# Simulieren und Kleben von Organoblechverbindungen Simulation and adhesive bonding of continuous fibre reinforced thermoplastics

Julian Hesselbach, M. Sc., Dr. Eduard Kraus, Dr. Benjamin Baudrit, Dr. Thomas Hochrein, Prof. Dr.-Ing. Martin Bastian, SKZ – Das Kunststoff-Zentrum, Würzburg; Dr.-Ing. Olaf Hesebeck, Dr.-Ing. Vinicius Carrillo Beber, Fraunhofer IFAM, Bremen

#### Kurzfassung

Kleben zum Fügen von Organoblechen oder zum Verbinden dieser endlosfaserverstärkten Thermoplaste mit Aluminium stehen im Mittelpunkt der hier vorgestellten Untersuchungen. Essenziell für eine zuverlässige Klebung von endlosfaserverstärkten Thermoplasten ist die Oberflächenvorbehandlung, wobei verschiedene Verfahren verglichen wurden. Diese wirkt sich auch auf die Langzeitbeständigkeit der Verbindungen aus, welche in Schnellalterungstests untersucht wurden. Der Einsatz in der Leichtbaukonstruktion erfordert die Auslegung der Klebverbindung. Deshalb waren Methoden zur Modellierung und Parameteridentifikation ein weiterer Arbeitsschwerpunkt.

#### 1. Motivation und Grundlagen

Aufgrund der gegenwärtigen Klimaschutzdiskussion und des Elektromobilitätstrends wird seitens der Politik und Wirtschaft stetig der Ruf nach ressourcenschonenden, nachhaltigen sowie innovativen Materialien und Prozessen lauter [1, 2]. Branchenübergreifend scheinen unter anderem vollständig imprägnierte und konsolidierte, endlosfaserverstärkte Kunststoffe mit thermoplastischer Matrix diesen Ansprüchen gerecht zu werden. Umgangssprachlich werden diese faserverstärkten Kunststoffe (FVK) auch als Organobleche bezeichnet, da sie neben einer organischen Matrix die Einsatzmöglichkeit als Ersatz für Metallbleche bieten [3, 4]. Eigenschaften wie hohe Steifigkeit, Festigkeit sowie Energieabsorption bei gleichzeitig geringer Dichte machen diese FVK zu idealen Leichtbauwerkstoffen [5]. FVK mit thermoplastischer Matrix auf Basis von Po-



Julian Hesselbach, M. Sc. Profil: www.fuegen-von-kunststoffen.de/?id=400286 profile: www.joining-plastics.info/?id=400286 j.hesselbach@skz.de

Dr. Eduard Kraus



#### Dr. Benjamin Baudrit

Profil: www.fuegen-von-kunststoffen.de/?id=202414 profile: www.joining-plastics.info/?id=202414 B.Baudrit@skz.de

# Dr. Thomas Hochrein



# Prof. Dr.-Ing. Martin Bastian



#### Dr.-Ing. Olaf Hesebeck



olaf.hesebeck@ifam.fraunhofer.de



Dr.-Ing. Vinicius Carrillo Beber Profil: www.fuegen-von-kunststoffen.de/?id=900010 profile: www.joining-plastics.info/?id=900010 vinicius.carrillo.beber@ifam.fraunhofer.de

lypropylen (PP) oder Polyamid (PA) werden beispielsweise zunehmend im Leichtbau von Automobilen und Schienenfahrzeugen eingesetzt. Häufig besteht der Bedarf, Bauteile aus diesen Werkstoffen mit Bauteilen aus anderen Werkstoffen – oft Metallen wie Aluminium – zu kombinieren. Dazu ist eine Fügetechnik notwen-

dig, mit der sich die beiden Werkstoffe verbinden lassen. Die übli**1. Motivation and fundamentals** Because of the present climate protection discussion and the trend towards electromobility, people from the political and economic fields are making ever louder calls for resource-conserving, sustainable and innovative materials and processes [1, 2]. Across different sectors, completely impregnated and consolidated continuous fibre reinforced

# Abstract

The investigations presented here concentrate on adhesive bonding for the joining of continuous fibre reinforced thermoplastics with aluminium. Surface pretreatment is essential for the reliable adhesive bonding of continuous fibre reinforced thermoplastics. Various procedures were compared in this respect. This also exerts effects on the long-time resistances of the joints which were investigated in rapid ageing tests. The utilisation in lightweight construction requires the designing of the adhesive-bonded joint. Therefore, another main focal point of the work related to methods for modelling and parameter identification.

plastics with thermoplastic matrices (FRP) seem to meet these demands. Properties such as high stiffnesses, strengths and energy absorption rates with low densities at the same time make these FRPs ideal lightweight construction materials [5]. For example, FRPs with thermoplastic matrices on the basis of polypropylene (PP) or polyamide (PA) are increasingly being utilised in the lightweight construction of automobiles and rail vehicles. Frequently, there is a need to combine components made of these materials with components made of other materials often metals such as aluminium.

A joining technology with which both materials can be joined is necessary for this purpose. In the case of continuous fibre reinforced thermoplastics, the normally utilised punctiform joints such as those with screwing, riveting or clinching cause substantial stress concentrations as

Fachbeiträge Peer-reviewed Papers

cherweise eingesetzten punktförmigen Verbindungen wie Schrauben, Nieten oder Clinchen verursachen bei endlosfaserverstärkten Thermoplasten erhebliche Spannungskonzentrationen sowie unerwünschte Faser- und Zwischenfaserbrüche an der Verbindungsstelle und führen zu einer Reduktion der Tragfähigkeit. Durch angepasste Nietverfahren oder das thermische Direktfügen kann dies teilweise umgangen werden. Gleichartige endlosfaserverstärkte Thermoplaste können zudem auch gut geschweißt werden. Alle diese Fügemethoden können aber nur bedingt Bauteiltoleranzen ausgleichen und Unterschiede im Wärmedehnungsverhalten teils schlecht kompensieren. Das Kleben kann diesen Anforderungen allerdings gerecht werden.

Aus diesem Grund forschte das Kunststoff-Zentrum – SKZ, ein Gründungsmitglied der Zuse-Gemeinschaft, zusammen mit dem Fraunhofer IFAM (vom 01.07.2017 bis 30.06.2020) an einem Projekt der Industriellen Gemeinschaftsforschung (IGF-Nr.: 19609 N) zum Thema "Geklebte langzeitstabile Organoblech-Aluminium-Knotenverbindungen und deren Berechnung mit einem erweiterten Arruda-Boyce Werkstoffmodell" [6].

Das Projektziel bestand darin, Methoden zur langzeit- und alterungsstabilen Fertigung und zur Berechnung mehrlagiger, strukturell geklebter Knotenverbindungen von endlosfaserverstärkten Thermoplasten untereinander und mit Aluminium zu entwickeln. Dieses Ziel konnte mit höhersteifen hyperelastischen Klebstoffen erreicht werden. Dazu musste durch die Oberflächenvorbehandlung sichergestellt werden, dass die Verbindungen kohäsiv im Klebstoff versagen. Zu diesem Zweck wurden diverse physikalische Oberflächenvorbehandlungsverfahren angewandt und entsprechend ihrer Wirkung auf die Benetzbarkeit quantifiziert. Klebverbindungen mit hyperelastischen Klebstoffen bilden nur relativ geringe Spannungsüberhöhungen aus und ermöglichen somit über die flächige Lasteinleitung die Übertragung relativ hoher Lasten [7]. Gleichzeitig kann die unterschiedliche Wärmeausdehnung der Fügeteile, hervorgerufen durch einen unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten ( $\Delta \alpha$ -Problematik), durch das gute Toleranzverhalten der Klebstoffe ausgeglichen werden. Die komplexe Beanspruchung in einer mehrlagigen Knotenverbindung und bei beliebigen Klebnahtverläufen wurde über ein visko-hyperelastisches Werkstoffmodell berechnet. Es erfolgte außerdem eine Modellerweiterung zur Beschreibung des mechanischen Versagens.

Des Weiteren wurden zwei verschiedene Fügeverfahren (Schweißen und well as undesired fibre and interfibre fractures at the joint and lead to a reduction in the load-bearing capacity. Using adapted riveting procedures or thermal direct joining, this can be circumvented in part. Moreover, continuous fibre reinforced thermoplastics of the same kind are also easy to weld. However, all these joining methods can make up for any component tolerances to a limited extent only and, in part, are poor at compensating for any differences in the thermal expansion behaviour. In any case, adhesive bonding can satisfy these requirements.

For this reason, the South German Plastics Centre (SKZ), a founding member of the Zuse Association, together with the Fraunhofer Institute for Manufacturing Technology and Applied Materials (IFAM), carried out research (from July 1, 2017 to June 30, 2020) in a project commissioned by the Joint Industrial Research Association (IGF no.: 19609 N) on the subject of "Adhesive-bonded long-time-stable organosheet/aluminium nodal joints and their calculation with an extended Arruda-Boyce material model" [6]. The project objective consisted of developing methods for long-timestable and ageing-stable fabrication and for the calculation of multilayer, structurally adhesive-bonded nodal joints consisting of continuous fibre reinforced thermoplastics with each other and with aluminium. It was possible to achieve this objective with higher-stiffness hyperelastic adhesives. To this end, the surface pretreatment had to ensure that the joints fail cohesively in the adhesive. For this purpose, various physical surface pretreatment procedures were applied and quantified according to their effects on the wettability. Adhesive-bonded joints with hyperelastic adhesives form only relatively slight excessive stresses and, because the load is introduced over a large area, thus permit the transmission of relatively high loads [7]. At the same time, the different thermal expansion values of the joining parts, caused by different coefficients of thermal expansion ( $\Delta \alpha$ problem), can be made up for by the good tolerance behaviour of the adhesives. The complex stresses in a multilayer nodal joint and with any adhesive-bonded seam paths were calculated using a visco-hyperelastic material model. Moreover, the model was extended in order to describe the mechanical failure.

Furthermore, two different joining procedures (welding and adhesive bonding) were systematically investigated with regard to their applications for continuous fibre reinforced thermoplastics and were assessed correspondingly. In this respect, the possibilities and limits of both these procedures were highlighted in re-



Bild 1: Zugscherfestigkeiten der Klebstoffe 250 und 8630 an unterschiedlich vorbehandelten PP-Substraten (links) sowie exemplarisch die dazugehörigen Bruchbilder des Klebstoffs 8630 (rechts); Vorbehandlungsmethoden: Atmosphärendruckplasma (ADP), Niederdruckplasma (NDP) und Beflammen (BEF). AF beschreibt einen adhäsiven Bruch und CF einen kohäsiven Bruch in der Klebschicht. SCF steht für substratnahes kohäsives Versagen (des Klebstoffs).



Fig. 1: Tensile shear strengths of the 250 and 8630 adhesives on differently pretreated PP substrates (left) as well as examples of the relevant fracture patterns of the 8630 adhesive (right); pretreatment methods: atmospheric-pressure plasma (APP), low-pressure plasma (LPP) and flame treatment (FT). AF describes an adhesive fracture and CF a cohesive fracture in the adhesive bonding layer. SCF stands for substrate-near cohesive failure (of the adhesive).

#### Peer-reviewed Papers Fachbeiträge



Bild 2: Vorbehandlungsstabilität der PP-Substrate nach Beflammen: Verlauf der Oberflächenenergie über einen Zeitraum von 28 Tagen (links) und Zugscherfestigkeit von Klebungen, die über einen Zeitraum von 28 Tagen nach dem Beflammen verklebt wurden (rechts) Fig. 2: Pretreatment stabilities of the PP substrates after flame treatment: courses of the surface energy over a period of 28 days (left) and tensile shear strengths of joints adhesive-bonded over a period of 28 days after the flame treatment (right)

Kleben) in ihrer Anwendung auf endlosfaserverstärkte Thermoplaste systematisch untersucht und entsprechend bewertet. Hierbei wurden die Möglichkeiten und Grenzen dieser beiden Verfahren in Bezug auf untersuchte Materialien aufgezeigt und Empfehlungen für eine sichere Verarbeitung von thermoplastischen FVK generiert. In diesem Artikel liegt der Fokus auf dem Kleben.

#### 2. Materialien und Methoden

Die gezeigten Ergebnisse wurden mit endlosfaserverstärkten Thermoplasten aus PP (Tepex dynalite 104-RG600(x)/47%) erzielt. Exemplarisch werden hier Ergebnisse der beiden Polyurethan-Klebstoffe 250 (Sikaflex-250 UHM und Sika Booster-35 W der Firma Sika) sowie 8630 (Teroson PU 8630 HMLC der Firma Henkel) vorgestellt. Mit den Materialien wurden Zugscherproben mit 1 mm Klebschichtdicke und 12,5 mm Überlapplänge in Anlehnung an DIN EN 1465 hergestellt. Die Fügeflächen wurden vor der Verklebung mit Isopropanol gereinigt und ggf. vorbehandelt. Nach sieben Tagen Aushärtung im Normklima (23°C, 50% Luftfeuchte) wurden die Proben an einer Universalzugprüfmaschine in Anlehnung an DIN EN 1465 mit einer Prüfgeschwindigkeit von 20 mm/min zerstörend geprüft. Die Bewertung der Bruchbilder der gebrochenen Klebverbindungen erfolgte in Anlehnung

an DIN EN ISO 10365. Die Bauteilähnliche Probe wurde mit einem Aluminiumstrangpressprofil der Legierung EN AW-6060 T66 hergestellt. Dieses wurde zuvor mit dem Sika-Primer 207 behandelt.

Zudem wurden Oberflächen einiger Proben mit Atmosphärendruckplasma (Plasmatreat FG5001 mit Rotationsdüse RD2004, Abstand Probenfläche zur Gasdüse: 10 mm. Vorschubgeschwindigkeit: 1.000 mm/min) sowie mit Niederdruckplasma unter Sauerstoff (Diener-Pico-Plasmaanlage, Gasdruck: 0,4 mbar, Sauerstoffstrom:  $0,01859 \times 10^{-3} (Pa \cdot m^3)/s$ , Leistung: 500 W, Behandlungsdauer: 3 min für PA und 7 min für PP) als auch mit Beflammen (Arcotec FTM 101 DR mit Brenner B1M-100, Brenngas: Propan-Luft-Gemisch, Verhältnis: 1:22,5, Abstand: 100 mm, Geschwindigkeit: 3.000 mm/min für PA, 8.000 mm/min für PP) aktiviert.

Ein Teil der Klebverbindungen wurde vor der Prüfung beschleunigt gealtert, um die Alterungsstabilität zu untersuchen. Dies wurde im Tira-clima-Tcc-4060-Klimawechselschrank entsprechend der "PV 1200" der VW AG durchgeführt. Dazu wurden insgesamt 84 Temperatur-/Feuchte-Zyklen gefahren. Ein Zyklus besteht aus 2 h linearer Aufheizphase von –40°C auf 80°C und 80% relativer Feuchte (relative Luftfeuchte ab 0°C, 30% geregelt), 4 h Isotherme bei 80°C und 80% relativer Feuchte, anschließend lation to investigated materials and recommendations for the safe processing of thermoplastic FRPs were generated. This article focuses on adhesive bonding.

# 2. Materials and methods

The indicated results were obtained with continuous fibre reinforced thermoplastics made of PP (Tepex\_dvnalite\_104-RG600(x)/47%). Here, the results of both polyurethane adhesives, i.e. 250 (Sikaflex-250 UHM and Sika Booster-35 W from Sika) as well as 8630 (Teroson PU 8630 HMLC from Henkel), are presented as examples. With the materials, tensile shear test specimens with an adhesive bonding layer thickness of 1 mm and an overlapping length of 12.5 mm were manufactured with reference to DIN EN 1465. Before the adhesive bonding, the joining faces were cleaned with isopropanol and, if necessary, were pretreated. After seven days of curing in the standard climate (23°C and 50% air humidity), the specimens were subjected to destructive testing at a testing speed of 20 mm/min on a universal tensile testing machine with reference to DIN EN 1465. The fracture patterns of the fractured adhesive-bonded joints were assessed with reference to DIN EN ISO 10365. The component-like specimen was manufactured with an extruded aluminium section made of the EN AW-6060 T66 alloy. This had previously been treated with the Sika-Primer 207.

Moreover, the surfaces of some specimens were activated not only with atmospheric-pressure plasma (Plasmatreat FG5001 with the RD2004 rotation nozzle, distance from the specimen face to the gas nozzle: 10 mm, feed speed: 1,000 mm/min) and low-pressure plasma in oxygen (Diener-Pico plasma installation, gas pressure: 0.4 mbar, oxygen flow:  $0.01859 \times 10^{-3}$  (Pa·m3)/s, power: 500 W, treatment durations: 3 min for PA and 7 min for PP) but also with flame treatment (Arcotec FTM 101 DR with the B1M-100 torch, fuel gas: propane/air mixture, ratio: 1:22.5, distance: 100 mm, speeds: 3,000 mm/min for PA and 8,000 mm/min for PP).

Before the test, some of the adhesive-bonded joints were aged in an accelerated process in order to investigate the ageing stability. This was carried out in the Tira-clima-Tcc-4060 alternating climate cabinet corresponding to the "PV 1200" from VW AG. In total, 84 temperature/humidity cycles were completed for this purpose. One cycle consists of a 2 h linear heating phase from  $-40^{\circ}$ C to  $80^{\circ}$ C at a relative humidity of 80% (relative air humidity from 0°C: 30% regulated), a 4 h isotherm at  $80^{\circ}$ C and a relative

Fachbeiträge Peer-reviewed Papers

2 h lineare Abkühlphase auf -40°C (ab 0°C relative Luftfeuchte ungeregelt) und 4 h Isotherme bei -40°C. Zur strukturmechanischen Berechnung der Klebverbindungen wurde die Methode der Finiten Elemente (FEM) eingesetzt. Die Simulation der quasi-statischen und zügigen Experimente erfolgte mit impliziter Zeitintegration. Der endlosfaserverstärkte Thermoplast wurde linear elastisch mit schichtweise transversal isotropen Eigenschaften abgebildet. Für die Modellierung der Klebstoffe wurde aufbauend auf Ergebnissen von Schwarzkopf et al. und Hesebeck et al. [8, 9] eine Vorgehensweise zur visko-hyperelastischen Materialmodellierung entwickelt. Zur Festigkeitsvorhersage wurde ein spannungsbasiertes Versagenskriterium eingesetzt [10, 11].

Für die FE-Simulation der Klebverbindungen war zum einen eine geeignete Beschreibung des Spannungs-Dehnungs-Verhaltens der eingesetzten Klebstoffe erforderlich, zum anderen wurde das Versagen der Verbindung betrachtet. Die untersuchte Klasse von Klebstoffen weist ein visko-hyperelastisches Materialverhalten auf. Dieses kann vereinfachend als rein hyperelastisches Verhalten ohne Zeitbzw. Ratenabhängigkeit modelliert werden. Hierfür muss grundsätzlich bekannt sein, in welcher Größenordnung die Dehnraten in der zu simulierenden Klebschicht liegen werden, und die Experimente zur Parameteridentifikation müssen dann bei

entsprechender Dehnrate durchgeführt werden.

Das Marlow-Modell ist ein hyperelastisches Modell, das sich in den letzten Jahren zunehmender Beliebtheit bei Anwendern erfreut [12]. Dazu ist im Gegensatz zu den meisten hyperelastischen Materialmodellen (bei denen die Modellparameter durch Anpassen an die Ergebnisse verschiedener Experimente optimiert werden müssen) nur die gemessene Spannungs-Dehnungs-Kurve aus einem Versuch notwendig, typischerweise aus dem uniaxialen Zugversuch. Soll die Kompressibilität des Materials berücksichtigt werden, wird zusätzlich noch der Kompressionsmodul benötigt. Der Aufwand beim praktischen Einsatz des Marlow-Modells ist somit geringer als bei klassischen hyperelastischen Modellen. Erkauft wird diese Kostenreduktion durch eine möglicherweise geringere Genauigkeit der Modellprognosen für andere Spannungszustände. Die Spannungs-Dehnungs-Kurve des zur Spezifizierung des Marlow-Modells eingesetzten Zugversuchs hingegen wird durch das Modell perfekt simuliert. Andere übliche hyperelastische Modelle beschreiben nur mangelhaft die Zugversuchsergebnisse der untersuchten Klebstoffe. Eine genauere Beschreibung des Materialverhaltens wurde erst mit Modellerweiterungen erzielt [8, 9], die in kommerzieller FE-Software noch nicht standardmäßig verfügbar sind.

humidity of 80%, thereafter a 2 h linear cooling phase to -40°C (from 0°C, relative air humidity: unrequlated) and a 4 h isotherm at  $-40^{\circ}$ C. The finite element method (FEM) was utilised for the structural-mechanical calculation of the adhesive-bonded joints. The quasi-static and rapid experiments were simulated with implicit time integration. The continuous-fibre-reinforced thermoplastic was modelled linear elastic with transversally isotropic properties layer by layer. Building upon the results from Schwarzkopf et al. and Hesebeck et al. [8, 9], a procedure for visco-hyperelastic material modelling was developed for the modelling of the adhesives. A stress-based failure criterion was utilised in order to predict the strength [10, 11].

On the one hand, a suitable description of the stress/strain behaviour of the utilised adhesives was required for the FE simulation of the adhesive-bonded joints. On the other hand, the failure of the joint was considered. The investigated class of adhesives exhibits visco-hyperelastic material behaviour. In a simplifying process, this can be modelled as purely hyperelastic behaviour without any time or rate dependence. For this simplification, the order of magnitude of the strain rates in the adhesive layer to be simulated must be known, and the experiments for parameter identification must then be carried out at a corresponding strain rate.

The Marlow model is a hyperelastic model which has become increasingly popular amongst users in recent years [12]. Unlike most hyperelastic material models (in which the model parameters must be optimised by adjusting them to the results of various experiments), just the measured stress/strain curve from one test is necessary for parameter identification, typically from the uniaxial tensile test. If the compressibility of the material is to be taken into account, the bulk modulus is needed in addition. The scope of work during the practical utilisation of the Marlow model is thus smaller than in the case of classic hyperelastic models. This cost reduction is bought at the expense of possibly lower accuracies of the model predictions for other stress conditions. In contrast, the stress/strain curve of the tensile test utilised for the specification of the Marlow model is perfectly simulated by the model. Other customary hyperelastic models describe the tensile test results of the investigated adhesives to an inadequate extent only. A more accurate description of the material behaviour was only obtained with model extensions [8, 9] which are not yet available as standard in commercial FE software. In order to describe the adhesive be-

haviour at different strain rates, the hyperelastic model must be coupled with the viscoelasticity. On the exper-





Bild 3: Zugscherfestigkeiten der PP-Substrate im Verlauf der beschleunigten Alterung (links) und die dazugehörigen Bruchbilder der beflammten Proben (rechts)

Fig. 3: Tensile shear strengths of the PP substrates in the course of the accelerated ageing (left) and the relevant fracture patterns of the flame-treated specimens (right)



Bild 4: Spannungs-Gleitungs-Kurven von Zugscherversuchen und ihrer Simulation mit Klebstoff 250 und Aluminiumfügeteilen (links) sowie erster Anriss am Klebschichtende (rechts)

Fig. 4: Stress/engineering shear strain curves from lap shear tests and their simulation with the 250 adhesive and aluminium adherends (left) as well as first incipient crack at the end of the adhesive layer (right)

Um das Klebstoffverhalten bei unterschiedlichen Dehnraten zu beschreiben, muss das hyperelastische Modell mit der Viskoelastizität gekoppelt werden. Auf experimenteller Seite bedeutet dies, dass die Parameteridentifikation zusätzlich einen Relaxationsversuch erfordert. Für die Spezifikation des Modells für die FE-Software impliziert die Erweiterung um Viskoelastizität allerdings. dass die Spannungs-Dehnungs-Kurve aus dem Zugversuch bei konstanter Dehnrate nicht länger direkt als Eingangsdaten dienen können. Daher wurde ein Berechnungsverfahren entwickelt, das aus den Versuchsergebnissen innerhalb weniger Sekunden die Materialdaten für das eingesetzte FE-Programm erzeugt.

Obwohl hyperelastische Klebstoffe gewöhnlich nahezu inkompressibel sind, kann das Ausmaß der Kompressibilität in Klebfugen mit starker Querdehnungsbehinderung das Spannungsfeld wesentlich beeinflussen. Verschiedene Möglichkeiten zur Identifikation des Kompressionsverhaltens wurden getestet, wozu Kopfzugversuche, Planardruckversuche und hydrostatische Druckversuche simuliert und durchgeführt wurden. Als am besten zur Ermittlung des Kompressionsmoduls geeignet erwies sich ein hydrostatischer Druckversuch, bei dem eine zylindrische Klebstoffprobe in eine metallische Prüfvorrichtung gepresst wird und

der Einfluss der Deformation der Vorrichtung mit Hilfe einer FE-Simulation berücksichtigt werden kann.

Für die Berechnung der Festigkeit einer geklebten Struktur ist es von entscheidendem Vorteil, wenn ein adhäsiver Bruch an der Fügeteil-Klebstoff-Grenzfläche durch eine geeignete Oberflächenvorbehandlung weitgehend ausgeschlossen werden kann. Dann erfordert die Simulation jeweils ein adäguates Modell für die Fügeteile und für den Klebstoff, aber kein neues Modell für jede Kombination aus Klebstoffen und Fügeteilen. Dementsprechend wurde ein Versagenskriterium für den Klebstoff aufgestellt, zu dessen Identifikation keine Versuche mit endlosfaserverstärkten Thermoplasten nötig waren.

Zur Simulation des Versagens von Klebverbindungen existieren Ansätze unterschiedlicher Komplexität. Hier wurde ein Spannungs-Streckungs-Kriterium aus Wulf et al. aufgegriffen, das sich durch besonders einfache Anwendbarkeit auszeichnet [10]. Zu seiner Parameteridentifikation genügt ein uniaxialer Zugversuch am Klebstoff, der ohnehin für die Identifikation des hyperelastischen Modells erforderlich ist.

#### 3. Ergebnisse und Diskussion

Um eine langzeitstabile Klebverbindung der endlosfaserverstärkten Thermoplaste garantieren zu können, ist eine gute Adhäsion des Klebstoffs imental side, this means that the parameter identification requires a relaxation test in addition. In any case, for the specification of the model for the FE software, the extension by the viscoelasticity implies that the stress/ strain curve from the tensile test at a constant strain rate can no longer serve directly as input data. A calculation procedure which produces the material data for the utilised FE program from the test results within just a few seconds was therefore developed. Although hyperelastic adhesives are usually nearly incompressible, the extent of the compressibility in adhesive-bonded joints with large constraints on lateral contraction exerts essential influences on the stress field. Various possibilities for the identification of the compression behaviour were tested. Butt joint tensile tests, planar pressure tests and hydrostatic pressure tests were simulated and carried out for this purpose. A hydrostatic pressure test, in which a cylindrical adhesive specimen is pressed into a metallic testing jig and the influence of the deformation of the jig can be taken into account with the aid of an FE simulation, proved to be most suitable for the determination of the bulk modulus.

For the calculation of the strength of an adhesive-bonded structure, it is a decisive advantage if an adhesive fracture at the interface between the joining part and the adhesive can be largely excluded as a result of a suitable surface pretreatment. Then, each simulation requires an adequate model for the joining parts and for the adhesive but no new model for every combination of adhesives and joining parts. Correspondingly, a failure criterion was established for the adhesive and no tests with continuous fibre reinforced thermoplastics were needed for its identification.

Approaches with different complexities exist for the simulation of the failures of adhesive-bonded joints. A stress/stretch criterion from Wulf et al. which is characterised by particularly simple applicability was taken up here [10]. A uniaxial tensile test on the adhesive which is required for the identification of the hyperelastic model anyway is sufficient for its parameter identification.

#### 3. Results and discussion

Good adhesion of the adhesive to the thermoplastic surface is indispensable in order to be able to guarantee a long-time-stable adhesive-bonded joint between the continuous-fibre-reinforced thermoplasics. Therefore, a cohesive fracture of the adhesive-bonded joint in the adhesive was striven for. Insufficient adhesive bonding suitability must be expected because of the thermoplastic matrix material made of PP. Therefore, the various pretreatment

Fachbeiträge Peer-reviewed Papers

an der Thermoplastoberfläche unerlässlich. Es wurde deshalb ein kohäsiver Bruch der Klebverbindung im Klebstoff angestrebt. Aufgrund der thermoplastischen Werkstoffmatrix aus PP ist eine unzureichende Klebeignung zu erwarten. Deshalb wurden die verschiedenen Vorbehandlungsmethoden Atmosphärendruckplasma (ADP), Niederdruckplasma (NDP) sowie das Beflammen angewendet, um die Adhäsion zu steigern. Vorab wurden hierzu Parameterstudien durchgeführt, um geeignete Vorbehandlungsparameter zu ermitteln. Die mit den beiden PU-Klebstoffen 250 und 8630 am PP-Substrat ermittelten Festigkeiten sind in Bild 1 dargestellt. Wie erwartet weisen die Klebverbindungen am unbehandelten Substrat eine niedrige Festigkeit sowie ein adhäsives Versagen (AF) auf. Die Vorbehandlung mittels ADP oder NDP führt bereits zu einer Steigerung der Festigkeit. Absolut gesehen sind diese aber noch auf einem niedrigen Niveau. Die Vorbehandlung durch Beflammen stellte sich als besonders geeignet heraus, um die Adhäsion zu verbessern. Es werden mit Abstand mit 5 bis 7 MPa die höchsten Festigkeiten erreicht, und die Verbindungen versagen kohäsiv im Klebstoff. Im Vergleich dazu erreichten mittels Infrarotschweißens gefügte Zugscherproben Festigkeiten von 13 MPa. Allerdings ist hier darauf hinzuweisen, dass die Klebungen mit hyperelastischen Klebstoffen bei größeren Fügestellen in der Lage sind, die Kraft gleichmäßiger in den Werkstoff einzuleiten.

Neben der Bereitstellung einer guten Adhäsion ist für den erfolgreichen Einsatz der Klebverbindungen auch die Kenntnis über die Langzeitstabilität sehr wichtig. Dies betrifft zum einen die Stabilität der Vorbehandlung, zum anderen aber auch die hydrothermale Alterungsstabilität der Klebverbindung. Die Stabilität der Vorbehandlung wurde ermittelt, indem nach unterschiedlichen Zeitintervallen nach der Vorbehandlung die Oberflächenenergie der aktivierten Oberfläche mittels Kontaktwinkelmessung bestimmt wurde. Des Weiteren wurden auch Klebungen daran angefertigt.

Der zeitliche Verlauf der Oberflächenenergie zeigt einen deutlichen Anstieg gegenüber dem Ausgangszustand (Bild 2), was die Aktivierung der Oberfläche bestätigt. Gleichzeitig ist auch ein sehr konstanter Verlauf, das heißt eine gute zeitliche Stabilität, zu beobachten. Der Anstieg der Oberflämethods, i.e. atmospheric-pressure plasma (APP), low-pressure plasma (LPP) as well as flame treatment, were applied in order to raise the adhesion. For this purpose, parameter studies were carried out beforehand in order to establish suitable pretreatment parameters.

The strengths established with both PU adhesives (i.e. 250 and 8630) on the PP substrate are portraved on Fig. 1. As expected, the adhesive-bonded joints on the untreated substrate exhibit low strengths as well as adhesive failures (AFs). The pretreatments using APP or LPP already lead to rises in the strengths. However, seen in absolute terms, these are still on a low level. The pretreatment by means of flame treatment turned out to be particularly suitable in order to improve the adhesion. The highest strengths by far (i.e. 5 - 7 MPa) are achieved and the joints fail cohesively in the adhesive. In comparison with this, tensile shear test specimens joined by means of infrared welding achieved strengths of 13 MPa. In any case, it should be pointed out here that, with larger joints, the adhesive-bonded joints with hyperelastic adhesives are capable of introducing the force into the material more uniformly.

In addition to the provision of good adhesion, the knowledge about the long-time stability is also very important for the successful utilisation of the adhesive-bonded joints. This relates not only to the stability of the pretreatment but also to the hydrothermal ageing stability of the adhesive-bonded joint. The stability of the pretreatment was established by determining the surface energy of the activated surface by measuring the contact angles after different time intervals after the pretreatment. Furthermore, adhesive-bonded joints were produced on it.

The time-related course of the surface energy shows a distinct rise compared with the initial condition (Fig. 2) and thus confirms the activation of the surface. At the same time, it is also possible to observe a very constant course, i.e. a good time-related stability. The rise in the surface energy is primarily caused by the rise in the polar proportion which does not approach the initial condition once again over the time span under consideration either.

On the basis of the measured results, it is tempting to reach the conclusion that the pretreatment exhib-



Bild 5: Kraft-Weg-Kurve von exemplarischem Druckversuch an bauteilähnlicher Probe (Klebstoff 250) und seiner Simulation (links) sowie Versuchsaufbau mit optischer Messung des Verschiebungsfelds auf dem Organoblech (rechts)



Fig. 5: Force/displacement curves from the example of a pressure test on a component-like specimen (250 adhesive) and its simulation (left) as well as test setup with optical measurement of the displacement field on the organosheet (right)

#### Peer-reviewed Papers Fachbeiträge

chenenergie wird vor allem durch den Anstieg des polaren Anteils hervorgerufen, der sich über die betrachtete Zeitspanne auch nicht wieder dem Ausgangszustand annähert.

Die Messergebnisse verleiten zu dem Schluss, dass die Vorbehandlung eine hohe zeitliche Stabilität aufweist. Klebversuche an den unterschiedlich lang gelagerten Fügeteilen zeigen allerdings, dass nur Klebungen, die innerhalb von drei Tagen nach der Vorbehandlung angefertigt wurden, die höchsten Festigkeiten aufweisen. Mit längerer Lagerdauer der vorbehandelten Oberfläche nimmt die Verbundfestigkeit ab. Selbst nach vierwöchiger Liegezeit werden noch höhere Festigkeiten als an den unbehandelten Blechen erzielt. In der Praxis sollte aber immer direkt nach der Vorbehandlung geklebt werden, um das Risiko einer nachträglichen Kontamination der sauberen Oberfläche zu minimieren. Zur Ermittlung der hydrothermalen Alterungsstabilität wurden die Klebungen mittels eines Klimawechseltests beschleunigt gealtert und alle 2 Wochen mechanisch geprüft. Nach dem Alterungsprozess wurden einige Proben zusätzlich für 7 Tage im Normklima rekonditioniert. Die Ergebnisse in Bild 3 zeigen für Proben ohne Vorbehandlung einen totalen Adhäsionsverlust im Verlauf der Alterung. An vorbehandelten Proben tritt dies nicht auf. Allerdings reduziert sich auch hier die Festigkeit der Verbindung um etwa 65%. Dies ist zum einen auf einen partiellen Verlust der Adhäsion, erkennbar an den Bruchbildern mit höherem adhäsivem Anteil, zum anderen aber auch auf eine Veränderung der Klebstoffeigenschaften zurückzuführen. Die Rekonditionierung der Proben nach dem Alterungsprozess zeigte einen leichten Anstieg der Festigkeit. Dies deutet darauf hin, dass ein Teil der Alterungsprozesse, beispielsweise die Wasseraufnahme, reversibel ablief. Dennoch beträgt der Festigkeitsverlust 50%. Zudem wurden auch noch Klebungen an kathodisch tauchlackiertem (KTL) Aluminium untersucht. Die KTL-Oberfläche bot den Klebstoffen eine sehr gute Adhäsionsgrundlage, sodass der Bruch auf der Seite des PP-Substrats auftrat und ähnliche Festigkeiten wie mit den reinen PP-Verbindungen erzielt wurden.

Die Validierung der Berechnungsmethoden erfolgte an Kopfzugversuchen, Planardruckversuchen, hydrostatischen Druckversuchen, Zugscherversuchen und an bauteilähnlichen Proben. Variiert wurden Parameter wie Klebstoff, Klebschichtdicke und Prüfgeschwindigkeit. Das neue visko-hyperelastische Modell erzielte eine gute Übereinstimmung its a high time-related stability. In any case, adhesive bonding tests on the joining parts stored for different periods show that only those adhesive-bonded joints produced within three days of the pretreatment exhibit the highest strengths. The bond strengths decrease as the storage durations of the pretreated surfaces increase. Even after a lying time of four weeks, higher strengths are still achieved than those on the untreated sheets. However, in practice, the adhesive bonding should always be carried out directly after the pretreatment in order to minimise the risk of any subsequent contamination of the clean surface.

For the determination of the hydrothermal ageing stability, the adhesive-bonded joints were aged in an accelerated process using an alternating climate test and were mechanically tested every two weeks. After the ageing process, some specimens were also reconditioned in the standard climate for seven days. For specimens without any pretreatment, the results on Fig. 3 show a total adhesion loss in the course of the ageing. This does not arise on pretreated specimens. In any case, the strength of the joint is reduced by approx. 65% here too. This may be attributed not only to a partial loss of adhesion (recognisable by the fracture patterns with higher adhesive proportions) but also to a change in the adhesive properties. The reconditioning of the specimens after the ageing process showed a slight rise in the strength. This suggests that some of the ageing processes (e.g. the water absorption) proceeded in a reversible form. Nevertheless, the strength loss is 50%. Moreover, investigations were conducted into adhesive-bonded joints on cathodic-dip-painted (CDP) aluminium. The CDP surface offered the adhesives a very good adhesion basis so that the fracture arose on the side of the PP substrate and the achieved strengths were similar to those with the pure PP joints. The calculation methods were validated in butt joint tensile tests, planar pressure tests, hydrostatic pressure tests and lap shear tests as well as on component-like specimens. Parameters such as the adhesive, the adhesive bonding layer thickness and the testing speed were varied. The new visco-hyperelastic model achieved

good agreement with the tests and, in quite a lot of cases, made substantially more accurate predictions than the classic Arruda-Boyce model serving as the reference.

# Literatur References

- [1] Malek, T.: Organoblech. Trends und Entwicklungen in der Hybridtechnik. Lightweight Design 5 (2012) 1, S. 20/3.
- [2] Stock, A. u. Egger, P.: Hybridteilfertigung. Organobleche verlassen das Hochpreissegment. MM Composites World (2011), S. 12/5.
- [3] Witten, E.: Handbuch Faserverbundkunststoffe/Composites. Grundlagen-Verarbeitung-Anwendungen. Wiesbaden: Springer Vieweg 2014.
- [4] Neitzel, M., Mitschang, P. u. Breuer, U.: Handbuch Verbundwerkstoffe. Werktstoffe, Verarbeitung, Anwendung. München: Carl Hanser Verlag 2014.
- [5] Malek, T.: Noch leichter, noch belastbarer. Trends in der Hybridtechnik. Plastverarbeiter 61 (2010) 5, S. 38/9.
- [6] Hesselbach, J., Hesebeck, O., Carillo Beber, V., Kraus, E., Brede, M., Baudrit, B., Hochrein, T. u. Bastian, M.: Kleben und Simulieren von Organoblech-Aluminium-Knotenverbindungen. Optmierung der Klebeignung und Berechnung mit einem visko-hyperelastischem Modell. SKZ - Forschung und Entwicklung. Düren: Shaker 2020.
- [7] da Silva, L. F. M., Öchsner, A. u. Adams, R. D. (Hrsg.): Handbook of Adhesion Technology. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg 2011.
- [8] Schwarzkopf, G., Meschut, G., Nelson, A., Matzenmiller, A., Wulf, A., Brede, M., Hesebeck, O. u. Mayer, B.: Numerische Modellierung und

Kennwertermittlung für das Versagensverhalten hyperelastischer Klebverbindungen. Forschungsbericht, IGF-Förderkennzeichen 18716N, FOSTA P 1086. Düsseldorf: Verlag und Vertriebsgesellschaft mbH 2019.

- [9] Hesebeck, O. u. Wulf, A.: Hyperelastic constitutive modeling with exponential decay and application to a viscoelastic adhesive. International Journal of Solids and Structures 141-142 (2018), pp. 60/72.
- [10] Wulf, A., Hesebeck, O., Baumert, M. u. Brede, M.: Nachweisführung für die Beanspruchbarkeit von hyperelastischen Klebverbindungen unter betriebsrelevanten Bedingungen. Schlussbericht zum IGF-Vorhaben 18173 N. DVS Media GmbH 2017.
- [11] Lebensdauerberechnung hybrider Verbindungen, Forschungsbericht, IGF-Förderkennzeichen 19187 BG, Cavdar, S., Meschut, G., Wulf, A., Brede, M., Hesebeck, O., Mayer, B., Koch, I., Tittmann, K., Jäger, H., Rybar, G., Wacker, J. D., Baumgartner, J. u. Melz, T., 2020.
- [12] Marlow, R. S.: A general first-invariant hyperelastic constitutive model. In: Busfield, J. (Hrsg.): Constitutive models for rubber III. Proceedings of the third European Conference on Constitutive Models for Rubber, 15 - 17 September 2003, London, UK. Lisse: Balkema 2003, pp. 157/60.

mit den Versuchen und machte in etlichen Fällen deutlich genauere Vorhersagen als das als Referenz dienende, klassische Arruda-Boyce-Modell. Die Kopfzugversuche, Zugscherversuche und Versuche an bauteilähnlichen Proben erfolgten bis zum Versagen der Klebverbindung, sodass sie auch zur Validierung des Versagenskriteriums dienen konnten. Mit diesem Kriterium wurden konservative Festigkeitsvorhersagen erzielt. In den Zugscherversuchen mit dicken Fügeteilen nach DIN 6701-3, bei denen die Klebschicht mit einer Kamera gefilmt wurde, passte das Versagenskriterium zum ersten Wachstum von Rissen in der Klebschicht. Hierzu zeigt Bild 4 ein Beispiel. Bild 5 zeigt Kraft-Weg-Kurven zu einem Versuch an der bauteilähnlichen Probe, die eine Klebverbindung zwischen einem Organoblech und einem geprimerten Aluminiumprofil beinhaltet. Zusätzlich zur Simulation mit dem neuen Modell (blau) ist eine Berechnung mit einem herkömmlichen Arruda-Boyce Materialmodell (rot) dargestellt.

# 4. Zusammenfassung

Die Untersuchungen an endlosfaserverstärkten Thermoplast-Klebverbindungen zeigen, dass eine gezielte Vorbehandlung der Fügefläche unbedingt notwendig ist, um gute Klebverbindungen herzustellen. An PP-Substraten können mittels Beflammen Festigkeiten bis etwa 7 MPa und an PA-Substraten mittels ADP Festigkeiten bis etwa 11 MPa (hier nicht gezeigt) erreicht werden. Weiterführende Untersuchungen zur Stabilität der Vorbehandlung sowie zur beschleunigten Alterung lieferten wichtige Erkenntnisse für den Vorbehandlungsprozess und die Auslegung der Klebverbindung.

Mit der FE-Simulation der endlosfaserverstärkten Thermoplast-Klebverbindungen lassen sich mit einem hyperelastischen bzw. visko-hyperelastischen Materialmodell und einem relativ einfachen Versagenskriterium gute Prognosen erzielen. Die Validierung zeigte, dass mit den erarbeiteten Methoden zur Modellierung und Parameteridentifikation eine deutliche Verbesserung gegenüber dem herkömmlichen Arruda-Boyce-Modell erreicht wurde. The cross-tension tests, the tensile shear tests and the tests on component-like specimens were carried out until the adhesive-bonded joints failed. Thus, they could also be used for the validation of the failure criterion with which conservative strength predictions were obtained. In the tensile shear tests with thick joining parts according to DIN 6701-3 during which the adhesive layer was filmed with a camera, the failure criterion matched the initial growth of cracks in the adhesive bonding layer. On this subject, Fig. 4 shows an example. Fig. 5 shows force/displacement curves from a test on the component-like specimen which includes an adhesive-bonded joint between a continuous fibre reinforced thermoplastic sheet and a primered aluminium section. A calculation with a conventional Arruda-Boyce material model (red) is displayed in addition to the simulation with the new model (blue).

# 4. Summary

The investigations into adhesive-bonded joints between continuous fibre reinforced thermoplastics show that a targeted pretreatment of the joining face is imperative in order to manufacture good adhesive-bonded joints. It is possible to achieve strengths up to approx. 7 MPa on PP substrates using flame treatment and strengths up to approx. 11 MPa on PA substrates using APP (not shown here).

Advanced investigations into the stability of the pretreatment as well as into the accelerated ageing supplied important findings for the pre-treatment process and the designing of the adhesive-bonded joint.

With the FE simulation of the adhesive-bonded joints between continuous fibre reinforced thermoplastics, good predictions can be made with a hyperelastic or visco-hyperelastic material model and a relatively simple failure criterion. The validation showed that the methods elaborated for modelling and parameter identification achieved distinct improvements compared with the conventional Arruda-Boyce model.

# WEGENER

Kunststoffschweißtechnik in Perfektion Plastics Welding Technology in Perfection





Modell BM 306A Bending Machine Model BM 306A



Stumpfschweißmaschine Modell SM 348 Butt Welding Machine Model SM 348

Warmgasschweißgeräte Extrusionsschweißgeräte Stumpfschweißmaschinen Biegemaschinen Sondermaschinen Hot Air Welding Tools Extrusion Welders Butt Welding Machines Bending Machines Custom Designed Machines

# Wegener International GmbH Ernst-Abbe-Str. 30 - D-52249 Eschweiler

**C** +49 2403 70484-0

🕒 +49 2403 70484-99

@ info@wegenerwelding.dewww.wegenerwelding.de

