

Hochauflösende Röntgencomputertomografie von faser- und partikelverstärkten Kunststoffen

Johann KASTNER*, Bernhard PLANK*, Dietmar SALABERGER*

*FH OÖ Forschungs & Entwicklungs GmbH, Stelzhamerstrasse 23, 4600 Wels, Austria

Kurzfassung. Faser- und partikelverstärkte Kunststoffe haben in vielen industriellen Bereichen wie z. B. in der Flugzeug- und Fahrzeugindustrie, Verpackungsindustrie, Bauwirtschaft oder auch in der Freizeitindustrie eine enorme Bedeutung erlangt. Zusatzstoffe dienen zur Verbilligung der Materialherstellung und vor allem zur Verstärkung der Kunststoffmatrix. Die Eigenschaften verstärkter Thermoplaste werden vor allem vom Volumenanteil des Verstärkungstoffes, dessen Form (Aspektverhältnis) und der Wechselwirkung an der Grenze zur Matrix beeinflusst. Diese Füll- und Verstärkungstoffe können in anorganische Materialien, Naturstoffe und polymere Stoffe unterteilt werden:

- Anorganische Zusatzstoffe: Glasfasern, Kohlefasern, Basaltfasern, Talkumpartikel, Calciumcarbonatpartikel, Wollastonitpartikel, Glimmerpartikel,...
- Naturstoffe: Zellulosefasern, Zellulosepartikel, Flachs, Holzbestandteile für Holz-Kunststoff-Verbundwerkstoff (WPC – Wood Plastic Composites),...
- Polymere Zusatzstoffe: Aramidfasern, Polypropylen- und Gummipartikel, Polyesterfasern,...

Diese mehrphasigen Kunststoffsysteme wurden mit hochauflösender Kegelstrahl Röntgencomputertomografie (CT) dreidimensional charakterisiert. Hierbei wurden Voxelgrößen bis minimal $(0,5 \mu\text{m})^3$ verwendet. Im Rahmen dieser Arbeit vergleichen wir die verschiedenen Kunststoffsysteme und diskutieren die Vorteile und Einschränkungen von CT für die Charakterisierung dieser Materialien. Aufgrund der unterschiedlichen Dichte- bzw. Röntgenabsorptionsunterschiede ist der Kontrast zwischen den Zusatzstoffen und der Matrix unterschiedlich groß. So ist der Kontrast zwischen Glasfasern oder Talkumpartikeln und der Kunststoffmatrix sehr gut und der Kontrast zwischen Polymerfasern oder Gummipartikeln und der Kunststoffmatrix eher schwach. Wir zeigen auf, welche Möglichkeiten es gibt, um etwa durch Phasenkontrasteffekte oder durch optimierte CT-Messparameter den Kontrast deutlich zu verbessern.

Weiters präsentieren wir Möglichkeiten, um aus den CT-Daten quantitative Werte der Zusatzstoffe wie Faserorientierung, Faserlängenverteilung, Durchmesserverteilung, Form und Formfaktor zu bestimmen. Hierfür werden die CT-Datensätze mit verschiedenen dreidimensionalen Filteroperationen weiterverarbeitet und die gewünschten Eigenschaften extrahiert. Für die Bestimmung der Faserlängenverteilung werden beispielsweise fünf Datenverarbeitungsschritte eingesetzt: Datenvorverarbeitung mit einem anisotropen Diffusionsfilter, Segmentierung mit dem Otsuverfahren, Bestimmung der Mittenachsen, Bestimmung der individuellen Fasern mittels Clusteranalyse und Extraktion der charakteristischen Faserwerte wie Orientierung, Länge und Volumen.

Einführung

Faser- und partikelverstärkte Kunststoffe besitzen vielfach ein erhöhtes Festigkeits-Gewichtsverhältnis oder haben andere verbesserte Eigenschaften im Vergleich zu "traditionellen" Materialien wie etwa Metalle oder nichtgefüllte Kunststoffe. Daher haben diese Werkstoffe in der Industrie eine sehr große Verbreitung gefunden, die ständig noch weiter zunimmt [1]. Zerstörungsfreie und berührungslose Methoden sind für die Charakterisierung von diesen Kunststoffen von besonderer Wichtigkeit. Die Kegelstrahl-Röntgen-Computertomografie (CT) ist ein derartiges Verfahren für die zerstörungsfreie Prüfung [2,3]. Großer Vorteil von CT, dass die inneren Strukturen des Objekts dreidimensional erfasst und sichtbar werden. CT ist eine berührungslose Methode, wodurch sich auch „weiche“ Materialien, wie zum Beispiel Polymerschäume messtechnisch erfassen lassen. Örtliche Auflösungen von bis zu $(0,5 \mu\text{m})^3$ Voxelgröße sind mittlerweile Stand der Technik. Im Rahmen dieser Arbeit werden verschiedene, heterogene Kunststoffsysteme mit hochauflösender Computertomografie untersucht, sowie qualitativ und quantitativ charakterisiert.

1. Experimentelles

Es wurden verschiedene Verbundwerkstoffe mit diversen Fasern und Partikeln als Füllstoffe untersucht. Die glasfaserverstärkten Polypropylen-Proben hatten Gewichtsfaserteile zwischen 10 % und 60 %. Der mittlere Glasfaserdurchmesser lag bei $14 \mu\text{m}$ und die Ausgangslänge der verwendeten Glasfasern betrug vor dem Compoundierungsprozess 4,5 mm. Für die Versuche wurden mittels Compoundierungs- und anschließendem Spritzguss-Prozess Proben hergestellt, wobei als Geometrie die von Standardzugprüfkörpern verwendet wurde. Die CT-Scans wurden an einem GE Phoenix|x-ray Nanotom 180 NF durchgeführt. Tabelle 1 fasst die wesentlichen Daten der untersuchten Proben und die CT-Messparameter zusammen.

Tabelle 1. Übersicht über die untersuchten Verbundwerkstoffe (Matrix und Füllstoff) und über die CT-Messparameter. Die Dichte von Polypropylen ist $0,9 \text{ g/cm}^3$ und die der Harze rund $1-1,3 \text{ g/cm}^3$.

Matrix	Füllstoff	Dichte des Füllstoffes	Spannung (kV)	Voxelgröße
PP-Polypropylen	Glasfasern	$2,6 \text{ g/cm}^3$	60	$(2 \mu\text{m})^3 + (3 \mu\text{m})^3$
	Glimmerpartikel	$2,85 \text{ g/cm}^3$	40	$(5,5 \mu\text{m})^3$
	Zellulosefasern	$1,5 \text{ g/cm}^3$	40-50	$(2,5 - 5,25 \mu\text{m})^3$
Epoxidharz	Kohlefasern	$1,8 \text{ g/cm}^3$	40	$(1 \mu\text{m})^3 + (2,75 \mu\text{m})^3$
Harz	Basaltfasern	$2,75 \text{ g/cm}^3$	80	$(0,78 \mu\text{m})^3$
Harz (Kevlar)	Aramidfasern (Kevlar)	$1,45 \text{ g/cm}^3$	50	$(1,5 \mu\text{m})^3$
PP-Polypropylenfasern PU-Polyurethan-Schaum	Zellulosepartikel	$1,5 \text{ g/cm}^3$	50	$(0,7 \mu\text{m})^3$
Holzfasерplatte und Holzspan	-	Verschieden	50	$(1,5 \mu\text{m})^3 + (0,5 \mu\text{m})^3$

Die Visualisierung der CT-Daten erfolgte mit der Software VG Studio MAX 2.2. Die CT-Datensätze der glasfaserverstärkten Polypropylenproben wurden mit dreidimensionalen Filteroperationen in fünf Schritten weiterverarbeitet. Diese fünf Schritte sind: (i) Datenvorverarbeitung mit einem anisotropen Diffusionsfilter, (ii) Segmentierung mit dem Otsuverfahren, (iii) Bestimmung der Mittelpunktsachsen, (iv) Bestimmung der individuellen Fasern mittels Clusteranalyse und (v) Extraktion der charakteristischen Faserwerte wie Orientierung, Länge und Volumen [4]. Aus den extrahierten Fasern wurde für ein bestimmtes Volumen der drei-dimensionale Faserorientierungstensor berechnet [4].

2. Ergebnisse

2.1 CT-Ergebnisse

Bild 1 zeigt CT-Schnittbilder von einem glas- (GFK) und einem kohlefaserverstärkten Kunststoff (CFK). Die Glasfasern absorbieren die Röntgenstrahlung im Vergleich zur Polypropylen PP-Matrix relativ stark, weshalb der Kontrast sehr gut ist. Im Gegensatz dazu ist für die Kohlefasern in CFK der Kontrast geringer und es wird eine höhere Auflösung benötigt, um einzelne Kohlefasern mit einem Durchmesser von $\sim 6 \mu\text{m}$ detektieren zu können. In (c) des Bildes 1 werden Poren und Reinharzbereiche im CFK gemeinsam mit einzelnen Kohlefasern dreidimensional darstellt.

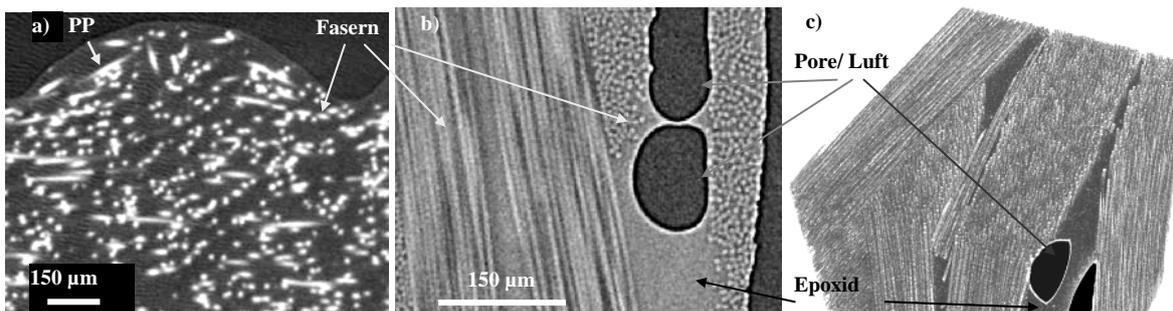


Bild 1: CT-Bilder von faserverstärkten Kunststoffen: a) GFK tomografiert mit $(3 \mu\text{m})^3$ Voxelgröße, PP=Polypropylen, b) CFK tomografiert mit $(1 \mu\text{m})^3$ und c) 3D-Darstellung eines CFK-Ausschnitts mit Makroporositäten. Die Glasfasern haben einen Durchmesser von etwa $13 \mu\text{m}$ und die Kohlefasern $6 \mu\text{m}$.

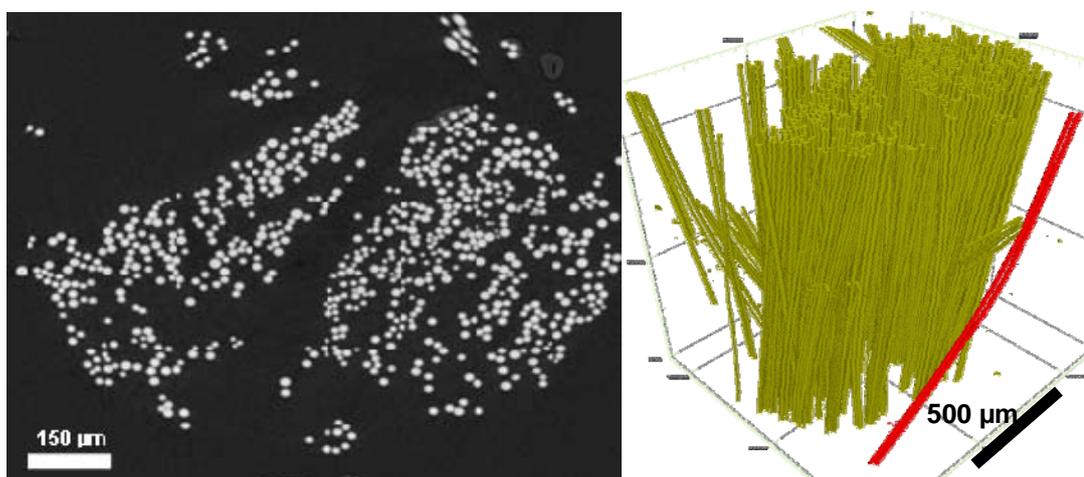


Bild 2: CT-Schnittbild (linkes Bild) von basaltverstärktem Kunststoff tomografiert mit $(0,78 \mu\text{m})^3$ Voxelgröße und 3D-Visualisierung (rechtes Bild) der segmentierten Basaltfasern. Die gebogene Faser ist farbig hervorgehoben. Der mittlere Durchmesser der Basaltfasern ist etwa $8 \mu\text{m}$.

Bild 3 zeigt ein CT-Schnittbild und eine 3D-Visualisierung von Kevlar. Kevlar ist ein Verbundwerkstoff aus einer Harzmatrix und polymeren Aramidfasern. Da die Dichte der Aramidfasern mit $1,45 \text{ g/cm}^3$ relativ ähnlich der Dichte der Matrix ist, ist der Kontrast relativ gering. Trotz des geringen Dichteunterschiedes sind die einzelnen Polymerfasern in den CT-Daten deutlich sichtbar.

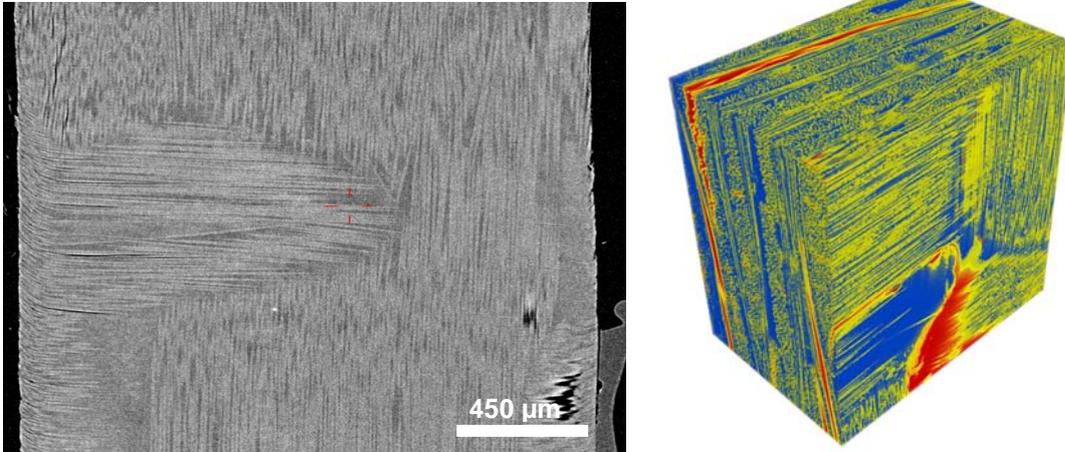


Bild 3: CT-Schnittbild und 3D-Visualisierung von Kevlar tomografiert mit $(1,5 \text{ µm})^3$ Voxelgröße. Der mittlere Faserdurchmesser der Aramidfasern beträgt 15 µm . Im 3D-Bild sind die Fasern gelb und Poren bzw. Rissstrukturen rot dargestellt.

Bild 4 zeigt CT-Schnittbilder von Polypropylen mit Glimmer und eine 3D-Visualisierung der segmentierten Glimmerpartikel. Diese Probe ist mittels Spritzguss hergestellt worden. Die 3D-Geometrie und die Verteilung der Glimmerpartikel und auch von Poren ist deutlich zu erkennen. Deutlich sichtbar ist auch, dass der Spritzgussprozess zu einer Ausrichtung der Partikel entlang der Spritzgießrichtung geführt hat.

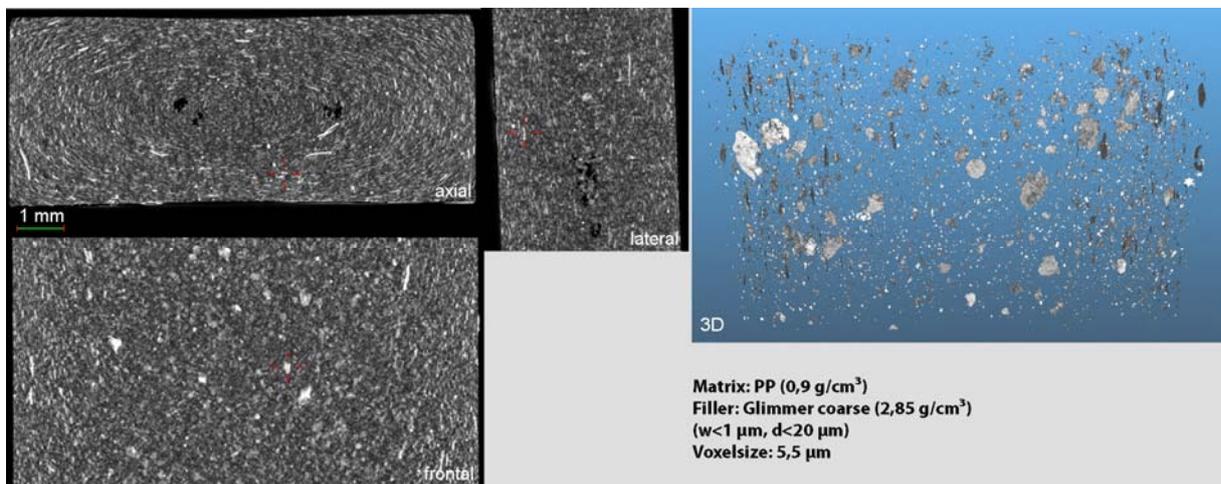


Bild 4: CT-Schnittbilder von Polypropylen mit Glimmer und 3D-Visualisierung der segmentierten Glimmerpartikel. Voxelgröße $(5,5 \text{ µm})^3$.

In Bild 5 ist ein Vergleich der CT-Ergebnisse einer glasfaser- und einer zellulosefaserverstärkten Probe zu sehen. Beide Proben wurden mittels Spritzguss hergestellt. Dieser Vergleich demonstriert, dass die Glasfasern nur sehr wenig an der Probenoberfläche (unterer Bereich in Bild 5) vorhanden sind, während die Zellulosefasern sehr gleichmäßig verteilt sind und auch in den Randbereichen im unteren Teil der Probe auftreten. Somit können feine Bauteilstrukturen durch Zellulosefasern besser gefüllt werden.

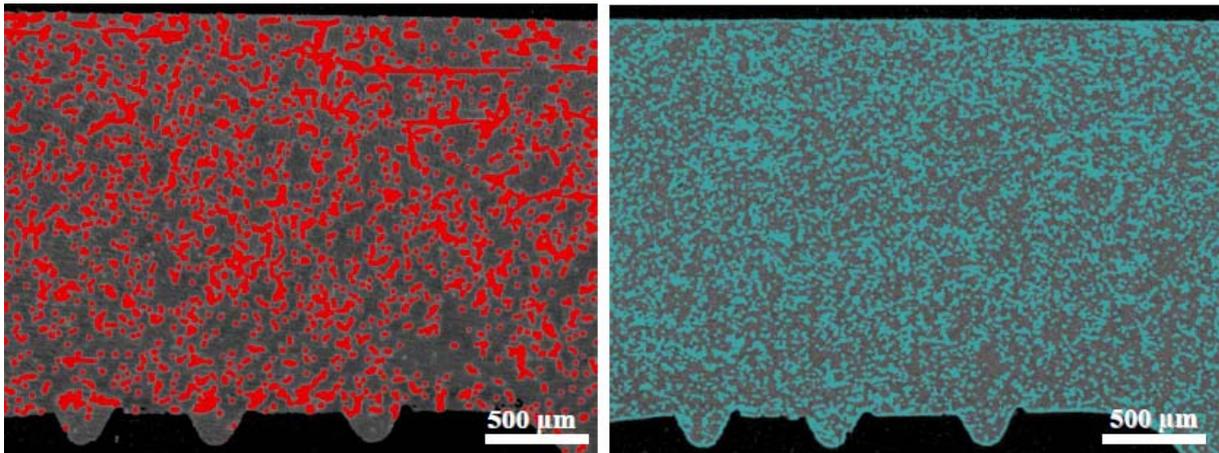


Bild 5: CT-Schnittbild von Polypropylen mit Glasfasern (linkes Bild) und von Polypropylen mit Zellulosefasern (rechtes Bild) Die Voxelgröße waren $(5,2 \mu\text{m})^3$ und $(4,7 \mu\text{m})^3$.

Das nächste Bild zeigt CT-Ergebnisse von zwei unterschiedlichen Kunststoffsystemen mit Zellulosepartikeln. Das linke Bild in Abb. 6 zeigt ein CT-Schnittbild von Polypropylenfasern mit 4 % Zellulosepartikeln. Die Zellulosepartikel haben eine höhere Dichte ($1,5 \text{ g/cm}^3$) als die PP-Matrix ($0,9 \text{ g/cm}^3$) und erscheinen daher als helle Teilchen in den Fasern. Das rechte Bild in Abb. 6 zeigt ein CT-Schnittbild eines Polyurethan-Schaumes, der mit Zellulosepartikeln gefüllt ist. Dieses Material ist ein neuer Feuchtigkeit absorbierender Holz-Kunststoff-Verbundwerkstoff, der für spezielle Matratzen eingesetzt wird. Die Zellulosepartikel in der Polymerschäumstruktur sind klar sichtbar und können damit klar von der Polymermatrix unterschieden werden. Man kann auch erkennen, dass der Grauwert an der Oberfläche der Polymerstruktur deutlich höher ist als im Inneren des Polymers. Das kann durch einen Phasenkontrasteffekt, der durch den sehr kleinen Röntgenspot und die hohe Auflösung verursacht wird, erklärt werden [5,6].

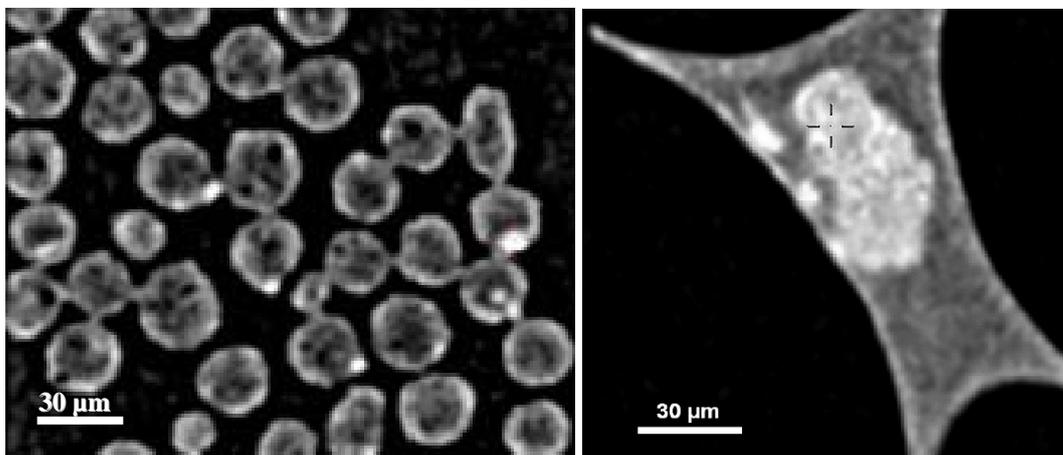


Bild 6: CT-Schnittbild von Polypropylenfasern mit 4 % Zellulosepartikel gemessen mit $(0,7 \mu\text{m})^3$ und CT-Schnittbild eines Polyurethanschaumes gefüllt mit Zellulosepartikeln gemessen mit $(0,7 \mu\text{m})^3$.

CT eignet sich auch gut für die Charakterisierung von Holzwerkstoffen. In Abbildung 7 (a) und (b) können in den CT-Schnittbildern einer Holzfaserplatte einzelne Holzfasern, sowie höherdichte Verunreinigungen aufgelöst werden. In (c)-(e) sind CT-Schnittbilder eines Holzspans dargestellt. Aufgrund der CT-Ergebnisse können Aussagen über die Morphologie getroffen werden. In (c) ist der Übergang zwischen Früh- und Spätholz sichtbar. Im Randbereich des Holzspans sind deutlich Zellquetschungen (d), zu erkennen. Anhand der unterschiedlichen Grauwerte sind zusätzlich noch ein Harzkanal, sowie diverse Verunreinigungen höherer Dichte sichtbar.

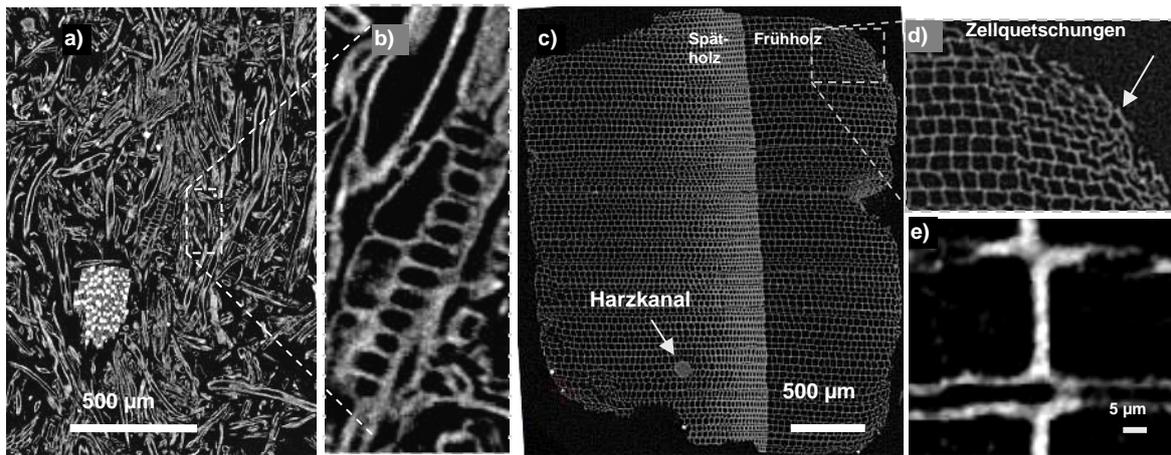


Bild 7: CT-Schnittbilder von Holzwerkstoffen: a) und b) einer MDF-Holzfaserverplatte und c) eines Holzspans mit Zellquetschungen (d) tomografiert mit $(1,5 \mu\text{m})^3$; e) Messausschnitt eines weiteren Holzspans tomografiert mit $(0,5 \mu\text{m})^3$.

2.2 CT-Phasenkontrasteffekte

Neben dem reinen Absorptionskontrast gibt es auch die Möglichkeit, Phasenkontrast-CT für die Werkstoffwissenschaften und für die Charakterisierung von Kunststoffsystemen einzusetzen [5]. Da sich nicht nur die Amplitude, sondern auch die Phase beim Durchgang von Röntgenstrahlung durch eine Probe ändert, können für eine polychromatische Röntgenquelle ebenfalls Phasenkontrasteffekte auftreten, sofern die räumliche Kohärenz groß genug ist. Dies wird durch eine sehr kleine Röntgenspotgröße und einem großen Abstand zwischen Objekt und Detektor erreicht. Phasenkontrasteffekte können die Detektierbarkeit und Unterscheidung von Materialbereichen (Phasen) mit ähnlichen Röntgenabsorptionskoeffizienten, im Vergleich zu konventioneller Absorptionsverfahren, deutlich verbessern. Abbildung 8 zeigt CT-Schnittbilder einer kohlefaserverstärkten Kunststoffprobe, die mit geringem (linkes Bild) und mit maximalem Abstand (mittleres Bild) zwischen Objekt und Detektor tomografiert worden ist. Das Grauwertprofil einer Pore, die mit verschiedenen Objekt-Detektor-Abständen gemessen worden ist, ist im rechten Bild der Abb.8 zu dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass dieses Überschwingen des Grauwertes an der Grenzfläche zwischen Luft und Kunststoffmatrix und damit der Phasenkontrasteffekt mit maximalem Abstand am größten sind.

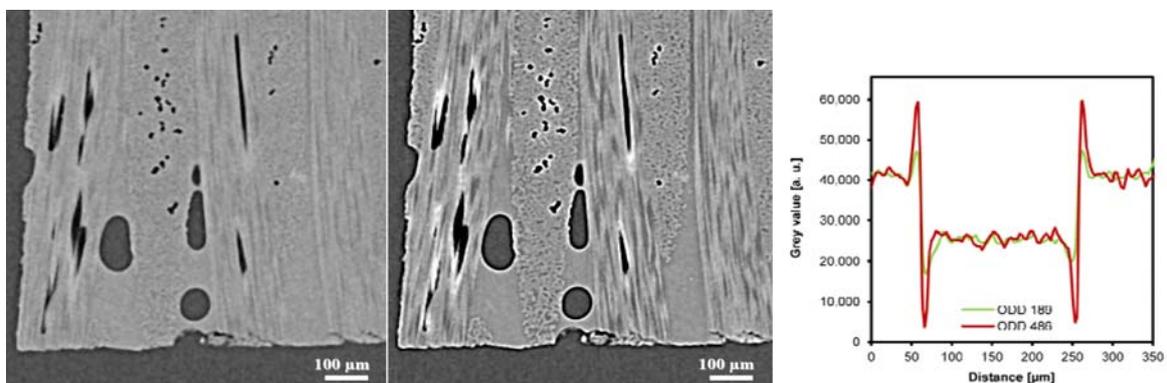


Bild 8: CT-Schnittbilder einer kohlefaserverstärkten Probe (CFK), die mit verschiedenen Abständen zwischen Objekt und Detektor (ODD) tomografiert worden sind. Das linke Bild ist mit 189 mm und das mittlere Bild ist mit 486 mm Objekt-Detektor-Abstand gemessen worden. Die Voxelgröße war in beiden Fällen $(2,75 \mu\text{m})^3$. Das Grauwertprofil entlang einer Pore der CFK-Probe ist im rechten Bild dargestellt.

2.3 Bestimmung von quantitativen Ergebnissen aus den CT-Daten – Faserlängenverteilung und Faserorientierung

Mittels CT wird eine komplette 3D-Information der Probe in digitaler Form generiert. Diese Daten können mittels verschiedener Algorithmen ausgewertet werden, um quantitative Werte einer Probe oder eines Materials zu bestimmen. Dies wurde für glasfaserverstärkte Kunststoffproben durchgeführt. Details sind in [4,7] beschrieben. Bild 9 zeigt die aus den CT-Daten berechnete Faserlängenverteilung für glasfaserverstärkte Polypropylenproben mit jeweils 10 Gew. % bis zu 60 Gew. % Faseranteil. Die Proben wurden als Granulat (~3x3x3) mm³ mit einer Voxelgröße von (2 µm)³ tomografiert. Die ausgewertete Gesamtfaseranzahl hängt stark vom Fasergehalt ab und lag bei den verschiedenen Proben zwischen 3.000 und 100.000 Fasern. Im Vergleich zu Standardverfahren sind das sehr hohe Werte [4,7], da mit konventionellen Verfahren üblicherweise pro Probe nur einige hundert Fasern charakterisiert werden. Es sind deutliche Unterschiede in der Faserlängenverteilung für die unterschiedlichen Fasergehalte zu erkennen. Bei 60 gew. % Glasfasern liegt die mittlere Faserlänge bei ~200 µm, welche sich mit geringeren Glasfasergehalten zu höheren Faserlängen verschiebt. Für 10% Fasergehalt ist die mittlere Faserlänge etwa 550 µm, also etwa das 2,5-fache der 60%-Probe. Aufgrund von Scherung und mechanischen Beanspruchungen kommt es beim Compoundieren zu einer deutlichen Reduktion der Faserlänge, es werden also viele Fasern gebrochen.

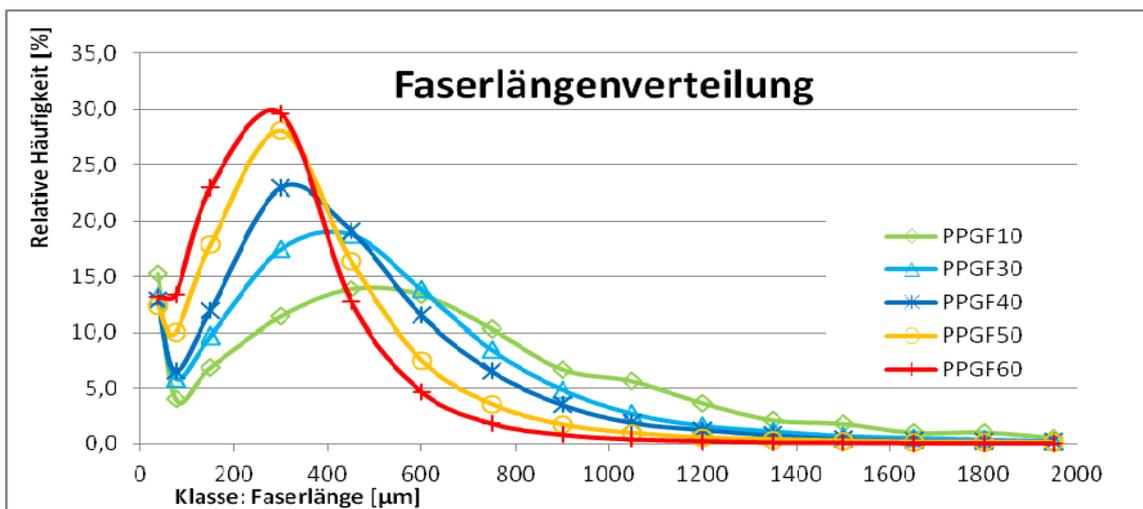


Bild 9: Aus den CT-Daten berechnete Faserlängenverteilung im Granulat von glasfaserverstärkten Polypropylen mit 10 % bis 60 % Glasfaseranteil.

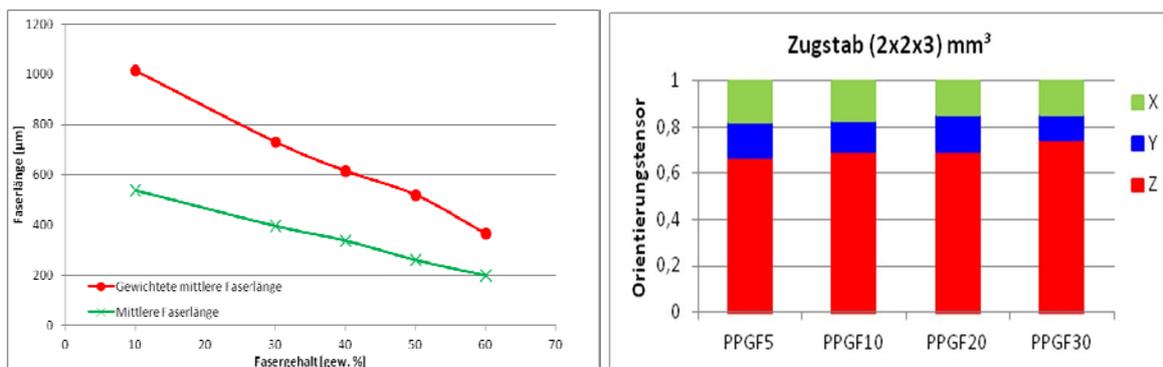


Bild 10: Mittlere und gewichtete Faserlänge für glasfaserverstärkten Polypropylen mit 10 % bis 60 % Glasfaseranteil sowie Hauptachsenwerte des Faserorientierungstensors für glasfaserverstärktes PP.

Der Abfall der mittleren und gewichteten mittleren Faserlänge mit zunehmendem Faseranteil ist im linken Bild der Abbildung 10 explizit dargestellt. Im rechten Bild in Abbildung 10 sind die mittleren Faserorientierungen (Diagonalelemente des Hauptorientierungstensors) für die tomografierten Volumina von mittels Spritzguss hergestellten glasfaserverstärkten Polypropylenproben mit verschiedenen Glasfaseranteilen grafisch dargestellt. Die Orientierung in Z-Richtung - also in Spritzgussrichtung - steigt in diesen Probenausschnitten mit steigendem Fasergehalt deutlich. Dies ist an der Zunahme des Diagonalelementes a_{33} („Z“ im Diagramm) zu erkennen.

3. Zusammenfassung

Kegelstrahl-Röntgen-Computertomografie ist ein wesentliches Hilfsmittel für die Entwicklung und Charakterisierung von faser- und partikelverstärkten Kunststoffen. Mittels CT sind Auflösungen bis deutlich unter 1 μm möglich. Wir präsentierten CT-Ergebnisse von glas-, kohle-, basalt-, zellulose- und aramidfaserverstärkten Kunststoffen sowie von glimmerpartikelverstärkten Kunststoffen und Holzwerkstoffen. Wir demonstrierten die Möglichkeiten von Phasenkontrast-CT für die Charakterisierung von diesen Materialsystemen und präsentierten zum Abschluss ein Verfahren zur Bestimmung der Faserlängenverteilung und der Faserorientierung aus den CT-Daten von glasfaserverstärktem Kunststoff.

Danksagung

Die Arbeiten wurden durch das K-Projekt für zerstörungsfreie Prüfung und Tomografie (ZPT), der österreichischen Forschungsförderungsgesellschaft sowie durch das Programm Regionale Wettbewerbsfähigkeit OÖ 2010-2013, welche durch den European Regional Development Fund und das Land OÖ finanziert wird, unterstützt. Wir danken der FACC AG und der TCKT GmbH für das Herstellen der Proben.

Referenzen

- [1] W. Seidel und F. Hahn. Werkstofftechnik, Hanser Verlag, München (2010)
- [2] B. Harrer und J. Kastner. Cone Beam CT for non-destructive testing Fabrication and Characterization in the Micro-Nano Range: New Trends for two and three Dimensional Structures, 'X-ray Microtomography: characterisation of structures and defect analysis', Springer Verlag, Heidelberg, 119-150 (2011).
- [3] J. Kastner. Proceedings Industrielle Computertomografietagung, Wels, Austria, 28.-30. September 2010, ISBN 978-3-8322-6949-4, Shaker Verlag, Aachen (2010) und Proceedings Industrial Computed Tomography Conference 2012, 19.-20. September 2012, ISBN 978-3-8322-9418-2, Shaker Verlag, Aachen (2012)
- [4] D. Salaberger, K.A. Kannappan, J. Kastner, J. Reussner, and T. Auinger. 'CT Data evaluation of fibre reinforced polymers to determine fibre length distribution'. International Polymer Processing 3, 283-291 (2011).
- [5] J. Kastner, B. Plank and G. Requena, 'Non-destructive characterisation of polymers and Al-alloys by polychromatic cone-beam phase contrast tomography', Materials Characterization 64, 79-87 (2012).
- [6] J. Kastner, R. Kickinger, and D. Salaberger. 'High resolution X-ray computed tomography for 3D-microstructure characterisation of a cellulose particle filled polymer foam'. Journal of Cellular Plastics 47, 567-578 (2011).
- [7] B. Plank. 'Von Granulat zum Spritzgussbauteil: Einfluss der Spritzgusskette auf die Faserlängenverteilung bestimmt durch Röntgen-Computertomografie'. Masterarbeit, FH Oberösterreich (2012).