

Projektskizze

zur Vorlage im Gemeinschaftsausschuss Klebstechnik,
Sitzung am 18.06.2024

GK.24.1-2

1. Thema

Methodenentwicklung zur Prüfung der Auswirkungen von Feuchtediffusion in Klebstoffe vor der Aushärtung (*Kurztitel: FeuchteVorAus*)

2. Wissenschaftlich / technische Problemstellung und wirtschaftliche Problemstellung

Durch die vielseitigen Anwendungsgebiete und Einstellungsmöglichkeiten klebtechnischer Systeme entsteht eine branchenübergreifende Bandbreite an Einsatzmöglichkeiten. Gleichzeitig birgt diese Vielseitigkeit eine hohe Anfälligkeit gegenüber verschiedener Prozessstörungen. Während die mechanische oder thermische Fügetechnik durch die Erfassung von Maschinendaten eine gute Möglichkeit zur Prozessüberwachung bieten, ist dies für die Klebstechnik nur begrenzt möglich. Erschwerend kommt hinzu, dass der Klebstoffauftrag gerade in der Fertigung kleiner Stückzahlen oder in KMU häufig händisch erfolgt. Folglich ist die Überwachung der zu erfassenden Metaparameter umso wichtiger. Hierzu zählen nach DIN 2304-1 unter anderem die Umgebungsbedingungen wie Temperatur und Luftfeuchtigkeit [1]. Die Kontrolle dieser Einflussfaktoren ist jedoch äußerst kostspielig oder gar nicht realisierbar. Insbesondere Epoxidharze sind besonders hydrophil, was sie anfällig für eine Feuchteaufnahme vor der Aushärtung macht [2]. Diese Feuchteaufnahme kann die finalen Verbindungseigenschaften massiv verschlechtern [2]. In entsprechenden Situationen wie z.B. dem Teiltransport mit unausgehärteten Klebstoffen vom Zulieferer zum OEM ergibt sich eine deutliche Verzögerung von Klebstoffauftrag und der Klebstoffaushärtung. Solche unvorhergesehenen Verzögerungen traten in jüngster Vergangenheit insbesondere durch Naturkatastrophen, länderübergreifende Krisenzustände oder Pandemie auf. Alle Ereignisse führten zu Stillständen in der Produktion und Logistik. Für unausgehärtete Klebstoffe waren die daraus resultierenden, unkontrollierten Zustände nicht hinnehmbar, was zur Entsorgung der betroffenen Teile führte. Doch bereits in den vom Hersteller vorgesehenen Verarbeitungszeiträumen (häufig 28 Tage) zeigen Klebstoffe vor ihrer Aushärtung eine starke Abhängigkeit von den hygrothermischen Bedingungen. Abbildung 1 zeigt das Temperatur- und Feuchtigkeitsprofil innerhalb eines Speditions-LKW, welcher im Februar 2024 Bauteile von Deutschland nach England transportierte. Hier wird deutlich, dass die erfassten Temperaturen und relativen Luftfeuchtigkeiten weit außerhalb der Normklima-Bedingungen (23°C bei 50% rel. Feuchte) liegen, was zur Beeinträchtigung der mechanischen Eigenschaften führt.

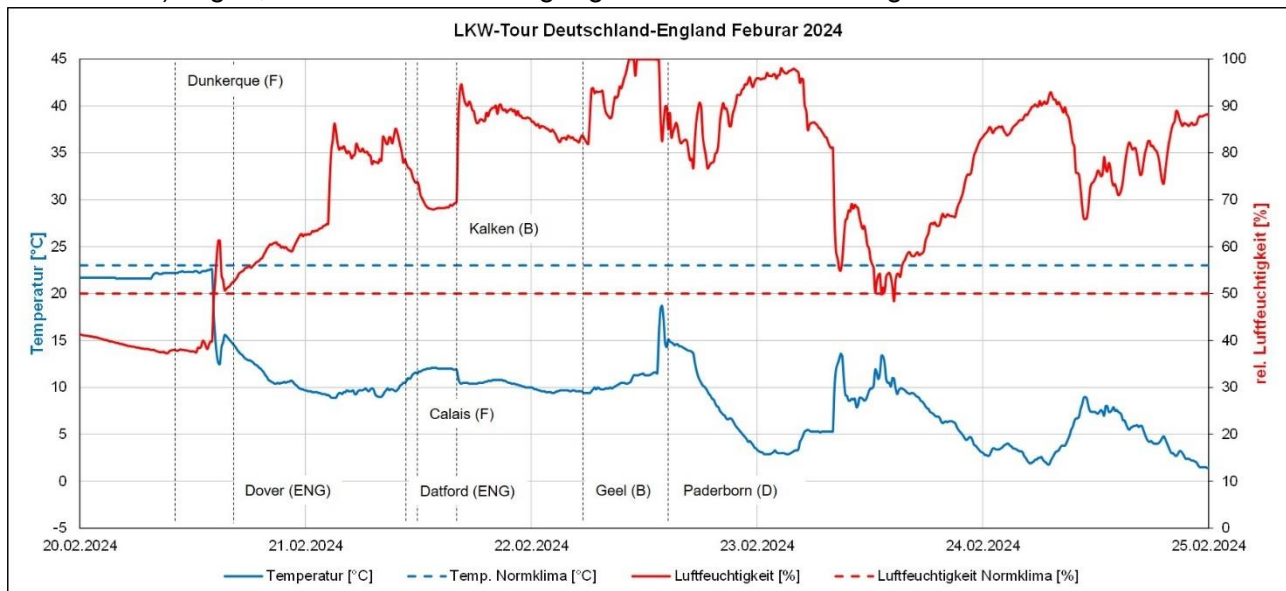


Abbildung 1: Im Laderaum gemessene Temperatur- und Feuchtigkeitsdaten eines fünftägigen LKW-Transports von Deutschland nach England

Phasen mit hoher Luftfeuchtigkeit und Temperatur führen zu einer Feuchtediffusion in den Klebstoff hinein, bis dieser vollständig gesättigt ist. Anschließende trockenere Phasen führen zu einer teilweisen Trocknung und umgekehrten Feuchtediffusion vom Klebstoff in die Umgebung zurück. Folglich ist die Reihenfolge der Zustände, denen der Klebstoff ausgesetzt ist, von zentraler Bedeutung. Damit die Auswirkungen der Umgebungsbedingungen auf den unausgehärteten Klebstoff zuverlässig analysiert und abgesichert werden können, sind zeitintensive Auslagerungen in speziellen Klimaaggregaten erforderlich. KMU, welche ihre Transport- und Lagerbedingungen für Bauteile mit applizierten Klebstoffen qualifizieren möchten, verfügen nicht über die Ressourcen, um entsprechende Prüfungen durchführen zu können. Das Verständnis der auftretenden Diffusionsvorgänge und deren Auswirkungen einerseits sowie die Überwachung der realen Klimadaten andererseits ermöglichen die Entwicklung eines verkürzten Schnelltests von mehreren Monaten auf wenige Wochen. Dieser kann wiederum enorme Wettbewerbsvorteile für die Wirtschaft bedeuten. Vor allem KMU haben die Möglichkeit, modulare Bauteile zu fertigen und diese zu einer Endmontage mit anschließender Klebstoffhärtung zu transportieren. Gleichzeitig steigt die Nachhaltigkeit, da außerplanmäßige Fertigungsausfälle und -Verzögerungen besser bewertet werden können und damit zu reduzierter Entsorgung führen. Ingenieurbüros, welche klebtechnische Fertigungsprozesse auslegen, können die klimatischen Bedingungen gemäß der DIN 2304-1 in der Prozessplanung berücksichtigen und die Klebung entsprechend absichern.

3. Forschungsziel / Ergebnisse / Lösungsweg

Das Gesamtziel des Projektvorhabens besteht darin, eine Methode zur verkürzten Reproduktion realer hygrothermischer Langzeitbeanspruchungen in einer Laborumgebung zu entwickeln. Aufgrund der komplexen Wechselwirkungen innerhalb der Problemstellung liegen dem Projektvorhaben vier Hypothesen zugrunde. Diese stellen gleichzeitig die Leitstruktur für den angestrebten Lösungsweg dar:

1. Analog zu ausgehärteten Klebstoffen und anderen polymeren Strukturen lässt sich für Klebstoffe vor der Aushärtung ein Diffusionskoeffizient bestimmen.
2. Die Feuchtediffusion in Klebstoffen vor deren vollständigen Aushärtung ist teilweise reversibel. Dieser reversible Anteil ist quantifizierbar.
3. Hygrothermische Langzeitbelastungen können durch die Bildung von Lastkollektiven in kürzere Auslagerungszyklen überführt werden.
4. Der Aushärteprozess von warmhärtenden Klebstoffen kann so angepasst werden, dass die negativen Auswirkungen der Feuchtediffusion auf die Verbindungseigenschaften minimiert werden.

Um die Gültigkeit der Hypothesen umfassend zu untersuchen, sind jeweils darauf abgestimmte Versuchsreihen vorgesehen. Im Falle einer Hypothesenbestätigung ergeben sich daraus die folgenden Teilziele, die jeweils zum Gesamtziel des Vorhabens beitragen:

- Ableitung standardisierter hygrothermischer Belastungszustände aus realen Transport- und Lagerbedingungen zu den verschiedenen Jahreszeiten
- Bestimmung des Diffusionskoeffizienten für die zu untersuchenden Klebstoffe im unausgehärteten Zustand
- Ableitung von Strategien zur Nutzung von Trocknungsprozessen, um der übermäßigen Wasseraufnahme vor der Klebstoffaushärtung entgegenzuwirken

In Hinblick auf die KMU-Relevanz ist eine sorgfältige Auswahl an Parameterkombinationen hinsichtlich Temperatur, relativer Luftfeuchte und Auslagerungsdauer vorzunehmen. Die bereits durchgeführten Vorversuche zeigen, auf welche Weise relevante Parameter ermittelt werden können. Auf Basis der real erfassten Daten können erste Grenzen des Parameterspektrums festgelegt werden.

Folglich bewegt sich das Parameterband zwischen Temperaturen von 0 °C bis etwa 40 °C bei einer relativen Luftfeuchtigkeit von 5% bis 95%. Aus Gesprächen mit verschiedenen Industrievertretern ergab sich eine typische Auslagerungsdauer von mehreren Wochen. Unvorhergesehene Ereignisse sind dadurch nicht abgedeckt und führen zu höheren Auslagerungsdauern der unausgehärteten Klebschicht.

Wie die aufgezeigte Bandbreite an möglichen Parameterkombinationen verdeutlicht, ist eine strukturierte Vorgehensweise erforderlich, um die gewünschten Projektziele zu erreichen. Ferner zeigt der aktuelle Stand der Forschung, dass eine vollumfängliche Betrachtung aller Einflussparameter nicht innerhalb eines einzigen Projektes gewährleistet werden kann [4]. Folglich wird in diesem Vorhaben zunächst eine Methodenentwicklung gegeben, die bei Projekterfolg Anwender für weitere Betrachtungen qualifiziert. Daher unterliegt das vorgestellte Forschungsvorhaben den folgenden Randbedingungen. Zur Abbildung der Diffusionsprozesse wird das Fick'sche Modell herangezogen. Dies begründet sich aus der mehrfach erfolgreichen Anwendung in ähnlichen Untersuchungen mit ausgehärtetem Klebstoff, wie zum Beispiel in einem abgeschlossenen Projekt der beantragenden Forschungseinrichtung [10]. Ferner wird die einfach überlappte Scherzugprobe (ESZ) als grundlegende und einzige Probengeometrie verwendet. Dies ist besonders förderlich für den Ergebnistransfer in die Wirtschaft, insbesondere KMU. Das resultierende Arbeitsprogramm ist in sechs Arbeitspakete (AP) untergliedert. Der Zusammenhang der einzelnen AP sowie deren weitere Aufteilung ist in *Abbildung 2* dargestellt.

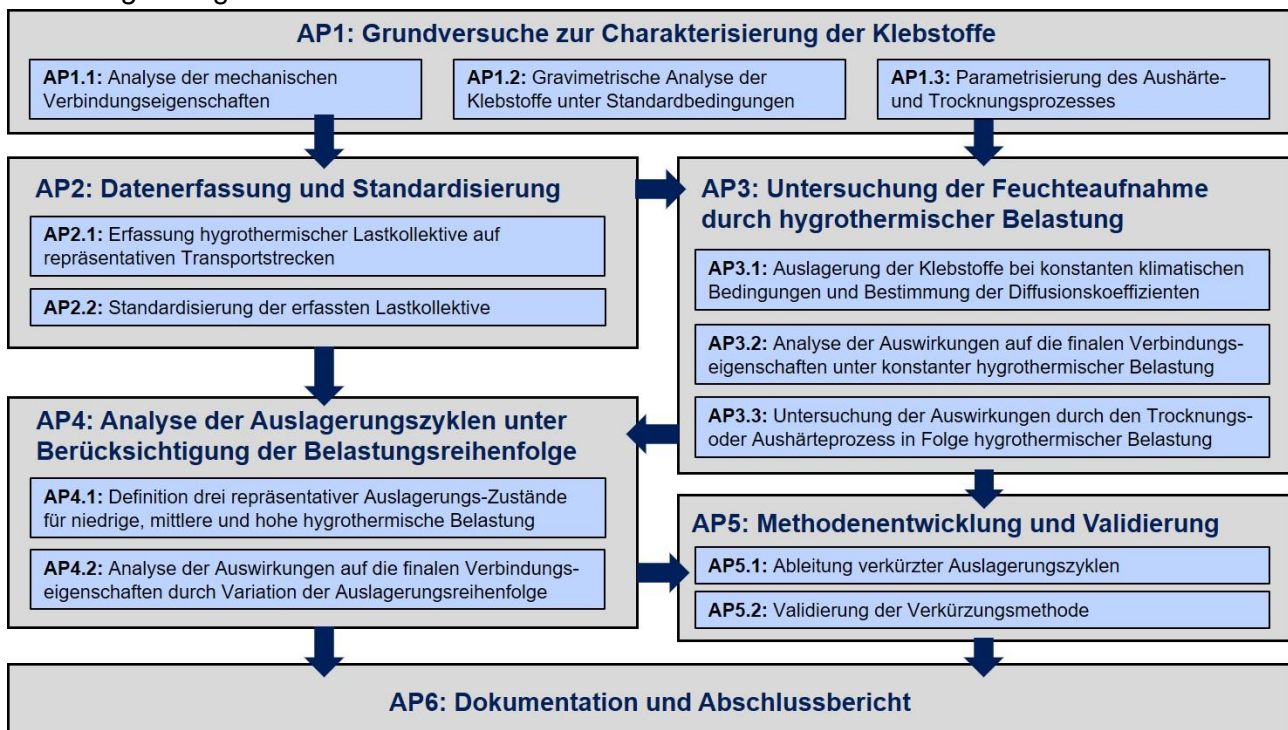


Abbildung 2: Übersicht der Arbeitspakete

In **AP1** erfolgt die Grundcharakterisierung der zu untersuchenden Klebstoffe hinsichtlich ihrer mechanischen und gravimetrischen Eigenschaften unter Standardbedingungen zur Etablierung von Referenzdaten. Insbesondere die in **AP1.2** zu ermittelnden gravimetrischen Eigenschaften der Klebstoffe im Anlieferungszustand sind essenziell für die Beurteilung der weiteren Feuchteaufnahme im unausgehärteten Zustand. Gleichzeitig wird in **AP1.3** der Aushärteprozess hinsichtlich des Energieeintrags parametrisiert. **AP2** dient der Gewinnung standardisierter hygrothermischer Lastkollektive. Hierfür werden in **AP2.1** zunächst hygrothermische Lastkollektive auf repräsentativen Strecken innerhalb Deutschlands und Europas aufgezeichnet. Um verschiedene Szenarien abzubilden, müssten die Strecken sowohl im Sommer als auch im Winter erfasst werden. In **AP2.2** folgt anschließend

die Standardisierung der erfassten Kollektive. Ziel ist es, die klimatischen Bedingungen mittels gängigen Klimaaggregaten möglichst einfach nachbilden zu können. Dabei ist insbesondere auf Änderungsraten der Geräte zu achten, um schnelle Zustandsänderungen wie das Öffnen eines LKW-Laderaums korrekt abbilden zu können. Parallel wird in **AP3** die Feuchteaufnahme infolge hygrothermischer Belastung untersucht. Zunächst werden in *AP3.1* geklebte Proben bei drei verschiedenen, konstanten Temperaturen bei mindestens zwei verschiedenen Luftfeuchtigkeiten ausgelagert, bevor diese im Anschluss ausgehärtet werden. Die Klimata repräsentieren dabei jeweils Zustände in einer Produktionshalle, während des Transports und einer nicht klimatisierten Zwischenlagerung. Die Auslagerung dient der Erfassung der temperaturabhängigen Diffusionskoeffizienten. Zusätzlich werden in *AP3.2* die Auswirkungen auf die mechanischen Eigenschaften der Klebverbindung untersucht. Dabei dient die einfach überlappte Scherzugprobe (ESZ) als Probengeometrie für alle vorgesehenen Versuche zu den mechanischen Verbindungseigenschaften. Auf diese Weise ist eine technologische Relevanz gegeben, ohne den Umfang des Versuchsplans weiter zu vergrößern. Die Reversibilität der Feuchtediffusion wird in *AP3.3* untersucht. Auf Basis der Erkenntnisse aus *AP1.3* und *AP3.1* werden die Auswirkungen von maximal drei Trocknungsstufen vor der finalen Aushärtung quantifiziert. In **AP4** ist die Analyse der Auslagerungsreihenfolge vorgesehen. Hierfür werden in *AP4.1* zunächst die Erkenntnisse aus den erfassten Lastkollektiven (*AP2*) und den Klebstoffauslagerungen (*AP3*) zusammengeführt. Auf dieser Basis werden drei repräsentative, zyklische Auslagerungszustände definiert und deren jeweilige Auswirkungen auf die Verbindungseigenschaften quantifiziert. Die erarbeiteten Zyklen repräsentieren je eine niedrige, mittlere und hohe hygrothermische Belastung. In *AP4.2* hingegen wird der Einfluss der Zyklusreihenfolge auf die finalen Verbindungseigenschaften analysiert. Dadurch werden weitere Erkenntnisse zur Reversibilität der Feuchteaufnahme gewonnen. Im Anschluss wird in **AP5** die angestrebte Methodenentwicklung vorgenommen. Erreicht wird dies über eine Ableitung verkürzter Auslagerungszyklen in *AP5.1*. Die Verkürzung basiert auf der Kombination der zuvor ermittelten Auslagerungszyklen. Die Zyklen werden dabei so kombiniert, dass der gleiche Sättigungszustand des Klebstoffs durch eine beschleunigte Diffusion in kürzerer Zeit erreicht wird. Zur Validierung dieser Methode wird in *AP5.2* ein neues Lastkollektiv aufgezeichnet und mit den erarbeiteten Standardzyklen abgebildet. Der Vergleich beider Auslagerungsmethoden (genaue Replizierung gegen verkürzte Standardzyklen) soll eine Aussage zur Praxis-tauglichkeit der Methode liefern. In **AP6** sind die Projektdokumentation sowie das Verfassen des Abschlussberichts und weiterer Veröffentlichungen angesiedelt.

4. Plan zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft

Aufgrund des starken Interesses der projektbegleitenden Industrie sind sowohl während als auch nach der Projektlaufzeit umfangreiche Maßnahmen zum Transfer in die Wirtschaft vorgesehen. Bereits während des Projekts können die bei Projektpartnern erfassten Lastkollektive und deren Standardisierung mit den Mitgliedern des projektbegleitenden Ausschusses geteilt werden. Neben den im Rahmen des Projektumfangs verpflichtenden Veröffentlichungen in Form von Publikationen und Abschlussbericht ist darüber hinaus ein Transfer der Forschungsergebnisse in die akademische Lehre an der Universität Paderborn geplant. Das Forschungsfeld bietet viele Ansätze für studentische Arbeiten, sodass sich die Studierenden innerhalb dieser intensiv mit dieser Problematik befassen können und an das wissenschaftliche Arbeiten herangeführt werden. Darüber hinaus werden die gewonnenen Erkenntnisse aus dem Forschungsprojekt durch Präsentationen auf nationalen und internationalen Fachtagungen sowie Seminaren und Messen ebenfalls einem breiten Publikum zugänglich gemacht. Bei zuverlässigen Projektergebnissen ist außerdem die Erarbeitung einer Richtlinie zur Auslagerung von Klebverbindungen unter wechselnden hygrothermischen Lasten z.B. in der DVS Arbeitsgruppe V8.3 vorgesehen. Zusätzlich ist ein Anwender-Workshop vorgesehen.

5. Nutzen und wirtschaftliche Bedeutung der angestrebten Forschungsergebnisse für KMU

Insbesondere im Bereich des Automobil- und Fahrzeugbaus sowie im Flugzeugbau sind kleine und

mittlere Unternehmen (KMU) meist in Form von Zulieferern und Ingenieurbüros im Auftrag von OEM vertreten. Diese müssen eine zuverlässige Auslegung bzw. eine zuverlässige Funktion ihrer Produkte unter einem breiten Band an Anforderungen gewährleisten. Dies gilt ebenso für die Abschätzung und Prüfung der Endfestigkeiten von Klebverbindungen, die vor dem Aushärteprozess hygrothermischen Belastungen unterliegen. Ein wichtiger Teil dieser Untersuchungen ist die Durchführung von Auslagerungstests, die sowohl kosten- als auch zeitintensiv sind. Dabei besitzen KMU häufig weder die finanziellen noch die personellen Mittel eine entsprechend aufwendige Forschung effizient zu betreiben. Die im Rahmen dieses Projekts zu erarbeitende Methode zur Verkürzung der Auslagerungsdauern für Klebverbindungen soll eine einfach anzuwendende Unterstützung für die Bewertung und Einschätzung von ungleichmäßig hygrothermisch belasteten Klebverbindungen ermöglichen und branchenübergreifend für KMU nutzbar sein. Die sich daraus ergebende Effizienzsteigerung trägt zu einer Ressourcenschonung und neuen Entwicklungen hinsichtlich robusterer Klebstoffsysteme bei, was einen Wettbewerbsvorteil gegenüber international konkurrierenden Unternehmen bietet.

6. Projektvolumen / Personaleinsatz / Projektlaufzeit

Die Organisation des Forschungsvorhabens verantwortet der Projektleiter des Laboratorium für Werkstoff- und Fügechnik. Die Durchführung des Forschungsprojektes erfolgt durch die Bearbeitung durch wissenschaftliche Mitarbeiter, Laboringenieure und studentische Hilfskräfte für eine Projektlaufzeit von 30 Monaten. Die Projektlaufzeit ergibt sich aus den langen Auslagerungsdauern für die vorgesehenen Parameterkombinationen sowie die Verifizierung der verkürzten Auslagerungszyklen. Für das Personal und sonstige Ausgaben werden finanzielle Mittel in Höhe von 250.000€ benötigt.

AP	Arbeitsschritt	Jahr 1				Jahr 2				Jahr 3	
		Q 1	Q 2	Q 3	Q 4	Q 1	Q 2	Q 3	Q 4	Q 1	Q 2
1	Grundversuche zur Charakterisierung der Klebstoffe										
1.1	Analyse der mechanischen Verbindungseigenschaften										
1.2	Gravimetrische Analyse der Klebstoffe unter Standardbedingungen										
1.3	Parametrisierung des Aushärte- und Trocknungsprozesses										
2	Datenerfassung und Standardisierung										
2.1	Erfassung hygrothermischer Lastkollektive auf repräsentativen Transportrouten										
2.2	Standardisierung der erfassten Lastkollektive										
3	Untersuchung der Feuchteaufnahme durch hygrothermische Belastung										
3.1	Auslagerung der Klebstoffe und Bestimmung der Diffusionskoeffizienten										
3.2	Analyse der ht-Auswirkungen auf die finalen Verbindungseigenschaften										
3.3	Untersuchung der Auswirkungen durch den Trocknung und Aushärtung										
4	Analyse der Auslagerungszyklen unter Berücksichtigung der Reihenfolge										
4.1	Definition repräsentativer Auslagerungszustände für ht-Belastung										
4.2	Analyse der Auswirkungen durch die Variation der Belastungsreihenfolge										
5	Methodenentwicklung und Validierung										
5.1	Ableitung verkürzter Auslagerungszyklen										
5.2	Validierung der Verkürzungsmethode										
6	Dokumentation und Abschlussbericht										

Abbildung 3: Zeitlicher Projektablauf

7. Bisherige Zusammensetzung des PA (KMU):

Dr. Ing. h. c. F. Porsche AG, Sika Technology AG, Nemak Europe, IBEKOR GmbH, EasyGlue Em-den e.K., Carl Zeiss SMT GmbH, as adhesive solutions, AUDI AG, KLEBTECHNIK Dr. Hartwig Lohse e.K., Lohmann GmbH & Co. KG, Walther Klein GmbH & Co. KG, Dr. Lappe & Niemeier Pro-filtechnik GmbH, Mercedes Benz AG

8. Forschungseinrichtung

Laboratorium für Werkstoff- und Fügechnik (LWF) der Universität Paderborn

Pohlweg 47-49, 33098 Paderborn, Tel./Fax: +49 5251 60-3031/-3239, Web: www.lwf-paderborn.de

Leiter der Forschungseinrichtung: Meschut, Gerson, Prof. Dr.-Ing., -3031, meschut@lwf.upb.de

Projektleiter: Hermelingmeier, Lucas, M. Sc., -5284, [hermeling-](mailto:hermeling-meier@lwf.upb.de)

meier@lwf.upb.de

Genehmigt durch den Leiter der Forschungseinrichtung:

Paderborn, den 12.04.2024

Literatur

- [1] DIN 2304-1:2020-04, *Klebtechnik – Qualitätsanforderungen an Klebprozesse – Teil 1: Prozesskette Kleben*, Deutsches Institut für Normung e.V., Berlin, April 2020, doi: 10.31030/3138880.
- [2] Z. Lu, P. Wang, J. Lin, L. Wang und G. Li, *Effect of moisture content in uncured adhesive on static strength of bonded galvanized DP600 steel joints*, International Journal of Adhesion and Adhesives, Bd. 31, Nr. 4, pp. 202-208, 2011.
- [3] Zhang, J., Cheng, X., Gou, X., Bao, J., Huang, W., *Effect on environment conditions on adhesive properties and material selection in composite bonded joints*, International Journal of Adhesion and Adhesives, Bd. 96, 2020.
- [4] Lin, J., Zhingou, L., Yang, H., Wang, P., *A design of experiments assessment of moisture content in uncured adhesive on static strength of adhesive-bonded galvanized SAE1006 steel*, International Journal of Adhesion & Adhesives, Bd. 31, 478-485, 2011.
- [5] Startsev, V.O., Lebedev, M.P., Khrulev, M.V., Frolov, A.S., Nizina, T.A., *Effect of outdoor exposure on the moisture diffusion and mechanical properties of epoxy polymers*, Polymer Testing, Bd. 65, 281-296, 2018.
- [6] Da Costa, J.A., Akhavan-Safar, A., Marques, E.A.S., Carbas, R.J.C., da Silva, L.F.M., *Cyclic ageing of adhesive materials*, The Journal of Adhesion, 98:10, 1341-1357, 2022.
- [7] Zanni-Deffarges, M.P., Shanahan, M.E.R., *Diffusion of water into an epoxy adhesive: comparison between bulk behavior and adhesive joints*, International Journal of Adhesion and Adhesives, Bd. 15, 137-142, 1995.
- [8] Sugiman, S., Setyawan, P.D., Salman, S., Ahmad, H., *Experimental and numerical investigation of the residual strength of steel-composites bonded joints: Effect of media and aging condition*, Composites Part B, Bd. 173, 2019.
- [9] C. D. M. Liljedahl, A. D. Crocombe, M. A. Wahab und I. Ashcroft, *Modelling the Environmental Degradation of the Interface in Adhesively Bonded Joints using a Cohesive Zone Approach*, The Journal of Adhesion, Bd. 82, Nr. 11, pp. 1061-1089, 2006.
- [10] Sander, S., Meschut, G., Kroll U., Matzenmiller, A., *Methodology for the systematic investigation of the hygrothermal-mechanical behavior of a structural epoxy adhesive*, International Journal of Adhesion and Adhesives, Bd. 113, 2022.
- [11] Viana G, Costa M, Banea M, da Silva L., *A review on the temperature and moisture degradation of adhesive joints. Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part L: Journal of Materials: Design and Applications*. 2017;231(5):488-501.