersuchten Wertebereich der Langperiode von 20 bis 35 nm erhöht (Bild A37). Das Energieaufnahmevermögen  $JT_J$  wird verringert (Bild A38), während das Verformungsaufnahmevermögen, charakterisiert durch  $dT_{\delta}$ , nicht beeinflusst wird (Bild A37). Bei stabilem Risswachstum konnte kein Zusammenhang der Kennwerte mit der Lamellendicke gefunden werden. Dieser Effekt der Erhöhung des Risswiderstandes gegenüber stabiler Rissausbreitung  $T_{\delta}^{0,2}$  spiegelt sich im Einfluss der Tie-Molekül-Dichte wider (Bild 4.15 u. A30), da mit zunehmender

Langperiode die Wahrscheinlichkeit zur Bildung von Tie-Molekülen verringert wird. Deutlich wird dies im Risswiderstandsverhalten des Werkstoffes mit höchster Kristallinität (PE-HD M60L), er besitzt bei gleichem Molekulargewicht aller PE-HD-M-Werkstoffe die größte Langperiode  $L_{\text{Pexp}}$  mit 35 nm und deshalb eine geringere, berechnete Anzahl an Tie-Molekülen  $T(M_2)$  als die anderen PE-HD-M-Werkstoffe. Dieser Werkstoff weist den geringsten Widerstand gegenüber stabiler Rissinitiierung auf, jedoch die höchsten Werte für den Reißmodul  $T_8^{0,2}$ . Durch den geringen Anteil an amorpher Phase steigt die Festigkeit der Kristalle durch die homogenere Strukturausbildung der kristallinen Bereiche wesentlich an. Es wird mehr Kraft und Energie bei den stabilen Rissprozessen verbraucht. Dies zeigt sich, wenn man die Schlagkraft-Durchbiegungs-Kurven der PE-HD-Werkstoffe vergleicht, die bei einem a/W-Verhältnis von 0,45 dominant stabiles Risswachstum aufweisen (Bild A39).

Die Werkstoffe mit hoher Tie-Molekül-Dichte wie PE-HD D500, D550K und D550 besitzen eine hohe Zähigkeit bei stabilem Risswachstum durch die Anzahl der verschlauften Tie-Moleküle und die Behinderung der Entschlaufungsrate. Ein hohes Molekulargewicht und eine hohe Tie-Molekül-Dichte beeinflussen die kristalline Strukturausbildung und vermindern so die Kristallinität. Bei einer niedrigen Tie-Molekül-Dichte, d.h. hoher Kristallinität bei Kristallisation mit genügend Kristallitkeimen zu einer homogenen kristallinen Struktur, wie bei PE-HD M60 und M60L liegt ebenfalls eine hohe Zähigkeit mit dominant stabilem Risswachstum vor. Auf den Bruchflächen äußert sich dieses Zähigkeitsverhalten bei hohem Molekulargewicht und hoher Kristallinität unterschiedlich. Die Energiedissipation bei hohem Molekulargewicht verläuft wie erwähnt durch Scherfließdeformation und gröbere Fibrillierung vor der Riss Spitze ab (Bild 5.3). Während bei hoher Kristallinität ein stark zerklüftetes Rissverlängerungsgebiet mit kleinen Löchern auf einen anderen Deformationsmechanismus schließen lässt (Bild 5.3).

Der Verlauf der Risswiderstandskurven deutet darauf hin, dass bei hoher Kristallinität (PE-HD M60L) kein herkömmliches Rissabstumpfungsverhalten sondern ein Reißverhalten mit scharfer Riss Spitze auftritt. Für diesen Werkstoff liegt kein  $JT_J$  kontrolliertes Risswachstum vor. Zum Vergleich ist die Risswiderstandskurve des Werkstoffes PE-HD D550 mit Rissabstumpfungsverhalten und Erhöhung des Risswiderstandes mit zunehmender Rissverlängerung  $\Delta a$  in Bild 5.4 mit eingezeichnet.

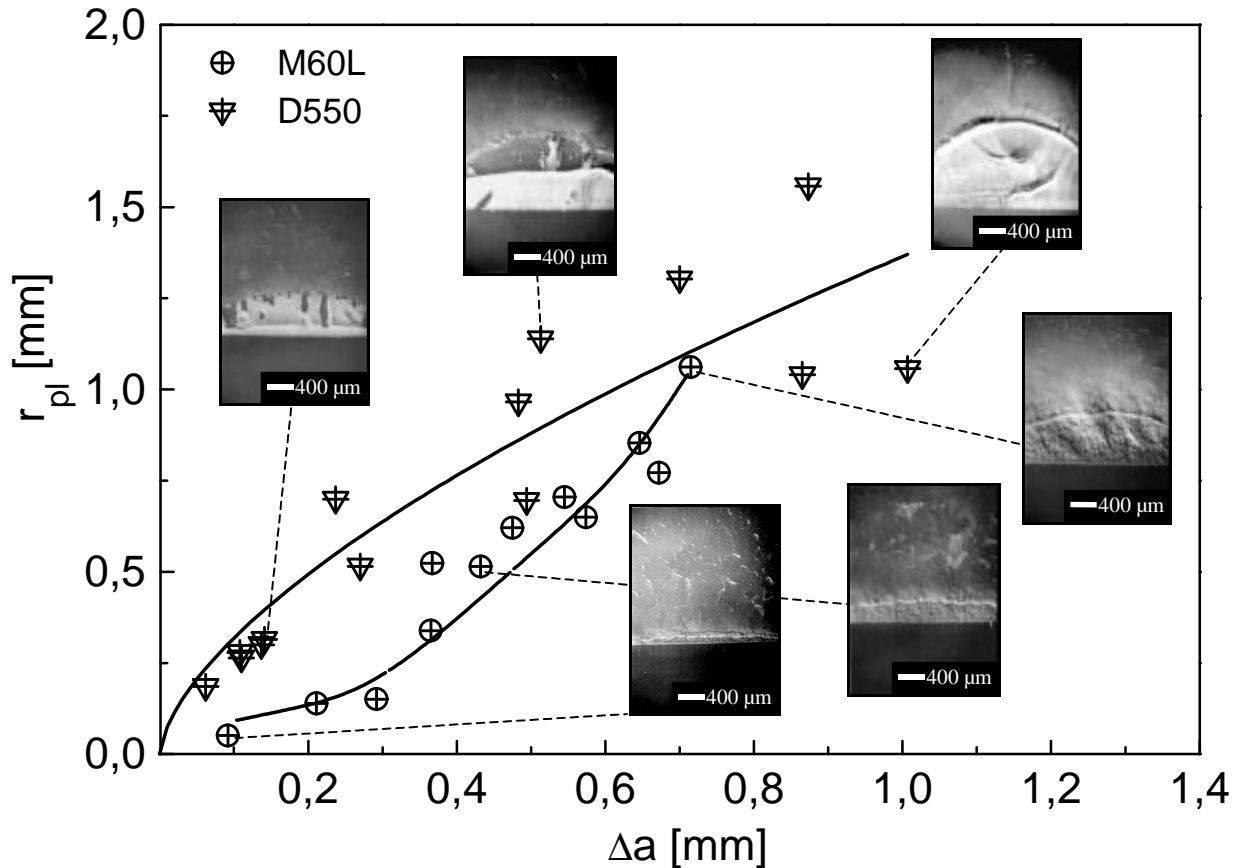


Bild 5.3: Radius der plastischen Zone (nach Gl. 57 im EDZ) in Abhängigkeit von der Rissverlängerung  $\Delta a$  für PE-HD-Werkstoffe mit hohem Molekulargewicht bzw. hoher Kristallinität

Unter Reißen ist dabei das Wachsen des Risses unter geringem Energieverbrauch im Anfangsstadium der Rissverlängerung zu verstehen. Bei diesem Werkstoff kann dabei ausgeschlossen werden, dass der flache Anstieg im Rissabstumpfungsbereich vom Kerben mit der Rasierklinge beeinflusst wird. Mit zunehmender Belastung wird kontinuierlich mehr Energie aufgenommen und auch die Verformung an der Rissspitze ist zunächst sehr klein und nimmt dann kontinuierlich zu. Dieses Verhalten spiegelt sich in der exponentiellen Zunahme der plastischen Zone mit ansteigender Rissverlängerung dieses Werkstoffes im Vergleich zu einem Werkstoff mit hohem Molekulargewicht in Bild 5.3 wider. Auf Grund der hohen Kristallinität und Festigkeit kommt es bei großen Rissverlängerungen zu einer größeren Festigkeit der Fibrillen und dies führt zur Zähigkeitserhöhung. Bei zunehmender Größe der plastischen Zone erfolgt eine stärkere Einbeziehung der kristallinen Phase in energiedissipative Prozesse vor der Rissspitze und das Deformationsverhalten der kristallinen Phase wird bestimmender Mechanismus für das Verformungsverhalten.



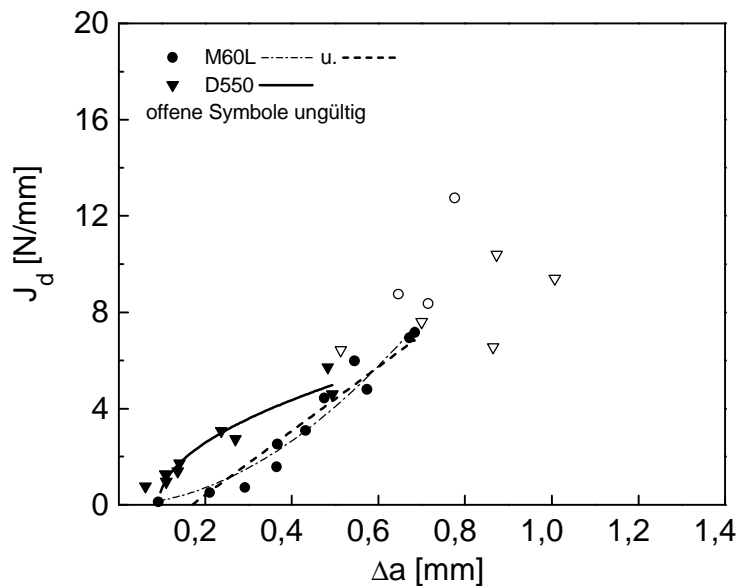


Bild 5.4: Risswiderstandskurven eines Werkstoffes mit Reißverhalten bei hoher Kristallinität von 85,1 % (PE-HD M60L) gegenüber einem Werkstoff mit Rissabstumpfungsverhalten bei hohem Molekulargewicht von 550 kg/mol (PE-HD D550)

## 5.2 Geometrieunabhängigkeit der bruchmechanischen Werkstoffkennwerte

Durch die starke Scherlippenausbildung kann es bei PE-HD-Werkstoffen zusätzlich zu einer zunehmenden Behinderung des Risswachstums mit größeren Rissverlängerungen kommen.

Wie Berechnungen zu den Ausmaßen der plastischen Zone zeigen, reicht die plastische Zone nach Dugdale im ESZ bei einem  $a/W$ -Verhältnis von 0,45 für verschiedene PE-HD-Werkstoffe über die Ligamentlänge oder nähern sich für andere PE-HD-Werkstoffe dem Ligament an (Bild 4.25). Damit wäre die Geometrieunabhängigkeit der Kennwerte der R-Kurve nicht mehr gegeben. Die Werte der plastischen Zone im EDZ bei einem  $a/W$ -Verhältnis von 0,45 liegen im Bereich von 0,23 bis 0,91 mm und würden eine Geometrieunabhängigkeit garantieren (Bild 4.25). Die ermittelten Bruchspiegel liegen bei einem  $a/W$ -Verhältnis von 0,45, wie es bei der Messung mit der Stopp-Block-Methode realisiert wurde, im Bereich der Ausmaße der plastischen Zone im EDZ (Bild 4.25).

Die Bedingungen für die Geometrieunabhängigkeit der Kennwerte der Risswiderstandskurven nach Gl. 38 u. 40 sowie das  $J_{\max}$ - bzw.  $d_{\max}$ -Kriterium nach Gl. 51 u. 52 für  $J$ - bzw.  $d$ -kontrolliertes Risswachstum und das Anstiegskriterium  $\omega \gg 1$  sind erfüllt (Tabelle A6). Bei der Berechnung des J-Integral-Wertes des R-Kurve  $J_d$  nach Gl. 47 wurde ebenfalls eine

Risslängenkorrektur berücksichtigt und für alle Risswiderstandskurven die  $J^2$ - $\Delta a$ -Anpassung (Bild 3.13) durchgeführt.

So kann vermutet werden, dass die reale plastische Zone durch die Berechnung der plastischen Zone im ESZ nach Dugdale überschätzt wird und die Kennwerte der Risswiderstandskurven geometrieunabhängig sind.

Dekker und Bakker [68] stellten für PE-HD-Prüfkörper bei schlagartiger Beanspruchung im Fallwerk bei einer Prüfgeschwindigkeit von 1,5 m/s eine Geometrieunabhängigkeit für die dynamische Bruchzähigkeit  $K$  ab einer Prüfkörperdicke von 18 mm fest. Prüfkörper solcher Dicken aus PE-HD sind jedoch schwer herstellbar und schlecht handhabbar. Dekker und Bakker [68] fanden auch bei einer Prüfkörperdicke von 18 mm ESZ am Rand der Prüfkörper vor, ausgedrückt durch Scherlippen an den Prüfkörperseiten sowie eine stark gebogene Form des Bruchspiegels oder der Crazezone. Egan und Delatycki [65] führen aufgrund ihrer Untersuchungen an SENB- und SENT-Prüfkörpern unter statischer Belastung aus, dass das Mindestdickenkriterium der ASTM 813 [70] für PE-HD konservativ und ungeeignet ist.

Die dicken Prüfkörper (> 15 mm) weisen aufgrund unterschiedlicher Verarbeitung und Abkühlung im Vergleich zu dünneren Prüfkörpern eine andere Morphologie auf [64]. Die realen Bauteile besitzen jedoch hauptsächlich Dicken < 4 mm, somit sind dickere Prüfkörper einer einsatznahen Prüfung nicht zuträglich. Es muss geprüft werden, inwieweit die Geometriekriterien für sehr zähe Kunststoffe wie PE-HD und PP-Copolymere mit Kautschukphase für werkstoffspezifische Kenngrößen geeignet sind, die das Werkstoffverhalten in der Anwendung charakterisieren sollen.

### 5.3 Rissinitiierungs- und Rissausbreitungsmechanismen in den PE-HD-Werkstoffen

Bei mittleren Molekulargewichten um 220 kg/mol und Kristallinitäten kleiner 70 % weisen die Bruchflächen der PE-HD-Werkstoffe eine stark plastisch deformierte Schädigungszone mit Lochwachstum in kleiner Form und großer Anzahl, starke Fibrillierung und Kammstrukturen auf (Bild 4.30A u. C und 4.35A).

Bei hohem Molekulargewicht (z.B. PE-HD D500 u. D550) findet grobe Lochbildung und nur wenig feine Fibrillierung vor der Riss Spitze statt (Bild 5.5). Die hohe Zähigkeit kann mit auftretenden Scherprozessen und größeren, stabilen Rissverlängerungen korreliert werden. Die Energiedissipation wird über ausgedehnte plastische Deformation in Form von Scherdeformation

realisiert, was sich auch in der Weißfärbung der Bruchflächen zeigt. Die Crazeausbildung bei diesen Werkstoffen ist nur gering, d.h. die Rissaufweitung durch Crazing  $CTOD_{\text{Craze}}$  ist klein gegenüber der Rissaufweitung durch Materialfließen  $CTOD_{\text{bulk}}$ . Beim Mechanismus des Fließens kommt es nach [23] zum Pull-Out der Tie-Moleküle aus kristallinen Blöcken und zur Zerstörung der kristallinen Blöcke durch Gleiten der Mikrofibrillen aneinander. Nach dem Pull-Out der Tie-Moleküle ist demnach die Festigkeit der kristallinen Blöcke ein entscheidender Faktor für die Zähigkeit des teilkristallinen Polymers.

Auch bei hohen Kristallinitäten (PE-HD M60 u. M60L) tritt kaum Lochbildung auf und es sind scherfließartige Deformationszonen auf den Bruchflächen festzustellen. Bei dem PE-HD-Werkstoff mit hoher Kristallinität von 85,4 % (PE-HD M60L) lässt sich ein stark zerklüftetes Rissverlängerungsgebiet mit vielen kurzen Fibrillen nachweisen, während bei den anderen Werkstoffen ein glattes Rissverlängerungsgebiet zu erkennen ist (Bild 5.5).

Die glatte und zipfelige Struktur des PE-HD-Werkstoffes mit 75,1 % Kristallinität (Bild 4.34A, PE-HD M60) mit weniger Lochbildung vor der Rissspitze als die Werkstoffe mit geringer Kristallinität von 54,6 bis 64 % (PE-HD M36 in Bild 4.35A und M48) lässt auf eine Kombination von Craze- und Scherprozessen schließen.

Dies korreliert mit Aussagen von Lu und Brown [85], wonach bei feiner Fibrillenstruktur Zähbruch initiiert wird. Auch Strebel und Moet [59] treffen ähnliche Aussagen, wobei Polyethylene mit mehr verzweigten Strukturen mit schmalen Fibrillen und wenig bis gar keinen großen Löchern mehr Energie dissipieren können. Während stark durchlöcherte Strukturen vor dem Wurzelcraze eine schwache Struktur darstellen.

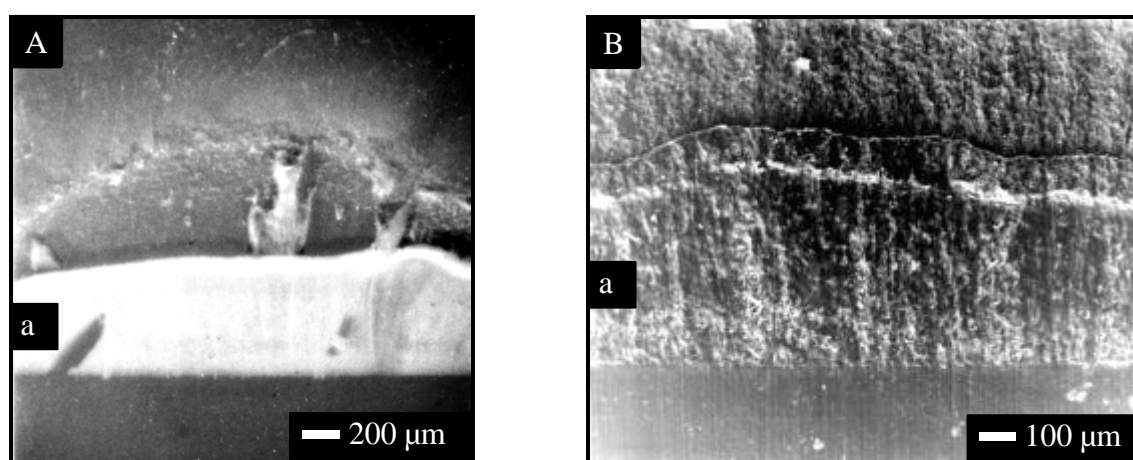


Bild 5.5: Bruchfläche eines PE-HD-Werkstoffes mit hohem Molekulargewicht (A, PE-HD D550) und hoher Kristallinität (B, PE-HD M60L), a-Rissverlängerungsgebiet

Die Werkstoffe mit geringerer Kristallinität (PE-HD M36 und D360) weisen eine stärkere Ausbildung der Kammstrukturen durch ihre leichtere Verformbarkeit auf. Diese Kammstrukturen entsprechen den fibrillierten Membranen um die Lochstrukturen, wie sie auch in [67] nachgewiesen werden. Sie zeigen längere Fibrillenenden auf der instabilen Bruchfläche direkt hinter dem stabilen Rissverlängerungsgebiet, was auf eine größere Crazedicke hinweist. Das stabile Rissverlängerungsgebiet dieser PE-HD-Werkstoffe weist keine einheitliche Struktur, sondern verschiedene Gebiete auf, die teilweise durch Linien getrennt sind.

Wie weiter aus den Bruchflächenuntersuchungen geschlossen werden kann, nimmt die Crazelänge (Schädigungszone auf der Bruchfläche) mit steigendem Molekulargewicht zu. Diese Ergebnisse können durch die Berechnung der plastischen Zone im EDZ nach Dugdale, mit der nach [18] die Crazelänge beschrieben werden kann, bestätigt werden (Bild 5.6).

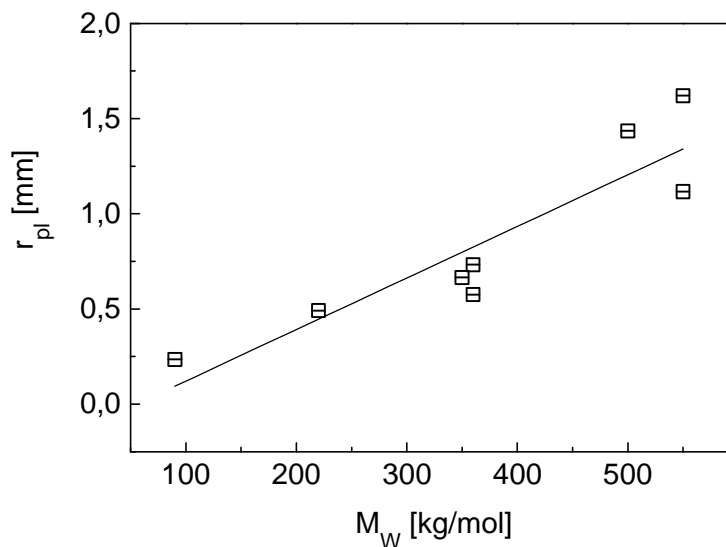


Bild 5.6: Plastische Zone im EDZ nach Gl. 57 in Abhängigkeit vom Molekulargewicht

Die Stretchzone befindet sich bei den Prüfkörpern mit stabiler Rissverlängerung am Ende des stabilen Rissverlängerungsgebietes oder ist wie bei den Prüfkörpern mit instabilem Risswachstum nicht aufzufinden. Die Stretchzone bewegt sich also ins Materialinnere, je nach Rissausbreitungsmechanismus ist sie dann auf der Bruchfläche als solche zu erkennen. Die Bruchfläche weist im Bereich des instabilen Risswachstums hinter der Risspitze eine für PE typische, mehr oder weniger stark ausgeprägte Strukturierung mit Lochbildung auf. Auf den Bruchflächen der instabil gebrochenen Prüfkörper war eine Quantifizierung der Stretchzone nur für den

PE-HD-Werkstoff mit dem geringsten Molekulargewicht von 90 kg/mol (PE-HD D90) möglich.

Die Stretchzone befindet sich hier hinter der Ausgangsrisslänge.

Die Vorstellungen zu den Rissspitzendeformationsprozessen von [56,76,77], wonach die Abstumpfung ohne Rissfortschritt verläuft, können demnach für die untersuchten PE-HD-Werkstoffe nicht bestätigt werden.

Die Kristallinität beeinflusst, wie auch schon von Fierment [56] festgestellt wurde, nicht den Ort der Stretchzone. Der Rissspitzendeformationsprozess wird, wie von Narisawa in [54] angeführt, als komplizierter Prozess mit inhomogener Crazeformation und homogener Scherdeformation angesehen. Die Anteile von Craze- bzw. Scherdeformation werden dabei von der Strukturausbildung des teilkristallinen Polymers bestimmt.

Die Gleitzzone, die an den instabil gebrochenen Prüfkörpern mit Bruchspiegel beobachtet wurde, wird der Translation der Rissfront zugeordnet, die gleichzeitig mit der Abstumpfung, Loch- und Crazeausbildung stattfindet. Durch den ESZ an den Prüfkörperändern fließt das Material und bildet eine zähe Membran entlang der Rissfront. Bei runder Rissspitze befindet sich das Gebiet der höchsten triaxialen Hauptspannung in einiger Entfernung vor der Rissspitze. Dort findet die Lochbildung statt, so dass direkt hinter dem Ausgangskerb eine glattere Zone, die Gleitzzone entsteht. Es wird vermutet, dass diese Translation der Rissfront in der Gleitzzone auf Grund des Rissabstumpfungsverhaltens, das durch die  $d$ - $R$ -Kurven beschrieben wird, eher langsam verläuft und nicht, wie von Kitagawa [86] vermutet, einen Sprung darstellt.

Die Bruchflächenstrukturen der untersuchten PE-HD-Werkstoffe können mit den Modellen zu den Rissspitzendeformations- und Rissausbreitungsprozessen von Dekker und Bakker [68] und Brown u.a [14] korreliert werden.

Ein Schema des Rissprozesses in den untersuchten PE-HD-Werkstoffen ist in Bild 5.7 und 5.8 dargestellt. Die auftretenden Rissstadien sind wie folgt zu beschreiben:

*Rissstadien bei der Rissinitiierung und Rissausbreitung in den untersuchten PE-HD-Werkstoffen:*

**1. Rissabstumpfung und Lochbildung (Bild 5.7c u. d):**

Der Riss stumpft zunächst ab und bildet eine Stretchzone aus. Die Rissabstumpfung geht mit einer Translation der Rissfront einher. Gleichzeitig bilden sich in endlicher Entfernung vor der Rissspitze Löcher aus, was sich in einer Lochstruktur auf der Bruchfläche widerspiegelt.

**2. Fibrillierung (Bild 5.7e):**

Bei weiterer Belastung erfolgt die Fibrillierung dieses Bereiches und es bilden sich Makrocrazes aus. Die Fibrillen bilden dabei kammerartige Membranen. Je nach Werkstoff z.B. bei hohem Molekulargewicht und hoher Kristallinität bilden sich auch Gebiete des Materialfließens an den Grenzen des Crazes aus, die die Ausmaße der Crazedicke  $CTOD_{\text{Craze}}$  übersteigen können.

**3. Rissinitiierung (Bild 5.7f):**

Die Rissinitiierung erfolgt durch Fibrillenbruch und der Riss bewegt sich als geschlossene Rissfront in das Crazegebiet hinein. Die getrennten Fibrillen stellen sich auf der Bruchfläche als kammartige oder linienartige Strukturen dar.

**4. stabiles Risswachstum (Bild 5.7f):**

Die Verstreckung der Fibrillen im Craze und die weitere Rissaufweitung der Rissspitze führen zu langsamem Risswachstum durch das Reißen der Fibrillen.

**5. instabiles Risswachstum (Bild 5.7g):**

Beim instabilen Risswachstum wird das Craze- und Lochgebiet (Schädigungszone) vor der Rissspitze durchtrennt. Das instabile Bruchgebiet weist schuppenartige Strukturen mit geringer Deformation und Löchern im Gebiet direkt hinter der stabilen Rissverlängerung auf. Bei hohem Molekulargewicht und hoher Kristallinität tritt weniger bis gar keine Lochbildung auf.

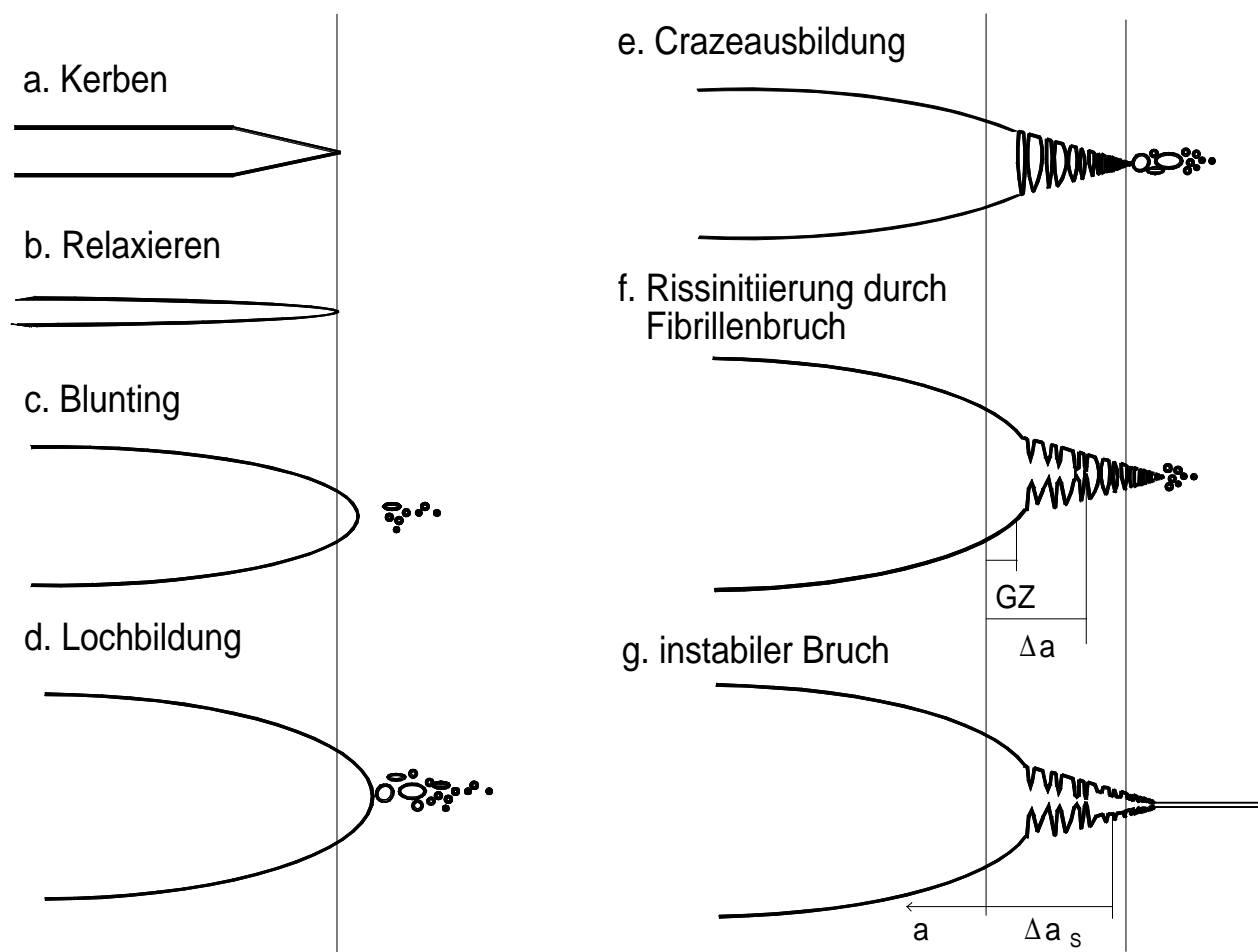


Bild 5.7: Schema des Rissprozesses in Polyethylen hoher Dichte (GZ-Gleitzone)

Der Fibrillenbruch wird, wie von Friedrich in [4] erläutert, als Risswachstumsmechanismus angesehen.

Zur Verdeutlichung der Rissprozesse sind in Bild 5.8 die Bruchflächen bei kleiner, mittlerer und großer Rissverlängerung  $\Delta a$  am Beispiel des Werkstoffes PE-HD D350 dargestellt. Bei kleiner Rissverlängerung zeigt sich die ausgeprägte Lochbildung bei Werkstoffen mit geringer Kristallinität und mittleren Molekulargewicht (Bild 5.8A). Bei größeren Rissverlängerungen wächst der Riss langsam (stabil) in dieses Schädigungsgebiet, was mit größerer Rissaufweitung und Fibrillierung des Materials (Bild 5.8B u. C) verbunden ist.

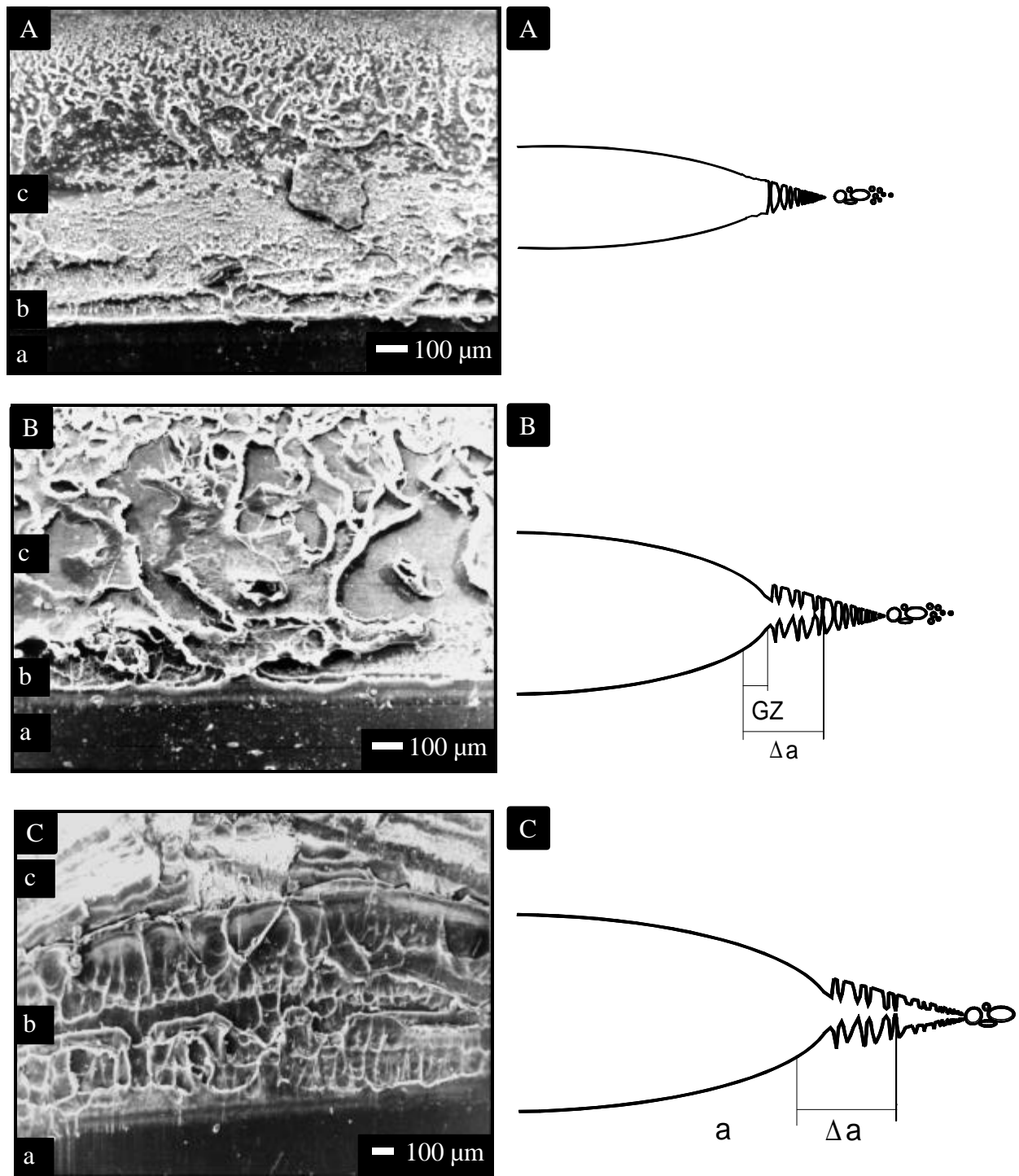


Bild 5.8 Rissprozesse der stabilen Rissausbreitung in Polyethylen hoher Dichte anhand der Bruchflächen von PE-HD D350; A- $\Delta a = 0,1$  mm; B- $\Delta a = 0,4$  mm; C- $\Delta a = 0,8$  mm; a-Kerb, b-stabile Rissverlängerung, c-Schädigungszone vor der Rissspitze, GZ-Gleitzone

Die Fibrillierung und die Lochstrukturen des ehemaligen Schädigungsgebietes spiegeln sich im stabilen Rissverlängerungsgebiet durch Linien und Strukturen wider (Bild 5.8C).