



## **IGF-Forschungsvorhaben Nr. 17434 BR**

Laufzeit: 01.03.2012 – 28.02.2014

gefördert durch das BMWi aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages über die



## **Entwicklung eines Recyclingverfahrens für Reststoffe aus der Papiererzeugung zur Herstellung von Bioverbundstoffen**

### **Schlussbericht**

**März 2014**

Technische Universität Dresden  
Professur für Papiertechnik

Prof. Dr.-Ing. Harald Großmann  
Projektbearbeiter:  
Dr.-Ing. Matthias Wanske  
Paul-Gerhard Weber

Technische Universität Dresden  
Professur für Holz- und Faserwerkstofftechnik

Prof. Dr.-Ing. André Wagenführ  
Projektbearbeiter:  
Frank Jornitz  
Sebastian Siwk

Technische Universität Chemnitz  
Professur Strukturleichtbau und Kunststoffverarbeitung

Prof. Dr.-Ing. habil Lothar Kroll  
Projektbearbeiter:  
Soňa Bürgermeister



# Schlussbericht

zu dem IGF-Vorhaben

**Entwicklung eines Recyclingverfahrens für Reststoffe aus der Papiererzeugung zur Herstellung von Bioverbundstoffen**

der Forschungsstelle(n)

Professur für Papiertechnik, TU Dresden (FS 1)

Professur für Holz- und Faserwerkstofftechnik, TU Dresden (FS 2)

Professur Strukturleichtbau und Kunststoffverarbeitung, TU Chemnitz (FS 3)

Das IGF-Vorhaben 17434 BR der Forschungsvereinigung Kuratorium für Forschung und Technik der Zellstoff- und Papierindustrie im VDP e.V. wurde über die



Im Rahmen des Programms zur Förderung der Industriellen Gemeinschaftsförderung (IGF) vom



Bundesministerium  
für Wirtschaft  
und Energie

aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages gefördert.

Dresden, 31.03.2014

Ort, Datum

Prof. Dr.-Ing. Harald Großmann

Name und Unterschrift des Projektleiters an der  
Forschungsstelle 1

Dresden, 04.04.2014

Ort, Datum

Prof. Dr.-Ing. André Wagenführ

Name und Unterschrift des Projektleiters an der  
Forschungsstelle 2

Chemnitz, 11.04.2014

Ort, Datum

Prof. Dr.-Ing. habil. Lothar Kroll

Name und Unterschrift des Projektleiters an der  
Forschungsstelle 3



## I Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Ausgangssituation (Markt und Rohstoffe)</b> .....	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>Stand der Technik</b> .....	<b>7</b>
2.1	Verbundwerkstoffe .....	7
2.2	Fasern.....	8
2.3	Polymermatrix .....	9
2.4	Interface .....	10
2.5	Naturfaserverstärkter Kunststoff, Wood Plastic Composite und Paper Polymer Composite.....	10
2.6	Herstellungsprozess .....	11
<b>3</b>	<b>Projektentwicklung, Probenmaterial und Versuchsdurchführungen</b> .....	<b>13</b>
3.1	Gliederung des Forschungsprojektes in Arbeitspaketen .....	13
3.2	Projektbegleitender Ausschuss (PbA) und Vorhabenbezogene Aufwendungen der Wirtschaft (vAW).....	13
3.3	Probenmaterialien, Aufbereitungsschritte und Versuchsdurchführungen.....	14
3.3.1	Probenmaterialien.....	14
3.3.2	Aufbereitungsschritte .....	17
3.3.3	Materialprüfungen an Papierreststoffen.....	20
3.3.4	Prüfung der Werkstoffeigenschaften .....	20
<b>4</b>	<b>Forschungsergebnisse und Diskussion</b> .....	<b>21</b>
4.1	Faserstoff- und Prüfblatteigenschaften der Reststoffe aus der Papierherstellung (AP1 und AP2).....	21
4.2	Compoundierung im Heizkühlmischer und Herstellung von WPC/PPC-Prüfkörpern (AP3 und AP4) .....	23
4.3	Bestimmung der Eigenschaften der Verbundwerkstoffe (AP5).....	25
4.4	Evaluierung geeigneter Materialkombinationen und deren Verarbeitung im Technikums-Maßstab (AP6 und AP7) .....	27
4.4.1	Recyclingversuche mit PPC-Werkstoffen .....	27
4.4.2	Verarbeitung der PPC-Werkstoff in Platten-Extrusion .....	29
4.5	Abmusterungsversuche in der Kunststoffindustrie und Herstellung von Demonstratoren ( AP8 und AP9) .....	31
<b>5</b>	<b>Darstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Nutzens der erzielten Ergebnisse</b> .....	<b>32</b>
<b>6</b>	<b>Umsetzung der Projektergebnisse in die Wirtschaft</b> .....	<b>34</b>



## II Abbildungsverzeichnis

Abb. 1:	Marktentwicklung WPC-Produkte .....	5
Abb. 2:	Papier- und WPC-Markt als Spannungsfelder .....	6
Abb. 3:	Überblick Reststoffe der Papierproduktion, deren Menge und Anfallstellen im Herstellungsprozess .....	7
Abb. 4:	Einteilung der Verbundwerkstoffe .....	8
Abb. 5:	HKM und Extruder .....	12
Abb. 6:	Pelletierer/ Granulierer .....	12
Abb. 7:	Probennahmen von Reststoffen in ausgewählten Papierfabriken .....	14
Abb. 8:	Prozesstechnische Darstellung der Trocken-Aufbereitungsverfahren .....	16
Abb. 9:	Darstellung des Herstellungsprozesses PPC .....	17
Abb. 10:	Materialprüfung der Prozesskette PPC .....	19
Abb. 11:	Materialuntersuchungen parallel zu den Prozessstufen .....	20
Abb. 12:	Arbeitsabläufe PPC-Herstellung (Labor) .....	23
Abb. 13:	Heiz-Kühl-Mischer M 35 Fk/KMV 60 links und Granulierer rechts .....	24
Abb. 14:	Minijet Spritzgussmaschine und Wirkprinzip .....	25
Abb. 15:	Vergleich der Eigenschaften ausgewählter Verbundwerkstoffe .....	25
Abb. 16:	WPC/PPC Vergleich - Zugfestigkeit und Zug-E-Modul .....	26
Abb. 17:	WPC/PPC-Vergleich: Biegefestigkeit und Masseänderung in 24 h .....	26
Abb. 18:	Ablauf des Recyclingversuches PPC-Werkstoffe .....	27
Abb. 19:	Oberflächengüte der Prüfkörper 0.-3. Zyklus und Granulat des ursprüngliche Compounds im Vergleich zum Mahlgut des 3. Zyklus .....	28
Abb. 20:	Zugversuch - Einfluss der Recyclingzyklen .....	28
Abb. 21:	Schlagzähigkeitsversuch - Einfluss der Recyclingzyklen .....	29
Abb. 22:	Fließverhalten von PPC mit Extrusionsdüse 350 x 2,35 mm .....	30
Abb. 23:	Fließverhalten der PPC-Schmelze in Abhängigkeit vom Düsenpalt .....	30
Abb. 24:	Muster von Spritzgussteilen aus der Projektarbeit .....	32
Abb. 25:	Vergleich des Energiebedarfs der Trocknungsverfahren A3 und A5 .....	33
Abb. 26:	Vergleich des Energiebedarfs ausgewählter Compounds .....	33





### III Tabellenverzeichnis

Tab. 1:	Mechanische Eigenschaften von Holzfasern und anderen Naturfasern im Vergleich zur Glasfaser, aus [6], [8], [9].....	9
Tab. 2:	Vergleich ausgewählter Eigenschaften von PP und CAB, aus [29].....	16
Tab. 3:	Parameter zur Probekörper-Herstellung abhängig vom Matrixpolymer.....	18
Tab. 4:	Faserstoff- und Prüfblatteigenschaften der Reststoffe aus der Papierherstellung ausgewählter Papierfabriken .....	21
Tab. 5:	Ausgewählte Versuchsreihen zur WPC/ PPC-Herstellung .....	24
Tab. 6:	Extrusionsparameter beim Einschneckenextruder Collin Typ E 20Px30D bei Variation der Düsenpaltdicke .....	30
Tab. 7:	Herstellungskosten in ct/kg für PPC 30 FS/70 PP .....	34
Tab. 8:	Transfermaßnahmen .....	34
Tab. 9:	Nutzen der Forschungsergebnisse für die Zielgruppen .....	35



## **Zusammenfassung:**

Produkte aus Naturfaserverstärkten Kunststoffen (NFK) stellen weltweit einen Wachstumsmarkt dar. Vor allem in Nordamerika und China entwickelt sich der Absatz solcher Produkte rasant. Die wesentliche Ressource für die benötigten Naturfasern in Wood-Polymer-Composite (WPC) sind Abfälle aus der Holzverarbeitenden Industrie (Sägewerke) in Form von Holzmehl. Der Wettbewerb um diesen vielseitig einsetzbaren Rohstoff hat sich zuletzt deutlich verschärft.

Dagegen besteht für viele kleine und mittlere Papierhersteller, welche Altpapier recyceln, das Problem der Entsorgung der Reststoffe aus der Altpapieraufbereitung. Oft müssen solche Reststoffe einem Entsorgungsunternehmen teuer übergeben werden.

Das Forschungsprojekt beschäftigt sich mit der stofflichen Nutzung solcher Reststoffe aus der Papierherstellung in Naturfaserverstärkten Kunststoffen, welche allgemein als Paper-Polymer Composites (PPC) bezeichnet werden können.

Durch eine Nutzung der Reststoffe bei der Herstellung von Composites ergeben sich folgende Vorteile:

- monetäre Entlastung der Papierhersteller durch die stoffliche Verwertung;
- geringerer Einsatz petrochemischer Kunststoffe in den Faserverbundwerkstoffen durch Fasersubstitution;
- gezielte Steuerung der Eigenschaften der PPC durch die Reststoffaufbereitung und Reststoffauswahl

Im Rahmen des Projektes wurden die Reststoffe unterschiedlicher Papierfabriken untersucht, wobei Grobrejekte, Fangstoffe und Deinkingabfälle in den Untersuchungen berücksichtigt wurden. Die gesammelten Reststoffe wurden getrocknet, mit Kunststoffen compoundingiert und granuliert und dann labormäßig im Spritzgussverfahren zu Prüfkörpern weiterverarbeitet.

Die Zusammenarbeit des Instituts für Holz- und Papiertechnik an der TU Dresden mit dem Institut für Strukturleichtbau und Kunststoffverarbeitung an der TU Chemnitz ermöglichte die Durchführung der erforderlichen Arbeiten vom Reststoff bis zum fertigen Demonstrator aus Naturfaserverstärktem Kunststoff, also die Abbildung der gesamte Prozesskette.

Die Demonstratoren bilden die Basis zur Identifikation neuer Einsatzfelder solcher Werkstoffe bzw. zur Eignungsprüfung für bereits bekannte Einsatzgebiete.

Das Forschungsziel wurde erreicht.

## **Danksagung**

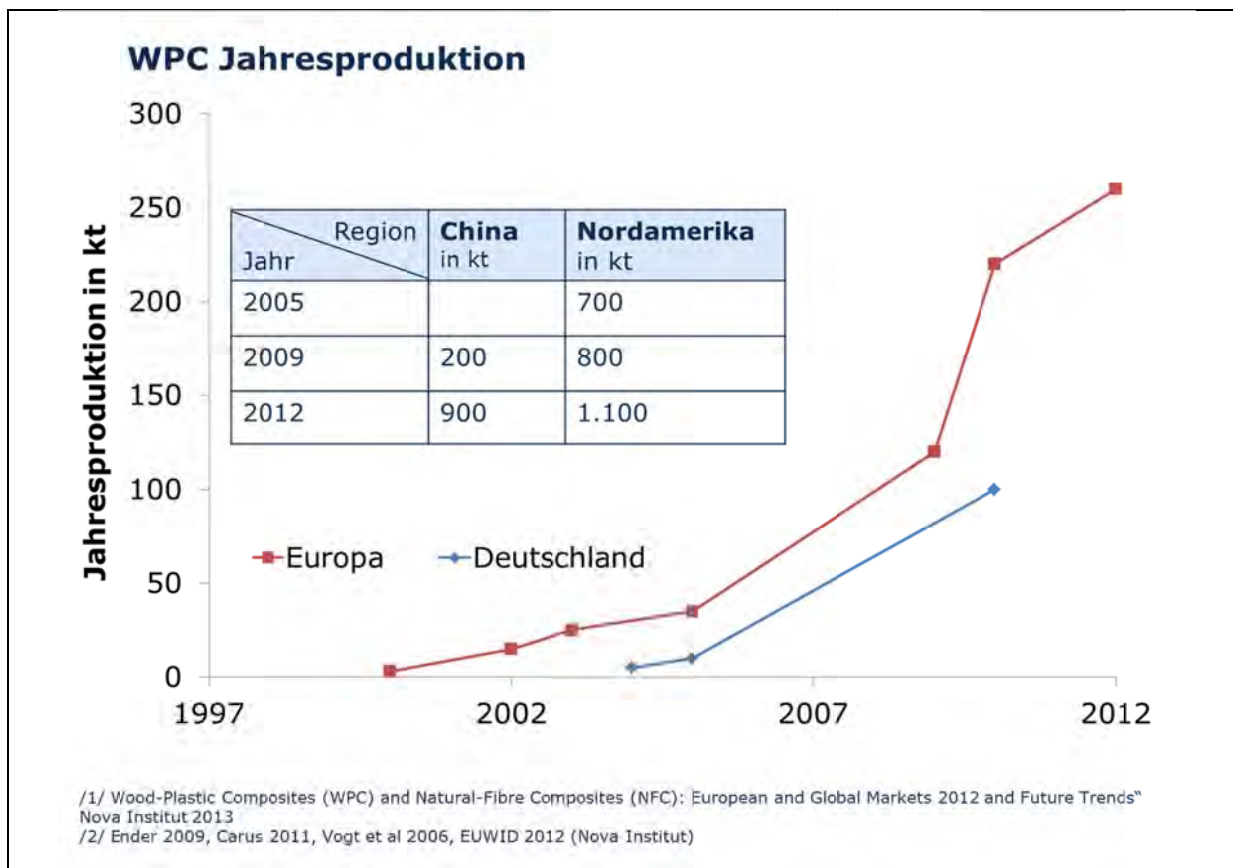
Das Forschungsvorhaben IGF-Nummer 17434BR wurde durch die Arbeitsgemeinschaft industrieller Forschungsvereinigungen "Otto von Guericke" e.V. mit finanziellen Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Energie gefördert. Dafür sei an dieser Stelle gedankt.

## 1 Ausgangssituation (Markt und Rohstoffe)

Das wachsende Umweltbewusstsein bei der Herstellung und Verarbeitung von Werkstoffen sowie politische Rahmenbedingungen unterstützen die Bemühungen die erdölbasierenden Materialien (v.a. Kunststoffe) zu ersetzen. Dies führt zu einem stetig wachsenden Markt der Biopolymere und NFK. Dabei werden vor allem der Kunststoff Polypropylen (neben PE, PVC) mit Naturfasern verstärkt bzw. werden die erdölbasierte Kunststoffe gänzlich durch Biopolymere (vor allem PLA neben PHB und CP u.) ersetzt.

Der Markt dieser innovativen Biowerkstoffe ist in den letzten Jahren jährlich zweistellig gewachsen. Vor allem in China und Nordamerika wird eine rasant steigende Nachfrage beobachtet (Abb. 1).

Wesentliche Einsatzgebiete von NFK sind der Terrassenbau sowie die Möbel- und Automobilindustrie. Verbünde mit biologisch abbaubaren Kunststoffen (z. B. PLA) werden dagegen aufgrund ihrer Kurzlebigkeit ausschließlich für Produkte im Verpackungs- und Cateringbereich eingesetzt. In den USA, Kanada und Asien werden WPCs insbesondere im Baubereich als Deckings und Railings angeboten. Dabei kommen in Nordamerika überwiegend PE und in Asien PVC als Matrixmaterial zum Einsatz.



**Abb. 1: Marktentwicklung WPC-Produkte**

Wood-Polymer-Composites (WPC) bestehen aus einem Matrixpolymer, welche erdölbasierend ist oder biogenen Ursprungs sein kann, mit einem bestimmten Anteil Holzmehl als biobasierter Faserfüllstoff. Hinzu kommen je nach Anwendungsfall Additive wie Haftvermittler und Gleitmittel.

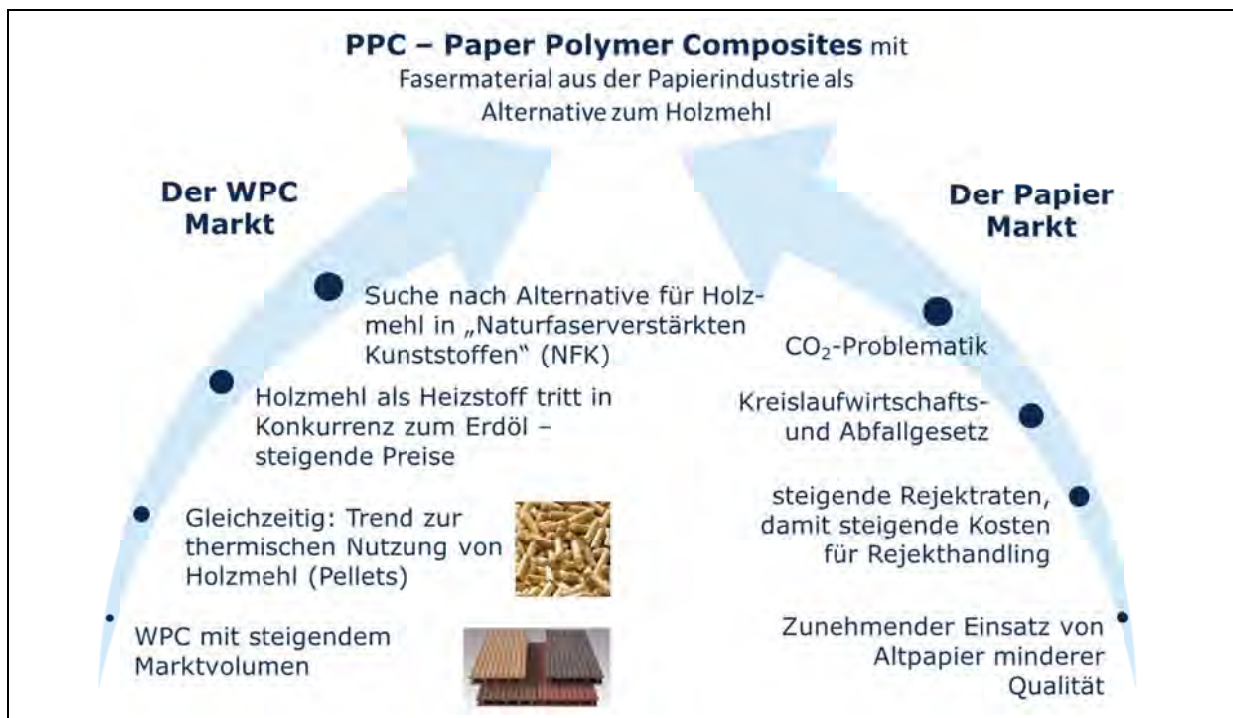
Wird das Holzmehl durch z. B. faserhaltige Reststoffe der Papierindustrie ersetzt, so spricht man von Paper-Polymer-Composites (PPC).

Derzeit sind zwei (Markt)Trends zu beobachten, welche den Sinn nach der oben genannten Substitution nahelegen, bzw. eine sinnvolle Ergänzung zur Etablierung einer breiteren Eigenschaftspalette faserverstärkter Kunststoffe bieten.

Der WPC-Markt ist durch eine rasant steigende Nachfrage nach Materialien aus faserverstärkten Kunststoffen gekennzeichnet. Gleichzeitig wird Holzmehl mehr und mehr zu Pellets verarbeitet, um diese einer thermischen Verwertung zu zuführen. Ein wesentlicher Rohstoff der WPCs konkurriert demnach mit dem ebenfalls wachsenden Bedarf an „CO<sub>2</sub>-neutralem“ Brennstoff. Die sich daraus ergebende Verteuerung des Holzmehls führt zu dem Wunsch der WPC-Hersteller nach einer möglichen Füllstoffalternative bzw. -ergänzung.

Auf der anderen Seite sind Papierfabriken mit dem Fakt von Altpapier immer geringerer Qualität konfrontiert. Dieser Qualitätsverlust führt zu größeren Rejektmengen in den Fabriken ohne die dafür steigenden Kosten nennenswert an die Verbraucher weitergeben zu können.

Gerade kleine und mittlere Papierfabriken mit einer jährlichen Papierproduktion < 200.000 t sind nicht in der Lage, diese Rejekte selbst geeignet zu verarbeiten. Wobei das Verarbeiten sich zumeist auf eine thermische Nutzung beschränkt. Diese Papierfabriken sind gezwungen, die Rejekte teuer einem professionellen Abfallverwerter zu übergeben. Ziel wäre aber eine stoffliche Verwertung der Rejekte, da dieses zum einen eine deutlich größere Wertschöpfung bedeuten würde, zum anderen aber auch den Wunsch nach einem ökologisch korrektem Umgang mit den Reststoffen entspräche.



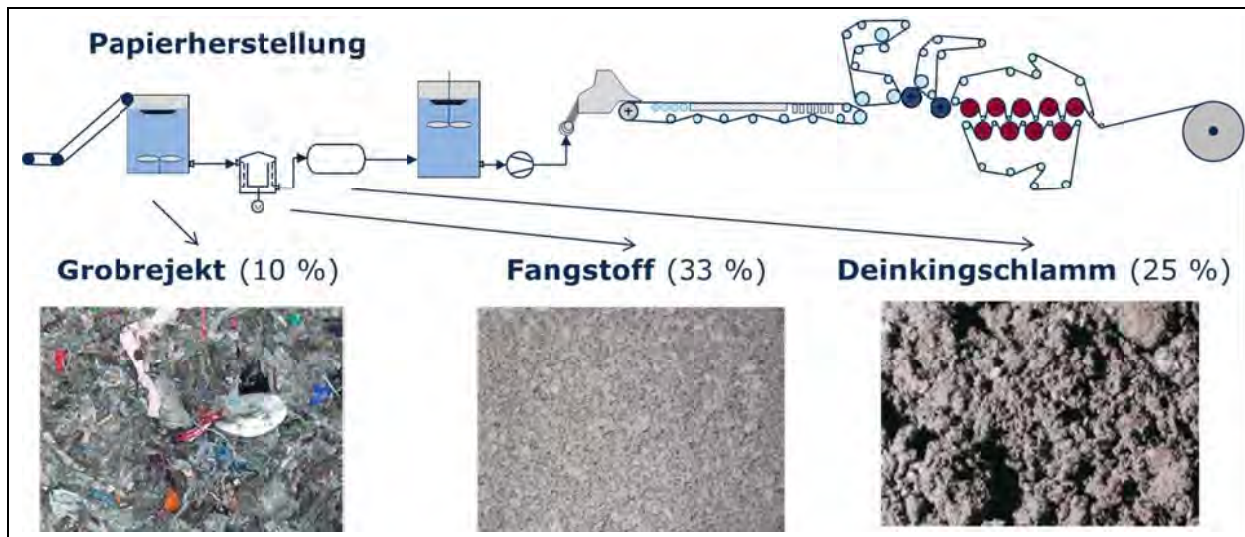
**Abb. 2: Papier- und WPC-Markt als Spannungsfelder**

Beide skizzierten Trends (Abb. 2) führen zu den Fragen, welchen sich Wissenschaftler der TU Dresden (Institut für Holz- und Papiertechnik) sowie der TU Chemnitz (Strukturleichtbau und Kunststofftechnik) im Rahmen eines von der AiF-IGF für 2 Jahre geförderten Projektes gestellt haben [1]:

1) Sind die faserhaltigen Reststoffe der Papierindustrie für eine Verwendung in Faserverbundwerkstoffen geeignet?

- 2) Falls ja, in wie weit können so hergestellte Faserverbundwerkstoffe eine Ergänzung der auf dem Markt befindlichen WPC-Produkte darstellen?
- 3) Ist es vielleicht möglich das Holzmehl der WPC durch die Reststoffe der Papierindustrie zu substituieren?

In Deutschland fallen bei der Produktion von Recyclingpapier jährlich etwa 4,6 Mio. Tonnen Reststoffe an [2]. Diese können in sogenannte Grobrejekte (ca. 10 %), Fangstoffe (ca. 33 %) und Deinkingschlämme (ca. 25 %) unterschieden werden (Abb. 3).



**Abb. 3: Überblick Reststoffe der Papierproduktion, deren Menge und Anfallstellen im Herstellungsprozess**

Grobjekte (AVV 030307) beinhalten sehr wenige Fasern, dafür viele Kunststoffe, Metall und andere durch Fehlwürfe bei der Altpapiersammlung erzeugte Fraktionen. Diese Reststoffgruppe eignet sich nicht für die Verarbeitung als Füllstoff in faserverstärkten Kunststoffen.

Fangstoffe (AVV 030310) bestehen überwiegend aus Fasermaterial aus der Feinsortierung und müssten sich potenziell sehr gut für eine Weiterverarbeitung in NFK eignen.

Ist ein Prozessschritt zur Druckfarbenentfernung in der Papierfabrik integriert, wie es bei der Herstellung von grafischen Druckpapieren notwendig ist, so fallen zusätzlich Deinkingschlämme (AVV030305) an. Diese bestehen etwa zu 1/3 aus Fasermaterial und zu 2/3 aus anorganischen Partikeln.

Die Arbeiten im Projekt konzentrierten sich auf die beiden letztgenannten Reststoffgruppen sowie den Vergleich der daraus herstellbaren PPCs mit entsprechenden WPCs.

## 2 Stand der Technik

### 2.1 Verbundwerkstoffe

Die Kombination verschiedener Komponenten zu einem Werkstoff charakterisiert einen Verbundwerkstoff. Diese werden als Materialien bezeichnet, deren kontinuierliche Phase eine Polymermatrix bildet und deren diskontinuierliche Phase aus Verstärkungsfasern oder Füllstoffen besteht [3]. Durch die Vereinigung verschiedener Werkstoffe können Produkte mit auf die jeweilige Anwendung genau zugeschnittenen Eigenschaften hergestellt werden [4].

Schürmann verwendet den Begriff *Faser-Kunststoff-Verbund* (FKV) eindeutig nur für Bauteile mit Faserlängen über 25 mm. Bei der Trennung der Begriffe von einander durch die Bindestriche wird dem Autor zufolge die gleichberechtigte Funktion der Komponenten deutlich. Der Begriff *faserverstärkter Kunststoff* steht diesbezüglich für eine einseitige verstärkende Wir-

kung der Faser [5]. Andere Autoren verwenden die Begriffe Faserverbundwerkstoff (FVW) und Faserverbundkunststoff (FVK) sowohl für Faserverbunde mit Faserlängen unter als auch über 25 mm. Die in dieser Arbeit genauer betrachteten PPC und WPC sind den Kurzfaserverbunden zuzuordnen, die nach Ehrenstein etwa 10 % des Marktvolumens der FVW ausmachen.

Die Verbundwerkstoffe im Themenbereich der Holz- und Faserwerkstoffe werden von Gottlöber u. a. in Teilchenverbundwerkstoffe, Faserverbunde und Schichtverbunde eingeteilt (Abb. 4). Die WPC können wegen des enthaltenen Holzmehls oder der Holzfasern den NFK und diese wiederum den Faserverbundwerkstoffen zugeordnet werden.

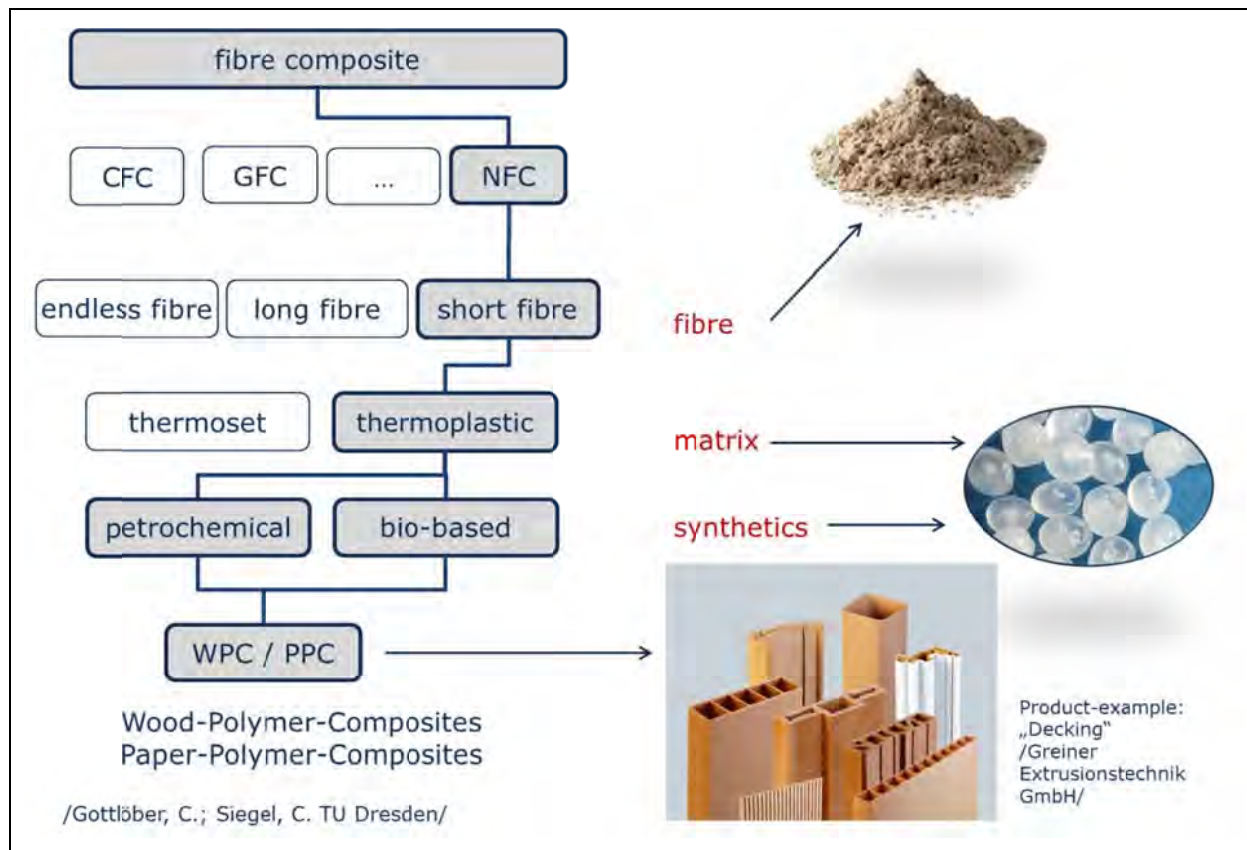


Abb. 4: Einteilung der Verbundwerkstoffe

## 2.2 Fasern

Durch das Einbringen der Fasern in einen Werkstoff können Veränderung der Eigenschaften, beispielsweise eine Festigkeits- und Steifigkeitserhöhung des FVW, erreicht werden. Die Art und Stärke der Änderungen der Eigenschaften hängt von der Auswahl der Fasern ab. Hierbei ist neben der Art (natürlich, synthetisch, anorganisch, organisch) und deren Eigenschaften wie Festigkeit und Steifigkeit, die Länge der Faser entscheidend:

- Kurzfaser:  $l \approx 0,1 - 1 \text{ mm}$
- Langfaser:  $l \approx 1 - 50 \text{ mm}$
- Endlosfaser  $l \approx l > 50 \text{ mm} : \lambda = l/d \rightarrow \infty$

Diese Einteilung der Faserlänge nach Schürmann beinhaltet den Schlankheitsgrad  $\lambda$  der Faser, eine morphologische Kenngröße beschrieben durch das Verhältnis der Faserlänge zu deren Dicke oder Breite. Eine Verstärkungsfaser mit einem auch Faserformfaktor genannten Schlankheitsgrad  $\lambda$  über dem Wert 50 kann eine Verstärkung des Bauteiles bewirken, wäh-

rend ein Material mit geringerem Schlankheitsgrad als Füllstoff dient [6]. Statt der Bezeichnungen Faser- und Füllstoff nennt Grüneberg verstärkende, *aktive*, und füllende, *inaktive*, Komponenten [7].

**Tab. 1: Mechanische Eigenschaften von Holzfasern und anderen Naturfasern im Vergleich zur Glasfaser, aus [6], [8], [9]**

	<b>Nadelholz</b>	<b>Laubholz</b>	<b>Flachs</b>	<b>Hanf</b>	<b>Glas</b>
Dichte in g/cm <sup>3</sup>	0,3 - 0,88	0,3 - 0,59	1,5 - 1,54	1,48	2,5
Zugfestigkeit in MPa	51 - 120,7	45,5 - 111,7	450 - 1500	690 - 873	2000 - 3000
E-Modul in GPa	5,2 - 15,6	3,6 - 14,3	27,6 – 38	9,93	70
Bruchdehnung in %	-	-	1,5 - 3,2	1,6 - 4,7	0,5 - 4,8
Schlankheitsgrad $\lambda$	65 - 100	36 - 65	300	200	bis $\infty$

**WPC:** Die Holz-Polymer-Werkstoffe werden selten mit Holzfasern, sondern meistens mit Holzmehl hergestellt. Das Holzmehl ( $\lambda = 1$ ) ist nach der Definition von Vogt ein Füllstoff, wodurch die Werte der Eigenschaften daraus hergestellter WPC unter den Eigenschaftswerten der NFK liegen [6].

**PPC:** Dagegen liegt der Schlankheitsgrad der Faserstoffe, die für die PPC-Werkstoffe verwendet wurden, mit 40-50 an der untersten Grenze, der in der Literatur für die Eignung als Verstärkungsfaser angegeben wird. [10]

### 2.3 Polymermatrix

Die Matrix ist ein Kunststoff mit dem die Fasern imprägniert werden um nach der Verarbeitung und Konsolidierung der Komponenten ein formstabiles Bauteil zu erlangen. Aufgaben der Matrix von FVK sind:

- Einleiten der Kräfte in die Fasern
- Überleiten der Kräfte von Faser zu Faser
- Sicherung der geometrischen Lage der Fasern im Bauteil und der Bauteilgestalt
- Schutz der Fasern vor Umgebungseinflüssen

Auch bei den Matrixmaterialien steht eine Vielzahl an Werkstoffen zu Verfügung, wobei für FVK Thermoplaste oder Duroplaste eingesetzt werden [3]. Während Duroplaste wegen des chemischen Prozesses bei deren Verarbeitung nicht wiederholt formbar sind, können Thermoplaste, durch Aufschmelzen und Erstarren, ohne wesentliche Verschlechterung der Eigenschaften, mehrfach angewendet werden [11].

**Petrochemische Kunststoffe:** Als Matrix für Bioverbundkunststoffe werden zu über 80 % Thermoplasten verwendet. Die wichtigsten Vertreter sind die Polyolefine Polyethylen (PE) und Polypropylen (PP), sowie Polyvinylchlorid (PVC). Die bevorzugte Anwendung aller genannten Kunststoffe begründet sich mit den relativ geringen Zersetzungstemperaturen der Naturfasern, an die der Kunststoff mit dessen Verarbeitungstemperatur angepasst wird [12]. Da viele Erfahrungswerte über diese Kunststoffe vorhanden sind, kann durch deren Anwendung besser auf die speziellen Eigenschaften und Verhaltensweisen der natürlichen Füll- und Faserstoffe eingegangen werden.

Vergleicht man diese Kunststoffe in Anbetracht der WPC-Anwendung ist die hohe Zähigkeit des PE für Einsätze bei niedrigen Temperaturen im Außenbereich vorteilhaft. Die gute Verarbeitbarkeit des PE entsteht durch dessen gute Gleiteigenschaften die sich bei der Profilextrusion vorteilhaft auswirken. PP kann durch dessen Anwendung bei hohen Umgebungstemperaturen bis 110 °C und der geringsten Dichte überzeugen. Bei der Verarbeitung ist jedoch darauf zu achten, die Polymerketten des PP nicht durch zu hohe Temperaturen, Sche-



rung und Verweilzeiten in der Verarbeitungsmaschine zu schädigen. Vorteile des PVC liegen in dessen Beständigkeit gegenüber vielen Säuren, Laugen und nicht polaren Lösungsmitteln. Durch die Polarität des PVC sind für eine Füllstoff-Matrix-Haftung bei der Herstellung von WPC keine Haftvermittler notwendig.

**Biokunststoffe:** Ziel des angesprochenen Projektes ist neben der Verwendung von Naturfasern die Verwendung von biologischem Matrixmaterial. Gerade wegen der häufigen Verwendung des Begriffes Biowerkstoff oder Biokunststoff, soll dessen Bedeutung definiert werden. Gemäß dem Kunststoffverband European Bioplastic sind Biokunststoffe bioabbaubar oder biobasiert oder beides [13]. Endres zufolge macht ein Biopolymer mindestens eine der folgenden Eigenschaften aus [14]:

- Zusammensetzung aus biobasierten (nachwachsenden) Rohstoffen
- Biologische Abbaubarkeit

Die meisten Biokunststoffe basieren auf nachwachsenden Rohstoffen, wie Stärke, Cellulose oder Milchsäure. Je nach Zusammensetzung sind diese von verschiedenen langer Lebensdauer und können nach der Nutzung zum Teil vollständig, in Wasser (H<sub>2</sub>O) und Kohlenstoffdioxid (CO<sub>2</sub>) zerlegt werden.

Neben Celluloseacetat (CA) und Cellulosepropionat (CP), ist auch das Celluloseacetobutyrat (CAB) ein Ester der Cellulose und besitzt aliphatische Carbonsäuren. Zum Abbau dieser Biokunststoffe dienen vorrangig Mikroorganismen, wie Bakterien, Enzyme oder Pilze [15].

## 2.4 Interface

Das Interface ist die Grenzschicht zwischen Verstärkungsfaser und Polymermatrix und ist maßgeblich für die mechanischen Eigenschaften der Biocomposites verantwortlich. Eine gute Adhäsion im Interface, also in der Grenzfläche zwischen Faser und Matrix, resultiert in einer guten Kraftübertragung vom Polymer in die Faser und zwischen den Fasern. Folglich hat das Interface folgende Aufgaben, um die mechanischen Eigenschaften des Verbundwerkstoffes zu verbessern:

- Intralaminare Spannungsankopplung Faser/Matrix
- Oberflächenschutz der Faser
- Haftvermittlung durch gute Adhäsion [16]

Die Adhäsion im Interface ist jedoch zumeist erschwert, da sich die polaren, hydrophilen Fasern mit den völlig hydrophoben Polymeren, wie z.B. PP und PE, chemisch sehr unähnlich sind und unterschiedliche Oberflächenspannungen zu geringen Wechselwirkungen zwischen diesen Komponenten führen.

## 2.5 Naturfaserverstärkter Kunststoff, Wood Plastic Composite und Paper Polymer Composite

Die Eigenschaften der Bioverbundwerkstoffe werden von verschiedenen Faktoren beeinflusst. Da die Faser die lasttragende Komponente ist, bestimmt sie im Wesentlichen die mechanischen Eigenschaften wie z.B. Zug- und Biegefestigkeit, weshalb die Fasereigenschaften eine große Rolle spielen. Neben der Sicherung der Faserlage ist die Hauptaufgabe die Kraftübertragung durch das Interface. Demzufolge ist das mechanische Eigenschaftsspektrum der Biocomposites eine Funktion der Kraftübertragung zwischen Faser und Matrix im Interface [17].

Ein Forschungsschwerpunkt bei der Herstellung von Bioverbundwerkstoffen ist, die Adhäsion zwischen den Fasern und der Polymermatrix zu verbessern. Durch eine verbesserte Adhäsion

on im Interface ist ein Anstieg der Zugfestigkeit und des Zug-Moduls zu erwarten, während Schlagzähigkeit und Biegeeigenschaften abnehmen [18], [19], [20]. Im Gegensatz dazu könnten geringe Adhäsionskräfte und ein „weicheres“ Interface verstärkt Rissausbreitungen kompensieren und somit die Bruchkraft erhöhen. Das Problem die Adhäsion zu verbessern, liegt sowohl an unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der Fasern im Vergleich zum Polymer, als auch an der Oberflächenstruktur und etwaigen anderen Bestandteilen an der Faseroberfläche, wie z.B. Wachse.

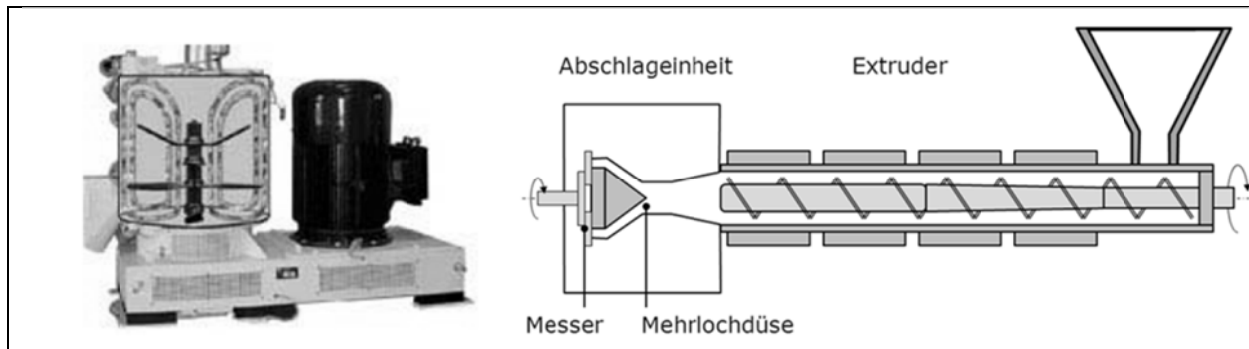
Auch die Feuchte hat einen großen Einfluss auf das Benetzungsverhalten und der möglichen Ausbildung von Mikroporen an der Fläche zwischen Faser und Matrix. Sowohl Wasser als auch bei der Verarbeitung durch Wasserverdampfung entstandene Blasen wirken als Trennmittel in der Faser-Matrix-Grenzschicht und behindern die Kraftübertragung erheblich, was zu schlechten Festigkeitseigenschaften der Bioverbunde führt. Daher ist eine Trocknung der Naturfasern vor dem Verarbeitungsprozess unvermeidlich und kann die mechanischen Eigenschaften des Composite, vor allem durch die verringerte Anzahl von Mikroporen an der Faseroberfläche, um bis zu 20 % verbessern [21]. Die hohe Oberflächenspannung und Hydrophilie der Fasern erschwert eine Benetzung der Oberfläche durch das unpolare, hydrophobe Polymer. Ziel bei der Generierung eines Bioverbundwerkstoffes muss also sein, die chemischen Eigenschaften der Einzelkomponenten anzugleichen und die Oberflächenstruktur der Fasern zu verbessern.

Da die stark polaren Naturfasern mit der hydrophoben Polymermatrix weitestgehend inkompatibel sind und dadurch der Krafttransfer im Interface gemindert wird, sind unterschiedliche Verfahren zu Fasermodifikation entstanden. Es gibt viele Theorien zur Adhäsion zwischen Faser und Matrix, eine genaue Bindungstheorie ist aber in der Literatur nicht definiert. Die Haftvermittlung zwischen Faser und Polymer stellt ein komplexes Problem dar und kann nicht allein mit chemischen Bindungen erklärt werden. In den meisten Fällen ist es möglich, zwei inkompatible Materialien durch einen Haftvermittler (HVM) anzugleichen, welcher entweder Eigenschaften beider Komponenten vereint oder dessen Eigenschaftscharakteristik zwischen denen der Verbundkomponenten liegt. Aber auch andere Formen der chemischen Vorbehandlung von Fasern zeigen Verbesserungen in der Haftvermittlung und folglich verbesserte Eigenschaften der Biocomposites [22].

## 2.6 Herstellungsprozess

**Compoundierung:** Durch die Compoundierung wird die Faser mit der Kunststoffkomponente verbunden. Dies kann zusammen mit der eigentlichen Formgebung in einem einstufigen Prozess zusammengefasst werden (Direktverfahren) oder als eigener Prozess vor der Formgebung ablaufen (zweistufiges Verfahren). Bei den zweistufigen Prozessen werden die Komponenten in einem Heiz-Kühlmischer (HKM) diskontinuierlich gemischt und bis zur Schmelztemperatur des Thermoplasts erhitzt und durchmischt. Hierbei wird wiederum ein einstufiger von einem zweistufigen Prozess unterschieden. Entweder werden die zu compoundierenden Komponenten gleichzeitig (einstufig) in den HKM gegeben oder der thermoplastische Kunststoff wird bis zu dessen Mischungstemperatur erhitzt, bevor die Faser- oder Füllmaterialien (zweistufig) zugegeben werden [23]. Das entstehende Agglomerat wird im Anschluss gekühlt und zerkleinert, wodurch das Granulat entsteht [16], [24].

Alternativ zum HKM kann Granulat auch kontinuierlich in einem gleichlaufenden Zweisechneckenextruder hergestellt werden, indem rieselfähige Ausgangsstoffe unter Druck und Temperatur vermischt werden (Abb. 5)



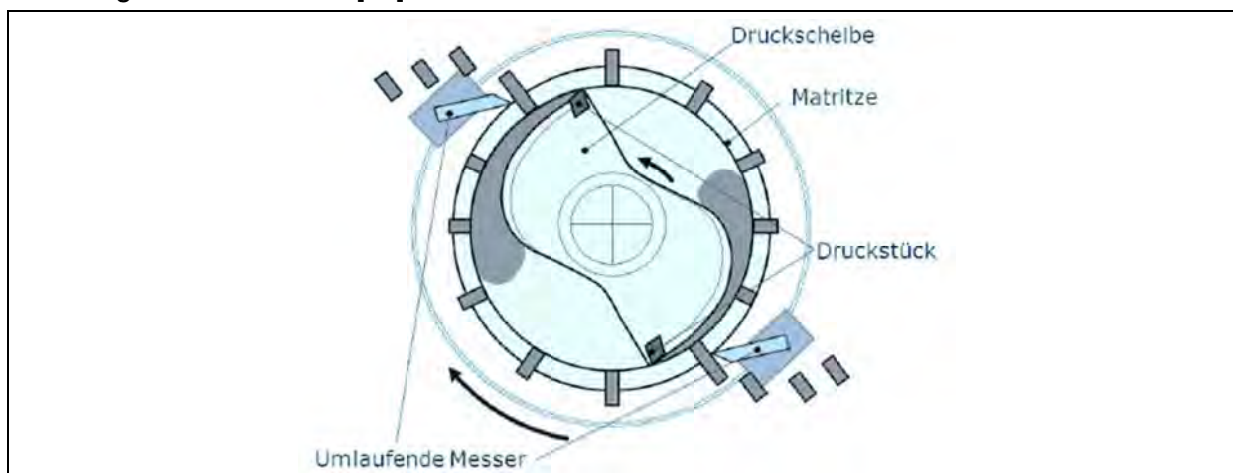
**Abb. 5: HKM und Extruder**

Der Schneckenextruder wird hierbei als Plastifizier-Aggregat genutzt, um das Material aufzuschmelzen und nach dem Homogenisieren in der Schnecke durch eine Mehrlochdüse zu drücken und abzuschlagen, wodurch das Granulat entsteht. Bei industriellen Anwendungen wird das Granulat meist durch Unterwasser- oder Kühlluftgranulatoren hergestellt [25].

Durch den Extruder entstehen intensivere Vermischungen als im HKM und die Faser oder Füllstoffe müssen nicht vorgetrocknet werden, wenn axial offene Schneckengänge eine effektive Entgasung bieten [24]. Nach dieser ersten Stufe können die Granulate spritzgusstechnisch in der zweiten Stufe verarbeitet werden. Der einstufige Prozess setzt in jedem Fall eine Vortrocknung der Faser- oder Füllstoffe voraus. Ist an den gegenlaufenden Zweischneckenextruder eine Schmelzepumpe und ein Extrusionswerkzeug angeschlossen, können direkt Profile oder Platten entstehen.

Alternativ können Formteile einstufig hergestellt werden, wenn am Extruder eine Kombination von Schmelze-Zwischenspeicher, speziellem Einspritzaggregat und Schließeinheit auf einem Spritzgießcompounder montiert ist. Das Direktverfahren schont die Fasern, da kein Abkühlen und erneutes Erhitzen auf den ersten Prozess folgt, verringert Geruchsemissionen und kann den Energieverbrauch reduzieren [24].

Im Gegensatz zu dem HKM und dem Extruder werden durch die Compoundierung im Pelletierer keine homogenen Materialmischungen erzeugt (Abb. 6). Die Komponenten werden kompaktiert und durch eine Lochmatritze gepresst, wodurch den Kunststoff aufschmelzende Reibungswärme entsteht [16].



**Abb. 6: Pelletierer/ Granulierer**

**Formgebung:** Die für die Compoundierung einsetzbare Extrusion kann bei der Formgebung als kontinuierlicher Urformprozess für die Herstellung von Profilen, Platten, Rohren und Folien genutzt werden. Hierbei wird der Kunststoff mit oder ohne Füll- oder Faserkomponenten zwischen einer oder mehreren Schnecken und dem beheizten Zylinder gefördert und aufgeschmolzen. Spätestens nach dem Aufschmelzen des Kunststoffes werden die Füll- oder Fa-

serkomponenten hinzugegeben. Im Anschluss wird die Masse homogenisiert, entgast, verdichtet und durch ein Werkzeug geformt, so dass Profile entstehen [26]. Bei der Verarbeitung von WPC und NFK werden häufig gleichlaufende Doppelschneckenextruder eingesetzt [24], wobei bei jeder Schneckenumdrehung die Schmelze vom Kanal der einen in den der anderen Schnecke überführt wird [27].

Im Gegensatz zum Extrudieren ist das Spritzgießen ein diskontinuierlicher Urformprozess zur Herstellung von geometrisch komplexeren Formteilen. Fasern oder Füllstoffe enthaltende thermoplastische Granulate werden durch eine drehende Schnecke in einem beheizten Zylinder plastifiziert und durch Axialverschiebung in die Kavität des Werkzeugs gespritzt. Durch passende Temperierung des WZ erstarrt die Kunststoffmasse und kann ausgeworfen werden [26]. Die spritzgießende Formteilmontage zeichnet sich durch eine hohe Reproduzierbarkeit und eine vielfältige Formteilgestaltung aus.

### **3 Projektentwicklung, Probenmaterial und Versuchsdurchführungen**

#### **3.1 Gliederung des Forschungsprojektes in Arbeitspaketen**

Ziel des Forschungsprojektes war die Beantwortung der Frage, ob sich Reststoffe aus der Papierherstellung als Substituenten des Holzmehls in Faserverbundwerkstoffen eignen.

Das Projekt ist in folgende Arbeitspakete gegliedert:

AP 1: Charakterisierung der Ausgangsstoffe

AP 2: Aufbereitung der Reststoffe

AP 3: Verarbeitung der ausgewählten Ausgangsstoffe im Heiz-Kühlmischer

AP 4: Verarbeitung des Granulats zu Prüfkörpern (PK) und Prüfplatten

AP 5: Bestimmung der mechanischen Eigenschaften der Prüfkörper und -platten

AP 6: Evaluierung von geeigneten Materialkombinationen

AP 7: Verarbeitung der Materialkombinationen im Technikumsmaßstab

AP 8: Bestimmung und Auswertung der Eigenschaften der hergestellten Formteile

AP 9: Auswertung und Wirtschaftlichkeitsbetrachtung

AP10: Zusammenstellung und Verbreitung der Forschungsergebnisse in der Papier-, Holz- und Kunststoffindustrie

#### **3.2 Projektbegleitender Ausschuss (PbA) und Vorhabenbezogene Aufwendungen der Wirtschaft (vAW)**

##### **Projektbegleitersitzungen:**

Kick off Meeting: am 12.04.2012; Ort: TUD, Professur für Papiertechnik, Dresden

2. PbA-Meeting am 25.01.2013; Ort: WEPA Papierfabrik Sachsen GmbH, Kriebethal

3. PbA -Meeting am 30.09.2013; Ort: TU Chemnitz, Professur SLK, Chemnitz

Abschluss-Meeting am 20.03.2014; Ort: TU Darmstadt, Fachgebiet PMV, Darmstadt

##### **Vorhabenbezogene Aufwendungen der Wirtschaft:**

Sachleistung: Für die Untersuchungen wurden in 10 Papierfabriken Reststoffproben beziehungsweise Papierabfälle zum Teil mehrmals entnommen.

Dienstleistungen: Die Besuche in den Papierfabriken wurden auch zu Beratungen vor Ort genutzt.

Bei der Fa. Görgens Mahltechnik GmbH wurde ein Versuch durchgeführt.

Bei der Fa. Biofibre GmbH erfolgte eine Anmusterung mit PPC-Granulat.

### 3.3 Probenmaterialien, Aufbereitungsschritte und Versuchsdurchführungen

#### 3.3.1 Probenmaterialien

**Reststoffe aus der Papierherstellung:** In 10 Papierfabriken wurden mehrfach Reststoffe entnommen. (Abb. 7) Dabei wurden 4 Verpackungspapier-Hersteller, 3 Spezialpapierhersteller und 3 Druckpapierhersteller berücksichtigt. Der Feuchtegehalt der Reststoffe aus der Papierherstellung lag in Abhängigkeit der angewandten Entwässerungsverfahren zwischen 65-35 %.

		Bez.	Grob-rejekt	Deinking-abfall	Fang-stoff
Verpackungs-papiere	Kartonfabrik Porstendorf	VP1	x	-	x
	ProPapier Eisenhüttenstadt	VP2	x	-	x
	Hamburger Spremberg	VP3	x	x	x
	Schuhmacher Packaging	VP4	X	-	X
Grafische Papiere	Stora Enso Sachsen	DP1	x	x	x
	Hainsberg Papier	DP2	x	x	x
	Kübler&Niethammer	DP3	x	x	x
Spezialpapiere / Sonstige	Grünperga	SP1	Trockenausschuss		
	Reinsberger Spezialpapier	SP2	x		
	WEPA	SP3			x
	Feldschlösschen Brauerei	SP4	Etikettenabfälle		x

GR = Grobrejekt  
 DA = Deinkingabfall  
 FS = Fangstoff  
 TR = Trockenausschuss

**Abb. 7: Probenahmen von Reststoffen in ausgewählten Papierfabriken**

Von den Reststoffen wurde wie folgt eine Eingangskontrolle vorgenommen. Von den Fangstoffen und vom Deinkingabfall wurden auch Prüfblätter gebildet und daran Festigkeitseigenschaften gemessen:

#### **Grobrejekte aus der Auflösung:**

1. Einwaage Gesamtmasse
2. Trockengehalt
3. Händisches Sortieren (Klauben)
  - Polyolefine in g
  - Hartplaste in g
  - Kunststoffe in g gesamt
  - Faserstoffe in g
  - Sonstige Bestandteile in g

#### **Fangstoffe und Deinkingabfall:**

1. Einwaage Gesamtmasse
2. Trockengehalt
3. Getrocknetes Probenmaterial (A1-A3) mindestens 4 Stunden wässern
4. 60 g otro in 2 l Wasser im Aufschlaggerät 5 min suspendieren
5. Verdünnen im Verteilgerät

6. Stoffdichte über Filterblatt
7. SR-Wert (Doppelbestimmung) 2 x 2,0 g otro
8. Störstoffanteil über Haindl Fraktionator (McNett) 2,0 g otro Einwaage  
Durchgang in 10 l Eimer auffangen für FiberLab-Analyse;  
Siebrückstand trocknen und auswiegen
9. Fiberlab: mittlere Faserlänge (längenbezogen) und –breite sowie Feinstoffanteil (n)
10. 5 BRK-Prüfblätter; Zielwert: 5 g otro
11. Glührückstand bei 575°C und 900 °C
12. im Normklima (23°C / 50% rel. Luftfeuchte): Masse und Dicke pro Prüfblatt
13. Zugfestigkeit (Bruchkraft in N; Bruchdehnung in %; E-Modul in MPa und daraus  
Bruchspannung in GPa berechnen)

Für die Aufbereitung der Reststoffe wurden die nassen Materialien mittels unterschiedlicher Verfahren getrocknet. Wichtig für die Compoundierung war eine Erhöhung des Trockengehaltes der Reststoffe auf über 90 % [28], wozu diese Aufbereitung diente.

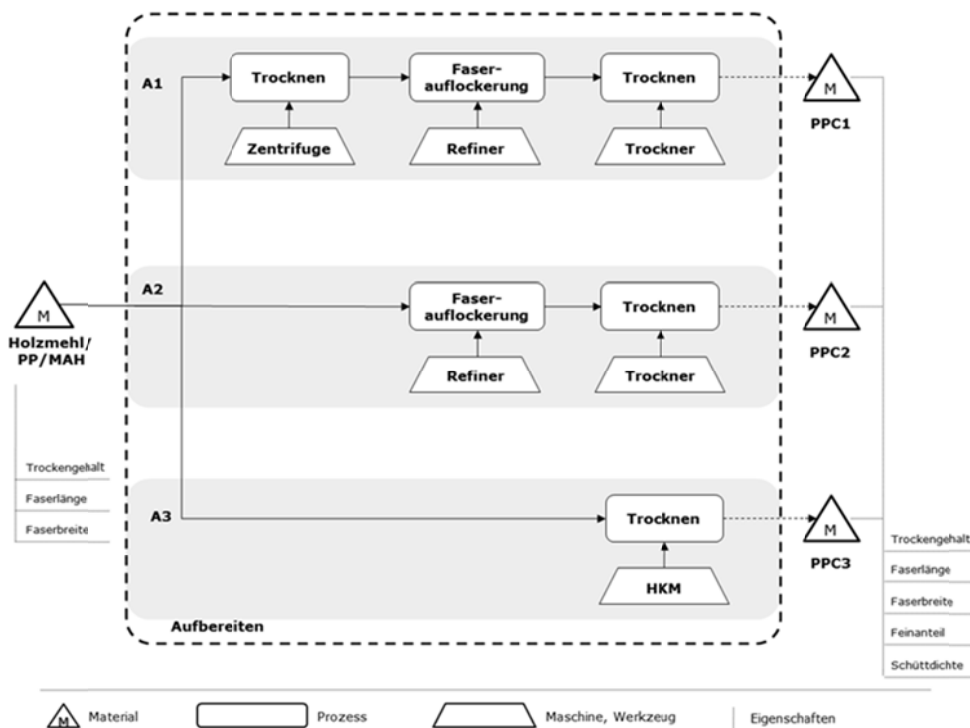
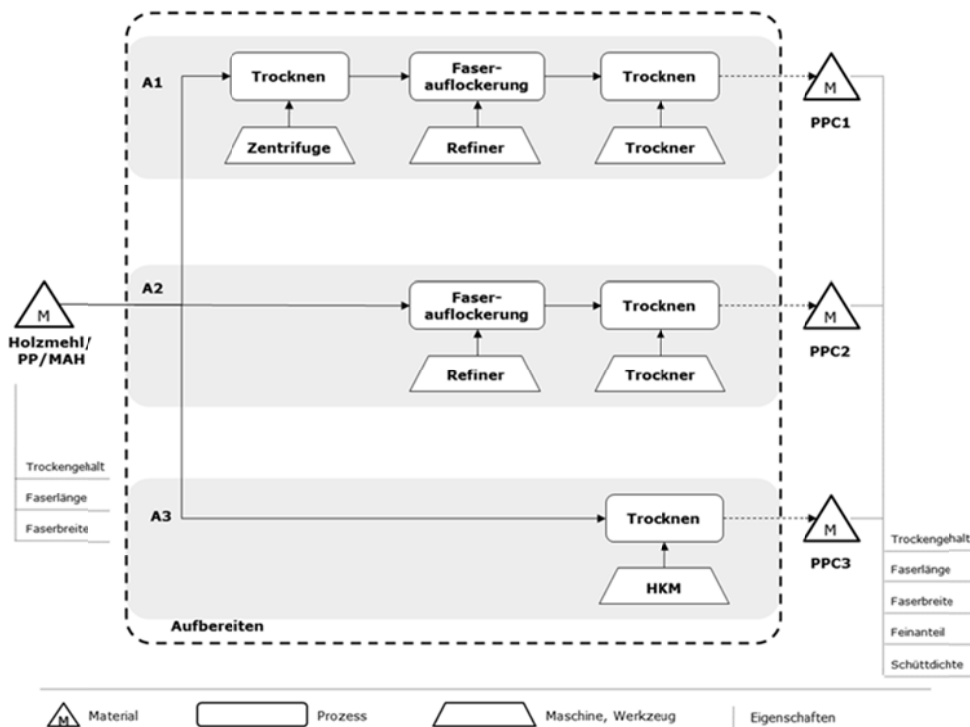


Abb. 8 zeigt die drei untersuchten Aufbereitungsverfahren A1, A2 und A3, deren Prozessschritte und die dafür benötigten Werkzeuge. Die produzierten Materialien wurden entsprechend des jeweils durchlaufenen Verfahrens mit A1 (PPC1), A2 (PPC2) und A3 (PPC3) bezeichnet.



**Abb. 8: Prozesstechnische Darstellung der Trocken-Aufbereitungsverfahren**

Das Aufbereitungsverfahren A1 bestand aus den drei Teilprozessen Entwässern in einer Zentrifuge, Auflockerung der Fasern mit einem Refiner und Trocknen in einem Stromtrockner. Im Stromtrockner wurden die Altpapierreststoffe durch einen erhitzten Luftstrom durcheinander gewirbelt und getrocknet. Das Verfahren A2 (ohne Zentrifuge) wurde bei höherem Restfeuchten angewendet.

Mit dem Ziel der Verringerung der durchzuführenden Bearbeitungsschritte sowie der effizienteren Durchführung des Teilprozesses Trocknung, wurden beim Verfahren A3 die Reststoffe vor der Compoundierung gleich im HKM getrocknet.

Zu einem späteren Zeitpunkt wurde auch noch versucht, den Reststoff in einer Micro-Wirbelmühle trocken zu mahlen (A5).

**Holzmehl:** Als Referenzmaterial kam Lignocel BK 40/90 von der Firma J. Rettenmaier & Söhne GmbH + Co KG zum Einsatz. Dieses Material ist im Holztechnikum für die Herstellung von WPCs bereits verwendet worden. Gemäß Datenblatt waren maximal 95 % der kubischen Partikel größer als 150 µm, 65 % > 300 µm und maximal 10 % > 550 µm.

**Kunststoffe und Haftvermittler:** Zur Compoundierung von PPC-Granulaten für die Herstellung von Prüfkörpern im Spritzguss wurden verschiedene PP-Typen (PP Borealis BE170MO und PP Moplen HP501L) als Matrix-Polymer verwendet.

Als Polymermatrix für die Handversuche wurde pulverförmiges CAB eingesetzt. Dadurch wurde die Handhabung deutlich erleichtert. Zudem konnte durch die direkte Verarbeitung im Spritzguss ohne vorherige Compoundierung im HKM Zeit gespart werden. Tab. 2 zeigt Eigenschaften typischer PP- und CAB-Kunststoffe.

**Tab. 2: Vergleich ausgewählter Eigenschaften von PP und CAB, aus [29]**

Polymer	Dichte	Zugfestigkeit	E-Modul (Zug)	Schmelztemperatur
	g/cm <sup>3</sup>	MPa	MPa	°C
PP	0,90-0,907	21-37	1100-1300	160-170
CAB	1,18	26	1600	> 115

Als Haftvermittler diente ein Koppler für Naturfasern in Polypropylen mit der Bezeichnung SCONA TPPP 8112 FA, dass in Pulverform bis zu 5 Masse-% des Polymeranteils zugegeben wurde. Viele Untersuchungen zeigen, dass Maleinsäureanhydrid-gepfropfte, synthetische Polymere einen positiven Effekt auf die Adhäsion zwischen hydrophilen Naturfasern und der hydrophoben Matrix haben.

Zur Behandlung/Beschichtung der Fasern aus den Papierreststoffen wurden bei den Handversuchen auch die Bindemittel PVA und CMC getestet, die jeweils als Feststoff vorlagen.

### 3.3.2 Aufbereitungsschritte

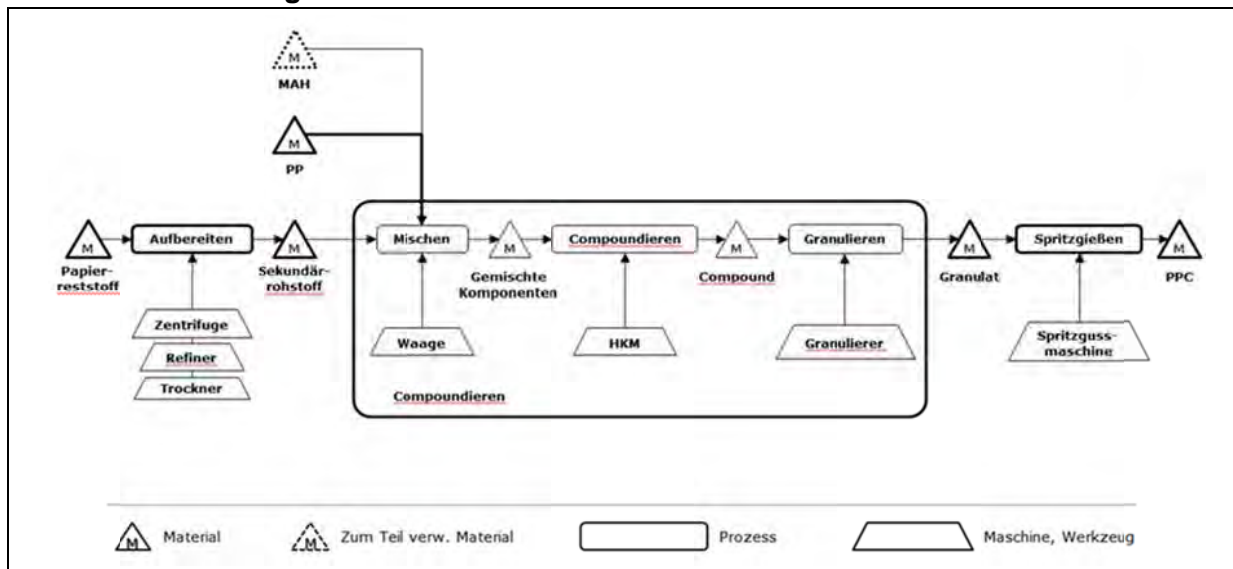


Abb. 9: Darstellung des Herstellungsprozesses PPC

In Abb. 9 ist der Herstellungsprozess PPC dargestellt. Der Ablauf Probenahmen und Ausprüfungen entsprechend der Arbeitspakete ist in Abb. 10 zusammengefasst.

**Mischen der Komponenten:** Die Mischungsverhältnisse wurden auf 30 und 40 % Füllgehalt (Reststoffe bzw. Holzmehl) festgelegt, da ein zu viskoses Material mit der Spritzgussmaschine nicht zu verarbeiten wäre. Es ergeben sich deutliche Effekte der Füllgehalte bei Verbundwerkstoffen im Vergleich zu den reinen Kunststoffen ab ca. 30 Masse-%. Die Komponenten der WPC und PPC-Varianten wurden in Gefäßen zusammengebracht und grob vermischt.

**Compoundierung:** Die Compounds wurden in einem einstufigen Mischungsprozess hergestellt, was gleichbedeutend mit der zeitgleichen Zugabe der Komponenten im Heizzylinder des HKM ist. Die Maschineneinstellungen wurden möglichst konstant beibehalten, um Parameter, die durch die Komponenten vorgegeben waren, einzuhalten und um die entstehenden Compounds und deren Folgeprodukte untereinander vergleichen zu können. Bei der Compoundierung im HKM wurde das abgewogene Gemisch aus Füllstoff, Matrixkunststoff und Haftvermittler durch Friktion und Wärmeübertragung des beheizten Zylinders erhitzt.

Gleichzeitig sorgten die Mischerflügel für eine homogene Durchmischung. Die Materialmischungen wurden bei 200 rpm für 45 s im Heizzylinder gemischt, bei 2000 rpm bis auf 165 °C erhitzt, bevor die Umdrehung auf 1500 rpm reduziert wurde. Diese Einstellung wurde bis zu einer Temperatur von 175 °C beibehalten. Der Reduzierung auf 1000 rpm für einige Sekunden folgte das Ablassen der Mischung in den Kühlzylinder bei 200 rpm. Bei 200 rpm wurde dort das Compound mittels Messer (3000 rpm) zerschlagen und gekühlt.

**Granulierung:** Nach dem Prozess im HKM konnte das Compound noch nicht für eine Spritzguss-Verarbeitung verwendet werden. Deswegen wurde das Material in einem Granulierer zerkleinert und über eine Ringmatrize mit 5 mm Lochung ausgetragen [30].



**Spritzgießende Formgebung:** Die Herstellung der Probekörper zur Prüfung der Werkstoffeigenschaften wurde nach DIN EN ISO 294-2 durchgeführt. Anwendung zur Fertigung der Schulterstäbe des Typs 1BA fand der Thermo Scientific HAAKE MiniJet. Bei der verwendeten Laboranlage wird zunächst das Granulat in den Plastifizierzylinder gegeben. Nach einer gewählten Plastifizierzeit wird der Zylinder samt Material in die Maschine überführt. Über einen Kolben wird das plastifizierte Material in die Kavität des Werkzeugs (Formzylinder) gepresst. Für die Dauer der Einspritzzeit wird der Einspritzdruck aufrechterhalten, ehe er dann auf den gewählten Nachdruck heruntergeregelt wird. Dieser bleibt für die Dauer der Haltezeit konstant. Danach fährt der Kolben wieder nach oben und der Formzylinder kann samt Probekörper entnommen werden. Mit einer Zylinderfüllung können 2 bis 3 Probekörper hergestellt werden.

**Tab. 3: Parameter zur Probekörper-Herstellung abhängig vom Matrixpolymer**

Polymer	Zylinder-temp.	Formteil-temp.	Einspritzdruck	Einspritzzeit	Nachdruck	Nachdruckzeit	Plastifizierzeit
	°C	°C	bar	s	bar	s	s
PP	190	70	800	10	500	10	180
CAB	190	90	1200	10	500	10	300

Da die Naturfasern nur eine geringe thermische Stabilität besitzen, mussten Plastifizierzeit und Einspritzdruck für ein ausreichendes Fließen des Materials in die Kavität sorgen (Tab. 3). Bei der Handhabung der Granulate war zudem darauf zu achten, eine gute Durchmischung vor der Zugabe in den Zylinder sicherzustellen. Um ein einfaches Entformen der Probekörper aus der Kavität zu gewährleisten, sollte diese regelmäßig mit Trennmittel besprüht werden, um Vorschädigungen an den Probekörpern zu vermeiden.

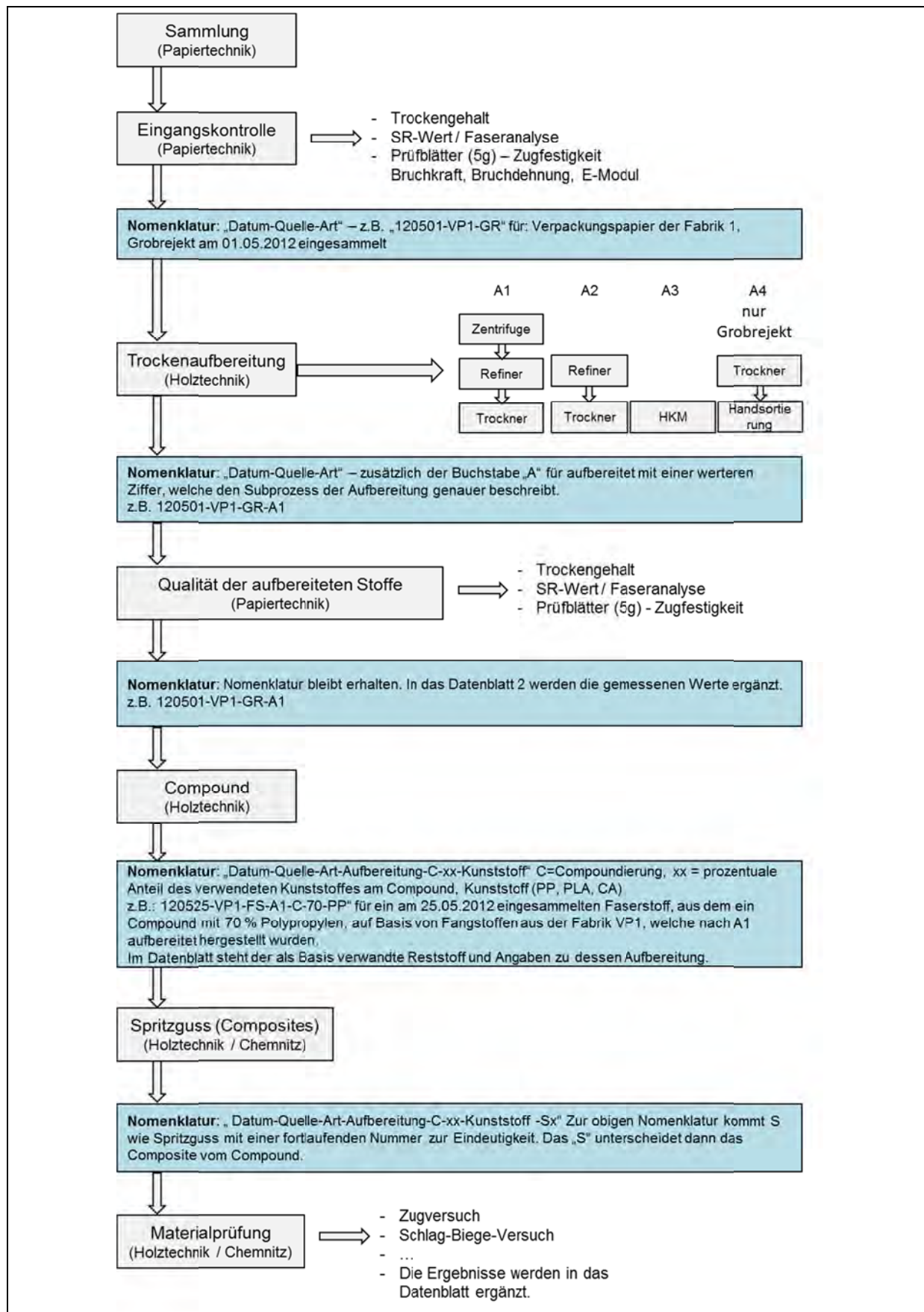


Abb. 10: Materialprüfung der Prozesskette PPC

### 3.3.3 Materialprüfungen an Papierreststoffen

Wie bereits erwähnt, fanden die Materialprüfungen bei den Papierreststoffen vor (siehe Eingangskontrolle) und nach dem Trocknungsprozess statt.

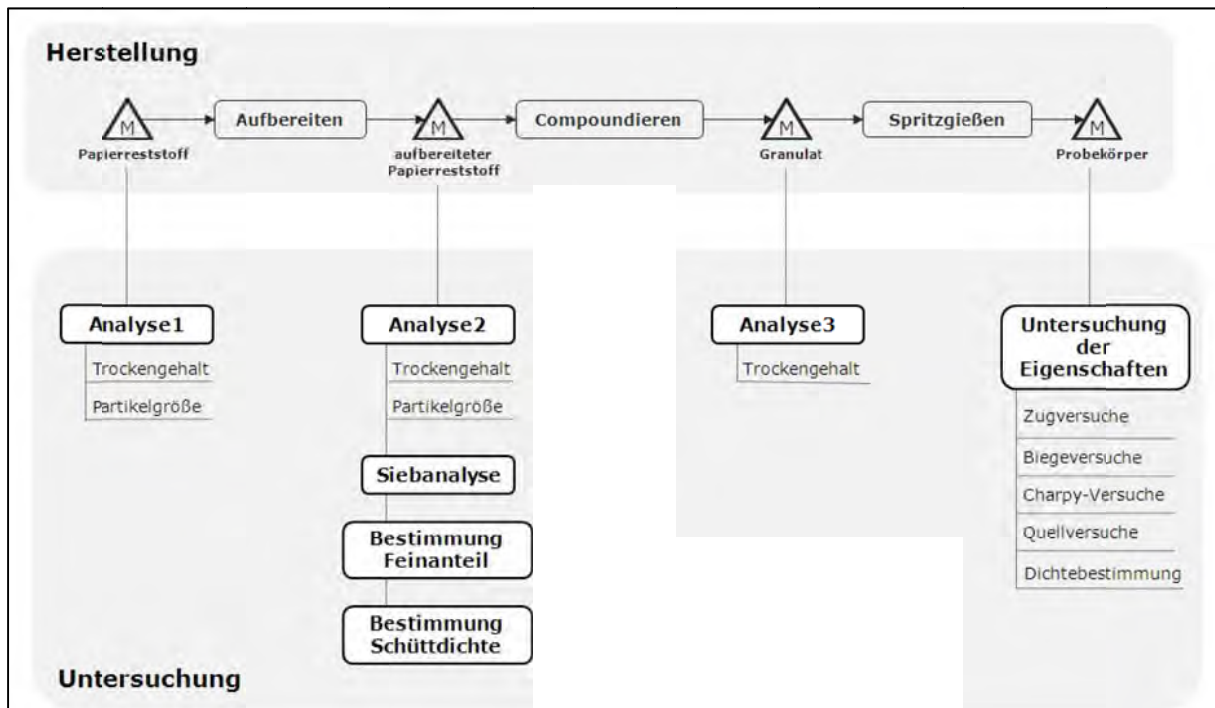


Abb. 11: Materialuntersuchungen parallel zu den Prozessstufen

**Siebanalyse:** Im Anschluss an den Trocknungsprozess wurden das Holzmehl und die aufbereiteten Papierreststoffe charakterisiert (Siebanalyse in Anlehnung an DIN 66165). Hierbei wird das Material durch mehrere Siebe eines Kaskadensiebes und dessen Bewegungen in unterschiedliche Fraktionen getrennt.

**Thermogravimetrische Feuchtebestimmung:** Eine Bestimmung des Trockengehaltes des Materials wurde mit einem Schnell-Feuchtebestimmer (MA30-Sartorius) durchgeführt. Das Prinzip basiert auf einer thermogravimetrischen Feuchtebestimmung. Die Masse der Probe wird vor und nach dem Entzug der Feuchte gemessen.

**Schüttdichtebestimmung:** Die Schüttdichte ist ein Maß für die Dosierbarkeit des Fasermaterials und wurde nach DIN ISO 697 gemessen. Hier wurden Messbecher mit dem zu untersuchenden Material bis auf einen Liter Volumen gefüllt und das enthaltene Material im Anschluss gewogen.

### 3.3.4 Prüfung der Werkstoffeigenschaften

Die Konditionierung der Probekörper fand gemäß DIN EN ISO 291 im Prüfklima für mindestens 24 h statt.

**Zugversuche:** Die Versuche zur Ermittlung der Zugfestigkeit und des Zug-E-Moduls wurden gemäß DIN EN ISO 527 durchgeführt. Hierzu wird die Probe vertikal in deren Schulterbereichen eingespannt. Die Prüfmaschine zieht die Probe auseinander bis diese versagt oder eine bestimmte Dehnung erreicht ist. Die Einspannlänge betrug 50 mm. Die Vorspannkraft wurde auf 5 N festgelegt. Als Bruchkriterium galt ein Kraftabfall von 40 % oder eine erreichte Kraft von 10 kN. Die durch das Ziehen der Proben hervorgerufene Dehnung wurde von einem Laser-Extensiometer gemessen (Fiedler Optoelektronik GmbH). Um den notwendigen Kontrast für das Extensiometer zu gewährleisten, wurden schwarz-weiße Klebestreifen auf

die Proben aufgebracht oder transparente Proben geweißt und im Anschluss mit schwarzer Farbe den Kontrast zu gewährleisten

**Biegeversuche:** Nach DIN EN ISO 178 wurden die Biegeuntersuchungen durchgeführt, wobei die Durchbiegung der Proben von einem mechanischen Durchbiegungsmesssystem erfasst wurde. Die Auflagedistanz L wurde in Abhängigkeit der Probekörperdicke h ermittelt. Der Abstand der unteren Lager (L) betrug 40 mm und der Radius aller Lager jeweils 5 mm. Es wurde eine Prüfgeschwindigkeit von 10 mm/min festgelegt. Kriterien die zum Abbruch der Prüfung führten, waren zum einen ein Kraftabfall von 20 % und zum anderen eine Durchbiegung von 20 mm.

**Schlagzähigkeitsversuche:** Die Schlagzähigkeit  $a_{cU}$  ist die beim Bruch eines ungekerbten Probekörpers aufgenommene Schlagarbeit, bezogen auf die Anfangsquerschnittfläche des Probekörpers. In dieser Arbeit wurde der breitseitige Schlag (flatwise impact) in Anlehnung an die DIN EN ISO 179-1/1fU durchgeführt. Die Stützweite wurde auf 22 mm festgelegt und ein 15-Joule-Pendelhammer verwendet.

**Dichtebestimmung:** Da die Volumina der Werkzeugkavitäten für die Schulterstäbe im Spritzgussverfahren bekannt waren, wurden die Dichten über die Bestimmung der einzelnen Probekörpermassen errechnet. Das Volumen eines Schulterstabes betrug  $1,050 \text{ cm}^3$ .

**Quellversuche:** Die Proben wurden in Anlehnung an DIN EN 317 vermessen und gekennzeichnet. Aus den Bruchstücken der Probekörper wurde nach den Festigkeitsmessungen ein Ende des Schulterstabs mit einem Messer abgetrennt (glatte Oberflächen). Je Variante wurden fünf Bruchstücke untersucht. Die Masse der Proben wurde auf vier Nachkommastellen genau erfasst. Nachdem die Proben vermessen und gewogen waren, wurden sie in ein Wasserbecken getaucht. Nach zwei und 24 Stunden wurden sie erneut vermessen und gewogen.

## 4 Forschungsergebnisse und Diskussion

### 4.1 Faserstoff- und Prüfblatteigenschaften der Reststoffe aus der Papierherstellung (AP1 und AP2)

Der Bezug der Reststoffe erfolgte direkt in der Papierfabrik (mehrfach über ein Jahr verteilt um die Konstanz der Reststoffe zu bewerten). Hierbei wurde beobachtet, dass die Reststoffe in ihrer Zusammensetzung und ihrem Feuchtegehalt deutlich geringere Schwankungen aufwiesen als zunächst befürchtet (siehe auch Anhang).

Im Wesentlichen waren die Zusammensetzung des Altpapiers und die bei der Papierherstellung angewandten Verfahrensabläufe zum Ausschleusen der Reststoffe aus dem Produktionsprozess entscheidend. Ein deutlicher Unterschied konnte bei der Produktion von Verpackungspapieren, Druckpapieren und Spezialpapieren (Tissue) festgestellt werden. Nach einer anfangs erfolgten Probennahme in 10 Papierfabriken wurden dann im laufenden Projekt die Probennahmen auf je eine Papierfabrik der genannten 3 Sortengruppen beschränkt.

**Tab. 4: Faserstoff- und Prüfblatteigenschaften der Reststoffe aus der Papierherstellung ausgewählter Papierfabriken**

Fangstoffe		Feuchtegehalt in %	Glührückstand 575°C in %	Sortierrückstand 0,15 mm // in %	Faserlänge in mm	Feines (n) in %	Bruchkraft in N
VP1-FS	feucht	60	12	30	1,35	21	36
VP1-FS-A3	trocken	<5	10	47	1,56	18	
DP2-DA	feucht	46	70	1	1,29	31	10
DP2-DA-A3	trocken	<5	71	8	1,19	23	
SP3-FS	feucht	64	1	1	0,97	13	53
SP3-FS-A3	trocken	<5	1	37	0,95	13	

In Tab. 4 sind die Faserstoff- und Prüfblatteigenschaften der Reststoffe der 3 ausgewählten Papierfabriken (gerundete Mittelwerte von je 5 Probennahmen) zusammengestellt. Die Eigenschaften der Reststoffe aus der Papierherstellung (VP: Fangstoffe aus der Feinsortierung einer Kartonfabrik; DP: Deinking-Reststoffe; SP: Fangstoffe aus der Tissue-Produktion) unterscheiden sich deutlich beim Restfeuchtegehalt, beim Glührückstand 575 °C, beim Sortierückstand 0,15 mm Schlitzplatte sowie bei den Festigkeiten der Papierprüfblätter.

Aus wirtschaftlichen Gründen (Transport und Entsorgung) ist der erreichbare Restfeuchtegehalt der entwässerten Papierschlämme ein wichtiger Kennwert. Deinkingschlämme können aufgrund des höheren Mineralienanteils (hoher Glührückstand) besser entwässert werden (niedrigste Restfeuchte). Bei der Tissue-Produktion (ohne Altpapier; nur Zellstoff) wurden keine mineralischen Füllstoffe eingesetzt (Glührückstand 1 %)

Für die Faseranalyse im Fiberlab musste zuvor Grobes aus der Faserstoff-Suspension abgetrennt werden. Dieses erfolgte im Haindl-Fraktionator (0,15 mm Schlitzplatte). Der Sortierückstand war erwartungsgemäß beim Fangstoff aus der Kartonfabrik am höchsten und enthielt noch viele kleine Plasteteilchen. Bei den morphologischen Fasereigenschaften (Faserlänge, Faserbreite, Feinstoffanteil) waren die Unterschiede nicht so groß. Die mittleren Faserlängen der Reststoffe lagen bei 1,0-1,4 mm, die mittleren Faserbreiten bei 22- 26 µm und der durchschnittliche Feinstoffanteil beim Deinking-Reststoff bei 31 % und beim Fangstoff aus Tissue-Produktion bei 13 %.

Mit dem Laborblattbildner wurden aus den Reststoffen Papierprüfblätter mit Flächenmassen von 160 g/m<sup>2</sup> gebildet. Die höchsten Festigkeiten wurden bei Reststoffen aus der Tissue-Produktion (Zellstoff) erzielt. Auch der Fangstoff aus der Kartonfabrik besaß aufgrund der höheren mittleren Faserlängen noch gute Festigkeiten. Dagegen waren die Festigkeiten bei den Deinking-Reststoffen gering (keine Steifigkeit).

Nach einer Trockenaufbereitung im HKM (A3) wurden die getrockneten Reststoffe noch einmal suspendiert und ausgeprüft. Dabei konnte im Vergleich zu den initial feuchten Reststoffproben nach der Trockenaufbereitung

- eine Veränderung der Fasermorphologie und
- die Bildung von Fasernetzwerken (Agglomerate),

festgestellt werden. Deutlich wurden diese Veränderungen durch sinkende Entwässerungswiderstände (SR-Werte), durch einen steigenden Störstoffanteil (Sortierückstand) sowie nicht mehr messbare Festigkeiten im Papierprüfblatt.

Die Betrachtung der Aufbereitungsverfahren A1 (mit Zentrifuge und Stromtrockner), A2 (Stromtrockner) und A3 (HKM) unter Berücksichtigung wirtschaftlicher Kriterien zeigt, dass A3 unter halbtechnischen Bedingungen das einfachste, schnellste und kostengünstigste Verfahren ist. Dieses beinhaltet die wenigsten Prozessschritte, benötigt die geringste Verarbeitungszeit und verursacht dadurch die geringsten Kosten (Energiekosten, Maschinenkosten, Anzahl der Arbeitsstunden).

Um Dosierproblemen zu begegnen und eine noch bessere Homogenisierung zu erreichen, wurde ein weiteres Aufbereitungsverfahren mit einer Mikrowirbelmühle (A5) beim Deinking-Reststoff sowie beim Fangstoff aus der Kartonfabrik getestet. Dabei erfolgten die Trocknung der feuchten Reststoffe und zusätzlich ein weiterer Materialaufschluss durch Aufprall- und Reibungseffekte der im Luftstrom stark beschleunigten Teilchen. Bei der Auswertung des Versuches mit Deinking-Reststoff konnten im Vergleich der Aufbereitungsverfahren A3 und A5 bei dem nach A5 getrockneten Reststoff eine deutliche Reduzierung des Sortierückstands bei der Luftstrahlsieb-Prüfung festgestellt werden. Um nun den Energiebedarf beim Trockenmahlen zu ermitteln, sollten ca. 1.000 kg Fangstoff aus der Kartonfabrik bei der Fa. Görgens Mahltechnik GmbH in einem Wiederholungsversuch getestet werden. Leider war die Durchsatzleistung mit 70 kg/h beim Trocknen zu gering, so dass der Versuch mit Fangstoff aus der Kartonfabrik abgebrochen wurde.

## 4.2 Compoundierung im Heizkühlmischer und Herstellung von WPC/PPC-Prüfkörpern (AP3 und AP4)

Die Verfahrensschritte bis zur Herstellung von Prüfkörpern sind in Abb. 12 dargestellt. Im Heizkühlmischer wurden zum Vergleich zu PPC auch Referenzmaterialien, wie nicht gefüllte Kunststoffe (PP, PLA, CP, CAB) und WPC mit Füllgehalten von 30-50 % hergestellt.



Abb. 12: Arbeitsabläufe PPC-Herstellung (Labor)

Um eine bessere Haftvermittlung in der Grenzschicht zwischen Faserstoff und Polymermatrix zu erreichen wurden bei Vorversuchen (Handversuche ohne Heizkühlmischer) getrockneter Fangstoffe aus der Tissue-Produktion (SP3) mit verschiedenen Bindemittel-Typen von PVA (Mowiol 40-88; Mowiol 4-98) bzw. CMC (Blanose 7L2; Finnifix 30) vorbehandelt und dann mit CAB in Pulverform gemischt und zur Herstellung der Prüfkörper (Zugstäbe) direkt in die Min-jet-Spritzgussmaschine gegeben. Die eingesetzten Bindemittel sollten die Faseroberfläche hydrophobisieren und dadurch die Wasseraufnahme im Verbundstoff verringern. Der Einsatz der Bindemittel führte jedoch zur Verschlechterung aller anderen geprüften Eigenschaften. Eine Fortsetzung der Versuche mit Bindemitteln schien deshalb nicht sinnvoll.

Maleinsäureanhydrid-gepfropfte Polymere als Haftvermittler sind die meist eingesetzten Kopplungsagenzien, um die Festigkeiten und Wasserresistenz von WPC zu verbessern. Auch die Anwendung für die Haftvermittlung zwischen Fasern aus Papierreststoffen und Polymermatrix scheint vielversprechend, da die Applikation vergleichsweise simpel ist und andere chemische Vorbehandlungen nicht zielführend sind.

Durch den Einsatz von MAH-PP (SCONA TPPP 8112 FA), das in Pulverform von 3-5 Masse-% dem PP zugegeben wurde, werden die mechanischen Eigenschaften durch Adhäsion im Verbundwerkstoff verbessert. Es stellen sich polare Wechselwirkungen ein, wie z. B. Säure-Base-Reaktionen oder Wasserstoffbrückenbindungen, und die Anhydrid-Gruppen bilden bei erhöhten Temperaturen kovalente Bindungen mit den Hydroxy Gruppen der lignocellulosen Fasern.

Bei der Compoundierung wurden die Fasern mit der Kunststoffkomponente zeitgleich in den HKM (Abb. 13) gegeben. Um die Ergebnisse unabhängig von der Compoundierung vergleichen zu können, wurden die Parameter in diesem Prozess möglichst konstant gehalten.



**Abb. 13: Heiz-Kühl-Mischer M 35 Fk/KMV 60 links und Granulierer rechts**

Die Komponenten werden bis zur Schmelztemperatur des Thermoplastes im HKM erhitzt und durchmischt. Einige Parameter wie z.B. die Aufschmelztemperatur waren komponentenbedingt vorgegeben. Da die Aufschmelztemperatur für das zum Einsatz gekommene PP zwischen 160 und 170 °C liegt, wurde diese als Zielbereich für die Temperatur gewählt. Ein Temperaturanstieg auf 180 °C sollte vermieden werden, um Schädigungen an den eingesetzten Fasern zu vermeiden. Neben der Temperatur war die Lastaufnahme des Motors ein guter Indikator für das Aufschmelzen des Matrixsystems. Da der Compoundier-Prozess von vielen weiteren Einflussgrößen beeinflusst wird, dienten Erfahrungswerte aus früheren Versuchen (WPC) zur Orientierung, um Einstellungen und Zeiten zu wählen. In folgender Tabelle sind ausgewählte Versuchsreihen zur Compoundherstellung zusammengestellt.

**Tab. 5: Ausgewählte Versuchsreihen zur WPC/ PPC-Herstellung**

Versuch	Werkstoff	Matrix/HVM	Bindemittel	Anteil Matrix-system	Konzentration HVM (bez. PP)	Anteil Faser-stoff	Bindemittel (bez. FS)	TG Bindemittel bei Applikation	Bemerkung	
				%	%	%	%	%		
	PP	PP	-	100	-	-	-	-		
V1	WPC3	PP / MAH	-	70	(3)	30	-	-		
	WPC4			70	(4)	30	-	-		
	WPC5			70	(5)	30	-	-		
	WPC6			70	(6)	30	-	-		
	WPC7			70	(7)	30	-	-		
V2	PPC30 -	PP / MAH	-	65	5	30	-	-		
	PPC30 +			Mowiol 4 -98	65	5	30	(7)	10,5	SD = 30 %
	PPC30/SD +				65	5	30	(7)	10,5	
	PPC40 +				55	5	40	(7)	10,5	

Nach der Compoundierung wurde das Compound in einem weiteren Prozessschritt granuliert, um danach bei der Prüfkörperherstellung in der Spritzgussmaschine mit einem homogenen Ausgangsmaterial gleicher Korngröße arbeiten zu können.

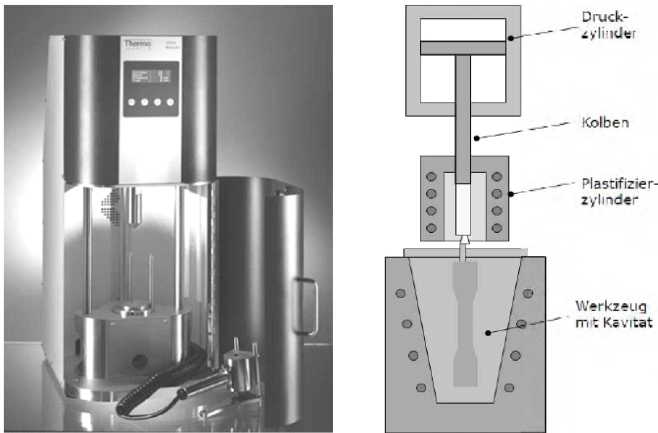


Abb. 14: Minijet Spritzgussmaschine und Wirkprinzip

### 4.3 Bestimmung der Eigenschaften der Verbundwerkstoffe (AP5)

Beide PPC-Werkstoffe haben deutlich bessere Festigkeiten im Vergleich zum WPC. Mit dem höheren Faseranteil bei PPC40+ wird allerdings die Wasserresistenz wieder deutlich verringert.

Abb. 15 zeigt einen Vergleich der Eigenschaften der ausgewählten Versuchsreihen (Tab. 5):

- WPC mit 5 % MAH,
- PPC30- (= ohne Bindemittel) und
- PPC40+ (= höherer Faseranteil).

#### VGL WPC5,

#### PPC30-, PPC40+

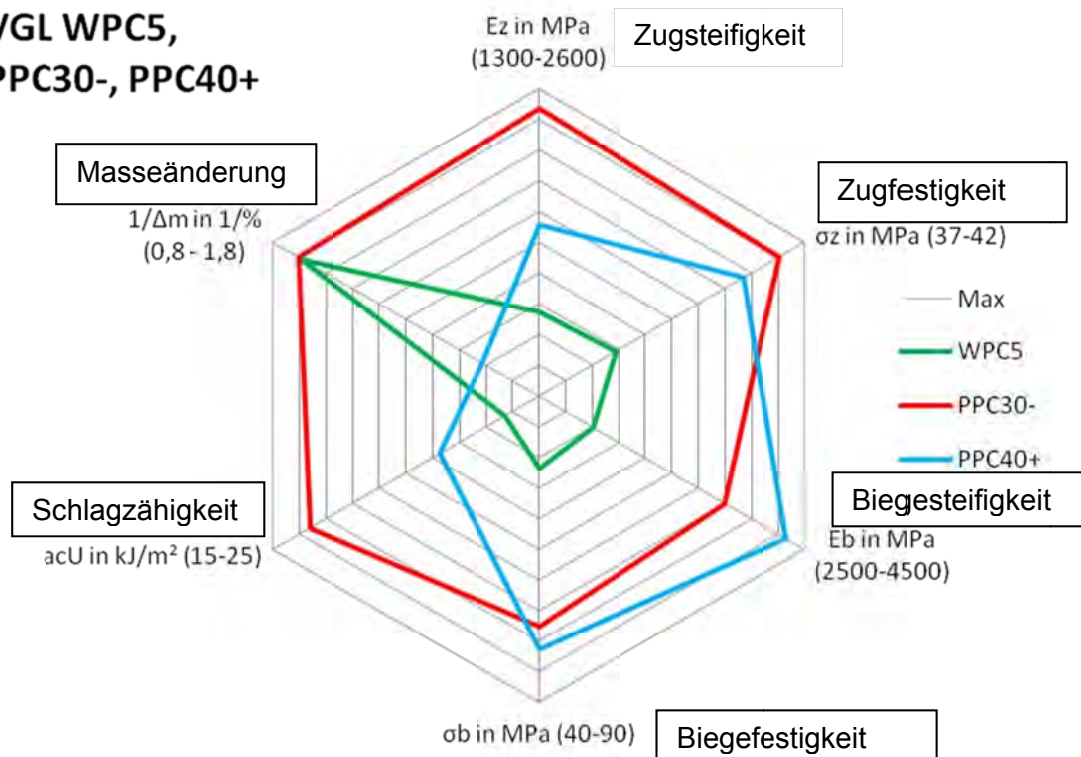


Abb. 15: Vergleich der Eigenschaften ausgewählter Verbundwerkstoffe

In den beiden folgenden Abbildungen werden weitere der an Prüfkörpern (Schulterstäben) ermittelten Eigenschaftskennwerte der PPCs zusammengefasst und mit denen der labor-technisch hergestellten WPCs verglichen.



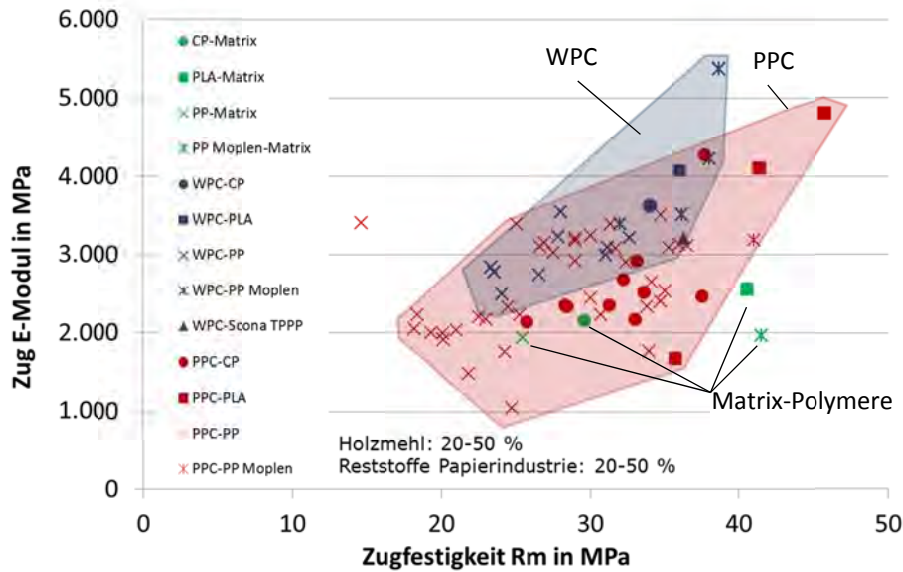


Abb. 16: WPC/PPC Vergleich - Zugfestigkeit und Zug-E-Modul

Wie in Abb. 16 dargestellt, überlagern sich die Eigenschaftsbereiche beider Werkstoffgruppen in ihrem Kernbereich. Je nach eingesetztem Matrix-Polymer sind PPCs dabei sogar in der Lage höhere Zugfestigkeiten zu erzielen. Die Zugsteifigkeit (E-Modul) ist zwischen PPC und WPC vergleichbar.

Aufgrund eines höheren Anteils an anorganischen, mineralischen Füllstoffen ist die Masseänderung (Quellungsneigung) der PPCs, verglichen mit den WPCs, meist geringer – ein klarer Eigenschaftsvorteil der faserverstärkten Kunststoffe auf Reststoffbasis der Papierindustrie. Die Biegefestigkeit der WPCs ist jedoch zum Teil höher als die der PPCs (Abb. 17).

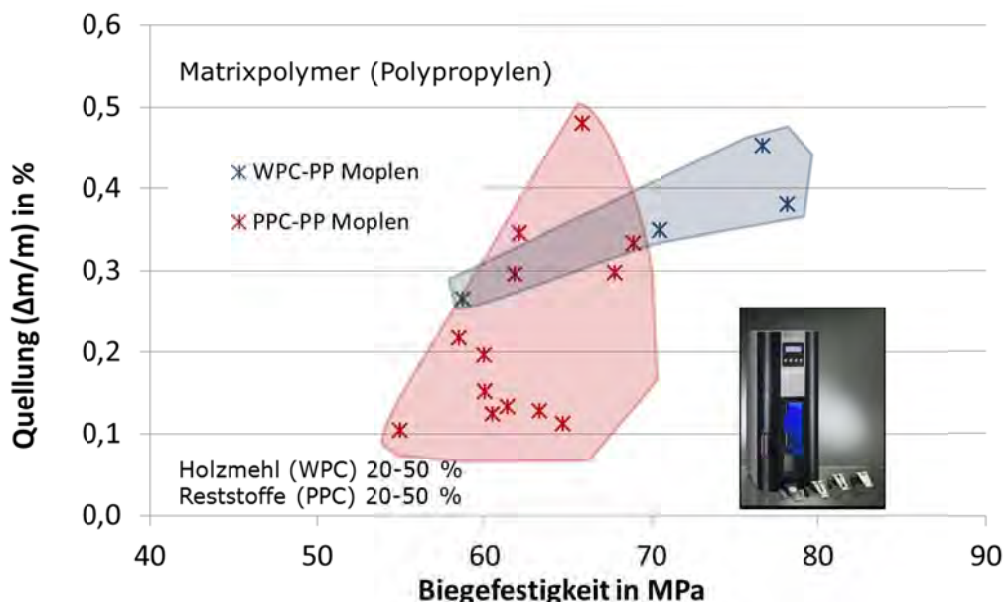


Abb. 17: WPC/PPC-Vergleich: Biegefestigkeit und Masseänderung in 24 h

#### 4.4 Evaluierung geeigneter Materialkombinationen und deren Verarbeitung im Technikums-Maßstab (AP6 und AP7)

##### 4.4.1 Recyclingversuche mit PPC-Werkstoffen

Für Versuche im Technikum SLK der TU Chemnitz wurden 2 Materialvarianten ausgewählt. Beide Varianten beinhalten 30 Masse-% Faserstoff (Fangstoff aus der Kartonfabrik). Als Matrixmaterial wurde bei einer Variante Polypropylen (PP Copo BE170MO/ Borealis) und bei der zweiten Variante Cellulosepropionat (Cellidor CP 300-13/ ALBIS PLASTIC) verwendet. Diese Materialien wurden an der TU Dresden im Heiz-Kühl-Mischer compounding und anschließend an der TU Chemnitz charakterisiert. Für die Recycling-Versuche wurden die Materialien zu Normprüfkörpern an der Spritzgießmaschine ARBURG All Drive 370 verspritzt (EN ISO 3167, Typ A) und anschließend in Zug- (EN ISO 527), Biege- (EN ISO 178) und Charpy-Schlagzähigkeitsversuchen (EN ISO 179) geprüft. Die Messergebnisse wurden dann bei der Auswertung als Referenzwerte herangezogen.

Durch den Herstellprozess sowie die anschließende Wiederaufbereitung wird das Material thermisch und mechanisch belastet, was zu einer Änderung der Eigenschaften führen kann. Deshalb wurde untersucht, ob durch mehrmalige Verarbeitung im Spritzgussprozess und durch Vermahlen, die Materialeigenschaften signifikant beeinflusst werden.

Deshalb wurden Prüfkörper, Prüfkörperabfälle und Angüsse wieder gemahlen und erneut verspritzt, wie in der Abb. 18 zu sehen ist. Die Versuche wurden nach dem 3. Zyklus abgeschlossen.



Abb. 18: Ablauf des Recyclingversuches PPC-Werkstoffe

In der Abb. 19 werden die Prüfkörper der 3 Aufbereitungszyklen und das ursprüngliche Compound mit dem Mahlgut aus dem 3. Zyklus verglichen. Besonders bei Variante mit CP-Matrix ist eine deutliche thermische Belastung festzustellen.

Die Auswertung des Zugversuches (Abb. 20) ergab keine signifikanten Änderungen, allerdings wurden folgende Tendenzen betrachtet:

- Bei den Recyclingversuchen des PPC mit der PP-Matrix konnte bei wiederholter Aufbereitung keine Veränderung der Zugsteifigkeit (E-Modul) an den Prüfkörpern festgestellt werden.
- Allerdings fällt mit steigender Zyklenzahl beim Composite mit PP-Matrix die Zugfestigkeit leicht ab. Die Dehnung wird bei max. Festigkeit nicht beeinflusst.
- Beim Composite mit CP-Matrix steigt die Steifigkeit und Festigkeit leicht an. Auch hier bleibt die Dehnung bei max. Festigkeit unverändert.

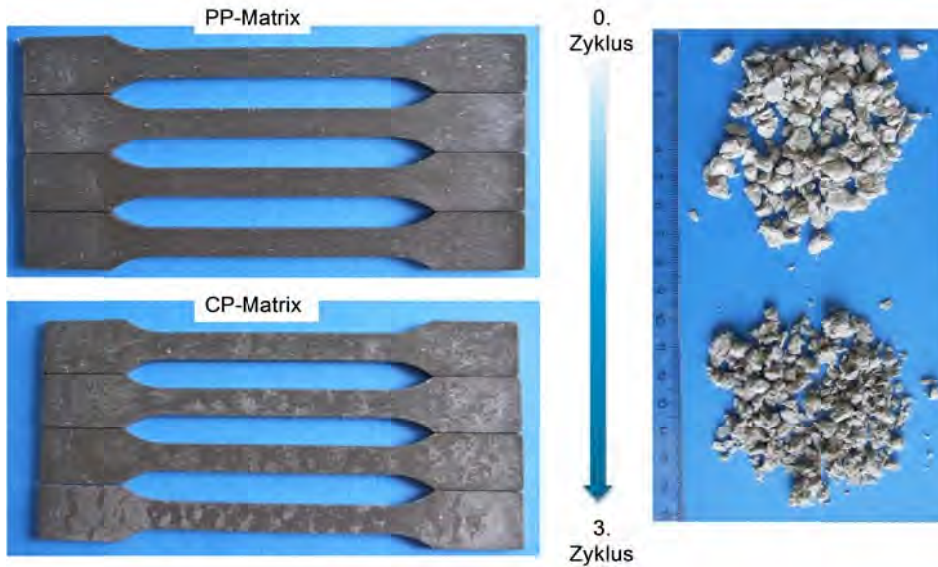


Abb. 19: Oberflächengüte der Prüfkörper 0.-3. Zyklus und Granulat des ursprüngliche Compounds im Vergleich zum Mahlgut des 3. Zyklus

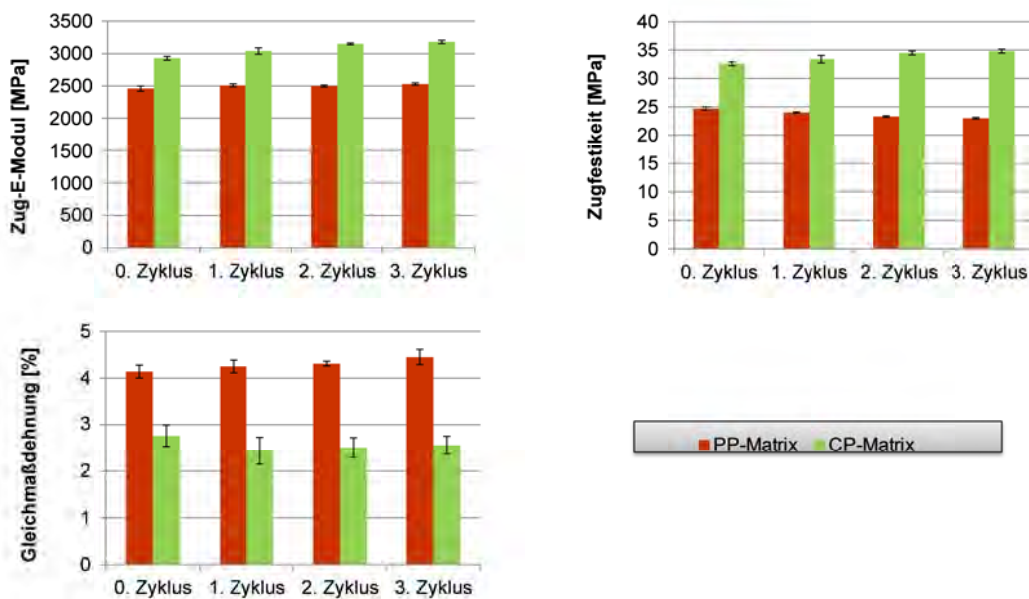
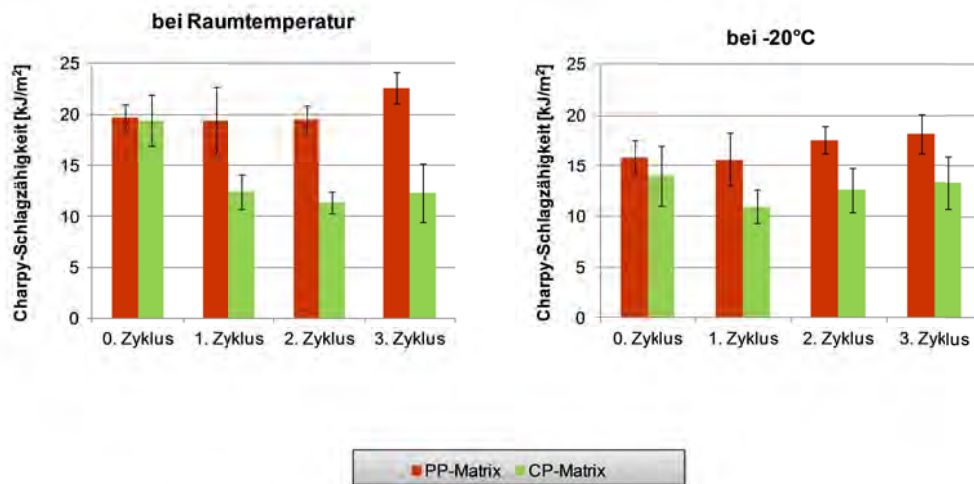


Abb. 20: Zugversuch - Einfluss der Recyclingzyklen

Ähnlich des Zugversuchs verhalten sich auch die Ergebnisse der Biegeigenschaften. Es sind keine signifikanten Änderungen festzustellen.

Deutliche Änderungen wurden bei der Schlagzähigkeit erreicht. In der Abb. 21 sind die Ergebnisse der Schlagzähigkeit bei Raumtemperatur (links) und bei  $-20^{\circ}\text{C}$  (rechts) gegenübergestellt. Die Schlagzähigkeit beim Composite mit CP-Matrix fällt bei Raumtemperatur schon nach der ersten Wiederaufbereitung stark ab. Bei Composite mit PP-Matrix steigt bei minus  $20^{\circ}\text{C}$  dagegen mit jeder Wiederaufbereitung die Schlagzähigkeit an, allerdings ist dabei die hohe Standardabweichung kritisch zu betrachten.



**Abb. 21: Schlagzähigkeitsversuch - Einfluss der Recyclingzyklen**

Deutlich ist der Einfluss des Recycling bei der Wasseraufnahme. Mit jedem Zyklus nimmt die Wasseraufnahme sowohl bei PP- als auch bei der CP-Matrix zu. Die Masseänderung liegt bei der CP-Matrix deutlich höher als bei der PP-Matrix. Durch Haftvermittler-Zugabe beim Composite kann die Wasseraufnahme verringert werden. Mit wachsendem Faserstoff-Anteil im Verbundwerkstoff nimmt die Wasseraufnahme zu.

Die Ergebnisse zeigen aber letztendlich, dass die Zudosierung von geringen Mengen an wiederaufbereitetem Material in der laufenden Produktion, auch nach mehrmaligem Recycling, kaum einen Einfluss auf die spätere Eigenschaften der Composite-Produkte hat.

#### 4.4.2 Verarbeitung der PPC-Werkstoff in Platten-Extrusion

Die Extrusionstechnologie gehört zu den wichtigsten Verarbeitungsmethoden. Platten und Kunststofffolien können in der Folge zu einer Vielzahl von gebrauchsfähigen Produkten weiterverarbeitet werden.

Für die Versuche am SLK-Technikum an der TU Chemnitz wurde die Materialkombination von Polypropylen (PP Copo BE170MO/ Borealis) mit 30 Masse-% Reststoffe aus der Papiererzeugung (Fangstoff aus Kartonfabrik Porstendorf) verwendet. Dieses Material wurde an der TU Dresden im Heiz-Kühl-Mischer compounding und anschließend an der TU Chemnitz in Platten-Extrusion verarbeitet.

Die Extrusion-Versuche wurden in der ersten Phase an der Kalandieranlage COLLIN Typ 168/250/250-400 durchgeführt. Diese Anlage ist wie folgt aufgebaut:

- Einschneckenextruder E 60 P x 26 D, Breitschlitzdüse (350 x 2,35 mm) und
- Kalandrierung 3-Walzen Typ 168/250/250 - 400.

Da an dieser Anlage ausschließlich einen Extrusionswerkzeug mit Düsenpalt max. 2,35 mm vorhanden ist, wurden weitere Versuche auf einem Einschneckenextruder COLLIN Typ E 20Px30D mit einer Breitschlitzdüse (80 x 6 mm) durchgeführt. Dabei wurde der Einfluss der Düsenpaltbreite auf den Schmelzeaustrag beobachtet.

In der Abb. 22 ist das Fließverhalten von PPC unter Anwendung der Breitschlitzdüse mit Kleiderbügelverteiler und der Arbeitsbreite 350 mm und der Spaltstärke 2,35 mm zu sehen. Dabei wurde auch nach variierender Temperierung und Dickenumstellung des Werkzeuges keine homogene Volumenstromverteilung der Schmelze über den Austrittsquerschnitt erreicht.

In der Tab. 6 sind die Extrusionsparameter der Versuche auf dem Einschneckenextruder COLLIN Typ E 20Px30D mit der Arbeitsbreite 80 mm bei unterschiedlicher Düsenpaltstärke

zusammengefasst. In Abb. 23 wird das unterschiedliche Fließverhalten der Schmelzen veranschaulicht.

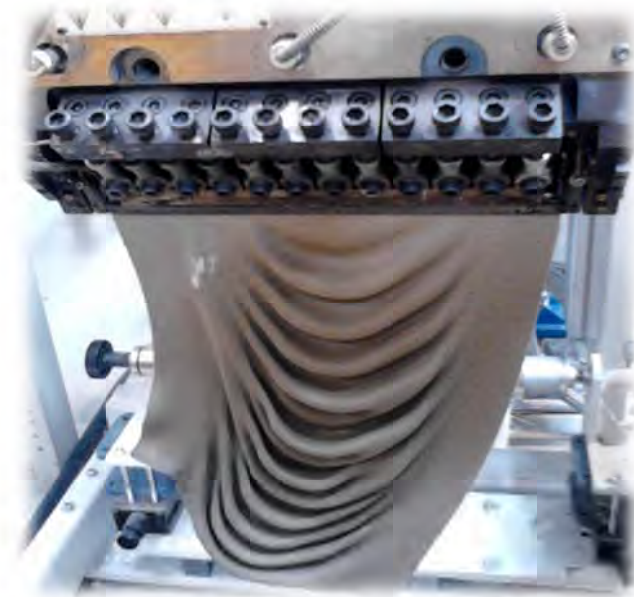


Abb. 22: Fließverhalten von PPC mit Extrusionsdüse 350 x 2,35 mm

Tab. 6: Extrusionsparameter beim Einschneckenextruder Collin Typ E 20Px30D bei Variation der Düsenpaltdicke

Düsenpalt	Schnecke	Schnecke	EHZ 1	EHZ 2	EHZ 3	EHZ 4	EHZ 5	Flansch	Masse-temp	Masse-druck	WZ 1
mm	u/min	A	°C	°C	°C	°C	°C	°C	°C	bar	°C
0,5 mm	100	1,4	80	171	169	180	185	190	197	56	192
1 mm	100	1,3	80	170	172	180	182	190	196	31	194
2 mm	100	1,5	80	170	169	178	180	190	197	16	198
3 mm	100	1,4	80	170	169	179	185	191	197	10	198
4 mm	100	1,4	80	170	174	180	185	191	198	8	197
5 mm	100	1,5	80	170	173	179	185	190	198	8	198



Abb. 23: Fließverhalten der PPC-Schmelze in Abhängigkeit vom Düsenpalt

Die Untersuchungen zeigen, dass mit wachsender Spaltgröße eine homogene Volumenstromverteilung der Schmelze über den Austrittsquerschnitt erreicht wird. Bei kleinem Dü-

senspalt wird eine höhere Schergeschwindigkeit als bei größerem Düsenpalt erzielt, dadurch tritt die Schmelze bei kleinerem Düsenpalt schneller in der Mitte aus und gleichzeitig ist der Gradient in Wandnähe höher. Dieses hat zur Folge, dass in der Mitte eine faltenartige Schichtung entsteht.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Verarbeitbarkeit der PPC-Werkstoffe im Extrusionsprozess grundsätzlich möglich ist und ein hohes Potenzial besitzt. Allerdings ist das Fließverhalten zu diesem Zeitpunkt noch nicht vollständig charakterisiert und benötigt weitere detaillierte rheologische Untersuchungen. Zusätzlich ist bei konventioneller Kunststoffextrusion eine möglichst effiziente und konstante Schmelzeförderung durch Installation einer Schmelzepumpe vorteilhaft.

#### **4.5 Abmusterungsversuche in der Kunststoffindustrie und Herstellung von Demonstratoren ( AP8 und AP9)**

Im SLK-Technikum wurden mit den beiden untersuchten Rezepturen (PP und CP mit 30 % Reststoffanteil) auch das 3D-Musterbauteil „Lüfter Rad“ (Abb. 24) im Spritzguss hergestellt. Es wurde bei diesen Versuchen mit einem chemischen Treibmittel (2% Treibmittel bezogen auf die Polymermatrix) gearbeitet, um mögliche Einfallstellen in den Ecken (Materialschwund) auszugleichen. Damit konnte bestätigt werden, dass PPC-Werkstoffe zur Herstellung von Bauteilen mit komplexer Geometrie im Spritzguss geeignet sind.

In der Kunststoffindustrie wurden bei der 2011 gegründeten Firma Biofibre GmbH, eine Tochterfirma der LWB Steinl GmbH & Co. KG, Abmusterungsversuche durchgeführt. Biofibre ist in der Aufbauphase (neue Halle - Baustart Anfang 2014) und das Technikum noch in einem provisorischen Zustand. Dieses ist zurzeit nur mit 2 Anlagen ausgestattet:

- einem gleichläufigen Doppelschnecken-Compounder mit Seiteneinspeisung, Luft- und Vakuumentgasung und einer anschließenden Unterwassergranulierung (UWG)
- und einer Spritzgießmaschine SELECT 100/BILLION H 260 mit einem Schnecken-durchmesser 25 mm

An dieser Spritzgussmaschine wurden während unseres Besuchs Abmusterungen (Nature-Pot:  $d_1=75\text{mm}$ ;  $d_2=105\text{ mm}$ ;  $T=0,6\text{ mm}$ ) mit dem PPC-Mustermaterial (wie im SLK-Technikum) durchgeführt (Abb. 24). Es lassen sich dabei Bauteile mit besonders geringen Wandstärken ( $< 1\text{mm}$ ) herstellen. Dieser Versuch ist mit leichten Anfangsschwierigkeiten positiv gelaufen.

Die Biofibre GmbH verwendet für ihre Produktion ausschließlich nachwachsende Rohstoffe (von Einjahrespflanzen wie z.B. Miscanthus). Demnächst sollen weitere Versuche mit ca. 100-200 kg Fangstoff-Pellets durchgeführt werden.

## Spritzguss – komplexe Formen mit geringen Wandstärken

Bauteile aus PPC mit 30 % Reststoffen aus Papierherstellung und 70 % Polymermatrix



Abb. 24: Muster von Spritzgussteilen aus der Projektarbeit

### 5 Darstellung des wissenschaftlich-technischen und wirtschaftlichen Nutzens der erzielten Ergebnisse

Die Ergebnisse des Projektes haben überzeugend nachgewiesen, dass es möglich ist, Reststoffe der Papierindustrie (Fangstoffe und Deinkingschlamm) als Ersatz oder als Erweiterung der Füllstoff-Rohstoffquelle in faserverstärkten Kunststoffen zu nutzen. Die Eigenschaftsspektren der PPCs und WPCs sind vergleichbar, wobei die PPCs bezüglich der üblicherweise unerwünschten Quellungsneigung Vorteile aufweisen.

Wegen der für die Herstellung der Prüfmuster angewandten Technik sind diese Aussagen zunächst nur für den Spritzguss gültig. Entsprechende Untersuchungen an extrudierten Bauteilen stehen erst am Anfang, allerdings sind die ersten Erkenntnisse im Platten-Extrusionsverfahren positiv zu bewerten.

Nach Abschluss des zweijährigen Forschungsprojektes bleiben vier Themenfelder, die es gilt im Weiteren intensiv zu bearbeiten. Für jedes dieser Themenfelder gibt es vielversprechende Lösungsansätze.

Zum ersten ist die Dosierproblematik des getrockneten Reststoffes anzugehen. Die bisherigen Trocknungsverfahren erzeugten ein „fluffiges“ Fasermaterial, welches sich einer Dosierung im Sinne eines kontinuierlichen Massestroms oft widersetzt. Hier soll eine der Extrusion oder dem Spritzguss vorgeschaltete Pelletierung Verbesserung der Prozessstabilität ergeben.

Eine weitere wichtige Aufgabe ist die Identifikation (oder Entwicklung) der energetisch günstigsten Trocknungsvariante für die Reststoffe. Die meisten der bisher untersuchten Varianten lieferten Ergebnisse, die sehr dicht an der seitens des Marktes formulierten Obergrenzen für eine wirtschaftliche Übernahme des Konzeptes liegen. Allerdings sind diese Varianten bezüglich ihres spezifischen Energiebedarfs noch in keiner Weise optimiert.

In Abb. 25 sind der Energiebedarf des Faserreststoffes (Fangstoff aus der Feinsortierung) in Abhängigkeit des Endtrockengehaltes bei der Trocknung im Heiz-Kühl-Mischer (A3) und in der Mikro-Wirbel-Mühle (A5) gegenübergestellt. Je mehr vorgetrocknet wird, umso höher ist der Energiebedarf. Bei der Trockenaufbereitung A5 kommt durch den Einsatz eines Gasbrenners noch der Kraftstoffverbrauch dazu. Aus der Differenz von Eingangs- und Endtro-

ckengehalt lässt sich der spezifische Wärmebedarf für die Wasserverdampfung berechnen. Dabei scheint der spezifische Wärmebedarf für die Wasserverdampfung im HKM (A3) günstiger als in der MWM (A5). Aus der Literatur sind verschiedene Trocknungsverfahren (z. B. Bandtrockner und Trommeltrockner) bekannt, wobei auch dort der spezifische Wärmebedarf bei 1–2 kWh/kg Wasser liegt [31].

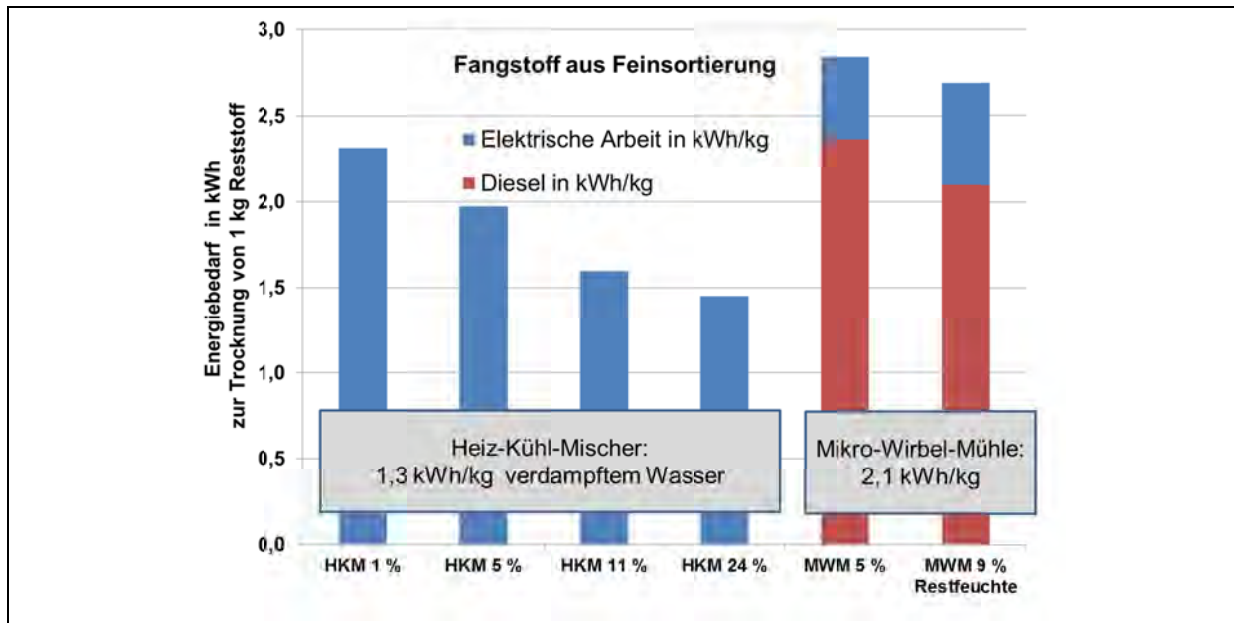


Abb. 25: Vergleich des Energiebedarfs der Trocknungsverfahren A3 und A5

Die in unterschiedlich vorgetrockneten Reststoffe wurden dann im HKM zusammen mit der Polymermatrix compoundingiert. In Abb. 26 ist der Energiebedarf ausgewählter Compounds im Vergleich zu sehen. Mit steigendem Reststoffanteil im Verbundwerkstoff sinkt der Energiebedarf. Der Einsatz von 2 % Stearin zur besseren Haftvermittlung führt andererseits zu einer Erhöhung des Energiebedarfs.

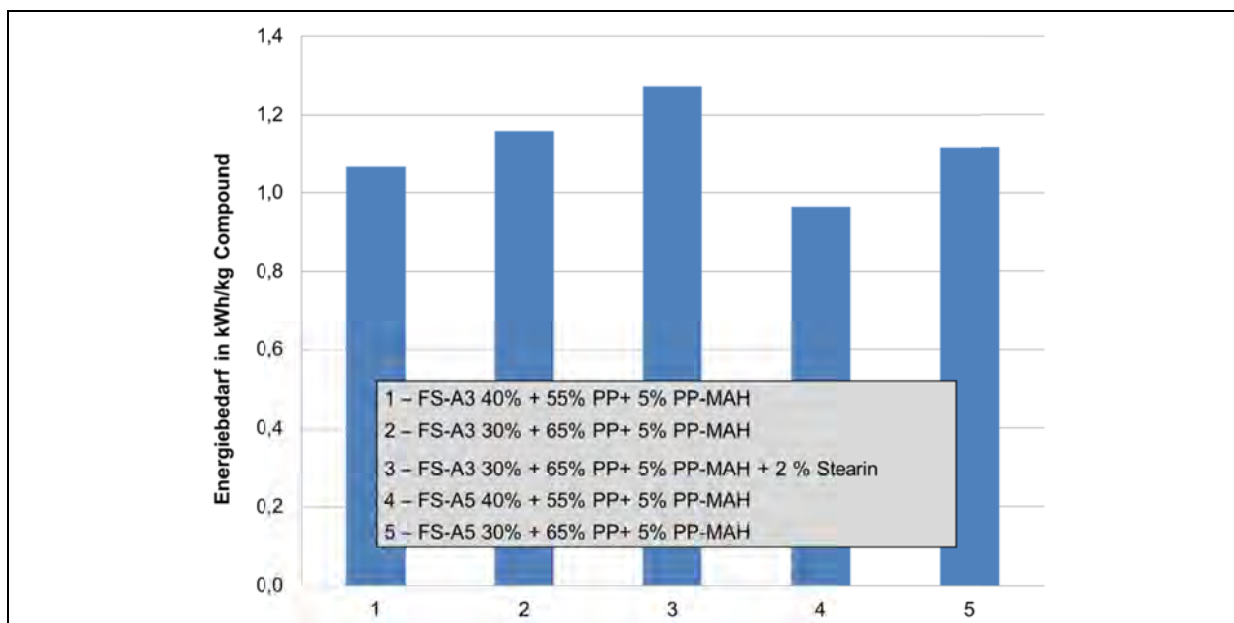


Abb. 26: Vergleich des Energiebedarfs ausgewählter Compounds



Bei einer Kostenbetrachtung müssen die beiden Prozessschritte (Reststofftrocknung und Compoundierung) addiert werden. In folgender Tabelle sind diese zusammengestellt:

**Tab. 7: Herstellungskosten in ct/kg für PPC 30 FS/70 PP**

Energiekosten in ct/kg	bei 6 ct/kWh	bei 8 ct/kWh	bei 10 ct/kWh
FS-Trocknung bis 24 % Restfeuchte	9	12	15
FS-Trocknung bis 5 % Restfeuchte	12	16	20
Compoundierung im HKM	7	10	12
FS-Trocknung bis 5 % und Compoundierung	19	26	32

Schließlich sollten auch noch die sozioökologischen Aspekte der alternativen Verbundmaterialien berücksichtigt werden, weil erfahrungsgemäß selbst überzeugende wirtschaftliche Vorteile der Nutzung von Reststoffen allenfalls eine notwendige noch nicht aber eine hinreichende Voraussetzung für eine ausreichende Marktakzeptanz darstellen.

Das vierte und letzte Themenfeld ist die Erprobung und Bewertung des Potenzials bzw. der zielgerichteten technologischen Weiterentwicklung des Extrusionsverfahrens für die Herstellung von PPCs.

## 6 Umsetzung der Projektergebnisse in die Wirtschaft

Die Beförderung der Transfermaßnahmen kann nur durch intensiven Austausch mit den industriellen Partnern aus der Papierindustrie sowie der Holz- und Kunststoffverarbeitung erreicht werden. In Tab. 8 sind die Transfermaßnahmen zusammengestellt:

**Tab. 8: Transfermaßnahmen**

Maßnahme	Ziel	Rahmen und Zeitraum
<b>Veröffentlichung</b>	Offenlegung erzielter Ergebnisse an ein breites Fachpublikum	„Paper-Polymer-Composites - Added value through recycling“ in ipw 11-12/2013; weitere Veröffentlichungen nach Projektendegeplant in Fachzeitschriften WfP; Verpackungsrundschau; Holzzentralblatt; holztechnologie; Wood Science and Technology
<b>Akademische Lehre, Berufliche Weiterbildung</b>	Aufnahme der Ergebnisse in akademische Lehre und Berufliche Weiterbildung	Nach Projektende Studentenausbildung Holz-, Papier-, und Kunststofftechnik, Verarbeitungsmaschinen; Inhouse-Schulung
<b>Symposien und Seminare</b>	Verbreitung der Ergebnisse in der Praxis bei speziellen Fachveranstaltungen	AiF-Tag TU Darmstadt 20.03.2013; APV-Jahrestagung in Dresden 31.05.2013; ZELLCHEMING-Jahrestagung 12-14.06. 2013; WPC-Kongress in Köln, Dezember 2013; PTS-Kooperationsforum, Heidenau 06.03.2014; AiF-Tag TU Darmstadt 20.03.2014; Holztechnisches Kolloquium, Dresden, 03.04.2014; Österreichische Papierfachtagung, Graz, Juni 2014; PTS Paper Symposium, München, 17./18.09. 2014;

<b>Messen</b>	Vorstellung der Ergebnisse	ZELLCHEMING-Expo Wiesbaden, Juni 2013; Messestand LIGNA Hannover
<b>Internet</b>	Projektergebnisse	Internet-Webseite des Instituts Holz- und Papier-technik <a href="http://www.tu-dresden.de">www.tu-dresden.de</a> ;

Zur Zielgruppe der Forschungsergebnisse gehören vor allem kleine und mittelständische Betriebe der Papierindustrie, der Kunststoffindustrie sowie spezialisierte Anlagenbauer, wobei einige Vertreter bereits durch Teilnahme im projektbegleitenden Ausschuss in das Forschungsprojekt eingebunden waren. Der Nutzen für die einzelnen Zielgruppen ist nochmals in folgender Übersicht Tab. 9 zusammengefasst:

**Tab. 9: Nutzen der Forschungsergebnisse für die Zielgruppen**

Papiererzeuger:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Verringerung von Entsorgungskosten für Papierreststoffe</li> <li>• Erschließung neuer Märkte in der Kunststoffverarbeitung</li> </ul>
Kunststoffherzeuger:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Verringerung von Rohstoffkosten durch Teilsubstitution von Polyolefinen bzw. des Holzmehls mit Papierreststoffen</li> </ul>
Anlagenbauer:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Erschließung neuer Märkte für Maschinenbauer</li> </ul>
Bauwesen:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Neue Produktsortimente im Bereich Deckings und Terrassenbau sowie im Innenausbau</li> </ul>
Möbelindustrie:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Neue witterungsbeständige Materialien und Produktsortimente im Bereich Innenausbau und Außenanwendungen sowie für Leichtbaulösungen (Extrusionsprofile)</li> </ul>
Endverbraucher:	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Erhöhte Akzeptanz für dauerhafte und umweltfreundliche Produkte</li> </ul>

Bei der industriellen Umsetzung der Innovation scheint für die Papierindustrie die Aufbereitung der Reststoffe in der Papierfabrik, die Compoundierung und der Verkauf des Granulats an die Kunststoffverarbeiter die effektivste Lösung zu sein. Eine noch einfachere Variante wäre für den Papierhersteller statt der Compoundierung der Reststoffe mit einer Polymermatrix die Herstellung und der Verkauf von Faserpellets aus Reststoffen.

## Literaturverzeichnis

- [1] M. Wanske, P.-G. Weber, S. Siwek, F. Jornitz, H. Großmann und A. Wagenführ, „Paper-Polymer-Composites (PPC) - Added value through recycling,“ Zellcheming- General Meeting, Wiesbaden, 2013.
- [2] H. Jung, J. Kappen und A. Hesse, „Aufkommen und Verbleib der Rückstände aus der deutschen Papier- und Zellstoffindustrie,“ *Wochenblatt für Papierfabrikation*, Nr. 11, 2011.
- [3] G. W. Ehrenstein, Faserverbund-Kunststoffe, München: Hanser, 2006.
- [4] Vieweg und Teubner, Handbuch Faserverbundkunststoffe. 3, Wiesbaden, 2010.
- [5] H. Schürmann, Konstruieren mit Faser-Kunststoff-Verbunden, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2007.
- [6] D. Vogt, „Wood-Plastic-Composites (WPC) - Holz-Kunststoff-Verbundwerkstoffe,“ Fachagentur Nachwachsende Rohstoffe, Hürth, 2006.
- [7] T. Grünberg, C. Mai und H. Miltz, Holz und Kunststoff - die Eigenschaften der Rohstoffe für Wood Plastic Composites (WPC), *holztechnologie*, Bd. Teil 1, 50, 2009.
- [8] M. Fuqua, H. Shanshan und C. A. Ulven, „Natural Fiber Reinforced Composites,“ *Polymer Reviews*, pp. 259-320, 2012 .
- [9] J. Blechschmidt, Taschenbuch der Papiertechnik, München: Carl Hanser Verlag, 2010.
- [10] R. Kleinert, P.-G. Weber und H. Großmann, „Bewertung der Wirksamkeit verschiedener Bindmittel zur Festigkeitssteigerung bei der Herstellung von PPC-Werkstoffen,“ Professur für Papiertechnik an der TU Dresden, 2013.
- [11] Schäfer, Dirk Franz Johann, Werkstoff- und Verfahrensentwicklung für Kunststoffbauteile aus naturfaserverstärkten Thermoplasten, Stuttgart: Dissertation, 2009.
- [12] Gassan, Jochen, Naturfaserverstärkte Kunststoffe, Aachen, Karlsruhe: Shaker Verlag, 1997.
- [13] Käß, Harald, „Eine logische Entwicklung,“ *Kunststoffe*, pp. 2-19, 08 2009.
- [14] H.-J. Endres und A. Siebert-Raths, Technische Biopolymere, München: Hanser, 2009.
- [15] S. Beucker und F. Weidemann-Marscheider, „Zukunftsmarkt Biokunststoffe. Fallstudie im Auftrag des Bundesumweltamt,“ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Berlin, 2007.
- [16] C. Gottlöber und C. Siegel, *Naturfaserverstärkte Kunststoffe; Vorlesung*, Dresden: Professur für Holz- und Faserwerkstofftechnik, 2012.
- [17] A. N. Netravali, Handbook of Engineering Biopolymers; Fiber/Resin Interface Modification in "Green" Composites, München: Carl Hanser Verlag, 2007.
- [18] C. C. Chamis, „Interfaces in Polymer Composites,“ Academic Press, New York, 1974.
- [19] M. R. Piggot und Z. N. Wang, „Relations between polymer and fibre-polymer interface,“ in *6th Technical Conference Composite Materials*, 1991.
- [20] A. N. Netravali, R. B. Henstenburg, S. L. Phoenix und P. Scvhartz, „Interfacial shear strength studies using the single-filament-composite test I: Experiments on graphite fibers in an epoxy,“ *Polymer Composites*, pp. 226-241, 10 1989.
- [21] A. K. Bledzki und J. Gassan, „Einfluß von Haftvermittlern auf das Feuchteverhalten naturfaserverstärkter Kunststoffe,“ *Die Angewandte Makromolekulare Chemie*, pp. 129-138, 1996.
- [22] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink und M. Sain, „Biocomposites reinforced with natural



- fibers," *Progress in Polymer Science, Bd. 37*, pp. 1552-1596, 2012.
- [23] P. Eyerer, P. Elsner und T. Hirth, *Polymer Engineering*, Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2008.
- [24] E. Bürkle, G. Scheel und L. Darnedde, „Energieeffiziente Verarbeitung naturfaserverstärkter Kunststoffe,“ *Kunststoffe*, pp. 39-44, 02 2009.
- [25] V. Lustig, *Grundzüge der Kunststoffverarbeitung. Vorlesung*, Dresden: Institut für Leichtbau und Kunststofftechnik, 2011.
- [26] A. Franck, *Kunststoff-Kompendium*, Würzburg: Vogel Buchverlag, 2000.
- [27] W. Michaeli, *Einführung in die Kunststoffverarbeitung*, München: Carl Hanser Verlag, 1999.
- [28] I. Radovanovic, „Verarbeitung und Optimierung der Rezeptur von Wood Plastic Composites (WPC),“ 23 03 2007. [Online]. Available: [http://repositorium.uniosnabrueck.de/bitstream/urn:nbn:de:gbv:700-2007041315/2/E-Diss657\\_thesis.pdf](http://repositorium.uniosnabrueck.de/bitstream/urn:nbn:de:gbv:700-2007041315/2/E-Diss657_thesis.pdf). [Zugriff am 23 10 2012].
- [29] G. Abts, *Kunststoff-Wissen für Einsteiger*, München: Carl Hanser Verlag, 2010.
- [30] S. Siwek, A. Wagenführ und W. Hufenbach, „Untersuchungen zur Herstellung von Papier-Polymer-Composites (PPC) aus Papierreststoffen,“ *Diplomarbeit*, Institut für Holz- und Papiertechnik an der TU Dresden, 2012.
- [31] W. R. A. Vauck und H. A. Müller, *Grundoperationen chemischer Verfahrenstechnik*, Leipzig, Stuttgart: Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1994, 10. Aufl..