

**Modellierungsansatz zur Vorhersage der mechanischen und  
rheologischen Eigenschaften von Polypropylen-Compounds**

**Modelling Approach for Predicting the Mechanical and Rheological  
Properties of Polypropylene Compounds**

Von der Fakultät für Maschinenwesen der Rheinisch-Westfälischen Technischen  
Hochschule Aachen zur Erlangung eines Doktors der Ingenieurwissenschaften  
genehmigte Dissertation

vorgelegt von  
Lukas Seifert

Berichter:    Universitätsprofessor Dr.-Ing. Christian Hopmann  
                  Universitätsprofessor Dr.-Ing. Robert Schmitt

Tag der mündlichen Prüfung: 03.09.2025

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Universitätsbibliothek online verfügbar.



## **VORWORT**

Die vorliegende wissenschaftliche Arbeit entstand in den Jahren 2021 bis 2025 während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Abteilung Extrusion und Kautschuktechnologie am Institut für Kunststoffverarbeitung in Industrie und Handwerk (IKV) an der RWTH Aachen.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr.-Ing. Christian Hopmann für die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit, die Betreuung, die gewährten Freiräume und das Vertrauen in meine Arbeit sowie die wertvolle Unterstützung. Ebenso bedanke ich mich bei Herrn Prof. Dr.-Ing. Robert Schmitt für die Übernahme des Korreferats sowie Herrn Prof. Dr.-Ing. Georg Jacobs für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.

Ein herzliches Dankeschön richte ich an alle Mitarbeitenden des IKV, insbesondere der Abteilungen Extrusion und Kautschuktechnologie, des Zentrums für Kunststoffanalyse und -prüfung sowie der Werkstatt und den Elektrikern. Die kollegiale Arbeitsatmosphäre, die Unterstützung und die enge Zusammenarbeit haben wesentlich zum Erfolg dieser Arbeit beigetragen. Mein besonderer Dank gilt Malte Schön, Philipp Schäfer, Tobias Horn und Lisa Leuchtenberger-Engel für die wertvolle Unterstützung und die hilfreichen, fachlichen Diskussionen rund um die Modellierung und die praktischen Versuche. Malte Schön, Mauritius Schmitz, Philipp Schäfer und Lisa Leuchtenberger-Engel danke ich zudem für die kritische Durchsicht dieser Arbeit.

Mein außerordentlicher Dank gilt den Projekt-, Bachelor- und Masterarbeitenden sowie den studentischen Hilfskräften für ihre Beiträge zu dieser Arbeit: Henrik Schleef, Sabrina Franken, Jan Büdding, Katharina Baum, Felix Reifenhäuser, Jesper Hase, Philipp Bauer, Robin Kraus, Chanakya Kuntamukkala und Katja Niggemann.

Zu guter Letzt danke ich meiner Familie für den unerschütterlichen Rückhalt und die Unterstützung während meiner gesamten Studienzzeit.

Die Ergebnisse dieser Arbeit wurden im Rahmen des BMFTR-Projekts „KI-Anwendungshub Kunststoffverpackungen – Innovationslabor: KIOptiPack – Ganzheitliche KI-basierte Optimierung von Kunststoffverpackungen mit Rezyklatanteil“ (Förderkennzeichen 033KI115) erarbeitet. Dieses Projekt wurde durch das Bundesministerium für Forschung, Technologie und Raumfahrt (BMFTR) gefördert. Mein ausdrücklicher Dank gilt allen beteiligten Institutionen. Außerdem danke ich den Unternehmen Sabic AG, Basell Polyolefine GmbH, OMYA GmbH, Polyvel Europe GmbH und Südpack Verpackungen GmbH für die Bereitstellung von Versuchsmaterialien. Dem Unternehmen KraussMaffei Extrusion GmbH danke ich für die Möglichkeit zur Durchführung meiner Scale-Up Versuche in deren Technikum in Laatzen.

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Stand der Forschung und Technik</b>	<b>4</b>
2.1	Stand der Technik zur Aufbereitung von Kunststoffen auf dem Doppelschneckenextruder	4
2.2	Modifikation von Polypropylen-Compounds in der Aufbereitung	5
2.2.1	Blenden verschiedener PP-Typen	6
2.2.2	Füllende Zuschlagstoffe am Beispiel Calciumcarbonat	7
2.2.3	Einsatz von Peroxid zum kontrollierten Abbau von PP	8
2.2.4	Schlagzähigkeitsmodifikation von PP durch andere Polymere	11
2.3	Rezepturenentwicklung von Compounds	12
2.3.1	Herausforderungen bei der Rezepturenentwicklung von Compounds	12
2.3.2	Status Quo der Rezepturenentwicklung in der Industrie	14
2.3.3	Einfache Mischungsmodelle zur Vorhersage der Compouneigenschaften	15
2.3.4	Einsatz maschineller Lernmethoden zur Vorhersage von Materialeigenschaften	22
2.3.5	Aufbau, Funktionsweise und Bewertung von künstlichen neuronalen Netzen	26
<b>3</b>	<b>Abgeleitete Forschungsfragen, Zielsetzung und Vorgehen</b>	<b>31</b>
<b>4</b>	<b>Eingesetzte Materialien, Methoden und Software</b>	<b>34</b>
4.1	Eingesetzte Rezepturbestandteile	34
4.2	Anlagentechnik zur Compoundherstellung	36
4.2.1	Anlagenkonfiguration der Laboranlage	36
4.2.2	Anlagenkonfiguration der Industrieanlage für das Scale-Up	38
4.3	Charakterisierung der Compouneigenschaften	39
4.3.1	Bestimmung rheologischer Kennwerte	39
4.3.2	Bestimmung mechanischer Kennwerte	40
4.4	Systematische Versuchsplanung zur Datengenerierung	41
4.4.1	Versuchspläne für Versuche auf der Laboranlage	42
4.4.2	Versuchspläne für Versuche auf der Industrieanlage	43
4.5	Eingesetzte Software	44
<b>5</b>	<b>Analytische Beschreibungsmodelle der Compouneigenschaften</b>	<b>46</b>
5.1	Grundlegender Aufbau der analytischen Modelle	46
5.2	Analytisches Beschreibungsmodell des E-Modul	48
5.2.1	Mischungsregeln für Polymerblends	48
5.2.2	Modellierung von Calciumcarbonat als Füllstoff	53
5.2.3	Modellierung des Peroxideinflusses	58
5.2.4	Modellierung des Kerbschlagmodifikators	64
5.2.5	Aggregation zum Gesamtmodell zur Vorhersage des E-Moduls	67

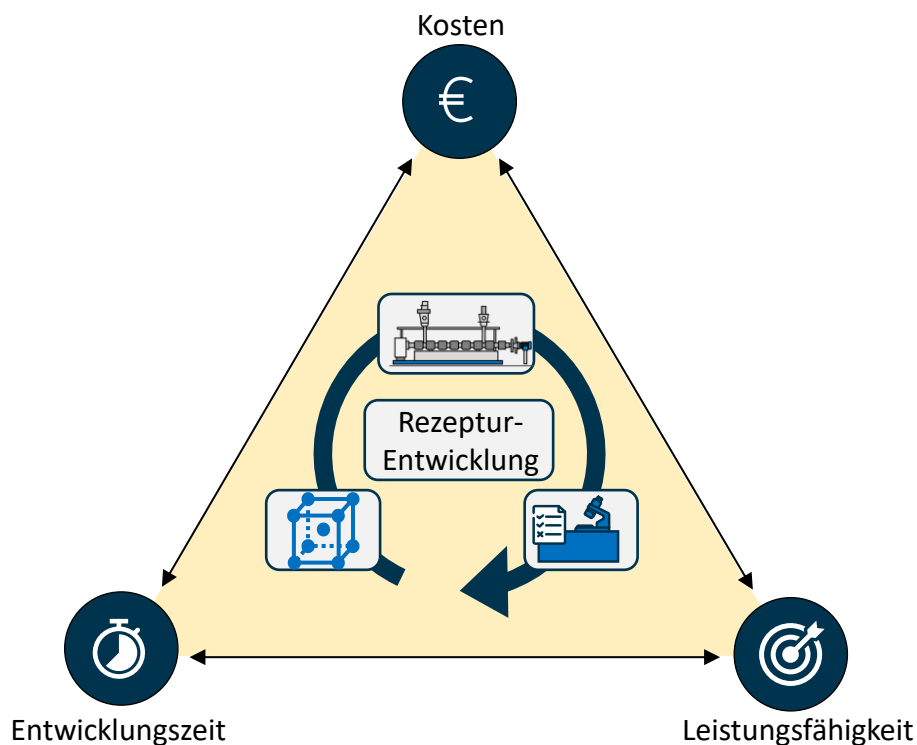
<b>5.3</b>	<b>Analytisches Beschreibungsmodell der Scherviskosität.....</b>	<b>67</b>
5.3.1	Modellierung der Scherviskositätskurve.....	68
5.3.2	Modellierung des Blendeinflusses .....	69
5.3.3	Modellierung von Calciumcarbonat.....	70
5.3.4	Modellierung des Peroxideinflusses .....	74
5.3.5	Modellierung des Kerbschlagmodifikators.....	78
5.3.6	Aggregation zum Gesamtmodell zur Vorhersage der Scherviskosität .....	79
<b>5.4</b>	<b>Analytisches Beschreibungsmodell des MFR.....</b>	<b>79</b>
<b>5.5</b>	<b>Analytisches Beschreibungsmodell der Kerbschlagzähigkeit .....</b>	<b>80</b>
<b>5.6</b>	<b>Zwischenfazit und Beantwortung der ersten Forschungsfrage .....</b>	<b>81</b>
<b>6</b>	<b>Bewertung und Transfer der analytischen Modelle .....</b>	<b>83</b>
6.1	Erzielte Vorhersagegenauigkeiten für die Laboranlage .....	83
6.2	Bewertung des reinen Scale-Up der einzelnen analytischen Modelle.....	90
6.3	Bewertung des Transfers der Modelle auf Datensätze komplexer Rezepturen .....	94
6.4	Fazit zur Modellqualität und dem Transfer auf andere Datensätze .....	97
<b>7</b>	<b>Vergleich der analytischen Modelle mit Künstlichen Neuronalen Netzen .....</b>	<b>98</b>
7.1	Referenzmodellierung mit KNN .....	98
7.2	Vergleich der Vorhersagen zwischen KNN und AM .....	99
7.2.1	Vergleich von AM und KNN für den Datensatz der Laboranlage .....	100
7.2.2	Vergleich von AM und KNN für die komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage .....	101
7.3	Bewertung der Vorhersagen von KNN und AM im direkten Vergleich.....	102
<b>8</b>	<b>Rezepturentwicklung mit AM und Genetischen Algorithmen .....</b>	<b>103</b>
8.1	Referenzmaterial .....	103
8.2	Generierung neuer Rezepturen mittels genetischer Algorithmen .....	104
8.3	Praktische Validierung der identifizierten Rezepturen .....	106
8.4	Bewertung des Einsatzes von AM und GA zur Rezepturentwicklung .....	108
<b>9</b>	<b>Fazit und Ausblick.....</b>	<b>110</b>
<b>10</b>	<b>Zusammenfassung und Summary.....</b>	<b>113</b>
10.1	Zusammenfassung .....	113
10.2	Summary .....	114
<b>11</b>	<b>Abkürzungen, Formelzeichen, Indizes .....</b>	<b>115</b>
11.1	Abkürzungen.....	115
11.2	Formelzeichen.....	116
11.3	Indizes.....	118

---

<b>12</b>	<b>Literatur .....</b>	<b>120</b>
<b>13</b>	<b>Anhang.....</b>	<b>128</b>
13.1	Versuchspläne der Labor- und Industrieanlage .....	128
13.2	Ergänzende Diagramme zu der Herleitung des Modells für Omyalite 50 H.....	131
13.3	Ergänzende Diagramme zu dem analytischen Modell für den MFR.....	132
13.4	Ergänzende Diagramme zu dem analytischen Modell für die Kerbschlagzähigkeit .....	135
13.5	Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Versuche auf der Laboranlage	137
13.6	Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Scale-Up Versuche auf der Industrieanlage.....	139
13.7	Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Validierungsversuche mit komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage .....	141
13.8	Ergebnis der Hyperparameteroptimierung für das Training der Künstlichen Neuronalen Netze	144

# 1 Einleitung

Etwa 70 % aller technischen Innovationen und Neuentwicklungen hängen direkt oder indirekt mit den Eigenschaften der verwendeten Werkstoffe zusammen [NN07]. Insbesondere in der Kunststoffverarbeitung stehen die Entwicklungszeit für neue Materialien, die Leistungsfähigkeit bzw. Erfüllung aller an das Material gestellten Anforderungen und die Herstellungskosten in enger Konkurrenz zueinander. Zur Erzielung aller Materialspezifikationen und der gleichzeitigen Minimierung der Kosten für den entwickelten Kunststoff sind beispielsweise lange Entwicklungszeiten erforderlich. Dieses Spannungsfeld ist in Bild 1.1 dargestellt.



*Bild 1.1: Spannungsfeld zwischen der Entwicklungszeit, der Leistungsfähigkeit und den Kosten neuer Kunststoffcompounds.*

*Fig. 1.1: Tension between the development time, performance and costs of new plastic compounds.*

Um gleichzeitig geringe Materialkosten für die Kunststoffcompounds, kurze Entwicklungszeiten und eine Übereinstimmung mit den an das Material gestellten Anforderungen zu erreichen, sind systematische und effiziente Methoden der Rezepturentwicklung erforderlich. Die Rezepturentwicklung wird derzeit maßgeblich von drei wesentlichen Trends beeinflusst. Zum einen steigt die Nachfrage nach kundenspezifischen Compounds in kleinen bis mittleren Losgrößen [Bar13, Ste23]. Zum anderen werden die

Produktlebenszyklen von Kunststoffprodukten immer kurzlebiger, wodurch eine schnelle Anpassung der Rezepturen erforderlich ist [Bar13, Ste05]. Letztlich tragen Regularien dazu bei, dass in den kommenden Jahren der Einsatz von Rezyklaten für Kunststoffanwendungen in Form von Mindestrezyklatquoten steigen muss und aufgrund der schwankenden Materialzusammensetzung der Rezyklate mit damit einhergehenden Schwankungen in den Gebrauchs- und Verarbeitungseigenschaften immer neue Anpassungen an die Rezepturen erforderlich machen [NN24a, Mel24].

Im Bereich der Kunststoffverarbeitung stellen die Materialkosten für die Herstellung von Lebensmittelverpackungen, Automobilteilen oder Produkten für den Baubereich den größten Kostenposten dar. So können diese in der Extrusion bei bis zu 80 % [GLF17] und im Spritzgießen je nach Formteilgröße und Material im Bereich 50 % bis 55 % liegen [BBO+13, BR23], so dass diese bereits den Großteil des Produktpreises ausmachen.

Um den in Bild 1.1 dargestellten Anforderungen an geringe Kosten für den Kunststoff bei einer kurzen Entwicklungszeit und der Erfüllung aller an die Leistungsfähigkeit gestellten Anforderungen gerecht zu werden, bedarf es einer systematischen und effizienten Vorgehensweise zur Rezepturentwicklung. Die Rezepturentwicklung erfolgt in der Praxis überwiegend empirisch und iterativ [Bar13, Mel24, Ste23]. Diese Vorgehensweise verursacht erhebliche experimentelle Aufwände und hohe Kosten [Bar13, Mel24, Ste23]. Um diesen Entwicklungsprozess zu beschleunigen und gleichzeitig zielgerichtet und systematisch neue Rezepturen abzuleiten, können Vorhersagemodelle eingesetzt werden, die auf der Basis möglichst weniger experimenteller Daten zuverlässige Vorhersagen über die resultierenden Materialeigenschaften treffen. Hierfür werden einerseits Mischungsmodelle genutzt, die zwar wenige Daten für die Anwendung benötigen, aber nur für Kunststoffrezepturen mit wenigen Bestandteilen anwendbar sind. Zum anderen können maschinelle Lernansätze für komplexe Rezepturen mit vielen Bestandteilen genutzt werden, aber diese benötigen deutlich mehr Datensätze für die Anwendung.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, eine neuartige Modellierungsmethode zu entwickeln, die die Vorteile beider Ansätze vereint. Der angestrebte Ansatz soll auch für komplexe Kunststoffrezepturen mit vielen Komponenten anwendbar sein und dabei weniger experimentelle Daten benötigen als maschinelle Lernverfahren. Zur Validierung der Methodik werden gezielte experimentelle Untersuchungen durchgeführt, um entsprechende Datensätze zu generieren. Als repräsentatives Anwendungsbeispiel wird eine typische

Rezeptur für die Verpackungsindustrie untersucht. Neben anderen Sektoren wie der Baubranche oder dem Automobilbereich stellt die Verpackungsindustrie mit einem Anteil von 39 % eines der wichtigsten Anwendungsgebiete für Kunststoffe in Europa dar. Im Bereich der Verpackungsherstellung werden vorwiegend Polyolefine eingesetzt. Polypropylen (PP) ist dabei neben den verschiedenen Typen an Polyethylen (PE) einer der am häufigsten eingesetzten Kunststoffe mit einem Anteil von ca. 22 % [URL24, URL25a]. Daher wird als Fallbeispiel der vorliegenden Arbeit eine für die Verpackungsherstellung typische Compoundrezeptur auf der Basis von PP ausgewählt.

## 2 Stand der Forschung und Technik

In den folgenden Kapiteln wird der Stand der Forschung zur Rezepturentwicklung von Kunststoffcompounds für Verpackungsanwendungen beschrieben. In Kapitel 2.1 wird der Stand der Technik des Aufbereitungsprozesses von Kunststoffen auf dem Doppelschneckenextruder beschrieben. In Kapitel 2.2 wird zunächst auf die verschiedenen Möglichkeiten der Eigenschaftsmodifikation von Polypropylen-Compounds eingegangen. Neben dem Blenden verschiedener Polymere (Kapitel 2.2.1) werden gängige Füllstoffe und Additive zur Funktionalisierung von PP diskutiert (Kapitel 2.2.2 – Kapitel 2.2.4). In Kapitel 2.3 liegt der Fokus auf dem Entwicklungsprozess neuer Compounds mit Hilfe der zuvor beschriebenen Funktionalisierungsmöglichkeiten. Dabei werden zunächst die Herausforderungen der Rezepturentwicklung in Kapitel 2.3.1 sowie der Status quo der Rezepturentwicklung in der industriellen Praxis in Kapitel 2.3.2 beleuchtet. Darauf erfolgt die Diskussion verschiedener Ansätze zur Systematisierung der Rezepturentwicklung. Hierzu werden in Kapitel 2.3.3 der Einsatz von Mischungsmodellen und in Kapitel 2.3.4 maschinelle Lernverfahren vorgestellt. Abschließend beschreibt Kapitel 2.3.5 die Grundlagen neuronaler Netze und ordnet diese für den Einsatz in der Rezepturentwicklung ein.

### 2.1 Stand der Technik zur Aufbereitung von Kunststoffen auf dem Doppelschneckenextruder

Die grundlegenden Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften von Polymeren werden maßgeblich durch ihre Molekulargewichtsverteilung, die sterische Ordnung sowie die Anzahl und Art der Verzweigungen entlang der Polymerkette bestimmt [DHM22]. Durch Variation der Molekulargewichtsverteilung, des Molekulargewichtsmittels und der Taktizität von Polymeren können in der Polymerisation gezielt verschiedene Typen hergestellt werden, die sich beispielsweise in ihrer Schlagzähigkeit oder Fließfähigkeit unterscheiden [BBO+13, Bon09, DHM22]. Auch die Zahl und Kettenlänge der Verzweigungen im Polymer beeinflusst Verarbeitungseigenschaften wie die Fließfähigkeit, die Kristallisation und die Verstreckbarkeit [DHM22]. Eine weitere Möglichkeit, die Eigenschaften von Kunststoffen zu modifizieren, ist die Synthese von Copolymeren bestehend aus verschiedenen Monomeren [DHM22]. Durch gezielte Variation der Ausgangsmomere sowie deren Anordnung in der Polymerkette können auch hier Eigenschaften wie z. B. die Schlagzähigkeit oder Alterungsbeständigkeit

beeinflusst werden [DHM22]. In der Praxis werden die synthetisch hergestellten Basispolymere selten in reiner Form eingesetzt und bedürfen eines weiteren Aufbereitungsschrittes, um die an sie gestellten Anforderungen für den Einsatz im Endprodukt oder Verarbeitungsprozess zu erfüllen [HM15, MS16]. In diesem Aufbereitungsschritt (Compoundierung) können verschiedene Basispolymere miteinander kombiniert und Füllstoffe bzw. Additive zugegeben werden. Das hergestellte Compound kann anschließend direkt im Weiterverarbeitungsprozess eingesetzt werden. Dieser Compoundierschritt findet in den meisten Fällen auf dem gleichläufigen, ineinandergreifenden Doppelschneckenextruder statt [DHM22, Koh16].

Im gleichläufigen, ineinandergreifenden Doppelschneckenextruder rotieren zwei achsparallele, in der Schmelze schwimmend gelagerte Schnecken mit gleicher Drehzahl und Drehrichtung. Die Flanken der modular aufgebauten Schnecken kämmen bei jeder Umdrehung den Grund der anderen Schnecke ab und induzieren hohe Schubspannungen am Schneckenrund, die verbliebene Rückstände abtragen [Koh16]. Durch das Abkämmen resultiert darüber hinaus eine enge Verweilzeitverteilung im Doppelschneckenextruder [Koh16]. Die Plastifizierung des Kunststoffes erfolgt durch den Eintrag von Scherenergie über die Schneckenrotation, die Dehndeformation der Granulate und durch die Wärmeübertragung der elektrisch oder fluidtemperierten Gehäuseelemente [Gre96, Koh16]. In Abhängigkeit von der Aufbereitungsaufgabe, z. B. der Einarbeitung von Füllstoffen, kann die Schneckenkonfiguration für die erforderliche dispersive und distributive Mischwirkung konfiguriert werden [HB78, Koh16, VBT92]. Neben dem Einsatz der Doppelschnecke zum Plastifizieren und Homogenisieren verschiedener Polymere und Füllstoffe, können auch chemische Reaktionen, wie z. B. der gezielte Abbau von PP mit Peroxiden, realisiert werden (Kapitel 2.2.3) [Gre96].

## **2.2 Modifikation von Polypropylen-Compounds in der Aufbereitung**

Für die gezielte Modifikation der Eigenschaften von PP im Aufbereitungsprozess auf der Doppelschnecke steht eine Vielzahl von Zuschlagstoffen wie Verarbeitungshilfsmittel, Stabilisatoren, Antistatika, Farbstoffe, Füllstoffe und vieles mehr zur Verfügung, die alle für spezifische Anforderungen an das Compound eingesetzt werden können [HM15, MS16]. Eine Betrachtung all dieser Zuschlagstoffe im Rahmen dieser Arbeit ist aufgrund komplexer Wirkungszusammenhänge nicht zielführend. Zur gezielten Modifikation der mechanischen

Eigenschaften von Compounds werden in der Praxis hauptsächlich Schlagzähmodifikatoren und Füllstoffe eingesetzt. Zur Modifikation der Fließfähigkeit von PP ist der kontrollierte Abbau mit Peroxiden ein etabliertes Verfahren. Neben der Zugabe von Zuschlagstoffen können die Compouneigenschaften auch durch Blenden von Kunststoffen mit unterschiedlichen Eigenschaftsprofilen eingestellt werden. Diese einzelnen Vorgehensweisen zur gezielten Modifikation von PP werden im Folgenden näher betrachtet.

### **2.2.1 Blenden verschiedener PP-Typen**

Unter einem Blend wird die Mischung mehrerer Polymere bezeichnet, bei der sich die Eigenschaften der entstehenden Polymerkombinationen deutlich von den ursprünglichen Eigenschaften der Ausgangspolymere unterscheiden. In der Regel handelt es sich um rein physikalische Mischungen, bei denen keine kovalenten chemischen Bindungen zwischen den verschiedenen Blendpartnern ausgebildet werden [KBR19]. Beim Blenden kann zwischen homogenen und heterogenen Mischungen unterschieden werden. Bei miteinander verträglichen Polymeren (z. B. zwei unterschiedliche PP-Typen), bildet sich im Compound eine einzige Phase aus, während bei unverträglichen Polymeren (z. B. PP mit Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk (EPDM)) ein Mehrphasensystem entsteht [KBR19]. Im Beispiel von EPDM und PP kann dies explizit erwünscht sein, um z. B. die Kerbschlagzähigkeit eines PP-Compounds zu erhöhen (siehe Kapitel 2.2.4). In der Praxis werden häufig verschiedene PP-Typen miteinander kombiniert. Dadurch kann ein gezieltes Eigenschaftsprofil zwischen den Eigenschaften eines Standard-PP und eines hochspezialisierten PP erreicht werden. Darüber hinaus bietet sich das Blenden auch aus wirtschaftlichen Gründen an, um die eingesetzte Menge teurer hochspezialisierter PP-Typen durch das Mischen mit preisgünstigen Massenkunststoffen zu reduzieren [KBR19]. Die erforderlichen Verhältnisse der Blendpartner im Compound hängen von den Ausgangseigenschaften beider Blendpartner ab. Zur Erzielung einer Schmelze-Massefließrate (MFR) von 12 g/10 min in einem Blend aus zwei Homopolymer PP-Typen mit den MFR-Werten von 20 g/10 min (PP 1) und 4 g/10 min (PP 2) ist beispielsweise ein Verhältnis von ca. 35 % PP 2 und ca. 65 % PP 1 erforderlich, und das Mischungsmodell ist nichtlinear [TKF23]. Für andere Compouneigenschaften kann der Zusammenhang linear sein. Eine Aufarbeitung des Standes der Forschung zur Beschreibung solcher Blendzusammensetzung erfolgt in Kapitel 2.3.3.

### 2.2.2 Füllende Zuschlagstoffe am Beispiel Calciumcarbonat

Füllstoffe sind im Allgemeinen Zusätze in fester Form, die sich in ihrer Zusammensetzung und Struktur wesentlich von dem Matrixmaterial unterscheiden [MS16]. Die Wirkung von Füllstoffen beruht im Wesentlichen auf der Verdrängung des weicheren Polymers durch den steiferen Füllstoff, so dass das Compound insgesamt steifer wird [MS16]. Neben inaktiven Füllstoffen, die in der Regel die Kosten reduzieren, können ebenfalls aktive Füllstoffe zur gezielteren Verbesserung der mechanischen Eigenschaften eingesetzt werden [MS16]. Zerkleinerte mineralische Gesteine stellen mit einem Marktanteil von ca. 30 % die wichtigsten Füllstoffe in PP-Compounds für die Verpackungsherstellung dar [URL25b]. Bei den mineralischen Füllstoffen sind Calciumcarbonate ( $\text{CaCO}_3$ ) die am weitesten verbreiteten Füllstoffe, die durch Zermahlen von Kreide, Kalkstein oder Marmor gewonnen werden können [MS16, Ris20]. Die Wirkungsweise der Calciumcarbonate als Füllstoff wird maßgeblich durch deren chemische Zusammensetzung, Oberflächenbeschaffenheit und Korngrößenverteilung bestimmt. Aufgrund der hohen Oberflächenenergie von Calciumcarbonaten neigen diese zur Agglomeratbildung und Wasseraufnahme, was die Einarbeitung in die polymere Matrix und eine feine Dispergierung des Füllstoffs erschwert. In der Regel werden mineralische Füllstoffe für den Einsatz in Thermoplasten daher über eine Oberflächenbeschichtung vorbehandelt [KSJ+22, MS16, RGP14]. Die Korngrößenverteilung von Calciumcarbonaten wird in Datenblättern über den mittleren Teilchendurchmesser  $d_{50}$  % sowie den oberen Schnitt (top cut)  $d_{98}$  % angegeben. Der  $d_{50}$  % Wert stellt hierbei den Medianwert aller Partikel dar, während der  $d_{98}$  % Wert den Teilchendurchmesser beschreibt, der nur von 2 % der Teilchen überschritten wird. Insbesondere der  $d_{98}$  % Wert erweist sich oft als entscheidend für die Selektion geeigneter Füllstoffe, da die belasteten Verpackungen aus den Compounds unter mechanischer Beanspruchung zunächst Risse und Brüche in der unmittelbaren Umgebung der größten Calciumcarbonatkörner ausbilden [MS16]. Demgegenüber haben die Feinanteile des eingesetzten Calciumcarbonats einen entscheidenden Einfluss auf die Staubentwicklung beim Handling und neigen eher zur Agglomeration und erfordern daher eine intensivere Dispergierung im Aufbereitungsprozess.

Calciumcarbonat wirkt sich als Füllstoff unmittelbar auf die Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften von PP-Compounds aus. Die Zugabe von Calciumcarbonat erhöht zunächst die Viskosität des Materials, da die Füllstoffpartikel nicht scherbär sind, was aufgrund der Limitationen durch Maximaldrücke zu einer erschwerten Verarbeitbarkeit im Extrusions-

oder Spritzgießprozess führen kann [KB19, KHDK17, KJ18, MM17, MS16]. Des Weiteren werden die Temperaturleitfähigkeit in der Schmelze sowie das Kristallisationsverhalten beeinflusst [MS16, SVD15]. Durch den reduzierten Polymeranteil gefüllter Compounds und der damit einhergehenden erhöhten Temperaturleitfähigkeit lassen sich diese schneller aufheizen und auch abkühlen, so dass z. B. in der Blasfolienextrusion durch effizientere Abkühlprozesse schnellere Liniengeschwindigkeiten oder im Spritzgießen kürzere Zykluszeiten im Vergleich zu ungefüllten Compounds realisierbar sind [MM17]. Aufgrund des geringeren Energiebedarfs für das Aufschmelzen der gefüllten Compounds können die spezifischen Energieeinträge pro Kilogramm hergestelltes Compound reduziert werden und Verarbeitungsmaschinen z. B. mit kleineren Motoren ausgestattet werden. Neben den Verarbeitungseigenschaften verändern sich auch die Gebrauchseigenschaften der mit Calciumcarbonat gefüllten Compounds. Mit steigendem Füllstoffanteil nimmt die Steifigkeit des Materials zu, was zu einer Erhöhung des Elastizitätsmoduls (E-Modul) führt [KHDK17, MM17, PMVW21, WQAR24]. Neben dem E-Modul wird auch die Kerbschlagzähigkeit der Compounds durch die Zugabe von Calciumcarbonat beeinflusst [PMVW21, WQAR24]. Während der E-Modul mit steigendem Füllstoffgehalt zunimmt, nimmt die Bruchdehnung mit steigendem Füllstoffgehalt ab [KHDK17, KSJ+22]. Letztlich erhöht ein zunehmender Füllstoffgehalt auch die Wirtschaftlichkeit der Compounds und senkt deren CO<sub>2</sub>-Emissionen, da die Calciumcarbonate nur einen Bruchteil des Polymerpreises ausmachen und geringe CO<sub>2</sub>-Emissionen aufweisen [MS16, URL25c, WQAR24].

### **2.2.3 Einsatz von Peroxid zum kontrollierten Abbau von PP**

Bereits bei den üblichen Verarbeitungstemperaturen von PP und der Scherbeanspruchung im Extruder finden Kettenspaltungsreaktionen statt, die das Molekulargewicht reduzieren [MS16]. Zweifel führt das Beispiel einer Mehrfachextrusion von PP bei einer Verarbeitungstemperatur von 260 °C auf [Zwe98]. Im Vergleich zum Molmassenmittel des unverarbeiteten PP von 270.000 g/mol beträgt dieses nach einmaliger Extrusion bereits 178.000 g/mol und nach dreimaliger Extrusion nur noch 72.000 g/mol [Zwe98]. Die Polydispersität als Maß für die Breite der Molekulargewichtsverteilung nimmt bei der Mehrfachextrusion ebenfalls ab [Zwe98].

Für die Kunststoffverarbeitung ist dieser unkontrollierte Abbauprozess nicht erwünscht, so dass bereits am Ende der Polymersynthese von PP Antioxidantien zugesetzt werden, um diese

Reaktion zu reduzieren. Der Kettenabbau von PP kann aber auch gezielt forciert werden, um die Polydispersität und die Viskosität zu reduzieren [AG04, CASM18, KDK+17, YSM04]. Hierzu ist der Einsatz von organischen Peroxiden bei der Verarbeitung auf der Doppelschnecke weit verbreitet [MS16]. Diese zerfallen bei der Verarbeitungstemperatur in der Polymerschmelze zu freien Radikalen, die in der Lage sind, H-Atome aus dem PP-Rückgrat abzuspalten. Organische Peroxide zeichnen sich durch das Vorhandensein einer Peroxygruppe (-O-O-) aus, die durch eine homolytische Spaltung der Elektronenpaarbindung unter Bildung von zwei Radikalen zerfällt [MS16, SGK+20]. Der Reaktionsverlauf zwischen Peroxiden und PP ist in Bild 2.1 dargestellt.

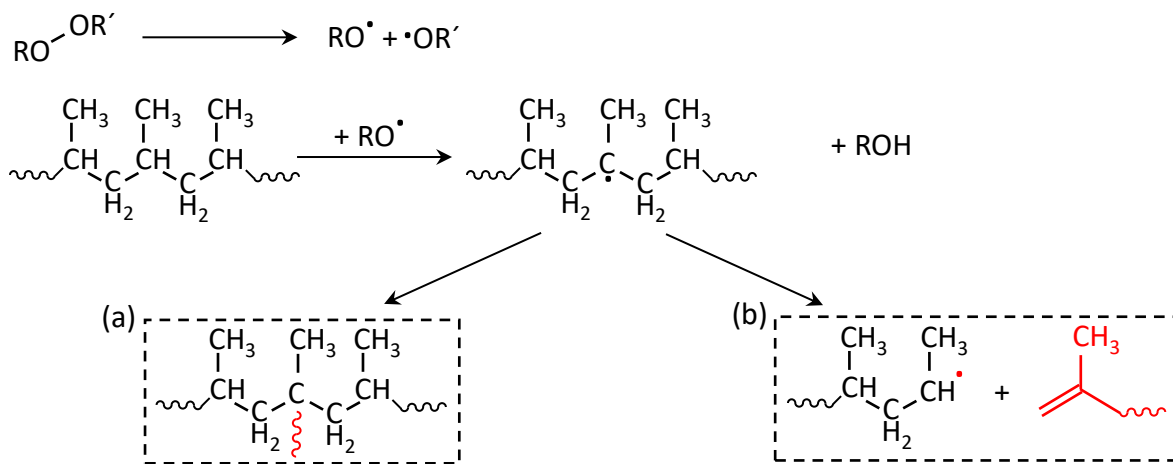


Bild 2.1: Reaktionsablauf eines Peroxids bei PP zu Langkettenverzweigung (a) oder  $\beta$ -Spaltung (b) [SGK+20].

Fig. 2.1: Reaction of peroxide with PP leading to long chain branching (a) or  $\beta$ -scission (b) [SGK+20].

Die gebildeten Radikale  $RO\cdot$  des Peroxids greifen die PP-Kette an und bilden ein Makroradikal des PP. Diese Radikalbildung erfolgt bei PP bevorzugt an den tertiären Kohlenstoffatomen, an denen die Methylgruppen (-CH<sub>3</sub>) gebunden sind. Ausgehend vom Makroradikal können zwei verschiedene Reaktionen ablaufen. Bei einer Langkettenverzweigung (a) kombinieren sich zwei Makroradikale miteinander, während bei einer  $\beta$ -Spaltung (b) das Makroradikal in ein sekundäres Radikal und eine kürzere ungesättigte Kette fragmentiert [SGK+20]. Aufgrund der sterischen Hinderung (Abschirmung des Reaktionszentrums durch die räumliche Ausdehnung der kovalent gebundenen Kohlenstoffatome) ist die Wahrscheinlichkeit einer Kettenspaltung bei der Reaktion von PP mit Peroxiden ohne Zusatz weiterer Chemikalien oder Polymere größer als die Wahrscheinlichkeit der Langkettenverzweigung, so dass der Molekulargewichtsabbau dominiert [MS16]. Die Bildung der Makroradikale des PP durch die

vom Peroxid gebildeten Radikale ist ein statistischer Prozess, bei dem die Wahrscheinlichkeit der Radikalbildung für jedes tertiäre Kohlenstoffatom einer PP-Kette gleich ist. Dies führt dazu, dass lange Ketten mit einer höheren Anzahl von Kohlenstoffatomen häufiger einer Kettenspaltung unterliegen und die Polydispersität abnimmt [MS16]. Da PE keine Methylgruppen besitzt, neigt es im Gegensatz zu PP eher zur Langkettenverzweigung als zur  $\beta$ -Spaltung [MS16]. Daher kann beim kontrollierten Abbau von PP mit Peroxiden zusätzlich PE zugegeben werden, um eine gezielte Vernetzung zwischen PP- und PE-Makroradikalen zu realisieren und so beispielsweise die Kerbschlagzähigkeit des Compounds zu erhöhen [HBM94]. Das Verhältnis von Kettenabbau- und Langkettenverzweigungsreaktionen hängt dabei direkt vom Ethylengehalt ab [MS16].

Neben der Spaltung des Peroxids und der resultierenden Langkettenverzweigung oder  $\beta$ -Spaltung können die in Bild 2.2 dargestellten Nebenreaktionen auftreten. Anstelle einer Spaltung oder Langkettenverzweigung kann eine Disproportionierung (c) stattfinden, bei der ein Makroradikal oxidiert und ein anderes reduziert wird. Außerdem können sich die Makroradikale mit den Radikalen aus der Peroxidzerersetzung verbinden (d). Antioxidantien, die aktiv während des Prozesses zur Kontrolle zugegeben werden oder im Ausgangspolymer vorhanden sind, können ebenfalls mit den Radikalen reagieren (e) [MS16].

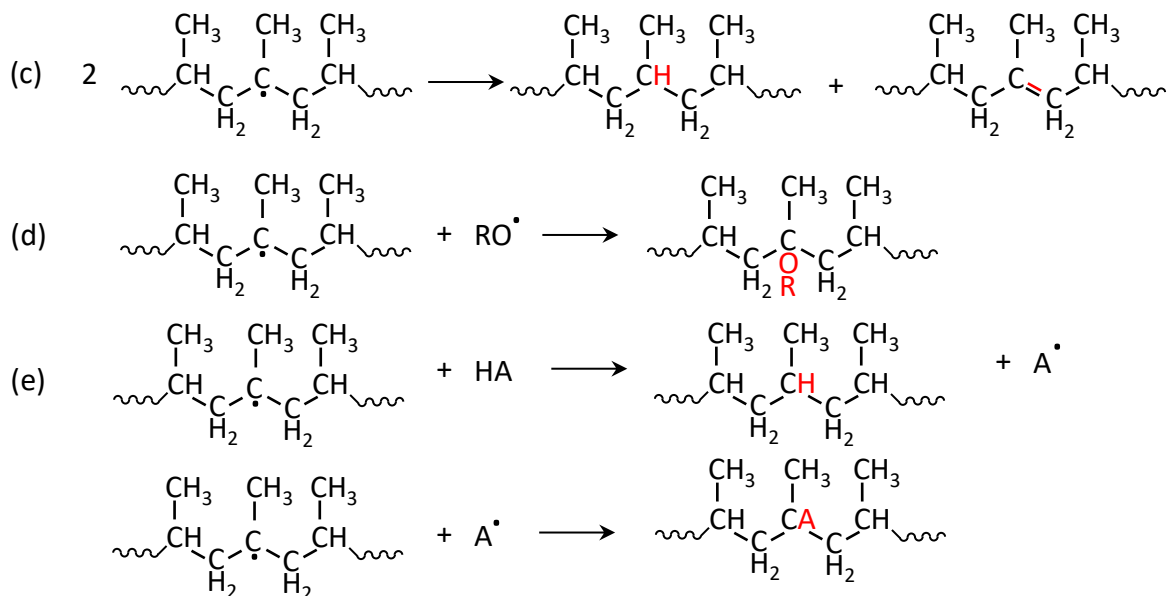


Bild 2.2: Nebenreaktionen bei der Verarbeitung von PP mit Peroxiden [MS16].

Fig. 2.2: Side reactions of PP with peroxide [MS16].

Für den kontrollierten Abbau von PP können verschiedene Peroxytypen wie Alkylperoxide, Peroxidester, Peroxidcarbonate oder Diacylperoxide eingesetzt werden [MS16]. Eine

wesentliche Randbedingung ist, dass die Halbwertszeit des Peroxids (Zeitpunkt, zu dem die Hälfte der Anfangskonzentration verbraucht bzw. abgebaut ist) deutlich kleiner sein muss als die Verweilzeit im Extruder, damit das Peroxid am Ende des Extrusionsprozesses vollständig abgebaut ist. Ebenso beeinflussen Anforderungen wie ein möglicher Lebensmittelkontakt des Endproduktes oder die während der Verarbeitung entstehenden flüchtigen Bestandteile die Wahl des Peroxids [MS16]. Die Reaktionskinetik beim kontrollierten Kettenabbau mit Peroxiden ist sowohl von der Peroxidkonzentration als auch von der Temperatur abhängig. Am Beispiel eines Homopolymer PP mit einem MFR von 3 g/10 min führen bereits 0,1 Gew.-% Dialkylperoxid bei 200 °C zu einer Erhöhung des MFR auf 49,8 g/10 min und bei 225 °C zu einer Erhöhung des MFR auf 60,4 g/10 min [MS16]. Zur einfachen Dosierung des Peroxids im Prozess haben sich Masterbatches etabliert, bei denen das Peroxid in einem Trägermaterial gebunden ist [MS16, Seb22].

#### **2.2.4 Schlagzähigkeitsmodifikation von PP durch andere Polymere**

Sofern die Schlagzähigkeit eines Compounds für den geplanten Anwendungsfall nicht ausreicht, können Schlagzähigkeitsmodifikatoren zur gezielten Einstellung der Schlagzähigkeit eingesetzt werden [Kai11]. Darüber hinaus finden Schlagzähigkeitsmodifikatoren Anwendung, um die Schlagzähigkeit auch bei niedrigen Einsatztemperaturen (beispielsweise Temperaturen < 0 °C) zu erhalten [Kai11]. Eine etablierte Methode zur Modifikation der Schlagzähigkeit von PP basiert auf der Zugabe von elastomeren Komponenten, die in der Lage sind, die Energie von schlagartigen Belastungen aufzunehmen und somit die Rissbildung bzw. das Risswachstum im Kunststoff zu reduzieren [FB14]. Die Wirksamkeit dieser Modifikatoren beruht vor allem auf einer feinen Dispersion der elastischen Phase in der Matrixphase sowie einer guten Verträglichkeit und Haftung zwischen den beiden Phasen [Kai11, NN04]. Für den Einsatz in PP sind daher beispielsweise EPDM, Ethylen-Propylen-Copolymere (EPM) oder Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymere (SEBS) gut erforscht [Kai11, KLA+23, LKS06, NN04, STS+10]. Weit verbreitet ist auch der Einsatz von metallocenkatalysierten Ethylen-Octen-Copolymeren (EOC), die im Vergleich zu EPM und EPDM in geringeren Mengen eingesetzt werden können und kostengünstiger sind [KLA+23, LKS06, STS+10]. Die Wirkung bzw. die benötigte Menge an EOC, um eine bestimmte Schlagzähigkeit zu erreichen, hängt zudem vom Octenanteil im verwendeten EOC ab [LKS06].

## 2.3 Rezepturentwicklung von Compounds

Jedes Kunststoffprodukt einschließlich des zugrundeliegenden Herstellungsprozesses stellt individuelle Anforderungen an die Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften des verwendeten Kunststoffs. Die Rezepturentwicklung beschäftigt sich mit der gezielten Kombination der in Kapitel 2.2 beschriebenen Funktionalisierungsmöglichkeiten von PP, um ein Compound zu entwickeln, das diese Anforderungen erfüllen kann. In den folgenden Kapiteln werden zunächst die sich daraus ergebenden Herausforderungen und die klassische, in der Industrie etablierte Vorgehensweise zu deren Bewältigung dargestellt. In den Kapiteln 2.3.3 und 2.3.4 wird der Stand der Forschung im Bereich der Mischungsmodelle sowie der Einsatz maschineller Lernmethoden zur gezielten rezepturabhängigen Vorhersage von Compouneigenschaften dargestellt. Abschließend erfolgt in Kapitel 2.3.5 die Erläuterung der Funktionsweise der am weitesten verbreiteten maschinellen Lernmethode (ML), der künstlichen neuronalen Netze (KNN).

### 2.3.1 Herausforderungen bei der Rezepturentwicklung von Compounds

Wie zuvor beschrieben, müssen Kunststoffe eine Vielzahl von Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften erfüllen. In der Regel bedeutet dies nicht nur die Erfüllung eines spezifischen Kriteriums, wie z. B. einer definierten Kerbschlagzähigkeit, sondern die Erfüllung mehrerer solcher Vorgaben. Neben den Anforderungen an die Verarbeitungs- und Gebrauchseigenschaften des Compounds spielen auch Faktoren wie die Kosten der einzelnen Komponenten oder die Anzahl möglicher Lieferanten für bestimmte Additive oder Polymere eine Rolle. Zusätzlich gewinnen der CO<sub>2</sub>-Fußabdruck und die Rezyklatanteile im eingesetzten Compound zunehmend an Bedeutung. Gerade für die Anwendung von Kunststoffen im Bereich der Verpackungsherstellung schreiben Regularien wie die neue europäische Verpackungsverordnung (PPWR) Mindestrezyklatanteile von 35 % ab 2030 und 65 % ab 2040 bei der Herstellung von Kunststoffverpackungen aus Polyolefinen für nicht kontaktempfindliche Anwendungen vor [NN24a]. Insbesondere die Rohstoffgruppe der Rezyklate erfordert eine kontinuierliche Anpassung bestehender Rezepturen, um batchübergreifend und reproduzierbar die gleichen Compouneigenschaften beizubehalten, da die Materialzusammensetzung aus dem haushaltsnahen Verpackungsabfallstrom für jede gelieferte Rezyklatcharge variieren kann [Mel24]. Damit einhergehend können die mechanischen und rheologischen Eigenschaften wie E-Modul, Schlagzähigkeit oder MFR für

jedes Batch Rezyklat unterschiedlich sein [Mel24]. Mischsilos können zwar zur Homogenisierung verschiedener Chargen eingesetzt werden, binden aber auch viel Kapital und sind daher vor allem für kleinere Compoundeure nicht die Ideallösung.

Bei der Rezepturentwicklung handelt es sich somit um eine klassische Mehrzieloptimierung, bei der mehrere Zielgrößen wie beispielsweise Compoundpreis, E-Modul, MFR und Mindestrezyklatanteil gleichzeitig erreicht werden sollen und teilweise auch im Widerspruch zueinander sein können [Bar13, CRN22, FSDB25]. So kann ein hoher Rezyklatanteil zwar günstiger als Neuware sein, aber aufgrund der geringen Kerbschlagzähigkeit des Rezyklats den Einsatz teurer Kerbschlagmodifikatoren erfordern, so dass die Gesamtkosten des Compounds bei höheren Rezyklatanteilen sogar steigen können. Andererseits kann die Verwendung einer Vielzahl von Komponenten in einer Rezeptur zwar die geforderte Spezifikation des Compounds für die Endanwendung erfüllen, aber aufgrund der Vielzahl der Komponenten eine logistische Herausforderung darstellen. Alle Komponenten müssen vor der Aufbereitung vorgehalten und gelagert werden und benötigen je nach Darbietungsform (Pulver, Granulat, Flüssigkeit usw.) separate Dosieraggregate. Die Komplexität wird zusätzlich dadurch erhöht, dass jeder Füllstoff und jedes Additiv nicht nur gezielt auf die für die Anwendung gewünschte Eigenschaft des Compounds wirkt, sondern potenziell alle Eigenschaften gleichzeitig verändert. Dies wird bereits an den im vorherigen Kapitel vorgestellten Additiven und Füllstoffen deutlich. So kann durch die Zugabe von Calciumcarbonat gezielt die Mechanik eines Compounds beeinflusst werden, während gleichzeitig die Fließfähigkeit beeinflusst wird [KB19, MM17, PMVW21, WQAR24]. Peroxid hingegen wirkt sich durch den gezielten Kettenabbau bei PP primär auf die Fließfähigkeit aus, aber durch die geringere Polydispersität und das geringere Molekulargewicht resultieren ebenfalls Veränderungen vieler anderer mechanischer Eigenschaften [AG04, CASM18, MS16, SH24, YSM04]. Neben der Mehrfachwirkung der einzelnen Komponenten kann es auch zu Wechselwirkungen zwischen Additiven kommen. Letztlich ist die Auswahl an möglichen Komponenten für eine Rezeptur schier unendlich. Auf dem Markt sind unterschiedlichste Additive und Polymere erhältlich. Allein für das Beispiel des Polymerherstellers LyondellBasell besteht die Auswahl an PP-Homopolymeren aus mehr als 500 möglichen Typen [URL25d]. Auch wenn sich unter diesen hunderten Typen zahlreiche Homopolymere mit einem MFR von z. B. 4 g/10 min befinden, sind diese nicht zwangsläufig vollständig untereinander substituierbar, da E-Modul, Kerbschlagzähigkeit oder zusätzlich enthaltene Additive (z. B. Stabilisierung) voneinander

abweichen können. Der Kunststoffaufbereiter, der mit der Aufgabe der Entwicklung eines neuen Compounds betraut wird, steht somit vor der Herausforderung, aus der Fülle möglicher Komponenten auszuwählen, deren Wechselwirkungen auf Basis von Erfahrungswissen abzuschätzen, in aufwändigen und kostenintensiven Versuchen zu quantifizieren und anschließend eine geeignete Rezeptur zu identifizieren. Um dieser Herausforderung möglichst effizient zu begegnen, ist eine systematische Vorgehensweise bei der Rezepturentwicklung unabdingbar [Bar13].

### 2.3.2 Status Quo der Rezepturentwicklung in der Industrie

Die Rezepturentwicklung von Kunststoffcompounds ist bei den meisten Compoundeuren ein iterativer und zeitaufwändiger Prozess [Bar13, KBR19, Koh16, Mel24, Ste23]. Die weitgehend etablierte Vorgehensweise ist in Bild 2.3 dargestellt.

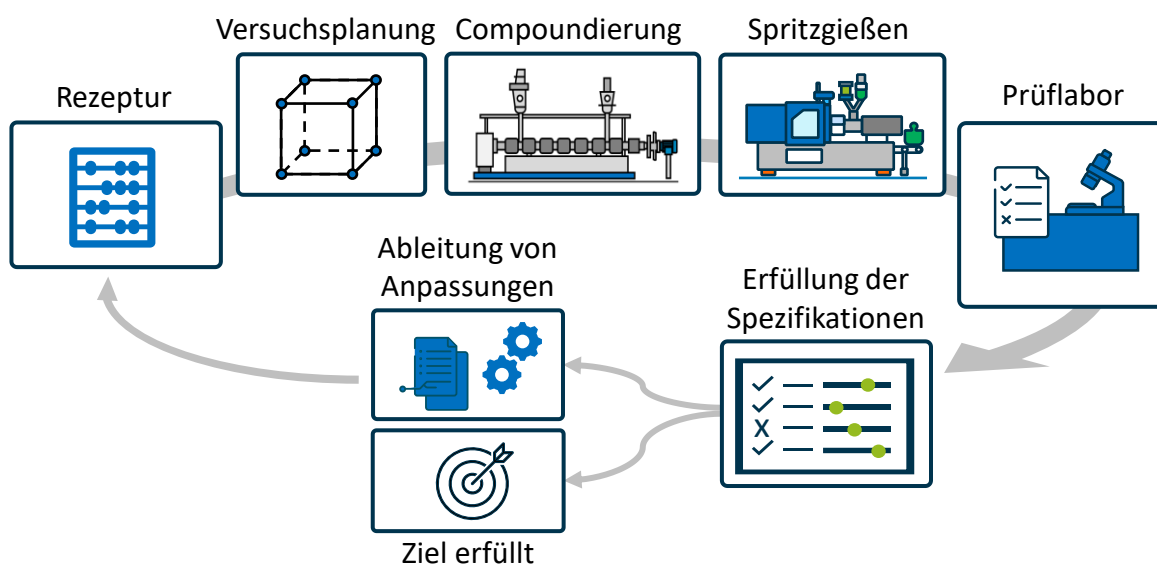


Bild 2.3: Vorgehen bei der konventionellen Rezepturentwicklung in der Compounding.

Fig. 2.3: Conventional approach for formulation development in compounding.

Nachdem für ein neues Compound eine Vorauswahl der möglichen Rezepturbestandteile getroffen wurde, kann ein Versuchsplan für die Herstellung erster Compounds aufgestellt werden, in dem die Mengenanteile der einzelnen Komponenten gezielt variiert werden. Anhand des erstellten Versuchsplans erfolgt die Herstellung der einzelnen Compounds auf Laboranlagen. Während die rheologischen Materialprüfungen am Granulat durchgeführt werden können, müssen für die Bestimmung von mechanischen Eigenschaften zunächst separate Probekörper im Spritzgießen hergestellt werden, so dass eine Prüfung dieser

Eigenschaften erst zeitversetzt zu den Compoundierversuchen möglich ist. Erst dann können die mit den eingesetzten Rezepturen erzielten Compouneigenschaften mit den Vorgaben verglichen und bewertet werden. Auf Basis dieses Abgleichs werden dann weitere Versuche mit angepassten Rezepturen geplant und die Vorgehensweise wiederholt, bis eine zufriedenstellende Rezeptur identifiziert wurde [Bar13]. Der Aufwand für eine erste Versuchsreihe kann bereits immens sein. Ein Beispiel hierfür ist die Rezepturentwicklung eines PP-Compounds zur Herstellung einer blasgeformten Verpackung (z. B. Sonnencreme-Flasche). Hierfür wird ein bestimmter Farbton, eine Mindestkerbschlagzähigkeit gegen einen Sprödbbruch beim Herunterfallen der Flasche sowie eine Stabilisierung gegen Ultraviolettstrahlung (UV) gefordert. Um diese drei Compouneigenschaften zu erreichen, sind im einfachsten Fall neben dem Basispolymer ein Farbmasterbatch, ein UV-Stabilisator und ein Schlagzähmodifikator erforderlich. Für einen einfachen faktoriellen Versuchsplan mit zwei Variationen der Rezepturkomponenten wären bereits 16 Compoundierversuche inklusive Probenherstellung und Charakterisierung erforderlich [Kle11, Kle14, SS18]. Zweistufige Versuchspläne berücksichtigen nur lineare Zusammenhänge [Kle11, Kle14, SS18]. Da die Wirkungsweise der einzelnen Komponenten zum Teil komplex und nichtlinear ist, erhöht sich der Aufwand bei einem dreistufigen Versuchsplan, der diese Nichtlinearitäten berücksichtigen kann, auf 81 Compoundierversuche [Kle11, Kle14, SS18]. Aus ökonomischer Sicht ist eine solche Versuchsdurchführung sehr kosten- und zeitintensiv und damit sehr risikobehaftet [Bar13, Mel24]. Die klassische Rezepturentwicklung ist insgesamt häufig unsystematisch, so dass z. B. bei gleichen Ausgangskomponenten und Zielgrößen unterschiedliche Rezepturen identifiziert werden, wenn unterschiedliche Mitarbeiter mit der Rezepturentwicklung betraut sind. Durch eine gezieltere Auswahl der Versuchspläne und vor allem durch die Einbeziehung des Erfahrungswissens der Mitarbeiter im Unternehmen sowie der Dosierempfehlungen der Materialhersteller kann die Anzahl der durchzuführenden Versuche reduziert werden [Bar13, Mel24, SH24].

### **2.3.3 Einfache Mischungsmodelle zur Vorhersage der Compouneigenschaften**

Die in Kapitel 2.3.2 beschriebene Methodik der Rezepturentwicklung ist durch eine umfangreiche Versuchsplanung mit hohem Kosten- und Zeitaufwand gekennzeichnet. Mit Vorhersagemodellen, die die Interaktion einzelner Rezepturkomponenten miteinander hinsichtlich deren Wirkung auf die Compouneigenschaften quantifizieren können, kann

dieser Vorgang beschleunigt werden. Eine einfache Methode hierfür ist die Verwendung von Mischungsmodellen. Diese beschreiben mathematisch mit wenigen Parametern das Zusammenwirken verschiedener Rezepturbestandteile auf eine Zielgröße (z. B. Viskosität) [TKF23, TMF+22].

Die Viskosität von Blends hängt von einer Vielzahl von Einflussgrößen wie der Molekulargewichtsverteilung, der Morphologie sowie der Mischbarkeit der Polymere untereinander ab [FP75, GBI00]. Die allgemeine Formel zur Beschreibung der Viskosität einer heterogenen Mischung nach *Grizzuti et. al.* ist in Gleichung 2.1. dargestellt [GBI00, Nie74].

$$\eta_{Blend}^n = \phi_A \eta_A^n + (1 - \phi_A) \eta_B^n \quad (2.1)$$

Dabei ist  $\eta_{Blend}$  die Viskosität des Blends aus den beiden Komponenten *A* und *B* mit ihren jeweiligen Reiviskositäten sowie den Volumenanteilen  $\phi$  in der Mischung. Der Exponent  $n$  ist der Parameter, mit dem der mathematische Zusammenhang der allgemeinen Mischungsregel angepasst werden kann. In der Praxis weit verbreitet sind die Mischungsmodelle für Fluide nach *Arrhenius*, *Bingham*, *Cragoe*, *Kenall* und *Monroe* sowie *Walther*, die sich aus unterschiedlichen Werten für  $n$  aus der allgemeinen Mischungsregel ableiten lassen [Arr87, Bin14, Cra33, GL12, KM17, Wal31]. Beispielsweise ergibt sich das logarithmische Mischungsmodell nach *Arrhenius* aus  $n \rightarrow 0$  mit  $n > 0$  und das Modell nach *Cragoe* aus  $n \rightarrow 0$  mit  $n < 0$  [Arr87, Cra33, GBI00]. Für den Spezialfall  $n = 1$  wird das allgemeine Mischungsmodell auf ein lineares Modell reduziert [GBI00]. Viele dieser Modellvariationen wurden in der Vergangenheit für die Anwendung auf Polymere untersucht. *Traxler et. al.* reproduzierten eine zuvor von *Gao und Li* durchgeführte Untersuchung an Rohölmischungen zur systematischen Evaluierung der zuvor genannten Mischungsmodelle. Ziel war die Vorhersage des MFR-Wertes von Polymerblends verschiedener PP-Typen, darunter Neuware sowie Rezyklate [GL12, TKF23, TMF+22]. Bei den untersuchten Blendreihen wurden die geringsten Abweichungen zwischen Mischungsregel und realem Versuchspunkt mit den Modellen nach *Cragoe* und *Arrhenius* erzielt [TMF+22]. *Stewart et. al.* konnten den MFR von Blends aus HDPE (High-Density Polyethylen) und PP mit der von *Grizzuti et. al.* aufgestellten allgemeinen Mischungsregel für  $n = 0,5$  abbilden [GBI00, SSNP23].

Der MFR-Wert ist ein in der Industrie weit verbreiteter Kennwert, der nur als grober Anhaltspunkt für die Fließfähigkeit von Kunststoffen geeignet ist, da seine Aussagekraft bei hohen Scherraten (wie z. B. bei der Verarbeitung im Spritzguss) eingeschränkt ist.

Tiefgreifenderes Verständnis über die Fließfähigkeit von Kunststoffen kann über die Scherviskosität für verschiedene Scherraten gewonnen werden, für die ähnliche Untersuchungen mit Hilfe von Mischungsmodellen durchgeführt wurden. *Grizzuti et al.* entwickelten bestehende Mischungsregeln für die Anwendung auf nicht mischbare Polymerblends aus Polyisobutan (PIB) und Polydimethylsiloxan (PDMS) weiter [GBI00]. *Utracki* entwickelte durch zusätzliche Parameter in Gleichung 2.1 weitere Mischungsregeln für nicht mischbare Polymerblends, mit denen deren Mischungsverhalten genauer beschrieben werden kann [SSNP23, Utr91]. *Haley und Lodge* entwickelten auf Basis anderer Modelle zur Vorhersage der Kettenrelaxation sowie Monomerreibungsfaktoren [LM00, Tse89] ein Mischungsmodell zur Vorhersage der Nullviskosität von Blends verschiedener Polymertypen wie Styrol-Acrylnitril-Copolymer (SAN), Polymethylmethacrylat (PMMA) oder HDPE [HL04]. Die in ihrer Komplexität gestiegenen Mischungsmodelle sind weiterhin nur durch die Materialparameter der Ausgangspolymere bestimmt [HL04]. Adaptionen dieser Mischungsmodelle können auch zur Vorhersage der Nullviskosität von Polyolefinblends verwendet werden [LWH02]. *Kneidinger et al.* untersuchten Scherviskositätsmischregeln für binäre Blends mit PP und Mischungen mit PP und Polyamid (PA) ohne und mit Kompatibilisierung. Sie bestätigten, dass die lineare Mischungsregel für homogene, mischbare Blends die höchste Genauigkeit aufweist, während sie für die Mischung von PP und PA ohne zusätzliche Kompatibilisierung nicht anwendbar ist [KWLZ24]. *Fisches et al.* untersuchten Mischungsregeln für Compounds aus Polystyrol (PS) mit Masterbatches auf Polystyrolbasis und stellten ebenfalls fest, dass für die Modellierung der Scherviskosität einfache lineare Mischungsregeln am besten funktionieren [FKG+13].

Neben der Vorhersage der rheologischen Eigenschaften von Polymerblends können Mischungsregeln auch zur Vorhersage mechanischer Eigenschaften wie des E-Moduls verwendet werden. Auch hier stellen die meisten in der Literatur untersuchten Mischungsregeln Ableitungen und Modifikationen der allgemeinen Mischungsregel aus Gleichung 2.1. dar [CP76, Dav71, HK76, Kol97, Nie74, VVL+00, WSLB99, YKP+17]. Analog zu den Mischungsregeln zur Vorhersage der Viskosität sind die mechanischen Eigenschaften eng mit der Zusammensetzung und Morphologie der Blends verknüpft, sodass die verschiedenen aufgestellten Mischungsregeln nicht allgemeingültig, sondern blendspezifisch sind [WSLB99]. Beispielsweise unterscheiden sich die Mischungsregeln für dispersive Blends, bei denen ein Blendpartner als Dispersionsphase vorliegt, von ko-kontinuierlichen Blends, bei denen die

beiden Phasen der Blendpartner eine durchgehende ineinander verschlungene Morphologie ausbilden [VVL+00, WSLB99].

Mischungsregeln können nicht nur auf Polymerblends, sondern auch auf Compounds aus Polymer und Füllstoff oder Polymer und Additiv angewendet werden. Beispielsweise können Mischungsregeln verwendet werden, um den Einfluss von Füllstoffen auf die mechanischen Eigenschaften eines Compounds in Abhängigkeit ihres Volumengehalts zu beschreiben [PMVW21, ŠP03, VH90].

Unabhängig davon, ob die Mischungsregeln auf eine Mischung aus zwei Polymeren oder auf ein Polymer mit Füllstoff oder Additiv angewendet werden, und unabhängig davon, welche Eigenschaft der Mischung vorhergesagt werden soll, haben die Mischungsregeln folgende Gemeinsamkeiten:

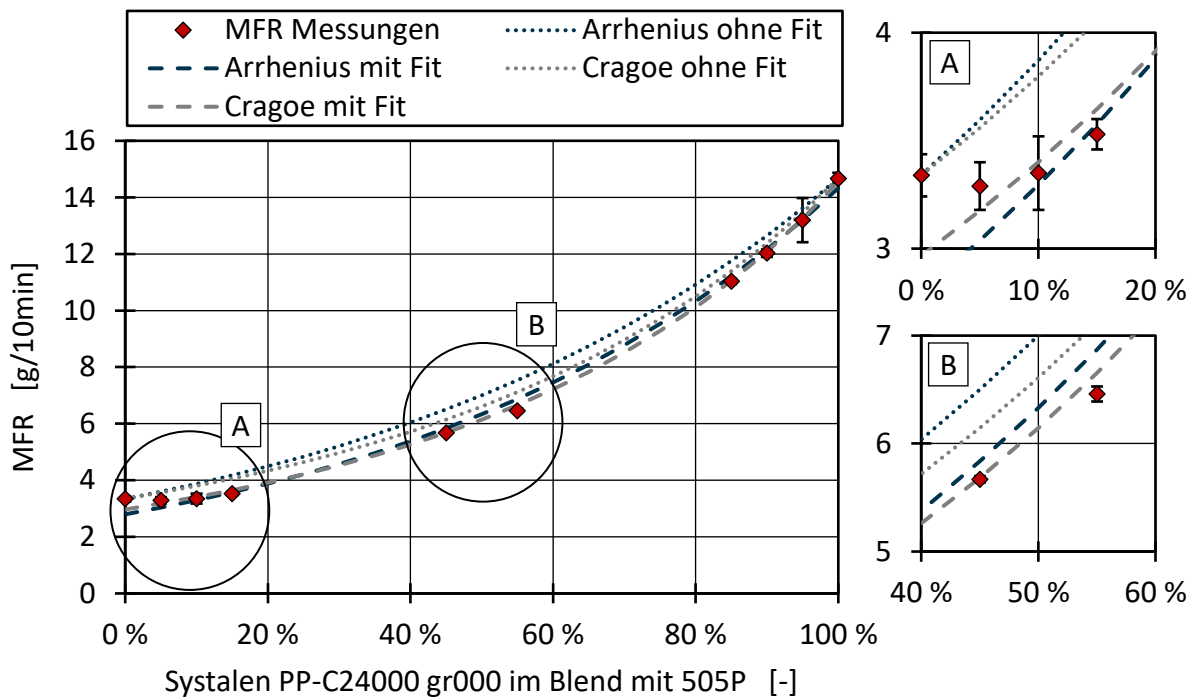
- a) Für die Anwendung von Mischungsmodellen sind nur die Eigenschaften der Ausgangsstoffe und ihre Anteile in der Mischung erforderlich.
- b) Die in der Literatur untersuchten Mischungsmodelle beziehen sich fast ausschließlich auf Zweikomponentensysteme, d. h. reine Polymerblends bzw. Polymer und Füllstoff oder Additiv.
- c) Es gibt keine Mischungsmodelle, die universell z. B. zur Vorhersage des MFR oder des E-Moduls von Polymerblends eingesetzt werden können. Je nach Materialkombination, Morphologie und Molekulargewicht sind immer unterschiedliche mathematische Zusammenhänge für den konkreten Anwendungsfall ideal.

Aus diesen drei Einschränkungen der Mischungsmodelle ergeben sich Herausforderungen für die Anwendung im Rezeptentwicklungsprozess für neue Compounds. Wie in den Kapiteln 2.2 und 2.3.2 beschrieben, bestehen Compounds aus mehreren Komponenten, um ein breites Anforderungsprofil zu erfüllen, so dass Mischungsmodelle für nur zwei Materialien nicht ohne weiteres verwendet werden können. Darüber hinaus erfordern Mischungsmodelle (z. B. zur Beschreibung des Einflusses von Calciumcarbonat in PP) eine aufwändige Charakterisierung der Materialeigenschaften der Ausgangsstoffe [VH90]. Obwohl für einfachere Mischungsmodelle, z. B. zur Vorhersage des MFR von Blends, nur die MFR-Werte der Ausgangspolymere bekannt sein müssen, müssen diese Messungen sehr genau sein. Ansonsten wirken sich Fehler in diesen Werten auf die Vorhersage der gesamten

Blendbandbreite aus [SLH24a, TKF23, TMF+22]. Um die Anwendbarkeit der klassischen Mischungsregeln für die Vorhersage des MFR und der Scherviskosität von PP-Blends zu erhöhen, können die im Mischungsmodell verwendeten Materialwerte der Ausgangspolymere über eine Fehlerminimierung gefittet werden [SLH24a]. Am Beispiel des MFR ist dies in Gleichung 2.2 dargestellt.

$$\min_{MFR_{PP\ 1}, MFR_{PP\ 2}} L = \sum_{i=1}^n [MFR_{Blend,i} - f_{MFR_{Blend,i}}(x_{PP\ 1,i}, x_{PP\ 2,i}, MFR_{PP\ 1}, MFR_{PP\ 2})]^2 \quad (2.2)$$

Hierbei werden die für das Mischungsmodell (z. B. Arrhenius) notwendigen Ausgangsmaterialwerte  $MFR_{PP\ 1}$  und  $MFR_{PP\ 2}$  so optimiert, dass der quadratische Fehler zwischen den Messungen  $MFR_{Blend,i}$  und den berechneten Werten  $f_{MFR_{Blend,i}}$  minimiert wird. Am Beispiel von fünf verschiedenen Blendreihen mit jeweils zehn Mischungsabstufungen verschiedener Homo- und Blockcopolymere von PP und PP-Rezyklaten wurde dieser Ansatz für die von *Traxler et. al.* für den Einsatz bei PP am präzisesten identifizierten Mischungsmodelle nach *Arrhenius* und *Cragoe* untersucht [SLH24a, TMF+22]. Dabei konnte der mittlere Vorhersagefehler der Mischungsmodelle über die fünf Mischungsreihen durch den Fitting-Ansatz für das Modell nach *Arrhenius* um 35 % und für das Modell nach *Cragoe* um 17 % reduziert werden. Ein Beispiel für den Unterschied in der Vorhersagegenauigkeit ist für den Blend aus dem Rezyklat Systalen PP-C24000 gr000 und dem Homo-PP 505P in Bild 2.4 dargestellt.



*Bild 2.4: Vorhersage des MFR-Wertes im Blend zwischen Systalen PP-C24000 gr000 mit Sabic 505P für das Arrhenius- und Cragoe-Modell mit und ohne Fit der Mischungsregelparameter [SLH24a].*

*Fig. 2.4: Prediction of the MFR value in the blend between Systalen PP-C24000 gr000 with Sabic 505P for the Arrhenius and Cragoe model with and without fit of the mixing rule parameters [SLH24a].*

Hier ist zu erkennen, dass die beiden Mischungsmodelle, die nur auf den Messungen des MFR der beiden Reinpolymeren basieren, den MFR aller Blendabstufungen überschätzen, insbesondere für die beiden Abstufungen mit 45 % bzw. 55 %. Durch den Fitting-Ansatz wird der Verlauf über die gesamte Blendabstufung für beide Modelle deutlich besser wiedergegeben. Das Fitting der Mischungsregelparameter hat darüber hinaus den Vorteil, dass die Mischungsmodelle auch auf Datensätze angewendet werden können, in denen die Reinmaterialien nicht verarbeitet bzw. charakterisiert wurden.

#### Bewertung von Mischungsregeln für den Einsatz in der Rezepturentwicklung

Aus der Sicht des Rezepturentwicklers haben Mischungsregeln den größten Vorteil hinsichtlich ihrer Nachvollziehbarkeit und einfachen Anwendbarkeit. Die Zusammenhänge zwischen der Zugabe von Zuschlagstoffen oder dem Mischungsverhältnis von Mischungsbestandteilen auf die Eigenschaften des Compounds lassen sich anhand der Kennlinien bzw. der dahinterstehenden mathematischen Formulierung sehr gut nachvollziehen. Vorteilhaft ist auch, dass für die grundsätzliche Anwendbarkeit der

Mischungsregeln keine aufwändige Versuchsdurchführung notwendig ist. Darüber hinaus müssen bei der Anwendung von Fitting-Methoden, wie am Beispiel der MFR-Vorhersage von Blends, nicht einmal die Rohmaterialdaten vorliegen, so dass auch bereits vorhandene Rezepturdaten aus früheren Versuchen genutzt werden können. Durch die Anwendung des Parameterfittings können auch einzelne Messausreißer in den Versuchsdaten kompensiert werden, sofern nicht nur die Ausgangsmaterialien, sondern mehrere Mischungsabstufungen charakterisiert wurden. Grundsätzlich sind die verschiedenen Mischungsmodelle auf andere Materialien übertragbar. Die Diskussion des Standes der Forschung auf diesem Gebiet zeigt, dass die Wahl des korrekten Mischungsmodells rezepturspezifisch sein kann und beispielsweise für die Vorhersage der Viskosität von Polymeren kein einzelnes Modell rezepturübergreifend ideal ist.

Der bei weitem größte Nachteil für die Rezepturentwicklung ist ihre Anwendbarkeit auf komplexere Rezepturen mit mehr als zwei Komponenten. Wie in Kapitel 2.3.2 beschrieben, bestehen Rezepturen zur Erfüllung umfangreicher Spezifikationen aus einer Vielzahl an Einzelkomponenten. Daher können Mischungsmodelle für sehr einfache Anwendungen hervorragend sein, aber in der Praxis nicht ohne weiteres sinnvoll eingesetzt werden. Tabelle 2.1 fasst die zuvor beschriebenen Eigenschaften aus der Sicht eines Rezepturentwicklers zusammen. Die Bewertung erfolgt mit ++ (sehr positiv), + (positiv), 0 (neutral), - (negativ) und -- (sehr negativ).

Bewertungskriterium	Bewertung
Anwendbarkeit bei komplexen Rezepturen mit verschiedenen Bestandteilen	--
Genauigkeit der Modelle	+
Erforderliche Datenmenge zur Anwendbarkeit	++
Robustheit gegen Ausreißer in den Trainingsdaten	+
Übertragbarkeit der Modelle auf neue Komponenten und Anlagen	0
Nachvollziehbarkeit der Modelle für den Rezepturentwickler	++

*Tabelle 2.1: Bewertung der Anwendbarkeit von Mischungsmodellen für die Entwicklung neuer Rezepturen aus Sicht eines Rezepturentwicklers.*

*Table 2.1: Evaluation of the applicability of mixing models for the development of new formulations from the perspective of a formulation developer.*

### 2.3.4 Einsatz maschineller Lernmethoden zur Vorhersage von Materialeigenschaften

Maschinelle Lernmethoden (ML) sind ein Teilgebiet der Künstlichen Intelligenz (KI), das sich mit Algorithmen und Modellen beschäftigt, die in der Lage sind, Vorhersagen oder Entscheidungen auf der Grundlage großer Datenmengen zu treffen. Es gibt eine Vielzahl unterschiedlicher Architekturen und Modelle, die auf verschiedene Anwendungsfälle und Datentypen zugeschnitten sind. Dazu gehören beispielsweise Künstliche Neuronale Netze (KNN), Support Vector Machines (SVM), Entscheidungsbäume und viele mehr [HTF09].

Im Bereich der Materialwissenschaften ist die Anwendung von ML-Methoden seit langem etabliert und ihr Einsatz für die Entwicklung bzw. Identifikation neuer Materialien nimmt stetig zu [CNWZ23]. *Merchant et al.* nutzten beispielsweise Graph Neural Networks (GNN) zur Identifikation neuer anorganischer Kristallstrukturen. Basierend auf einem Datensatz von 48.000 existierenden Kristallstrukturen konnten mit diesem Modell 2,2 Millionen bisher unbekannte Kristallstrukturen identifiziert werden [MBS+23]. *Burlac et al.* sowie *Wang et al.* untersuchten den Einsatz von symbolischen Regressionsmodellen (SR) in den Materialwissenschaften zur Ableitung bekannter Beschreibungsmodelle für das makroskopische Materialverhalten sowie zur Beschreibung des Materialverhaltens auf atomarer Ebene [BKK+23, WWR19]. Darüber hinaus haben *Zhao et al.* symbolische Regressionsmodelle zur Vorhersage der Härte und der mechanischen Eigenschaften von superharten Werkstoffen verwendet [ZLW+23]. *Yadollahi et al.* nutzten KNN zur Vorhersage der Druckfestigkeit von Geopolymeren und erzielten ein Bestimmtheitsmaß von 0,958, was für eine praktische Anwendung als geeignet angesehen wird [YBD15].

Im Bereich der Polymerwerkstoffe gehörten *Velten et al.* zu den Pionieren, die KNN zur Vorhersage des Verschleißverhaltens von kurzglasfaserverstärkten Compounds aus PA 4.6 auf der Basis eines Datensatzes von 72 Messungen einsetzten [VRF00]. *Zhang et al.* nutzten ebenfalls KNN für die Vorhersage des Verschleißverhaltens sowie der Reibungskoeffizienten kurzfaserverstärkter PA-Verbundwerkstoffe in Abhängigkeit der Materialrezeptur, Messbedingungen sowie der mechanischen Kennwerte der Ausgangsmaterialien [ZFV02]. *Seyhan et al.* nutzten KNN zur Vorhersage der Druckfestigkeit von Verbundwerkstoffen aus Glas und Polyester und konnten für einen Datensatz bestehend aus 45 Messungen mit KNN eine höhere Vorhersagegenauigkeit erzielen als mit multipler linearer Regression [TTKT05]. Auch *Zhang* und *Friedrich* nutzten KNN zur Vorhersage von Verschleiß, Ermüdung und

dynamischen mechanischen Eigenschaften von Verbundkunststoffen in Abhängigkeit von deren Aufbau und den Ausgangseigenschaften der Matrixwerkstoffe sowie Fasern bzw. Füllstoffen [ZF03]. *Fazilat et al.* verwendeten KNN in Kombination mit Neuro-Fuzzy-Inferenzsystemen zur Vorhersage des E-Moduls, der Kerbschlagzähigkeit sowie der Streckgrenze von glasfaserverstärkten PA-Compounds [FGM+12]. *Moosavi* und *Soltani* kombinierten KNN mit der Gruppenbeitragsmethode zur Vorhersage der spezifischen Volumina von Polymersystemen auf der Basis eines Datensatzes von 2865 Messungen [MS13]. Die Bestimmung der spezifischen Volumina war mit dem KNN genauer als mit anderen Messmethoden [MS13]. *Abu-Zahra* und *Seth* setzten KNN zur Korrelation der akustischen Eigenschaften von Polyvinylchloridschmelze (PVC) mit der Schaumdichte hergestellter Extrudate ein und erzielten einen  $R^2$ -Wert von 0,986, womit die Grundlage für eine Inline-Prozessregelung des Extruders geschaffen wurde [AS02]. *Altarazi et al.* nutzten KNN zur Vorhersage von Dichte, Zugfestigkeit und Duktilität von mit Calciumcarbonat gefülltem PVC und konnten geeignete Rezepturen für vorgegebene Compouneigenschaften generieren [AAH18]. *Lopez-Garcia et al.* untersuchten verschiedene ML-Modelle zur Vorhersage der mechanischen Eigenschaften von faserverstärkten Compounds mit Recyclingfasern und erzielten das höchste Bestimmtheitsmaß von 0,96 für ein Entscheidungsbaummodell [LBG+22]. Auf Basis dieses Modells werden Assistenzsysteme entwickelt, die den Maschinenbediener bei der Prozessführung unterstützen [LBG+22]. Auch für die Entwicklung neuer Rezepturen zur Erzielung vorgegebener Farbwerte wurden ML-Methoden bereits erfolgreich eingesetzt [Rud21]. *Xu* und *Gupta* nutzten KNN zur Vorhersage des E-Moduls von Graphen-verstärkten Epoxidharzen in Abhängigkeit von Messungen einer dynamisch-mechanischen Analyse und erreichten einen mittleren Vorhersagefehler von 0,7 %, womit das Modell in der Lage ist, das Materialverhalten über einen weiten Messbereich von Temperaturen und Dehnraten präzise vorherzusagen [XG19]. *Chi et al.* untersuchten Entscheidungsbäume, KNN, lineare Regression sowie SVM zur Modellierung von Membraneigenschaften in Abhängigkeit von Prozessparametern und Materialzusammensetzung von PVC sowie Polyvinylbutyral (PVB) und setzten diese erfolgreich zur anschließenden Prozessoptimierung ein [CWC+16]. *Jayaba et al.* setzten KNN zur Vorhersage der Zugfestigkeit und Schlagzähigkeit von mit Calciumcarbonat und Kokosfasern verstärktem Polyester in Abhängigkeit von Faserlänge, Faserdurchmesser und Füllstoffanteil ein und erzielten Vorhersagegenauigkeiten von  $< 1$  % [JRRB13].

Neben den oben aufgeführten Anwendungen verschiedener ML-Modelle zur Vorhersage unterschiedlichster Materialeigenschaften von Kunststoffen gibt es eine Reihe spezifischer Untersuchungen und Anwendungen von maschinellen Lernmethoden für PP-Compounds. Zur Vorhersage des MFR von PP in Abhängigkeit von den Prozessparametern und der Zusammensetzung der Ausgangsstoffe während der Polymersynthese verwendeten *Jiang et al.* 85 Datenpunkte einer industriellen Polymerisationsanlage und erreichten mit Relevance Vector Machines (RVM) eine Vorhersagegenauigkeit von 0,8 % [JXLL12]. *Traxler et al.* verwendeten symbolische Regression zur Vorhersage des MFR von Blends verschiedener PP-Typen [TMF+22]. In weiteren Untersuchungen konnten nahezu perfekte Bestimmtheitsmaße von 0,999 für den MFR und 0,993 für die Scherviskosität für die Vorhersage des MFR und der Scherviskosität von binären PP-Blends erzielt werden [SLH24a]. KNN wurden auch zur Modellierung des MFR sowie des E-Moduls von PP-Compounds mit Peroxid-Masterbatch in Abhängigkeit der Maschineneinstellung der Doppelschnecke und der Rezeptur verwendet [SH24]. *Joo et al.* verglichen Multiple Lineare Regression (MLR), Deep Neural Networks (DNN) und Random Forest Modelle (RF) hinsichtlich ihrer Vorhersagegüte von Biegefestigkeit, MFR und Zugfestigkeit von PP-Verbundwerkstoffen [JPK+22]. Die MLR-Modelle erzielten die höchsten Bestimmtheitsmaße von 0,9291 für die Biegefestigkeit und 0,9406 für den MFR für den Datensatz von 811 Rezepturen mit 90 verschiedenen Ausgangskomponenten, während das DNN einen Wert von 0,9587 für die Zugfestigkeit erreichte [JPK+22]. Aufbauend auf diesen Modellen zur präzisen Vorhersage der Verbundeigenschaften ist eine gezielte Rezepturentwicklung für vorgegebene Kennwerte möglich [JPK+22]. *Rajae et al.* untersuchten Entscheidungsbäume und AdaBoost-Algorithmen zur Vorhersage des E-Moduls, der Bruchdehnung sowie der Zugfestigkeit von gefüllten PP-Compounds. Dabei können mit AdaBoost-Algorithmen  $R^2$ -Werte von 0,90 für den E-Modul, 0,93 für die Bruchdehnung und 0,87 für die Zugfestigkeit erzielt werden [RGR+24]. Während diese Bestimmtheitsmaße für die Vorhersage des E-Moduls und der Zugfestigkeit zu einem mittleren prozentualen Vorhersagefehler von < 4 % führten, lag der Vorhersagefehler für die Bruchdehnung mit 24,78 % deutlich höher [RGR+24]. *Zhang und Xu* verwendeten eine Gaußsche Prozessregression zur Vorhersage der Schlagzähigkeit und Zugfestigkeit von mit Weizenstroh gefüllten PP-Compounds und konnten Modelle mit einem  $R^2$  von 0,991 für die Zugfestigkeit und 0,957 für die Schlagzähigkeit trainieren, mit denen die mechanischen Eigenschaften präzise vorhergesagt werden konnten [ZX21]. Der Vorhersagefehler für die Zugfestigkeit

beträgt  $0,07 \text{ N/mm}^2$  und für die Kerbschlagzähigkeit  $0,33 \text{ kJ/m}^2$  [ZX21]. Im Vergleich dazu beträgt die mittlere Zugfestigkeit und Kerbschlagzähigkeit in den Daten bei  $8,4 \text{ N/mm}^2$  bzw.  $12,66 \text{ kJ/m}^2$  [ZX21]. *Cai et al.* untersuchten verschiedene ML-Modelle zur Vorhersage der dynamischen Druckfestigkeit von additiv gefertigten Bauteilen in Abhängigkeit von Füllstoffanteilen und Druckparametern und identifizierten KNN als die Modellierungsmethode mit der höchsten Vorhersagegenauigkeit bei einem Modellfehler  $< 5 \%$  [CWW+22]. Eine Übersicht über die zitierte Literatur zur Anwendung der verschiedenen ML-Methoden für Kunststoffe im Allgemeinen und für PP-Compounds im Besonderen ist in Tabelle 2.2 dargestellt.

Werkstoffgruppe	MFR & Scherviskosität	Mechanische Eigenschaften	Sonstiges
Allgemeine Kunststoffcompounds		[TTKT05] [ZF03] [FGM+12] [AAH18] [LBG+22] [XG19] [JRRB13]	[VRF00] [ZFO2] [ZF03] [MS13] [AS02] [AAH18] [CWC+16]
PP-Compounds	[JXLL12] [TMF+22] [SLH24a] [SH24]	[SH24] [JPK+22] [RGR+24] [ZX21] [CWW+22]	

*Tabelle 2.2: Übersicht der Literatur über den Einsatz von ML-Methoden für die Vorhersage verschiedener Materialeigenschaften in Abhängigkeit der Compoundrezeptur.*

*Table 2.2: Overview of the literature on the use of ML methods for the prediction of different material properties depending on the compound formulation.*

Die hier aufgeführten Arbeiten verdeutlichen, dass ML im Bereich der Vorhersage von Compouneigenschaften bereits vermehrt eingesetzt wird und die Modelle für die teilweise komplexen Zusammenhänge hohe Bestimmtheitsmaße  $> 0,9$  (z. B. [AS02, JPK+22, LBG+22, RGR+24, SH24, SLH24a, TMF+22]) bzw. Vorhersageungenauigkeiten  $< 1 \%$  erreichen (z. B. [JRRB13, JXLL12]). Dabei ist die Bandbreite sowohl der zu modellierenden Zielgrößen als auch der Eingangsparameter sehr groß. Während einige Studien nur wenige Ausgangsparameter wie Faserlänge, Faserdurchmesser und Füllstoffanteil berücksichtigen [JRRB13], gehen in andere Modelle bis zu 90 verschiedene Komponenten als Eingangsparameter ein [JPK+22]. Ein zentraler Faktor für die erreichbare Vorhersagequalität ist die Qualität der zugrundeliegenden Datensätze, die möglichst vollständig und frei von Ausreißern sowohl in den Messungen als auch in den Rezepturen sein sollten, um den Zusammenhang zwischen Rezepturen, Prozessparametern und Zielgrößen realitätsnah abbilden zu können. Unter den aufgeführten ML-Modellen gehören KNN zu den am häufigsten verwendeten Modellen zur Vorhersage von

Compoundeigenschaften. Sie werden daher im folgenden Kapitel näher betrachtet, um abschließend die Vor- und Nachteile sowie die Grenzen ihrer Anwendung für die Vorhersage von Compoundeigenschaften bewerten zu können.

### 2.3.5 Aufbau, Funktionsweise und Bewertung von künstlichen neuronalen Netzen

KNN gehören zu einer Klasse von Algorithmen, die in ihrer Struktur dem menschlichen Gehirn nachempfunden sind. Durch ein abstrahiertes Modell aus miteinander verbundenen künstlichen Neuronen können auch komplexe (z. B. nichtlineare) Zusammenhänge erfasst werden. Im Folgenden werden nur die für diese Arbeit relevanten Grundlagen rund um KNN und deren Trainingsverfahren dargestellt. Für weiterführende Erklärungen sei auf die Literatur von *Géron* oder *Hastie et. al.* verwiesen [Gér22, HTF09].

#### Aufbau und Funktionsweise

Ein KNN besteht im Wesentlichen aus mehreren Schichten künstlicher Neuronen. Die Eingabeschicht nimmt die Eingabedaten auf, z. B. die Anteile der einzelnen Komponenten in einer Compoundrezeptur. Die Ausgabeschicht gibt das Endergebnis aus, z. B. eine Schätzung des MFR-Wertes oder des E-Moduls. Zwischen Eingabe- und Ausgabeschicht befinden sich in der Regel eine oder mehrere versteckte Schichten, die für die Verarbeitung der Daten verantwortlich sind. Die in Kapitel 2.3.4 vorgestellten KNN sind Feedforward-Netze, bei denen die Information ohne Rückkopplung ausschließlich von der Eingabeschicht zur Ausgabeschicht fließt.

Die Berechnung des Outputs eines einzelnen Neurons ergibt sich nach Gleichung 2.5 und ist in Bild 2.5 exemplarisch dargestellt [Bab18].

$$z_j = a_j \left( \sum_{i=1}^n w_{ij} x_{ij} + b_j \right) \quad (2.5)$$

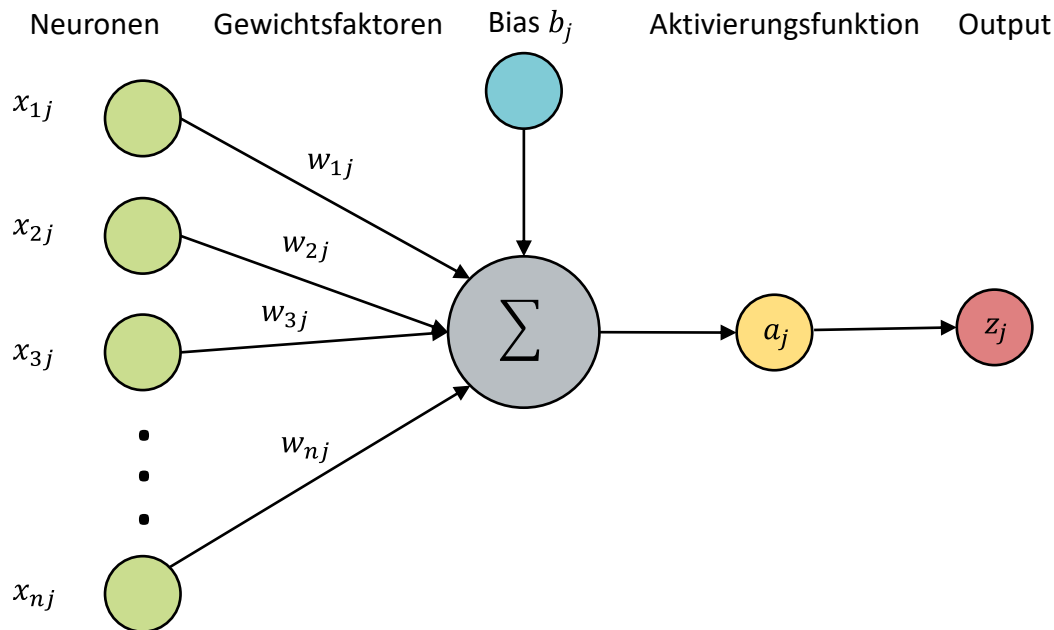


Bild 2.5: Datenverarbeitung in einem KNN nach Gleichung 2.5.

Fig. 2.5: Principle of data processing in an ANN according to equation 2.5.

Jedes Neuron einer nachfolgenden Schicht  $j$  erhält alle Ausgaben  $x_i, i \in 1, \dots, n$  der  $n$  Neuronen der vorhergehenden Schicht. Jeder Verbindung zwischen Neuron  $j$  und Neuron  $i$  wird dabei ein Gewichtungsfaktor  $w_{ij}$  zugewiesen. Eine Aktivierungsfunktion  $a_j$  transformiert die gewichtete Summe der Eingaben sowie einen möglichen Biasfaktors  $b_j$  und gibt das Ergebnis  $z_j$  an die nächste Schicht weiter [HTF09]. Die Wahl der Aktivierungsfunktion bestimmt die Berechnungscharakteristik der Neuronen und begrenzt die Neuronenausgabe auf eine einheitliche Größenordnung [Gér22].

Damit ein KNN in der Lage ist, eine korrekte Abbildung  $f: X \rightarrow Y$  zu lernen, müssen die Gewichtungsfaktoren iterativ angepasst werden. Diese Anpassung erfolgt mit Hilfe sogenannter Backpropagation-Strategien [HTF09]. Während einer Trainingsepoche wird zunächst der Vorhersagefehler des Modells ermittelt und anschließend werden die Gewichtungen als trainierbare Parameter des KNN so verändert, dass der Vorhersagefehler minimiert wird. In der Praxis werden hierfür verschiedene Fehlermaße verwendet [Bot18, MPNO24, RTK24]. Häufig eingesetzt werden die mittlere quadratische Abweichung (MQA), die mittlere absolute Abweichung (MAA), die mittlere prozentuale Abweichung (MPA) sowie das Bestimmtheitsmaß ( $R^2$ ) [Bot18, MPNO24, RTK24]. Die Gleichungen zur Berechnung dieser Fehlerfunktionen sind in den Gleichungen 2.6 bis 2.9 angegeben.

$$\text{MQA} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2} \quad (2.6)$$

$$\text{MAA} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n |y_i - \hat{y}_i| \quad (2.7)$$

$$\text{MPA} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left| \frac{y_i - \hat{y}_i}{y_i} \right| \quad (2.8)$$

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \hat{y}_i)^2}{\sum_{i=1}^n (\bar{y} - \hat{y}_i)^2} \quad (2.9)$$

Bei jedem Trainingsdurchlauf wird der Fehler berechnet und anteilig auf die einzelnen Neuronen zurückverteilt. Auf diese Weise kann die Gewichtung entsprechend ihrem Beitrag zum Fehler angepasst werden. Dabei ist es sinnvoll, zu Beginn des Trainings größere Gewichtsänderungen vorzunehmen, um den Fehler schnell zu reduzieren, und diese Änderungen zu verringern. In der Praxis haben sich hier beispielsweise die Optimierungsverfahren RMSProp und Adam etabliert, die mit Hilfe eines Momentum-Faktors die Größe der Gewichtsadjustierungen im Verlauf des Trainings reduzieren [KB15, Rud17]. Neben der Wahl der Aktivierungs- und Optimierungsfunktionen kann das Training auch durch verschiedene Initialisierungsmethoden beeinflusst werden, mit denen die Gewichte zu Beginn festgelegt werden [GB10, GBCB16, HZRS15].

Gerade bei komplexen und nichtlinearen Fragestellungen mit kleinen Datensätzen, wie sie bei der Vorhersage von Compoundeigenschaften in Abhängigkeit der Rezepturkomponenten auftreten, besteht ein hohes Risiko, dass das Modell zu stark an die Trainingsdaten angepasst wird und an allgemeiner Generalisierbarkeit einbüßt (Overfitting). Um dies zu verhindern, können verschiedene Regularisierungsmethoden eingesetzt werden. Beispielsweise wirkt die L1- und L2-Regularisierung über zusätzliche Terme in der Fehlerfunktion, die gezielt große Gewichte reduzieren und damit die Modellkomplexität verringern [YLQ23]. Beim Dropout werden zufällig ausgewählte Neuronen oder Verbindungen während des Trainings deaktiviert, was eine übermäßige Abhängigkeit von einzelnen Neuronen verhindert und die Generalisierungsfähigkeit des KNN verbessert [SHK+14].

Die erreichbare Modellgüte eines KNN hängt entscheidend von der Wahl dieser sogenannten Hyperparameter ab. Um eine für die jeweilige Anwendung optimale Kombination zu finden, werden Hyperparameteroptimierungsverfahren eingesetzt, bei denen verschiedene

Parameterkombinationen getestet und anhand der Fehlerfunktion (z. B. MQA oder MAA) evaluiert werden [YS20]. Insbesondere bei sehr kleinen Datensätzen kann trotz sorgfältiger Hyperparameteroptimierung ein systematischer Bias im Trainingsdatensatz zu einer eingeschränkten Generalisierbarkeit führen [SGS+23]. Dieser kann durch eine Kreuzvalidierung reduziert werden [RTL09]. Bei einer k-fachen Kreuzvalidierung wird der vorliegende Datensatz in k unterschiedliche Partitionen in Trainings- und Testdatensatz aufgeteilt. Für jede dieser Aufteilung erfolgt die Anpassung der Gewichte anhand des Trainingsdatensatzes und die Bewertung des Modells anhand des Testdatensatzes [RTL09]. Über einen arithmetischen Mittelwert der Modellgüte über die k verschiedenen Aufteilungen kann abschließend die Generalisierbarkeit des Modells quantifiziert werden [RTL09]. Für die Anwendung wird ein Wert von k zwischen 5 und 10 empfohlen [JWHT21]. Weiterhin kann zur Verbesserung der Generalisierbarkeit das Modelltraining vorzeitig abgebrochen werden, wenn der Modellfehler über mehrere Iterationsschritte für den Testdatensatz zunimmt, während er für den Trainingsdatensatz abnimmt [OM98].

#### *Bewertung von KNN für den Einsatz in der Rezeptentwicklung*

Aufgrund der flexiblen Architektur von KNN können diese für beliebig komplexe Fragestellungen im Bereich der Rezeptentwicklung mit beliebig vielen Rezepturbestandteilen bzw. Ausgangsgrößen eingesetzt werden. Bei hinreichend großen und repräsentativen Datensätzen sind die erzielbaren Modellvorhersagen insbesondere bei Regressionsanwendungen, bei denen z. B. ein spezifischer MFR vorhergesagt werden soll, sehr präzise [HTF09]. Im Vergleich zu einfacheren ML-Modellen oder auch den Mischungsregeln aus Kapitel 2.3.3 sind hierfür umfangreichere Datensätze erforderlich. Sofern die für das Modelltraining verwendeten Datensätze einzelne Messausreißer oder stark vom allgemeinen Versuchsraum abweichende Versuchspunkte enthalten, kann sich die Modellgüte verschlechtern, da die gradientenbasierte Optimierung zum Teil sehr empfindlich auf extreme Werte reagiert [HTF09]. Prinzipiell können bereits trainierte KNN mit Methoden wie dem Transferlernen auf neue Anwendungsfälle übertragen werden [LH21, LH22, RMKD05]. Dies setzt voraus, dass der neue Anwendungsfall dem vorherigen stark ähnelt, wie es beispielsweise der Fall wäre, wenn ein Ausgangsstoff nur durch einen anderen Typen mit gleicher Wirkungsweise ersetzt würde. Insofern sich aber z. B. die Anzahl der Rezepturkomponenten oder die Art und Wirkungsweise der verwendeten Füllstoffe und Additive ändert, ist eine einfache Übertragbarkeit nicht mehr möglich. Letztlich sind KNN für

den Entwickler einer neuen Rezeptur eine black box. Zwar können die einzelnen Gewichtungsfaktoren aller Neuronen ausgegeben werden, sind diese für den Anwender nicht direkt ersichtlich, wie es bei Mischungsregeln oder Kennlinien für die Zugabe von Additiven der Fall wäre, sodass KNN schwer zu interpretieren sind [HTF09]. Eine pragmatische Bewertung dieser Kriterien für die Anwendung von KNN aus der Sicht eines Rezepturentwicklers ist in Tabelle 2.3 aufgelistet. Die Bewertung setzt sich dabei aus ++ (sehr positiv), + (positiv), 0 (neutral), - (negativ) und -- (sehr negativ) zusammen.

<b>Bewertungskriterium</b>	<b>Bewertung</b>
Anwendbarkeit bei komplexen Rezepturen mit verschiedenen Bestandteilen	++
Genauigkeit der Modelle	++
Erforderliche Datenmenge zur Anwendbarkeit	-
Robustheit gegen Ausreißer in den Trainingsdaten	-
Übertragbarkeit der Modelle auf neue Komponenten und Anlagen	0
Nachvollziehbarkeit der Modelle für den Rezepturentwickler	--

*Tabelle 2.3: Bewertung der Anwendbarkeit von KNN für die Entwicklung neuer Rezepturen aus Sicht eines Rezepturentwicklers.*

*Table 2.3: Evaluation of the applicability of KNN for the development of new formulations from the perspective of a formulation developer.*

### 3 Abgeleitete Forschungsfragen, Zielsetzung und Vorgehen

Der aktuelle Stand der Forschung zeigt deutlich, dass die Entwicklung neuer Compoundrezepturen, die die an sie gestellten Anforderungen erfüllen, nicht trivial ist. In der industriellen Praxis basiert die Rezepturentwicklung bisher überwiegend auf iterativen und empirischen Vorgehensweisen, die mit einem hohen Zeit- und Kostenaufwand verbunden sind. Zudem ist es nicht trivial, optimale Lösungen für die zum Teil komplexen Rezepturanforderungen zu identifizieren. Um diesen Entwicklungsprozess zu beschleunigen und gleichzeitig zielgerichtet und systematisch neue Rezepturen ableiten zu können, bieten sich Vorhersagemodelle an, die aus möglichst wenigen experimentellen Daten zuverlässige Vorhersagen über die resultierenden Materialeigenschaften liefern.

Zur rezepturabhängigen Modellierung der Compouneigenschaften wurden im vorangegangenen Kapitel die beiden wesentlichen Ansätze der Mischungsmodelle und der maschinellen Lernverfahren, insbesondere des KNN, diskutiert. Mischungsmodelle zeichnen sich dabei durch eine hohe Verständlichkeit für den Anwender sowie eine gute Vorhersagegenauigkeit, Robustheit gegenüber Messausreißern und die geringe Anzahl der für die Anwendung notwendigen Versuchspunkte aus. Der größte Nachteil dieser Modelle ist ihr begrenzter Anwendungsbereich auf Rezepturen mit nur wenigen Komponenten. KNN hingegen eignen sich für die Vorhersage von Compouneigenschaften beliebig komplexer Rezepturen. Die erreichbaren Vorhersagegenauigkeiten sind hier höher, die benötigten Datenmengen erfordern eine entsprechend aufwendigere Versuchsdurchführung. Im Vergleich zu Mischungsmodellen sind KNN zudem empfindlicher gegenüber Messausreißern und für den Anwender schwer nachvollziehbar.

Aus dieser Gegenüberstellung ergibt sich die zentrale Frage, ob es möglich ist, ein Modell zu entwickeln, das beide Ansätze vereint, indem es die jeweiligen Vorteile beider Methoden nutzt und gleichzeitig deren Nachteile minimiert. Zu diesem Zweck soll untersucht werden, ob mehrere einzelne Mischungsmodelle systematisch miteinander kombiniert werden können, um die eingeschränkte Anwendbarkeit klassischer Mischungsmodelle auf mehrere Rezepturkomponenten zu erweitern. Ein solches analytisches Modell (AM), das komplexe Rezepturen in verschiedene Teilmodelle zerlegt und zu einem Gesamtmodell aggregiert, könnte sich als geeignete Lösung erweisen. Eine mögliche Einordnung eines solchen Modells für den Einsatz in der Rezepturentwicklung, die im Folgenden untersucht werden soll, ist in

Tabelle 3.1 dargestellt. Die Bewertung erfolgt analog zu den Bewertungen in den vorangegangenen Kapiteln mit ++ (sehr positiv), + (positiv), 0 (neutral), - (negativ) und -- (sehr negativ). Ein Fragezeichen (?) zeigt an, dass die Bewertung im Folgenden validiert werden muss.

Bewertungskriterium	Mischungsmodelle	AM	KNN
Anwendbarkeit bei komplexen Rezepturen mit verschiedenen Bestandteilen	--	0?	++
Genauigkeit der Modelle	+	++?	++
Erforderliche Datenmenge zur Anwendbarkeit	++	+?	-
Robustheit gegen Ausreißer in den Trainingsdaten	+	+?	-
Übertragbarkeit der Modelle auf neue Komponenten und Anlagen	0	0?	0
Nachvollziehbarkeit der Modelle für den Rezepturentwickler	+	+?	--

*Tabelle 3.1: Einordnung des zu entwickelnden analytischen Vorhersagemodells (AM) aus Sicht eines Rezepturentwicklers für die Rezepturentwicklung zwischen Mischungsmodellen und KNN.*

*Table 3.1: Categorisation of the analytical prediction model (AM) to be developed from the perspective of a recipe developer for recipe development between mixture models and KNN.*

Für die Entwicklung und Evaluierung dieses Modellierungsansatzes wird eine exemplarische Compoundformulierung untersucht. Als Zielgrößen dienen mechanische Kennwerte des Compounds (E-Modul und Kerbschlagzähigkeit) sowie rheologische Kennwerte (MFR und Scherviskosität). Zur gezielten Beeinflussung dieser Eigenschaften werden Calciumcarbonat als Füllstoff, Peroxid und Kerbschlagmodifikatoren als Additive und zwei Homo-PP als typische Rezepturbestandteile der in Kapitel 2.2 vorgestellten Funktionalisierungsmethoden eingesetzt.

Es wird ein Datensatz mittels Compoundierversuchen generiert, der sowohl für den Aufbau der AM als auch für den späteren Vergleich mit einem KNN verwendet wird. Beide Modelle werden auf den gleichen Daten trainiert und hinsichtlich ihrer Vorhersagegenauigkeit und Anwendbarkeit bewertet. Um die Übertragbarkeit des AM auf unterschiedliche Produktionsanlagen zu untersuchen, werden die Versuche sowohl an einem

Doppelschneckenextruder im Labormaßstab als auch an einem Extruder im Industriemaßstab durchgeführt. Abschließend wird das AM für die Identifikation neuer Rezepturen für ein konkretes Fallbeispiel angewendet.

Aus den Versuchen mit dieser beispielhaften Rezeptur lassen sich folgende Forschungsfragen ableiten, die im Rahmen der folgenden Untersuchungen beantwortet werden:

**1. Kombination von Einzelmodellen zu einem analytischen Gesamtmodell (Kapitel 5)**

Wie hoch ist die Vorhersagegenauigkeit von Mischungsmodellen für die betrachteten Compoundeigenschaften in Abhängigkeit der Einzelanteile in der Rezeptur und wie können diese mit der geringsten Anzahl an Freiheitsparametern zu einem möglichst realitätstreuen Gesamtmodell aggregiert werden?

**2. Validierung der Modellgenauigkeit (Kapitel 6)**

Können mit den analytischen Modellen für alle betrachteten Compoundeigenschaften  $R^2$ -Werte  $> 0,95$  und MPA  $< 5\%$

- a. für den Datensatz, auf dessen Basis das analytische Modell entwickelt wurde, erzielt werden?
- b. erreicht werden, obwohl im Scale-Up eine andere Anlage mit anderem Prozessverhalten eingesetzt wurde?
- c. für Rezepturformulierungen, in denen alle Komponenten zeitgleich eingesetzt werden und Wechselwirkungen zwischen den Rezepturbestandteilen auftreten können, erzielt werden?

**3. Vergleich mit einem KNN (Kapitel 7)**

Wie genau ist die Vorhersage der Compoundeigenschaften des AM verglichen mit einem KNN, welches auf derselben Datengrundlage trainiert wurde?

**4. Einsatz des Gesamtmodells zur Rezepturentwicklung (Kapitel 8)**

Kann unter Einsatz des entwickelten AM für eine zielgerichtete Rezepturentwicklung eine Abweichung  $< 5\%$  von den Zielvorgaben erreicht werden?

## 4 Eingesetzte Materialien, Methoden und Software

Zur Beantwortung der in Kapitel 3 formulierten Forschungsfragen und für die Entwicklung der AM müssen zunächst Compounds in praktischen Versuchen hergestellt und anschließend hinsichtlich ihrer Eigenschaften charakterisiert werden. Dazu werden im folgenden Kapitel zunächst in Kapitel 4.1 die verwendeten Rezepturbestandteile diskutiert. In Kapitel 4.2 wird die Anlagentechnik zur Herstellung der Compounds beschrieben. Die zur Bestimmung der rheologischen und mechanischen Compouneigenschaften eingesetzten Prüfgeräte und die Probenvorbereitung werden in Kapitel 4.3 erläutert. Die Versuchsplanung für die praktischen Versuche wird in Kapitel 4.4 diskutiert. Abschließend wird in Kapitel 4.5 die für die Modellentwicklung und den Vergleich von AM mit KNN eingesetzte Software vorgestellt.

### 4.1 Eingesetzte Rezepturbestandteile

Für die Entwicklung und Validierung des analytischen Modellierungsansatzes wird eine beispielhafte Compoundrezeptur ausgewählt, die für den Einsatz in Verpackungsanwendungen repräsentativ ist. Dazu werden anwendungstypische Polymere, Füllstoffe und Additive ausgewählt. Um den experimentellen Aufwand zu minimieren, werden darüber hinaus nur solche Rezepturbestandteile verwendet, die einen direkten Einfluss auf die zu modellierenden rheologischen und mechanischen Eigenschaften haben. Verarbeitungshilfsmittel oder Stabilisatoren werden im Rahmen dieser Untersuchungen nicht berücksichtigt. Die einzelnen verwendeten Rezepturbestandteile werden nachfolgend beschrieben.

#### Polymere

Als Ausgangspolymere für die Herstellung der zu untersuchenden Compounds werden die beiden kommerziell vertriebenen PP-Typen PP 505P der Firma Sabic AG, Riad, Saudi-Arabien sowie HP548R der Firma LyondellBasell, Rotterdam, Niederlande verwendet. Bei beiden Materialien handelt es sich um Homopolymere. Die Polymere wurden ausgewählt, da sie sich hinsichtlich ihrer rheologischen und mechanischen Eigenschaften deutlich voneinander unterscheiden. Während PP 505P mit dem MFR von 2,0 g/10 min bevorzugt im Bereich der Plattenextrusion oder des Thermoformens eingesetzt wird, findet HP548R vornehmlich im Spritzgießprozess Anwendung. Die relevanten Eigenschaften der beiden Ausgangspolymere sind in Tabelle 4.1 aufgeführt.

Materialkennwert	SABIC® PP 505P	LyondellBasell HP548R
MFR (230°C/2,16 kg)	2,0 g/10 min	23,0 g/10 min
E-Modul	1500 MPa	1600 MPa
Kerbschlagzähigkeit (23°C, 1eA)	4,5 kJ/m <sup>2</sup>	2,7 kJ/m <sup>2</sup>

Tabelle 4.1: Materialdaten der beiden Polymere [NN24b, NN24c].

Table 4.1: Properties of the polymers [NN24b, NN24c].

### Füllstoffe

Als Füllstoffe werden Calciumcarbonate der Firma OMYA GmbH, Oftringen, Schweiz eingesetzt. Diese werden typischerweise zur gezielten Modifikation der mechanischen Eigenschaften und zur Kostenreduktion in Kunststoffen eingesetzt. Wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben, ist der Einfluss des Calciumcarbonats auf die mechanischen Eigenschaften abhängig von der chemischen Zusammensetzung, der Oberflächenbeschaffenheit und der Korngrößenverteilung. Eine systematische Betrachtung aller Einflussgrößen wäre für die durchzuführenden Versuche zu umfangreich, so dass der Fokus auf eine unterschiedliche Korngrößenverteilung gelegt wird, um deren Einfluss auf die Kerbschlagzähigkeit, den MFR sowie den E-Modul zu bewerten. Hierzu werden die beiden Calciumcarbonate, in diesem Fall Kreide, Omyalite 95 T und Omyalite 50 H gewählt. Beide Kreidetypen sind chemisch identisch und oberflächenbehandelt, um die Dispergierbarkeit und Haftung an der polymeren Matrix zu erhöhen, und unterscheiden sich in ihren Feinheitsgraden. Die relevanten Daten der beiden Kreidetypen sind in Tabelle 4.2 aufgelistet.

Materialkennwert	OMYALITE 50 H-OM	OMYALITE 95 T-OM
Siebrückstand 45 µm	0,04 %	0,02 %
Oberer Schnitt (d <sub>98</sub> %)	10,0 µm	3,5 µm
Median Teilchendurchmesser (d <sub>50</sub> %)	2,0 µm	1,0 µm
Teilchenanteil < 2 µm	50 %	90 %

Tabelle 4.2: Feinheit der beiden Kreidetypen [NN22, NN24d].

Table 4.2: Fineness of both types of chalk [NN22, NN24d].

### Additive

Zur gezielten Beeinflussung des MFR und der Scherviskosität wird das Masterbatch CR5P der Firma Polyvel Europe GmbH, Jork eingesetzt. Bei diesem Masterbatch sind 5 % organisches Peroxid auf einem Polyolefin als Trägermaterial gebunden [NN24e]. Aufgrund der Darreichungsform als Granulat ist eine einfache Dosierung zusammen mit den

Ausgangspolymeren unproblematisch. Bei dem darin enthaltenden Peroxid handelt es sich mit Di(tert-butylperoxyisopropyl)benzol um ein Dialkylperoxid [NN24e]. Die Konzentrationsschwankungen des Peroxids im Masterbatch sind mit einem Bereich von 4,5 % bis 5,5 % angegeben, der für die spätere Modellierung hinsichtlich der Wirkungsinterpretation des Peroxids zu berücksichtigen ist [NN24f]. Für Peroxide werden die Halbwertszeiten selten in Abhängigkeit von vorgegebenen Temperaturen angegeben. Stattdessen sind in den Datenblättern die Verarbeitungstemperaturen angegeben, bei denen die Halbwertszeit 10 h, 1 h und 1 min betragen. Für das ausgewählte Peroxid betragen diese Temperaturen 114 °C für 10 h, 134 °C für 1 h und 174 °C für 1 min, so dass bei einer späteren Verarbeitungstemperatur von über 200 °C im Doppelschneckenextruder davon ausgegangen werden kann, dass der kontrollierte Abbau des PP während der Verweilzeit vollständig abgelaufen ist [URL25f].

Als Schlagzähigkeitsmodifikator wird das Additiv Engage 8200 der Firma DOW Inc, Midland, Michigan, USA eingesetzt [NN11]. Hierbei handelt es sich um ein Etyhlen-Octen Copolymer, welches als gut rieselfähiges Granulat gemeinsam mit den beiden Ausgangspolymeren dosiert werden kann.

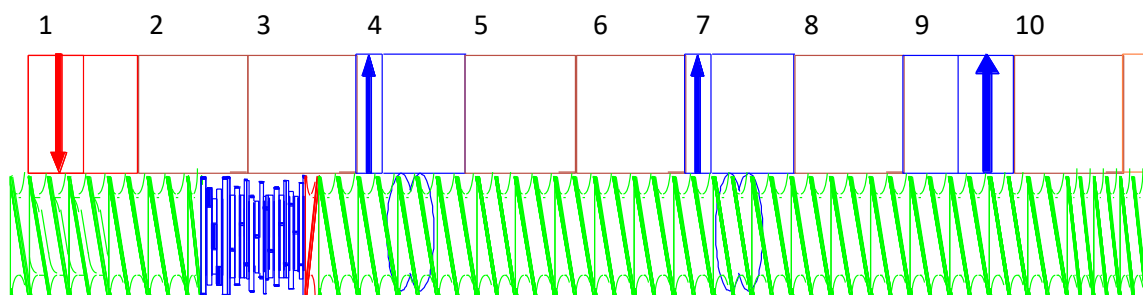
## **4.2 Anlagentechnik zur Compoundherstellung**

Für die Herstellung der zu untersuchenden Compounds werden Doppelschneckenextruder eingesetzt. Zur Generierung eines ersten Datensatzes, auf dessen Grundlage die analytischen Modelle entwickelt werden, werden Versuche auf einer Laboranlage durchgeführt. Die für diese Versuche verwendete Anlagenkonfiguration wird in Kapitel 4.2.1 beschrieben. Zur Beantwortung der in Kapitel 3 aufgestellten Forschungsfrage der Übertragbarkeit der Modelle von der Laboranlage auf eine größere Anlage mit anderem Prozessverhalten im Scale-Up werden ebenfalls Versuche auf einer Industrieanlage durchgeführt. Die eingesetzte Anlagenkonfiguration hierfür wird in Kapitel 4.2.2 beschrieben.

### **4.2.1 Anlagenkonfiguration der Laboranlage**

Die Herstellung der Compounds erfolgt auf einem gleichlaufenden ineinandergreifenden Doppelschneckenextruder vom Typ ZSK 26 MC18 der Coperion GmbH, Stuttgart. Dieser besitzt einen Schneckendurchmesser von je 25,4 mm sowie ein maximales Drehmoment pro Schnecke von 106 Nm. Zur möglichst schonenden Verarbeitung der Materialien wird ein Länge-zu-Durchmesser Verhältnis (L/D) von 40 gewählt. Hierzu werden 10 Gehäuseelemente

und eine Endplatte mit vier Löchern zur Ausformung der Stränge eingesetzt. Die Zugabe der beiden Polymere erfolgt über den Haupteinzug mithilfe gravimetrischer Dosierer der Firma Kubota Brabender Technologie GmbH, Duisburg sowie der Firma Coperion K-Tron GmbH, Niederlenz, Schweiz. Die Additivmasterbatche werden für jeden Versuchspunkt zusammen mit einem der beiden Ausgangspolymere chargenweise vorgemischt und über einen der beiden Dosierer zugegeben. Nachdem die Polymere in den ersten drei Gehäuseelementen plastifiziert werden, erfolgt die Zugabe der Kreide über eine Seitenbefütterung im vierten Gehäuseelement. Diese wird über einen Doppelschneckendosierer der Firma motan holding GmbH, Konstanz zugegeben. Die verwendete Schneckenkonfiguration ist in Bild 4.1 dargestellt.



*Bild 4.1: Schnecken- und Gehäusekonfiguration der Doppelschnecke für die Laborversuche*

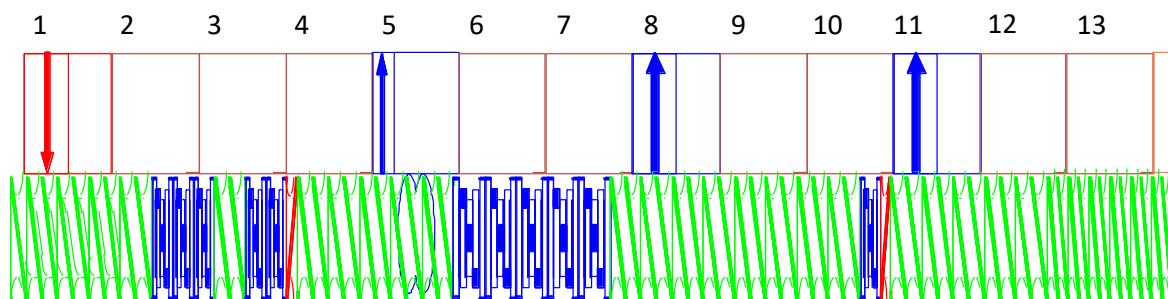
*Fig. 4.1: Screw and housing configuration for the twin screw extruder in the laboratory scale*

Sowohl die Wahl der Schnecken- als auch die Gehäusekonfiguration basiert auf Empfehlungen der Coperion GmbH für die betrachtete Rezeptur [Höl24]. Im Einzugsbereich werden Fördererlemente eingesetzt, die das Polymer in die Plastifizierzone befördern. Innerhalb der Plastifizierzone werden die Polymere und Masterbatche aufgeschmolzen. Hierzu werden sowohl zwei- als auch dreigängige Knetblöcke eingesetzt. Ein Rückfördererlement am Ende der Plastifizierzone gewährleistet eine Vollfüllung im Bereich der Knetblöcke zur Erzielung einer höheren Mischwirkung. In den anschließenden Förderzonen werden reine Fördererlemente mit einer Gangsteigung von  $0,7 D$  verwendet. An den Gehäuseelementen 4, 7 und 9 erfolgt eine atmosphärische Entgasung. Die Kühlung der Schmelzestränge erfolgt durch eine Kombination von Wasser- und Druckluftkühlung der Firma S-tronic System Engineering & Anlagentechnik, Brackenheim. Nach dem Kühlprozess wird das Material in einem Stranggranulator des Typs SP 50 Pure der Firma Pell-Tec Technology GmbH, Niedernberg granuliert. Da nur der Einfluss der Rezepturbestandteile auf die Eigenschaften der Compounds

im Vordergrund steht, werden für alle Versuchspunkte die Maschineneinstellungen von  $300 \text{ min}^{-1}$  Schneckendrehzahl und  $210 \text{ °C}$  Gehäusetemperatur der Gehäuse 4 bis 10 konstant gehalten. Der Zieldurchsatz aller Versuchspunkte beträgt  $15 \text{ kg/h}$ .

#### 4.2.2 Anlagenkonfiguration der Industrieanlage für das Scale-Up

Die Scale-Up Versuche werden im Technikum der Firma KraussMaffei Extrusion GmbH in Laatzen durchgeführt. Hierfür wird ein Doppelschneckenextruder des Typs ZE42 BluePower genutzt. Die in Bild 4.2 dargestellte Schnecken- und Gehäusekonfiguration wurde basierend auf vorherigen Versuchen mit kreidegefüllten PP-Compounds und einem L/D Verhältnis von 56 von den Ingenieuren bei KraussMaffei gewählt [Bie24].



*Bild 4.2: Schnecken- und Gehäusekonfiguration der Doppelschnecke für die Scale-Up Versuche*

*Fig. 4.2: Screw and housing configuration for the twin screw extruder for the scale-up trials*

Analog zu den Versuchen auf der Laboranlage werden die Polymere sowie die beiden Masterbatches im ersten Gehäuseelement zugegeben. Die Dosierung erfolgt im Gegensatz zu den Versuchen auf der Laboranlage über separate Dosiergeräte für jedes Polymer und Masterbatch, da das chargenweise Vormischen der Polymere und Masterbatches für die höheren Durchsätze aufwändiger und in dem Technikum von KraussMaffei vor Ort nicht realisierbar ist. Aufgrund des höheren Zieldurchsatzes von  $150 \text{ kg/h}$  für die Compoundrezepturen ist insbesondere das Peroxidmasterbatch mit den geringen prozentualen Anteilen für die kontinuierliche Zugabe einfacher dosierbar. Für die Polymere werden gravimetrische Dosierer des Typs Flexwall 40 und für die Additive gravimetrische Dosierer des Typs DSR28 der Firma Brabender Kubota Brabender Technologie GmbH, Duisburg eingesetzt. Die Zugabe der Kreide erfolgt über einen Doppelschneckendosierer des Typs DDSR40 mit integriertem Rührwerk der Firma Brabender Kubota Technologie GmbH, Duisburg. Analog zu den Versuchen auf der Laboranlage, werden die Polymere und

Masterbatche zunächst plastifiziert, bevor in Gehäuseelement 5 die Zugabe der Kreide über eine Seitenbeschickung erfolgt. Im Unterschied zu den Versuchen im Labormaßstab werden danach nicht nur Fördererlemente, sondern ebenfalls Knetblöcke zur Dispergierung und Einarbeitung der Kreide verwendet. In Gehäuse 5 und 8 erfolgt eine atmosphärische Entgasung während in Gehäuse 11 eine Vakuumentgasung bei 400 mbar zum Abzug von Restfeuchtigkeit mit einer Vakuumpumpe des Typs GXS160 der Firma Edwards Ltd, Burges Hill, Großbritannien erfolgt. Für alle Versuchspunkte werden die Maschineneinstellungen von  $300 \text{ min}^{-1}$  Schneckendrehzahl und  $210 \text{ °C}$  Gehäusetemperatur der Gehäuse 4 bis 13 konstant gehalten. Die Schmelzestränge werden mittels einer Düse mit 17 Löchern ausgeformt und in einem Wasserbad des Typs ips-SKW der Firma Intelligent Pelletizing Solutions GmbH & Co KG, Niedernberg abgekühlt. Die Granulierung erfolgt mit einem Granulator des Typs SGS200-E4L der Firma Reduction Engineering GmbH, Korntal-Münchigen.

### **4.3 Charakterisierung der Compouneigenschaften**

Als Zielgrößen für die Entwicklung der analytischen Modelle werden der MFR sowie die Scherviskosität als rheologische Kennwerte und der E-Modul sowie die Kerbschlagzähigkeit als mechanische Kennwerte ausgewählt. In den nachfolgenden Kapiteln wird das Vorgehen zur Bestimmung dieser Compouneigenschaften erläutert.

#### **4.3.1 Bestimmung rheologischer Kennwerte**

Die rheologischen Kennwerte werden direkt am vorgetrockneten Granulat geprüft. Der MFR wird nach DIN ISO 1133 mit einem Niederdruck-Kapillarrheometer des Typs HAAKE Melt Flow HT der Firma Thermo Fisher Scientific Inc., Waltham, Massachusetts, USA bestimmt [NN12]. Für die Durchführung der Messreihen werden ca. 4 g des Granulats abgewogen, in den vorgeheizten Zylinder gefüllt und stufenweise komprimiert. Nach einer Aufheizzeit von 240 s beginnt die Prüfung, während der die Kunststoffschmelze unter einer festgelten Last durch eine Düse gedrückt wird. Während der Füllstand von 50 mm auf 20 mm sinkt, werden 5 Einzelproben des extrudierten Materialstrangs entnommen, gewogen und zur Bestimmung eines einzelnen MFR-Wertes gemittelt. Als Prüfbedingungen werden die für PP typischen  $230 \text{ °C}$  und 2,16 kg gewählt. Für jede Compoundprobe findet eine Mehrfachbestimmung des MFR mit mindestens 2 Messungen statt.

Neben dem MFR-Wert, der eher zum groben Vergleich der Fließfähigkeit unterschiedlicher Kunststoffe geeignet ist, wird ebenfalls die Scherviskositätskurve für eine detaillierte Bestimmung der Fließfähigkeit nach ISO 11443 bestimmt. Hierzu wird das Hochdruckkapillarrheometer (HKR) vom Typ Rheograph 50 der Göttfert Werkstoff-Prüfmaschinen GmbH, Buchen, verwendet. Nach einem Aufwärm- und Aufschmelzen einer Granulatprobe im Reservoir, analog zur Prüfung des MFR, wird der plastifizierte Kunststoff mittels einer Stempelbewegung durch eine Kapillare gefördert, bei der der entstehende Druck gemessen wird. Die Scherviskosität wird anschließend aus dem Druckverlust über der Messstrecke in der Kapillare mit konstantem Querschnitt errechnet. Durch eine Kombination unterschiedlicher Kapillargeometrien (Länge, Durchmesser) und eine Variation der Stempelgeschwindigkeiten lassen sich verschiedene Scherraten  $\dot{\gamma}$  realisieren. Die Bestimmung der Scherviskositätskurven erfolgt für alle Materialproben bei einer Temperatur von 230 °C und drei Rundkapillaren (1 mm Durchmesser) mit Kapillarlängen von 5 mm, 10 mm und 20 mm. Durch eine Bagley-Korrektur werden die Einlaufdruckverluste in der Kapillare kompensiert [Bag57, HM16, URL25k]. Basierend auf vorherigen Untersuchungen von PP-Compounds werden die Scherraten  $51 \text{ s}^{-1}$ ,  $102 \text{ s}^{-1}$ ,  $204 \text{ s}^{-1}$ ,  $408 \text{ s}^{-1}$ ,  $816 \text{ s}^{-1}$  und  $1632 \text{ s}^{-1}$  gewählt.

#### 4.3.2 Bestimmung mechanischer Kennwerte

Im Gegensatz zu den rheologischen Kennwerten können die mechanischen Kennwerte nicht unmittelbar am Granulat bestimmt werden. Hierfür ist zunächst die Herstellung von Probekörpern im Spritzgießen erforderlich. Die Herstellung der Zugprobekörper findet auf einer vollelektrischen Spritzgießmaschine des Typs IntElect 100-250 der Firma Sumitomo (SHI) Demag Plastics Machinery GmbH, Schwaig, mit einem Schneckendurchmesser von 30 mm statt. In einem Mehrkavitätenwerkzeug mit Kaltkanal und Wassertemperierung werden pro Zyklus zwei Zugstäbe des Typs 1A gemäß der Normvorgaben nach DIN EN ISO 527 hergestellt. Der Zylinder des Spritzgießaggregats wird über vier Heizzonen stufenweise temperiert. Das Umschalten von Einspritz- auf Nachdruckphase erfolgt schneckenwegabhängig. Die Spritzgussparameter können Tabelle 4.3 entnommen werden.

Maschineneinstellung	Wert	Einheit
Nachdruckzeit	10	s
Nachdruck	350	bar
Staudruck	50	bar
Einspritzvolumenstrom	30	cm <sup>3</sup> /s
Zylindertemperatur	220 / 230 / 230 / 240	°C
Werkzeugtemperatur	50	mm/s
Restkühlzeit	15	s

*Tabelle 4.3: Maschineneinstellungen zur Herstellung der Zugprobekörper des Typs 1A.*

*Table 4.3: Machine settings to produce the tensile test specimen of type 1A.*

Die Bestimmung des E-Moduls erfolgt an einer Zugprüfmaschine des Typs Z100 der Firma ZwickRoell GmbH & Co. KG, Ulm nach DIN EN ISO 527-2. Der E-Modul wird hierbei als Sekantenmodul zwischen einer Dehnung von 0,05 % und 0,25 % bestimmt. Die Prüfung wird in diesem Dehnungsbereich mit einer Geschwindigkeit von 1 mm/min durchgeführt. Die Kraftmessung erfolgt mittels einer 10 kN Kraftmessdose der Firma ZwickRoell GmbH & Co. KG, Ulm. Der Probekörperquerschnitt wird vor jeder Prüfung gemessen und für die Berechnung der Zugspannung im Messquerschnitt genutzt. Für jedes hergestellte Compound werden mindestens fünf Messungen durchgeführt.

Als Probekörper für die Bestimmung der Kerbschlagzähigkeit werden die zuvor im Spritzgießprozess hergestellten Typ 1A Probekörper genutzt. Vor der Prüfung werden die Probekörper auf eine Länge von 80 mm ± 0,2 mm gekürzt. Gemäß ISO 2818 wird anschließend mit einer Fräsmaschine des Typs ICP 4030 XYZ der Firma Imes-Icore GmbH, Eiterfeld eine Kerbung des Typ A in die Proben eingebracht. Die Prüfung der Kerbschlagzähigkeit erfolgt nach DIN EN ISO 179-1eA mit einem Messgerät des Typs Pendelschlagwerk Zwick 5102 der Firma ZwickRoell GmbH & Co. KG, Ulm [NN23]. Hierbei wird ein Schlaghammer mit einer maximalen Schlagarbeit von 0,5 J verwendet. Vor jedem Compound werden Leerschläge zur Bestimmung der Reibungskorrektur durchgeführt. Für jedes Compound werden mindestens zehn Messungen der Kerbschlagzähigkeit durchgeführt.

#### **4.4 Systematische Versuchsplanung zur Datengenerierung**

Für die Entwicklung der analytischen Modelle ist eine umfangreiche Datenbasis erforderlich. Um die erste Forschungsfrage aus Kapitel 3 nach der Identifikation von Teilmodellen und der

anschließenden Aggregation zu einem Gesamtmodell beantworten zu können, müssen Versuchspläne gewählt werden, bei denen die einzelnen Additive und Füllstoffe separat eingesetzt und nicht miteinander kombiniert werden. Die Beschreibung dieser Versuchspläne erfolgt in Kapitel 4.4.1. Versuche an der Industrieanlage dienen in erster Linie der Untersuchung der Übertragbarkeit des AM. Da hier, wie in Kapitel 4.2.2 beschrieben, für jede Rezepturkomponente eigene Dosiergeräte zur Verfügung stehen, ist die Flexibilität hinsichtlich schneller Rezepturvariationen im Vergleich zur chargenweisen Vormischung auf der Laboranlage größer. Daher werden zur Beantwortung der Forschungsfrage hinsichtlich der Bewertung der AM für Rezepturen, bei denen Wechselwirkungen zwischen den eingesetzten Additiven und Füllstoffen auftreten können, auch weitere Versuche mit dem Einsatz aller Rezepturkomponenten durchgeführt. Diese Versuchspläne werden in Kapitel 4.2.2 beschrieben.

#### 4.4.1 Versuchspläne für Versuche auf der Laboranlage

In vorangegangenen Untersuchungen wurden das Blending verschiedener PP-Typen und die zugrundeliegenden Mischungsmodelle zur Beschreibung der mechanischen und rheologischen Kennwerte untersucht [Fra23, Sch24, SH24]. In den Versuchen von *Schleef* erwiesen sich vier Abstufungen der Blends als geeignet zur Untersuchung des Einflusses von Additiven auf PP-Blends [Sch24]. Aufbauend hierauf werden für die nachfolgenden Untersuchungen die vier identischen Stufen für die Blends der beiden Ausgangspolymere HP548R und 505P untersucht. Diese Abstufungen sind in Tabelle 4.4 aufgeführt.

Polymertyp	Varierte Prozentanteile [Gew.-%]			
HP548R (Spritzgießtype)	100	67	33	0
505P (Extrusionstype)	0	33	67	100

*Tabelle 4.4: Zusammensetzung der vier Ausgangsblends für die weiteren Versuche.*

*Table 4.4: Composition of the four blends used for the upcoming trials.*

Zur Modellierung des Einflusses verschiedener Additive und Füllstoffe werden einzelne Konzentrationsreihen untersucht. Wechselwirkungen einzelner Additive und Füllstoffe untereinander werden bei der Entwicklung der grundlegenden Modelle nicht betrachtet. Die Wahl der maximalen Kreidemenge von 30 Gew.-% orientiert sich an vorangegangenen Publikationen zur Untersuchung des Einflusses von Kreide in PP auf die mechanischen und rheologischen Eigenschaften [KSJ+22, PMVW21, WQAR24]. Für das Kerbschlagadditiv wird

empirisch eine Maximalmenge von 4 Gew.-% mit linearen Abstufungen gewählt. In Vorversuchen mit dem peroxidhaltigen Masterbatch CR5P wurde festgestellt, dass bei Zugabe von mehr als 1 Gew.-% der Abbau des Molekulargewichts der beiden verwendeten PP-Typen so groß war, dass eine Messung der MFR-Werte bei gleichbleibender Temperatur und identischem Prüfgewicht teilweise nicht mehr möglich war [SH24]. Daher wird der Höchstwert von CR5P auf 1 Gew.-% festgelegt. Die einzelnen Stufenwerte der beiden Kreide-Typen und der beiden Additive, die in den Konzentrationsreihen untersucht werden, sind in Tabelle 4.5 dargestellt.

Füllstoff/Additiv	Varierte Prozentanteile [Gew.-%]					
	Omyalite 95 T (CaCO <sub>3</sub> )	10		20		30
Omyalite 50 H (CaCO <sub>3</sub> )	10			20		
Engage 8200 (Kerbschlag)	1	2		3	4	
Polyvel CR5P (Peroxid)	0,15	0,25	0,5	0,75	0,85	1,0

*Tabelle 4.5: Variierte Anteile der Füllstoffe und Additive für die Versuche an der Laboranlage.*

*Table 4.5: Varied percentages of the fillers and additives used for the laboratory scale trials.*

Jeder in Tabelle 4.5 aufgeführte Füllstoff- bzw. Additivanteil wird für jede der vier in Tabelle 4.4 aufgeführten Blendzusammensetzungen der beiden Ausgangspolymere angewendet, sodass in Summe 64 Compounds auf der Laboranlage hergestellt, charakterisiert und für die Modellierung genutzt werden können. Der vollständige Versuchsplan mit den aufgeschlüsselten Prozentanteilen in der Gesamtrezeptur ist im Anhang abgebildet (Tabelle 13.1).

#### 4.4.2 Versuchspläne für Versuche auf der Industrieanlage

Für die Versuche auf der Industrieanlage werden mit Ausnahme von Omyalite 50 H die selben Rezepturbestandteile wie in Tabelle 4.5 verwendet. Während auf der Laboranlage die unterschiedliche Wirkungsweise der beiden Kreidetypen in Abhängigkeit ihrer Feinheit untersucht wird, steht dies hier nicht mehr im Vordergrund. Zur Beurteilung einer Übertragbarkeit der AM von der Laboranlage auf die Industrieanlage werden die variierten Stufenanteile der Konzentrationsreihen aus Tabelle 4.5 und die Anzahl der beiden Ausgangsblends aus Tabelle 4.4 reduziert. Der reduzierte Versuchsplan mit den angepassten Stufenwerten und Polymerverhältnissen ist in Tabelle 4.6 abgebildet.

Füllstoff/Additiv/Polymer	Varierte Prozentanteile [Gew.-%]		
	HP548R	100	50
505P	0	50	100
Omyalite 95 T	15		30
Engage 8200	2		4
Polyvel CR5P	0,5		1

*Tabelle 4.6: Blendzusammensetzung sowie Stufenwerte der Additive und der Kreide bei den Versuchen auf der Industrieanlage.*

*Table 4.6: Composition of the base blend and percentages of the additives and the chalk for the trials on the industrial scale twin screw extruder.*

In einem Versuchsplan wird die Vorhersagegenauigkeit der AM für Compoundrezepturen untersucht, bei denen alle Komponenten gleichzeitig eingesetzt werden und im Modell nicht berücksichtigte Wechselwirkungen auftreten können. Dieser Versuchsplan ist eine Kombination von 10 zufällig generierten Rezepturen und 17 Rezepturen, die in Anlehnung eines Latin-Hypercube-Versuchsplans gewählt werden. Insgesamt stehen somit 27 Versuchspunkte zur Verfügung, mit denen der Übertrag der entwickelten Modelle auf Rezepturen mit allen Bestandteilen überprüft werden kann. Der vollständige Versuchsplan mit den aufgeschlüsselten Prozentanteilen in der Gesamtrezeptur ist im Anhang in Tabelle 13.2 abgebildet.

## 4.5 Eingesetzte Software

Für die Erarbeitung und Darstellung der Ergebnisse dieser Dissertation wird unterschiedliche Software eingesetzt, die im Folgenden zusammengefasst ist. Die in Kapitel 5 und Kapitel 6 durchgeführte Optimierung der einzelnen Mischungsmodelle erfolgt in der Programmiersprache *Python* in der Version 3.9.4.

Das Fitting der Modellparameter zur Minimierung der MPA in Kapitel 5 und Kapitel 6 erfolgt mit den Python-Bibliotheken *pandas* in der Version 1.2.4 und *scikit-learn* in der Version 1.3.1 [Kin10, PVG+11]. Zum Training der KNN in Kapitel 7 wird das Framework *PyTorch* in der Version 1.9.0 genutzt [PGM+19]. Die Hyperparameteroptimierung erfolgt mit dem Framework *Optuna* in der Version 3.3.0 [ASY+19]. Für die Implementierung der GA zur Rezepturidentifikation in Kapitel 8 wird das Framework *PyGAD* in der Version 3.4.0 verwendet [Gad23].

Für die Erstellung des Quellcodes in den Kapiteln 5 bis Kapitel 8 werden die KI-Tools *ChatGPT* und *Microsoft CoPilot* zur Generierung einzelner Codepassagen verwendet [URL25g, URL25h].

Für die Übersetzung von Textpassagen wird der Übersetzer *DeepL Translate* verwendet [URL25i]. Für sprachliche Verfeinerungen einzelner Textpassagen kommt das Tool *DeepL Write* zum Einsatz [URL25j].

## 5 Analytische Beschreibungsmodelle der Compouneigenschaften

Im nachfolgenden Kapitel werden für die vier Compouneigenschaften E-Modul, Scherviskosität, MFR und Kerbschlagzähigkeit analytische Beschreibungsmodelle auf Grundlage des Datensatzes der Laborversuche entwickelt. Hierfür wird zunächst in Kapitel 5.1 der grundlegende Aufbau beschrieben, um die in Kapitel 3 aufgeführten Vorteile der etablierten Mischungsregeln und KNN zu kombinieren. In den darauffolgenden Kapiteln 5.2 bis 5.5 wird dieser Aufbau für die einzelnen Compouneigenschaften umgesetzt. Die Interpretation und Bewertung der Vorhersagegenauigkeit der AM erfolgt in Kapitel 6. Der Großteil der Ergebnisse aus Kapitel 5 wurde bereits publiziert [SLH24a, SLH24b, SLH25a, SLH25c].

### 5.1 Grundlegender Aufbau der analytischen Modelle

In Kapitel 3 wurden die etablierten Modellierungsmöglichkeiten der Compouneigenschaften mittels Mischungsregeln und KNN und deren jeweilige Vor- und Nachteile diskutiert. Daraus wurde abgeleitet, dass ein analytisches Modell (AM) die Vorhersage für komplexe Rezepturen durch eine Kombination verschiedener einfacher Mischungsregeln abbilden könnte.

Mischungsmodelle sind größtenteils nur für zwei Komponenten gleichzeitig anwendbar, so dass eine geeignete Reihenfolge für die Verkettung der einzelnen Mischungsmodelle miteinander erforderlich ist. Für die meisten Compounds stellt der Polymeranteil neben den Füllstoff- und Additivanteilen den mengenmäßig größten Anteil in einer Rezeptur dar. Dies ist auch bei den Versuchsplänen mit den in Kapitel 4 gewählten Rezepturbestandteilen der Fall. Hier liegt der minimale Polymeranteil bei den Versuchen auf der Laboranlage bei 70 Gew.-%. Für die Verkettung der einzelnen Mischungsmodelle werden zunächst die Compouneigenschaften des reinen Polymerblends modelliert, da diese durchgängig den größten Anteil des Compounds ausmachen. Hierzu können beispielsweise die bereits aus dem Stand der Forschung bekannten und in Kapitel 2.3.3 dargestellten Mischungsmodelle herangezogen werden. Darauf aufbauend muss eine Reihenfolge für die Anwendung der weiteren Mischungsmodelle für die einzelnen Füllstoffe und Additive festgelegt werden. Aufgrund der unterschiedlichen Versuchspunkte für die Variation der Compoundrezeptur gibt es hier keine Komponente, die nach dem Polymeranteil durchgängig den zweitgrößten Anteil ausmacht. Daher werden alle Einflussmodelle, die Füllstoffe und Additive abbilden, in ihrer

Priorisierung hinsichtlich der Teilmodellverkettung als gleichwertig betrachtet. Dazu müssen zwei vereinfachende Annahmen getroffen werden. Es wird zunächst davon ausgegangen, dass die Wirkung der Füllstoffe und Additive nur von ihrem Anteil in der Rezeptur und den zuvor modellierten Compouneigenschaften des Polymerblends abhängt. Der Einfluss von Prozessgrößen wird vernachlässigt. Weiterhin wird angenommen, dass dieser Effekt dominiert und mögliche Wechselwirkungen der einzelnen Füllstoffe und Additive untereinander vernachlässigbar sind. Der aus diesen Annahmen folgende Modellaufbau ist exemplarisch in Bild 5.1 dargestellt.

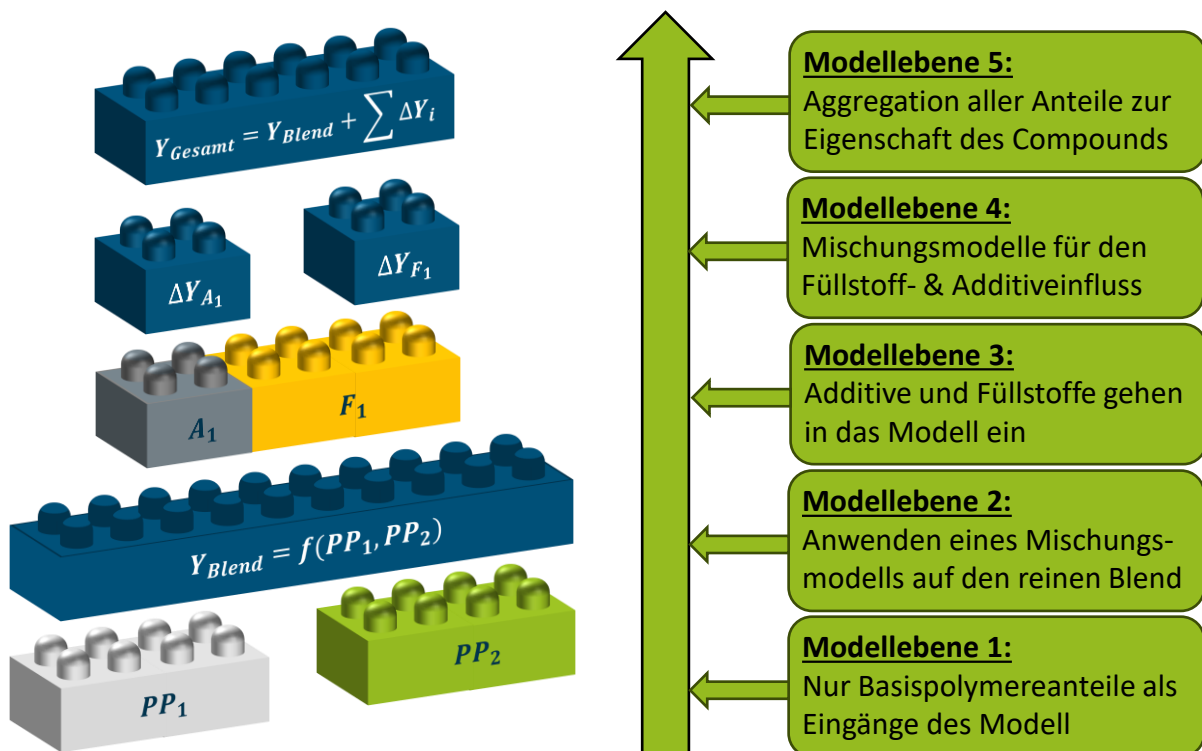


Bild 5.1: Untersucher Aufbau der analytischen Modelle im Rahmen dieser Arbeit [SLH25c].

Fig. 5.1: Examined structure of the analytical models in the context of this thesis [SLH25c].

Auf der ersten Modellebene werden nur die Anteile der Hauptpolymere berücksichtigt. Durch die Anwendung von Mischungsmodellen für Blends können die jeweilige Blendeigenschaften  $Y_{Blend}$  (z.B. MFR, E-Modul etc.) in Abhängigkeit des Verhältnisses der beiden Ausgangspolymere zueinander vorhergesagt werden. Erst danach werden die eingesetzten Füllstoffe und Additive über Einzelmodelle betrachtet. Schließlich können alle Einzeleinflüsse der Additive sowie die Grundeigenschaft des reinen Polymerblends aufsummiert werden und ergeben die Gesamteigenschaft des Compounds  $Y_{Gesamt}$ . Dieser Modellierungsansatz wird in den folgenden Unterkapiteln für die vier betrachteten Eigenschaften des E-Modul, der Scherviskosität, des MFR sowie der Kerbschlagzähigkeit angewendet.

## 5.2 Analytisches Beschreibungsmodell des E-Modul

Im Folgenden wird entsprechend der in Kapitel 5.1 diskutierten Struktur ein AM zur Vorhersage des E-Moduls in Abhängigkeit von der Compoundrezeptur entwickelt. Dazu wird zunächst in Kapitel 5.2.1 ein Mischungsmodell für reine Polymerblends aufgestellt, bevor in den Kapiteln 5.2.2 bis 5.2.4 Einzelmodelle zur Beschreibung des Einflusses von Calciumcarbonat sowie Polyvel CR5P und Engage 9200 identifiziert werden. Abschließend erfolgt in Kapitel 5.2.5 die Zusammenführung der Einzelmodelle zum Gesamtmodell. Die Auswertung der Vorhersagegenauigkeit des AM erfolgt in Kapitel 6.1. Die Inhalte dieses Kapitels wurden bereits in dem Journal Polymers publiziert [SLH24b].

### 5.2.1 Mischungsregeln für Polymerblends

Der erste Schritt des AM ist die Bestimmung einer geeigneten Mischungsregel zur Beschreibung des E-Moduls des reinen Polymerblends. Wie in Kapitel 2.3.3 beschrieben, gibt es eine Vielzahl unterschiedlicher Mischungsregeln für binäre Polymerblends, jedoch keine allgemein gültige, universelle Mischungsregel. Daher ist es zunächst notwendig, eine geeignete Modellierung für die Wechselwirkung der beiden untersuchten PP-Typen zu identifizieren.

In einer früheren Untersuchung wurden die Experimente von *Traxler et al.* zur Untersuchung des Einflusses von Blendabstufungen verschiedener PP-Typen auf den E-Modul [TKF23] mit drei verschiedenen homopolymeren PP-Typen reproduziert [Fra23, SLH24b]. Dabei wurden die beiden Materialien HP501M und HP525J von LyondellBasell, Rotterdam, Niederlande, mit HP548R zu Blends verschiedener Abstufungen compoundiert [Fra23, SLH24b]. Die in diesen Versuchsreihen hergestellten Blends sind in Bild 5.2 dargestellt. Es zeigt sich, dass bei beiden untersuchten Blends der E-Modul mit steigendem Anteil an HP548R zunimmt und beim Reinmaterial den höchsten Wert erreicht. Analog zu den Untersuchungen von *Traxler et al.* folgt dieser Anstieg zwischen 20 Gew.-% und 100 Gew.-% HP548R-Anteil einem linearen Trend [TKF23]. Zwischen 0 Gew.-% und 20 Gew.-% HP548R-Anteil ist ein deutlicher Sprung im E-Modul zu erkennen. Für eine Beschreibung dieses nichtlinearen Verlaufs in einem ersten Mischungsmodell wird im Folgenden zunächst eine geeignete mathematische Funktion identifiziert.

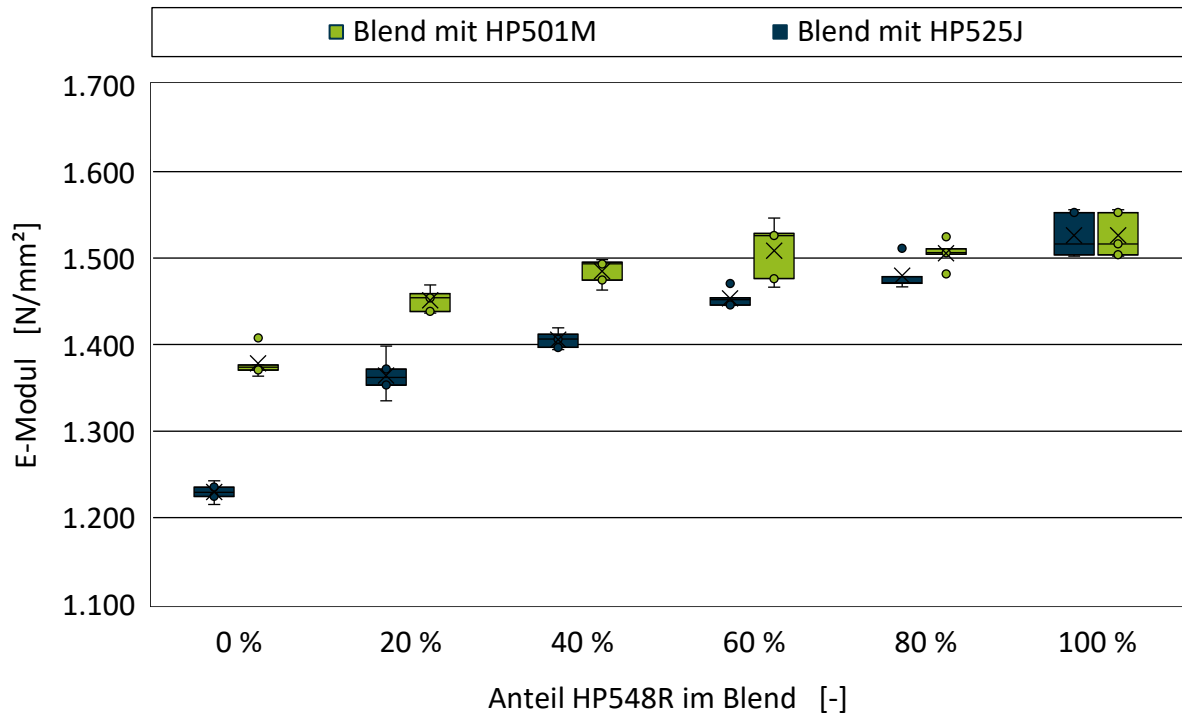


Bild 5.2: Boxplot-Diagramme des E-Moduls der hergestellten Blends aus einer Vorversuchsreihe [SLH24b].

Fig. 5.2: Boxplot diagram of the tensile moduli of the binary blends from previous investigations [SLH24b].

Auch wenn der Verlauf nicht durchgehend linear ist, wird ein lineares Modell als Referenz betrachtet (Gleichung 5.1). Darüber hinaus werden ein exponentieller Verlauf, der durch drei freie Parameter beschrieben wird (Gleichung 5.2), sowie ein Polynom dritten Grades (Gleichung 5.3) und ein logarithmisches Modell (Gleichung 5.4) untersucht. Das Polynom dritten Grades sowie das logarithmische Modell werden durch vier Parameter beschrieben, wobei der Parameter  $c$  in Gleichung 5.4 nur erforderlich ist, damit der Logarithmus für einen Anteil von 0 Gew.-% HP548R definiert ist.

$$E_{Blend} = a \times x_{HP548R} + b \quad (5.1)$$

$$E_{Blend} = a \times e^{(b \times x_{HP548R})} + c \quad (5.2)$$

$$E_{Blend} = a \times x_{HP548R}^3 + b \times x_{HP548R}^2 + c \times x_{HP548R} + d \quad (5.3)$$

$$E_{Blend} = a \times \ln^{(b \times x_{HP548R} + c)} + d \quad (5.4)$$

Für alle vier Gleichungen werden die Parameter in Python (siehe Kapitel 4.5) für eine Minimierung der MQA für die beiden Blendreihen gefittet. Als Bewertungsmetrik für die Modellgenauigkeiten werden  $R^2$ , MAA sowie MPA ausgewertet und betrachtet. Die Auswertung für die vier Modelle ist in Tabelle 5.1 dargestellt.

Modelltyp	Bewertungsmetriken					
	HP501M-HP548R			HP525J-HP548R		
	$R^2$	MAA	MPA	$R^2$	MAA	MPA
Linear	0,910	25,6 N/mm <sup>2</sup>	1,88 %	0,815	19,6 N/mm <sup>2</sup>	1,34 %
E-Funktion	0,910	25,6 N/mm <sup>2</sup>	1,88 %	0,815	19,6 N/mm <sup>2</sup>	1,34 %
Logarithmisch	0,994	6,2 N/mm <sup>2</sup>	0,43 %	0,989	3,9 N/mm <sup>2</sup>	0,26 %
Polynom 3. Grades	0,996	5,0 N/mm <sup>2</sup>	0,36 %	0,996	2,3 N/mm <sup>2</sup>	0,16 %

*Tabelle 5.1: Auswertung der verschiedenen Modellansätze zur Vorhersage des E-Moduls der Blends aus HP501M sowie HP525J mit HP548R.*

*Table 5.1: Evaluation of the different model approaches for predicting the modulus of elasticity of the blends of HP501M and HP525J with HP548R.*

Es ist zu erkennen, dass das lineare Mischungsmodell für beide Blendreihen die geringsten Vorhersagegenauigkeiten und die niedrigsten  $R^2$ -Werte erzielt. Beim Parameterfit in Gleichung 5.2 geht der Parameter  $b$  gegen 0, so dass die e-Funktion linearisiert und damit hinsichtlich der Bewertungsmetriken nahezu identisch mit der linearen Mischungsregel wird. Im Gegensatz dazu erfassen sowohl das logarithmische Modell als auch das Polynom 3. Grades den Verlauf des E-Moduls sehr genau mit prozentualen Abweichungen von den realen Messwerten  $< 0,5 \%$ . Im Gegensatz zu den klassischen Mischungsregeln fehlt bei diesen beiden Modellen der Bezug zu den E-Moduln der Reinmaterialien. Um diesen Bezug zu integrieren, wurden die Gleichungen 5.3 und 5.4 zu den verallgemeinerten Modellen in Gleichung 5.5 und 5.6 erweitert.

$$E_{Blend} = a \times |E_A - E_B| \times x_{\max(E_A, E_B)}^3 + b \times |E_A - E_B| \times x_{\max(E_A, E_B)}^2 \quad (5.5)$$

$$+ c \times |E_A - E_B| \times x_{\max(E_A, E_B)} + \min(E_A, E_B) \times d$$

$$E_{Blend} = |E_A - E_B| \times a \times \ln\left(\max\left(\frac{E_A}{E_B}, \frac{E_B}{E_A}\right)\right) \times b \times x_{\max(E_A, E_B)} + \max\left(\frac{E_A}{E_B}, \frac{E_B}{E_A}\right) \times c \quad (5.6)$$

$$+ \min(E_A, E_B) \times d$$

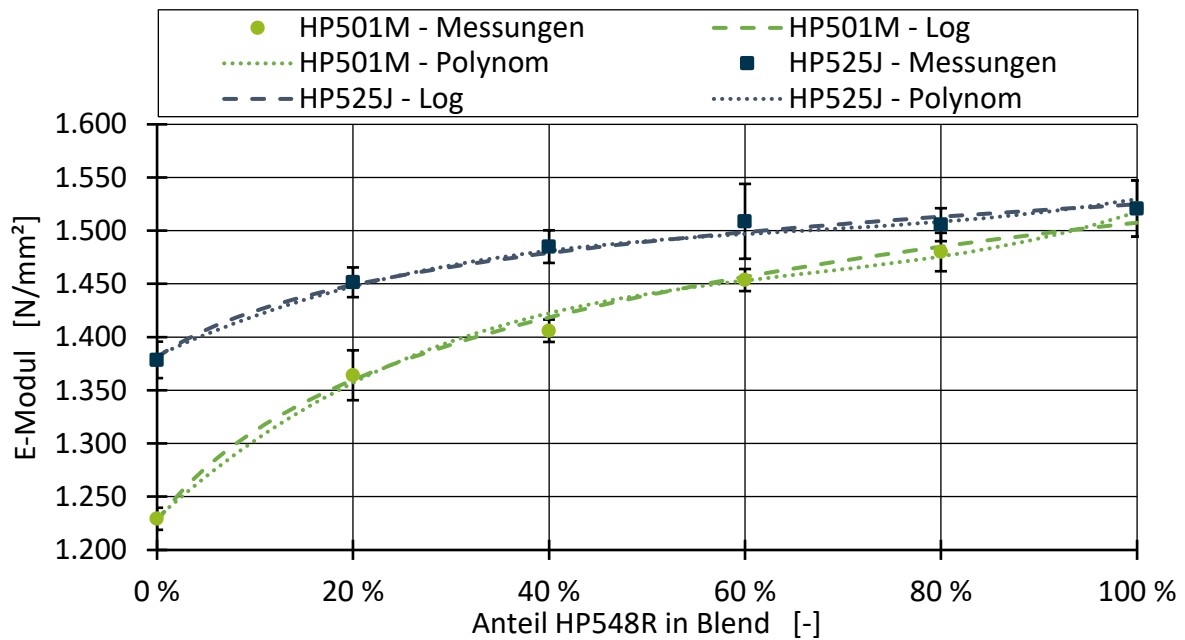
Dabei ist  $x_{\max(E_A, E_B)}$  der Polymeranteil des Blendpartners mit dem höheren E-Modul, so dass die Funktion für alle möglichen Kombinationen der Blendpartner ansteigt. Da die Modellparameter  $a$ ,  $b$ ,  $c$  und  $d$  über die Berücksichtigung der E-Moduln beider Blendpartner angepasst werden, erfolgt die Optimierung dieser nicht mehr einzeln, sondern über beide Blendreihen gemeinsam. Für die Vorfaktoren des Modellparameters  $d$  wird der kleinere E-Modul gewählt, da das Modell für einen Polymeranteil von 0 Gew.-% den Ausgangswert des Blendpartners mit kleinerem E-Modul wiedergeben muss. Die anderen Vorfaktoren werden über eine systematische Variation und Minimierung der Modellfehler für die beiden Blendreihen identifiziert. Die in Gleichung 5.5 und 5.6 dargestellten Vorfaktoren stellen die als am besten identifizierte Lösung dar. In Tabelle 5.2 sind die Bewertungsmetriken dieser Modelle dargestellt. Gegenüber dem individuellen Fit für jeden Datensatz einzeln sind die  $R^2$  Werte dieser Modelle geringfügig niedriger und die Vorhersagefehler etwas höher, können diese Modellansätze rein mathematisch mit identischem Parametersatz für beliebige Blends aus Homopolymeren verwendet werden.

Modelltyp	Bewertungsmetriken					
	HP501M-HP548R			HP525J-HP548R		
	R <sup>2</sup>	MAA	MPA	R <sup>2</sup>	MAA	MPA
Polynom 3. Grades	0,995	4,9 N/mm <sup>2</sup>	0,35 %	0,981	5,9 N/mm <sup>2</sup>	0,40 %
Logarithmisch	0,994	6,4 N/mm <sup>2</sup>	0,45 %	0,985	5,4 N/mm <sup>2</sup>	0,36 %

*Tabelle 5.2: Auswertung der beiden verallgemeinerten Modelle zur Vorhersage des E-Moduls der Blends aus HP501M sowie HP525J mit HP548R.*

*Table 5.2: Evaluation of the two generalised models for predicting the modulus of elasticity of the blends of HP501M and HP525J with HP548R.*

In Bild 5.3 sind die Modellverläufe beider Modelle sowie die Messungen der real durchgeführten Versuchspunkte dargestellt.



*Bild 5.3: Gegenüberstellung des verallgemeinerten logarithmischen und polynomialen Modellierungsansatz für die Blends aus HP501M sowie HP525J mit HP548R [SLH24b].*

*Fig. 5.3: Comparison of the generalised logarithmic and polynomial modeling approach for the blends of HP501M and HP525J with HP548R [SLH24b].*

Es ist zu erkennen, dass beide Modellierungsansätze in der Lage sind, den steilen Anstieg von 0 Gew.-% bis 20 Gew.-% HP548R abzubilden. Während die Steigung des logarithmischen Ansatzes nach 20 Gew.-% zunehmend abnimmt und ab ca. 60 Gew.-% nahezu konstant bleibt, zeigt der polynomische Ansatz für beide Versuchsreihen bei 80 Gew.-% einen Wendepunkt, der auf Messungenauigkeiten zurückgeführt werden kann. Da der Zahlenwert des Polymeranteils in dem Polynomialansatz mit einem Exponenten größer eins eingeht, können sich neben Ungenauigkeiten bei der Messung des E-Moduls auch Ungenauigkeiten bzw. Abweichungen zwischen tatsächlichem und geplantem Polymeranteil im Blend gegenüber dem logarithmischen Modell als Fehlerquelle auswirken. Da sich die beiden Modelle in ihrer Vorhersagegenauigkeit nur geringfügig unterscheiden, das logarithmische Modell robuster gegenüber diesen Fehlerquellen in den Versuchsdaten ist, wird es zur Beschreibung des Blends im AM verwendet.

Nachdem sich das logarithmische Modell zur Beschreibung des resultierenden E-Moduls für die Blends aus HP501M sowie HP525J mit HP548R als geeignet erwiesen hat, wird im

Folgenden die Anwendbarkeit für das Blend aus HP548R und 505P untersucht. In Bild 5.4 sind die Vorhersagen des logarithmischen Modells für das Blend aus 505P und HP548 nach Gleichung 5.6 gegenüber den vier Versuchspunkten ohne die Zugabe von Additiven oder Füllstoffen dargestellt.

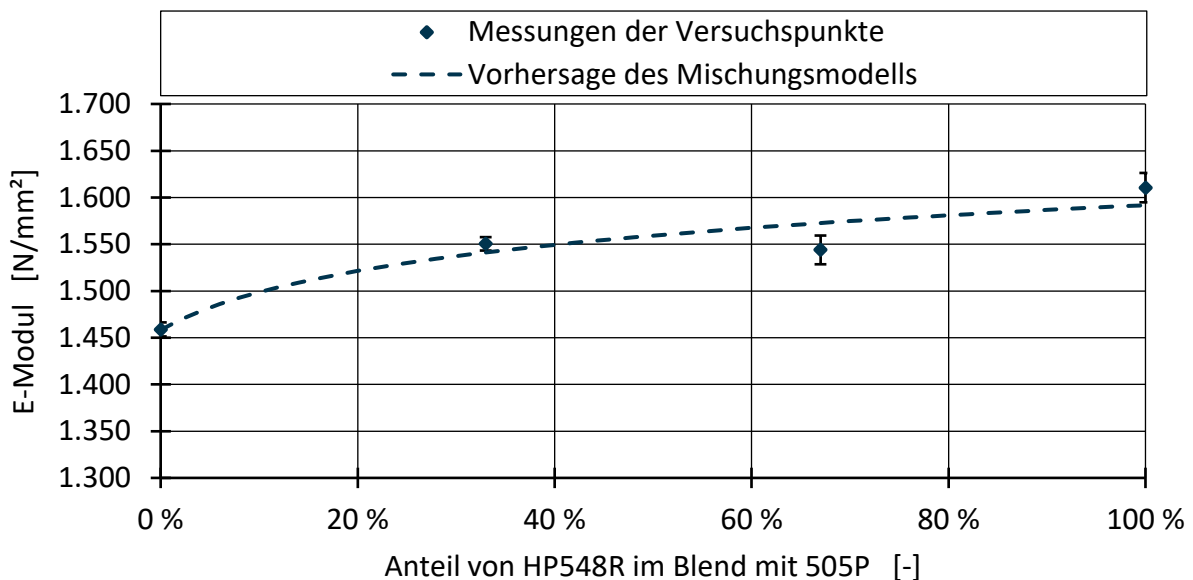


Bild 5.4: Vorhersage des E-Modul durch das logarithmische Mischungsmodell für den Blend aus 505P und HP548R [SLH24b].

Fig. 5.4: Prediction of the tensile modulus by the logarithmic mixture model for the blend of 505P and HP548R [SLH24b].

Auffällig ist hier die Abweichung des Messpunktes bei 67 Gew.-% HP548-Anteil von der Modellvorhersage, der aufgrund der zuvor dargestellten guten Verallgemeinerbarkeit dieses Modells für die zuvor betrachteten Blends mit sechs Mischungsabstufungen als Messausreißer gewertet wird. Zudem beträgt der Unterschied zwischen den E-Moduln der beiden Ausgangspolymere nur ca. 150 N/mm<sup>2</sup>, so dass einzelne Ausreißer der Messpunkte um wenige MPa stärker ins Gewicht fallen.

## 5.2.2 Modellierung von Calciumcarbonat als Füllstoff

Nach der Entwicklung des ersten Teilmodells für binäre Homopolymerblends wird in diesem Kapitel ein Teilmodell für den Einfluss der beiden Calciumcarbonate als Füllstoff auf den E-Modul untersucht. Die Boxplot-Diagramme für die Versuchsreihen mit Omyalite 95 T sind in Bild 5.5 dargestellt. Es wird zunächst deutlich, dass der E-Modul für alle Mischungen analog zu den Literaturerkenntnissen linear mit dem Füllstoffanteil ansteigt [VH90].

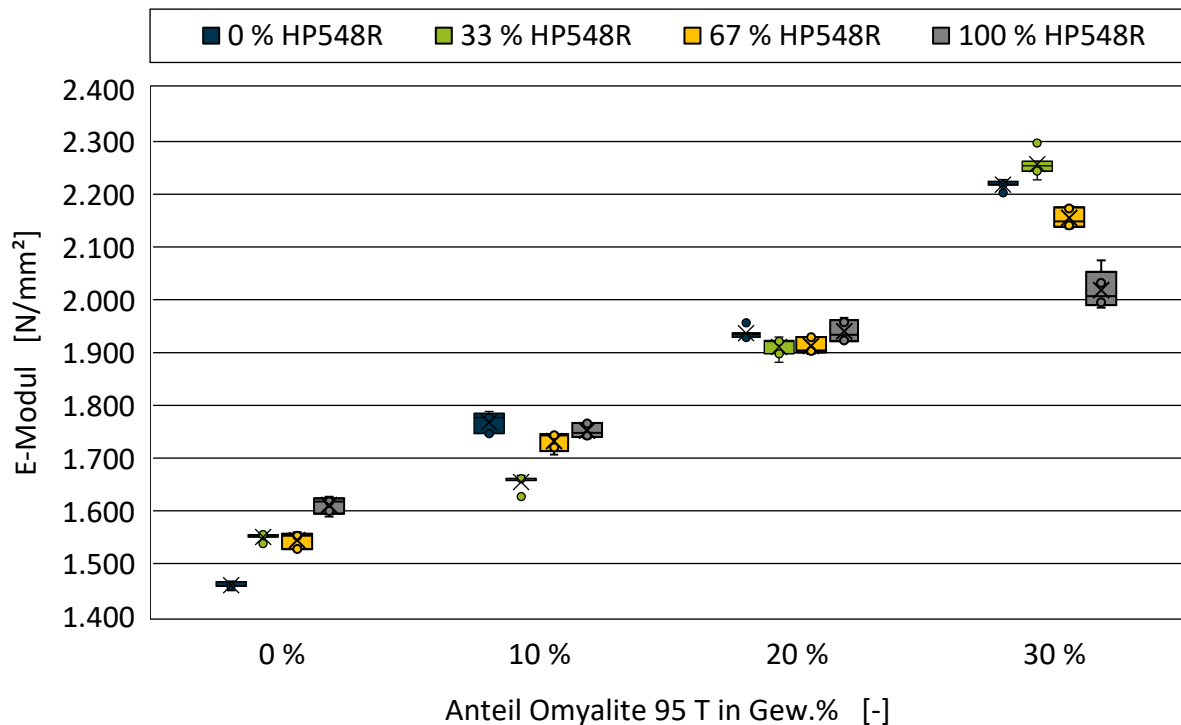


Bild 5.5: Boxplot-Diagramme des E-Moduls in Abhängigkeit des Anteils an Omyalite 95 T für die verschiedenen Mischungsverhältnisse der Ausgangspolymere [SLH24b].

Fig. 5.5: Boxplot diagrams of the tensile modulus as a function of the share of Omyalite 95 T for the different mixing ratios of the polymers [SLH24b].

Nach Vollenberg *et al.* kann der Einfluss von Calciumcarbonat auf den E-Modul von PP mit einer modifizierten Kerner-Gleichung beschrieben werden [VH90]. Die Vorhersagen dieses Modells stimmen nur für gut an der Polymermatrix haftende Kreidepartikel mit der Realität überein [VH90]. Außerdem setzt die Anwendung dieses Modells voraus, dass sowohl die Querkontraktionszahlen als auch der E-Modul der PP-Matrix und des verwendeten Calciumcarbonats bekannt sind [VH90]. Während der E-Modul der PP-Matrix über das zuvor entwickelte Vorhersagemodell in Kapitel 5.2.1 vorhergesagt werden kann, können die anderen Kennwerte nur aus der Literatur abgeschätzt werden, da diese in den Materialdatenblättern nicht aufgeführt werden. Der Einfluss des Omyalite 95 T erscheint in Bild 5.5 linear und wird für die Modellierung zunächst durch eine Geradengleichung nach Gleichung 5.7 für die vier Ausgangsblends modelliert.

$$E_{95 T} = E_0 + x_{95 T} \times m_{95 T,E} \quad (5.7)$$

Der E-Modul  $E_{95 T}$  ist hierbei nur abhängig von dem E-Modul des reinen Blends ohne Füllstoffe  $E_0$  sowie dem Anteil  $x_{95 T}$  des Calciumcarbonats für die einzelnen Versuchspunkte multipliziert mit der Geradensteigung  $m_{95 T,E}$ . Der Anteil des Calciumcarbonats wird hierbei

entgegen der Modelle nach *Vollenberg et al.* nicht volumetrisch, sondern gravimetrisch bemessen [VH90]. Die Dichte stellt einen konstanten Umrechnungsfaktor für die in den Rezepturangaben genutzten Gewichtsprozentangaben dar, der in der Geradensteigung  $m_{95 T}$  berücksichtigt wird. Daher können für die Modellierung konsequent die gravimetrisch eingestellten Anteile der Rezepturkomponenten genutzt werden. Analog zum Vorgehen zur Beschreibung der reinen Polymerblends werden die Parameter aus Gleichung 5.7 für die vier durchgeführten Versuchsreihen für eine Minimierung der MQA des Vorhersagefehlers optimiert. Die gefitteten linearen Modelle sowie deren zugrunde liegenden Messpunkte sind in Bild 5.6 dargestellt.

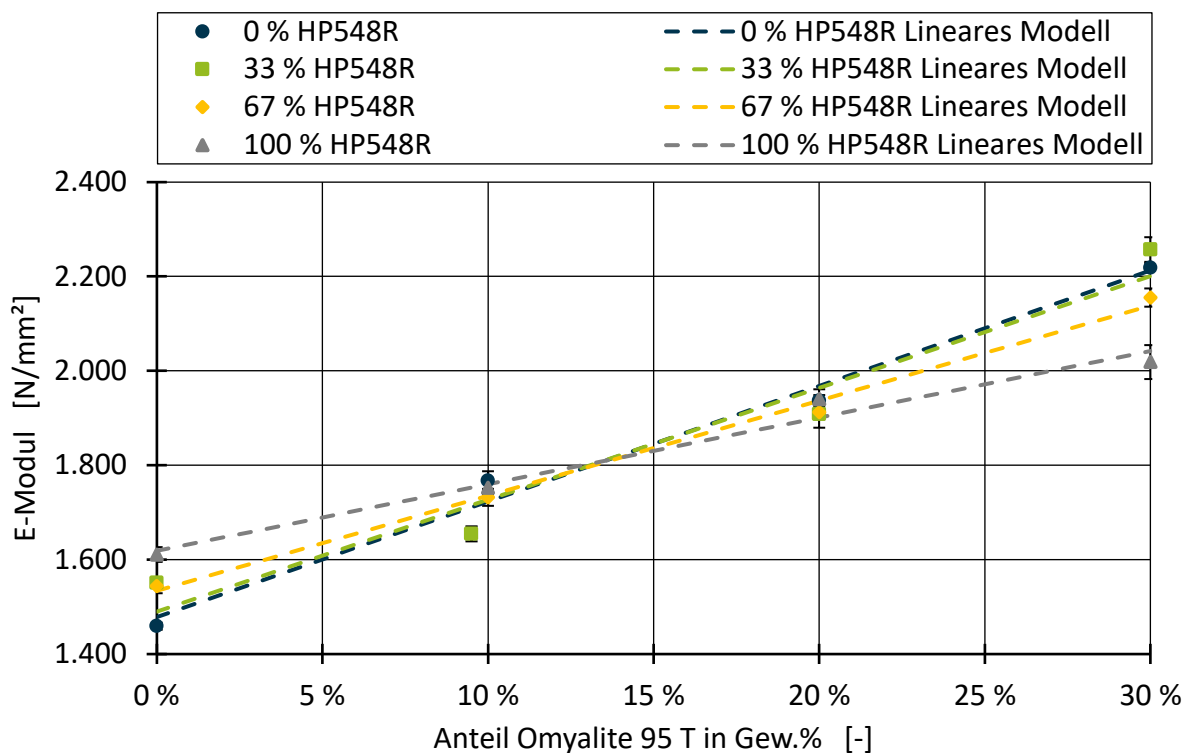


Bild 5.6: Vorhersage des E-Modul für die Versuchsreihe mit Omyalite 95 T über lineare Modelle [SLH24b].

Fig. 5.6: Prediction of the tensile modulus for the test series with Omyalite 95 T using linear models [SLH24b].

Für alle Versuche mit Ausnahme des Blends aus 33 Gew.-% HP548R und 67 Gew.-% 505P stimmen die linearen Modellverläufe mit den Messungen gut überein. Lediglich der Versuchspunkt mit 10 Gew.-% Omyalite 95 T und 33 Gew.-% HP548R stellt einen deutlichen Ausreißer dar. Hier wurde bereits während der Compoundherstellung auf dem Doppelschneckenextruder festgestellt, dass der tatsächliche Anteil an Calciumcarbonat mit 9,5 Gew.-% vom Sollwert von 10 Gew.-% abweicht. Die MAA und der  $R^2$ -Wert als

Bewertungskriterien der linearen Modelle sowie der über die Mischreihen gemittelte Messfehler (eine Standardabweichung) sind in Tabelle 5.3 dargestellt.

Zusammensetzung des Polymerblends	Messfehler	MAA	R <sup>2</sup>
0 Gew.-% HP548R – 100 Gew.-% 505P	12,1 N/mm <sup>2</sup>	25,1 N/mm <sup>2</sup>	0,984
33 Gew.-% HP548R – 67 Gew.-% 505P	19,5 N/mm <sup>2</sup>	58,3 N/mm <sup>2</sup>	0,906
67 Gew.-% HP548R – 33 Gew.-% 505P	17,0 N/mm <sup>2</sup>	13,7 N/mm <sup>2</sup>	0,993
100 Gew.-% HP548R – 0 Gew.-% 505P	21,4 N/mm <sup>2</sup>	19,6 N/mm <sup>2</sup>	0,976

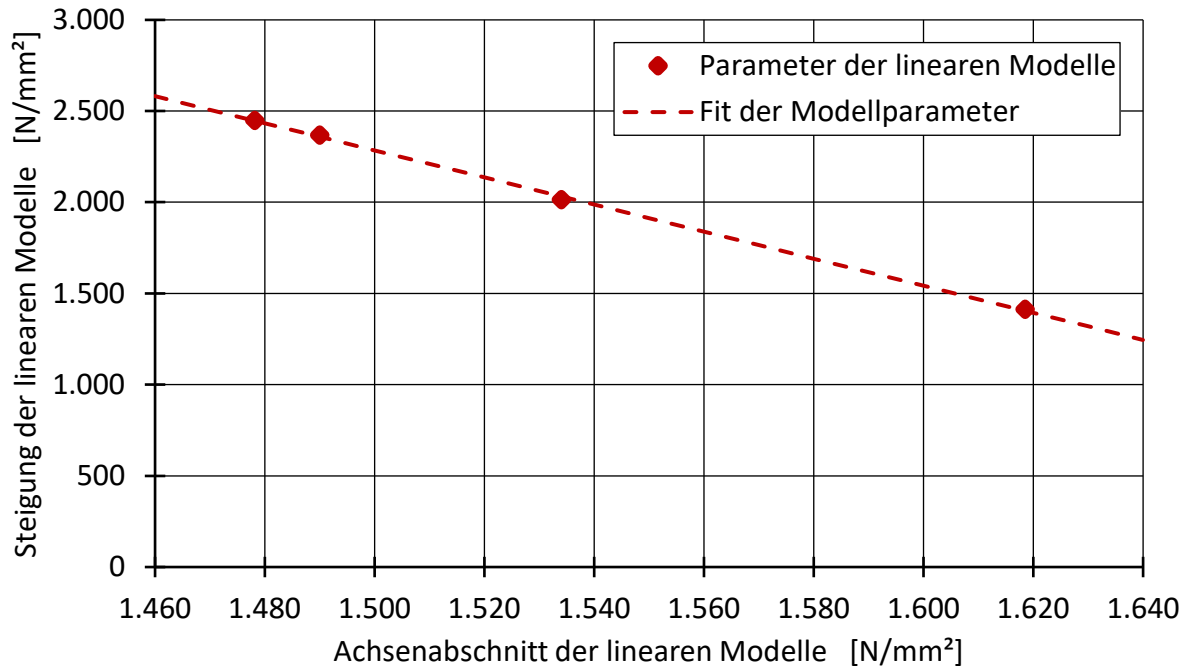
*Tabelle 5.3: Auswertung der linearen Beschreibungsmodelle für den Einfluss von Omyalite 95 T auf den E-Modul [SLH24b].*

*Table 5.3: Evaluation of the linear models for the influence of Omyalite 95 T on the tensile modulus [SLH24b].*

Für die Versuchsreihen mit 0 Gew.-%, 67 Gew.-% und 100 Gew.-% HP548R sind die Modellgüten mit R<sup>2</sup> Werten von > 0,97 nahezu ideal und die Abweichung zwischen Vorhersage und Realität liegt in der Größenordnung des Messfehlers der Zugprüfung. Dadurch bestätigt sich die Annahme, dass der grundlegende Einfluss der Kreide über einen linearen Zusammenhang adäquat abgebildet werden kann.

Die entwickelten linearen Modelle sind nur für die vier definierten Blendzusammensetzungen der beiden Ausgangspolymere anwendbar. Für eine generalisierte Beschreibung des Füllstoffeinflusses in Abhängigkeit aller möglichen Blendzusammensetzungen über die vier in den praktischen Versuchen untersuchten Abstufungen hinaus muss das Modell aus Gleichung 5.7 verallgemeinert werden.

Aus den Verläufen der linearen Modelle in Bild 5.6 ist ersichtlich, dass die Geradensteigung als abhängig von dem E-Modul der ungefüllten Blends anzunehmen ist. Daher wird im nächsten Schritt untersucht, ob die Steigung der linearen Modelle in Abhängigkeit des E-Moduls des Polymerblends ausgedrückt werden kann. Dieser Zusammenhang ist in Bild 5.7 dargestellt.



*Bild 5.7: Zusammenhang der Steigung  $m_{95 T,E}$  der linearen Beschreibungsmodelle nach Gleichung 5.7 in Abhängigkeit des Achsenabschnitts  $E_0$  [SLH24b].*

*Fig. 5.7: Correlation of the slope  $m_{95 T,E}$  of the linear models according to equation 5.7 as a function of the axis intercept  $E_0$  [SLH24b].*

Hierbei fällt auf, dass sich der Zusammenhang der Steigung  $m_{95 T,E}$  in Abhängigkeit des Achsenabschnitts  $E_0$  für die einzelnen Modelle wiederum über einen linearen Zusammenhang darstellen lässt. Über diesen linearen Zusammenhang kann Gleichung 5.7 für beliebige Blendzusammensetzungen verallgemeinert werden zu Gleichung 5.8.

$$E_{95 T} = E_0 + x_{95 T} \times (I_{95 T,E} + E_0 \times s_{95 T,E}) \quad (5.8)$$

Über diese Verallgemeinerung kann die für jede Blendreihe individuell gefittete Geradensteigung  $m_{95 T,E}$  aus Gleichung 5.7 über den wiederum linearen Zusammenhang aus Bild 5.7 mit dem Null-Achsenabschnitt  $I_{95 T}$  und der Steigung  $s_{95 T,E}$  dieser Geradengleichung supplementiert werden. Die Parameterwerte für  $I_{95 T,E}$  und  $s_{95 T,E}$  können hierfür nun anhand aller Versuchspunkte der vier Versuchsreihen gefittet werden.

Analog zu dem Vorgehen für Omyalite 95 T wird auch für Omyalite 50 H vorgegangen. Die identifizierten Zusammenhänge und das in Gleichung 5.8 abgeleitete Beschreibungsmodell sind dabei identisch, lediglich die Werte der Modellparameter unterscheiden sich. Die Boxplot-Diagramme sowie Darstellungen der Zusammenhänge analog zu Bild 5.6 und Bild 5.7 können dem Anhang in Kapitel 13.2 entnommen werden.

### 5.2.3 Modellierung des Peroxideinflusses

Nachdem im vorherigen Kapitel der Einfluss von Calciumcarbonat auf den E-Modul modelliert wurde, wird im Folgenden der Einfluss des peroxidhaltigen Masterbatches auf den E-Modul betrachtet. Die Boxplot-Diagramme der Versuchspunkte mit Polyvel CR5P sind in Bild 5.8 abgebildet.

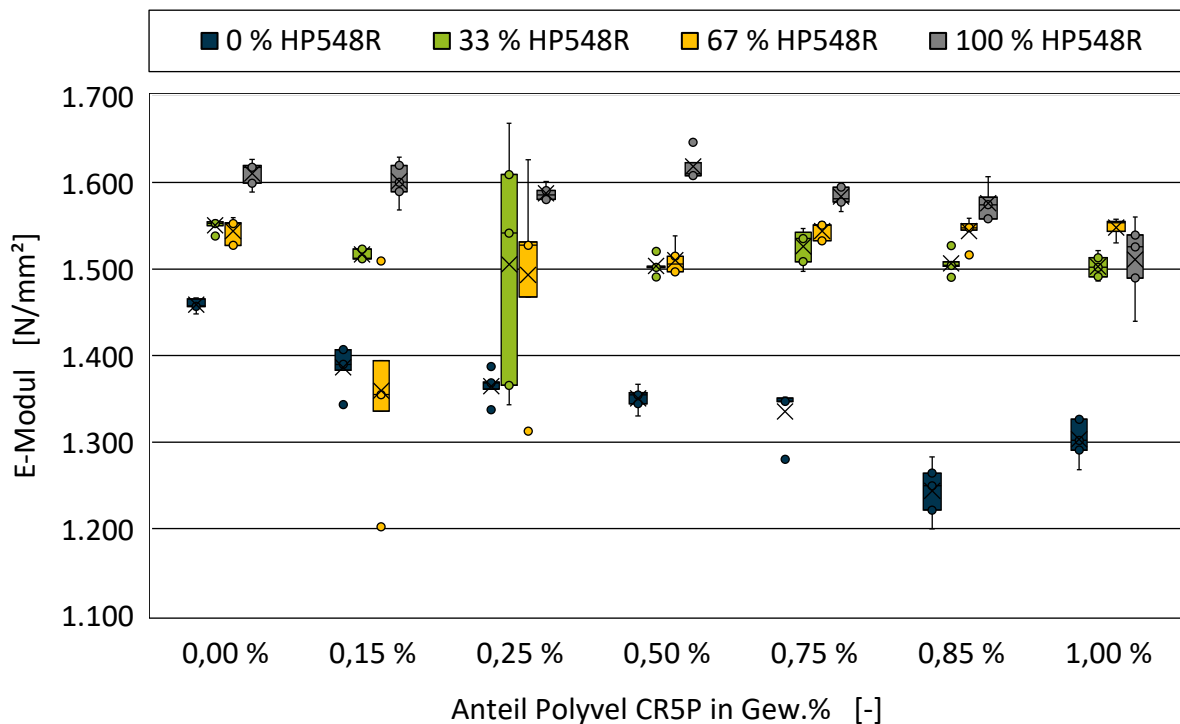


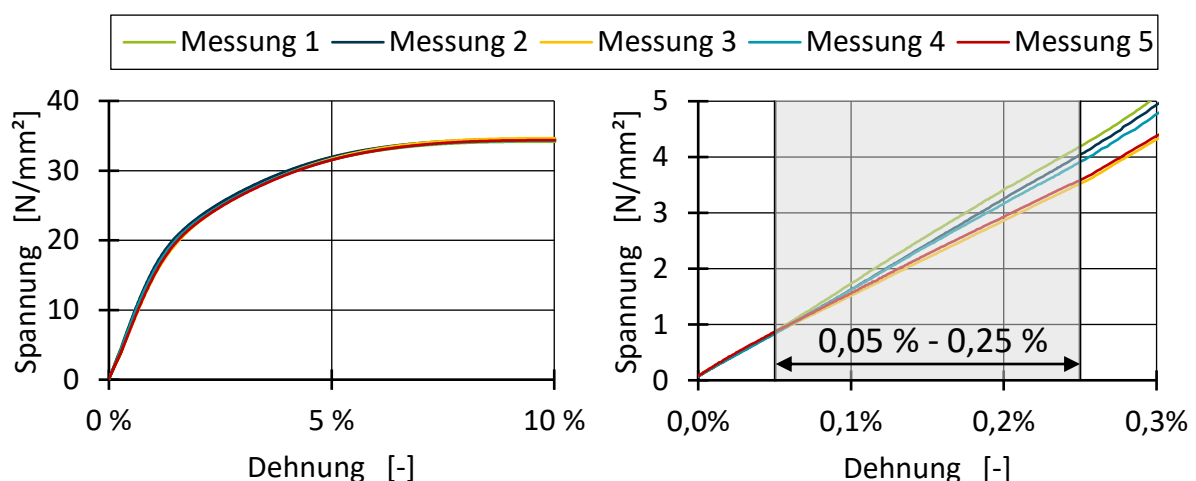
Bild 5.8: Boxplot-Diagramme des E-Moduls in Abhängigkeit des Anteils an Polyvel CR5P für die verschiedenen Mischungsverhältnisse der Ausgangspolymere [SLH24b].

Fig. 5.8: Boxplot diagrams of the tensile modulus as a function of the share of Polyvel CR5P for the different mixing ratios of the polymers [SLH24b].

Bei den Versuchsreihen der Blends mit 33 Gew.-%, 67 Gew.-% und 100 Gew.-% HP548R ist zunächst kein eindeutiger Einfluss des Peroxidmasterbatches auf den E-Modul festzustellen. Unabhängig vom Anteil an Polyvel CR5P bleibt der E-Modul auch bei 1 Gew.-% Additivzugabe nahezu konstant. Lediglich der Versuchspunkt mit 0,15 Gew.-% Additiv bei 67 Gew.-% HP548R stellt einen deutlichen Ausreißer dar. Im Gegensatz dazu ist für die Versuchsreihe mit 0 Gew.-% HP548R bzw. 100 Gew.-% 505P eine deutliche lineare Abnahme des E-Moduls mit steigendem Additivanteil zu erkennen. Diese unterschiedlichen Wirkmechanismen erscheinen zunächst ungewöhnlich, da es sich bei beiden Ausgangspolymeren um Homopolymere handelt, die hinsichtlich des molekularen Aufbaus identisch sein sollten. Unterschiede in der jeweiligen Molekulargewichtsverteilung der beiden PP-Typen, verschiedene Taktizitäten

sowie mögliche Additivierungen dieser Polymere mit z. B. unterschiedlichen Stabilisatorsystemen können zu divergierenden Einflüssen führen. Ohne weitere Laboruntersuchungen der Ausgangspolymere z. B. mittels Gelpermeationschromatographie (GPC) zur Messung der Molekulargewichtsverteilung oder Bestimmung der Oxidation Induction Time (OIT), um daraus Informationen über die unterschiedlichen Ausgangsstabilisatoren ableiten zu können, ist eine weitergehende Untersuchung dieser Divergenz in der Wirkungsweise nicht möglich. Für die reine Modellierung eines Mischungsmodells ist dies nicht erforderlich. Hier muss lediglich die Tatsache berücksichtigt werden, dass die beiden Polymere unterschiedlich auf das Peroxid reagieren.

Unabhängig von den unterschiedlichen Auswirkungen des Peroxids auf den E-Modul ist in den Boxplot-Diagrammen in Bild 5.8 zu erkennen, dass die Messwerte für einige Versuchspunkte weit streuen, teilweise um mehr als  $300 \text{ N/mm}^2$ . Insbesondere für die Versuchspunkte mit 0,25 Gew.-% Polyvel CR5P bei 33 Gew.-% HP548 sowie 0,15 Gew.-% und 0,25 Gew.-% Polyvel CR5P bei 67 Gew.-% HP548R liegen die Standardabweichungen der Messungen bei  $145,4 \text{ N/mm}^2$ ,  $110,7 \text{ N/mm}^2$  und  $115,8 \text{ N/mm}^2$ . Um diese Streuung zu verdeutlichen, sind in Bild 5.9 beispielhaft die Spannungs-Dehnungs-Kurven der fünf Probekörper für den Versuchspunkt mit 0,25 Gew.-% Polyvel CR5P bei 33 Gew.-% HP548R dargestellt. Während die Spannungs-Dehnungs-Kurven zwischen 0 % und 10 % Dehnung für alle fünf geprüften Probekörper nahezu deckungsgleich sind, weichen die Verläufe zwischen 0 % und 0,3 % Dehnung deutlich voneinander ab.



*Bild 5.9: Spannungs-Dehnungs Kurven der Zugprüfung für den Versuchspunkt mit 33 % HP548 im Polymerblend und 0,25 % Polyvel CR5P [SLH24b].*

*Fig. 5.9: Stress-strain curves of the tensile test for the test point with 33 % HP548 in the polymer blend and 0.25 % Polyvel CR5P [SLH24b].*

Nach DIN EN ISO 527 wird der E-Modul als Steigung zwischen 0,05 % und 0,25 % Dehnung berechnet. Selbst geringe Abweichungen im Steigungsverlauf in diesem Bereich können daher zu vergleichsweise hohen Standardabweichungen führen, obwohl die Spannungs-Dehnungs-Kurven über den gesamten Dehnungsbereich betrachtet nur geringe Unterschiede aufweisen. Bei den Probekörpern aus peroxidhaltigem Compound sind diese erhöhten Standardabweichungen für den E-Modul deutlich ausgeprägter als bei den beiden Calciumcarbonat-Typen und dem Kerbschlagmodifikator. Eine mögliche Ursache hierfür können schwankende Prozessbedingungen beim Spritzgießen sein. Da die Maschineneinstellungen einschließlich des Umschaltpunktes zwischen Einspritz- und Nachdruckphase für alle Versuchspunkte konstant gehalten wurden, um insgesamt vergleichbare Probekörper herzustellen, führt die deutlich erhöhte Fließfähigkeit der peroxidhaltigen Compounds in Kombination mit den nicht angepassten Maschinenparametern zu einer geringeren Reproduzierbarkeit der Spritzgießzyklen. Die erhöhten Standardabweichungen des E-Moduls sind nur bei wenigen Versuchspunkten so stark ausgeprägt. Aus diesem Grund werden die drei zuvor aufgeführten Versuchspunkte mit Standardabweichungen  $> 100 \text{ N/mm}^2$  für die weitere Modellierung nicht berücksichtigt.

Wie bereits beschrieben, ist die Wirkungsweise des Peroxids für die beiden Polymere unterschiedlich. Sowohl der in Bild 5.8 für 0 Gew.-% HP548R beobachtete linear degressive Verlauf als auch die konstanten Verläufe der anderen Reihen lassen sich durch lineare Mischungsmodelle beschreiben. Diese linearen Modelle nach Gleichung 5.9 wurden analog zur Vorgehensweise bei der Beschreibung des Kreideeinflusses aufgestellt.

$$E_{CR5P} = E_0 + x_{CR5P} \times m_{CR5P,E} \quad (5.9)$$

Die an die verschiedenen Versuchsreihen mit Polyvel CR5P gefitteten Modelle sind in Bild 5.10 dargestellt.

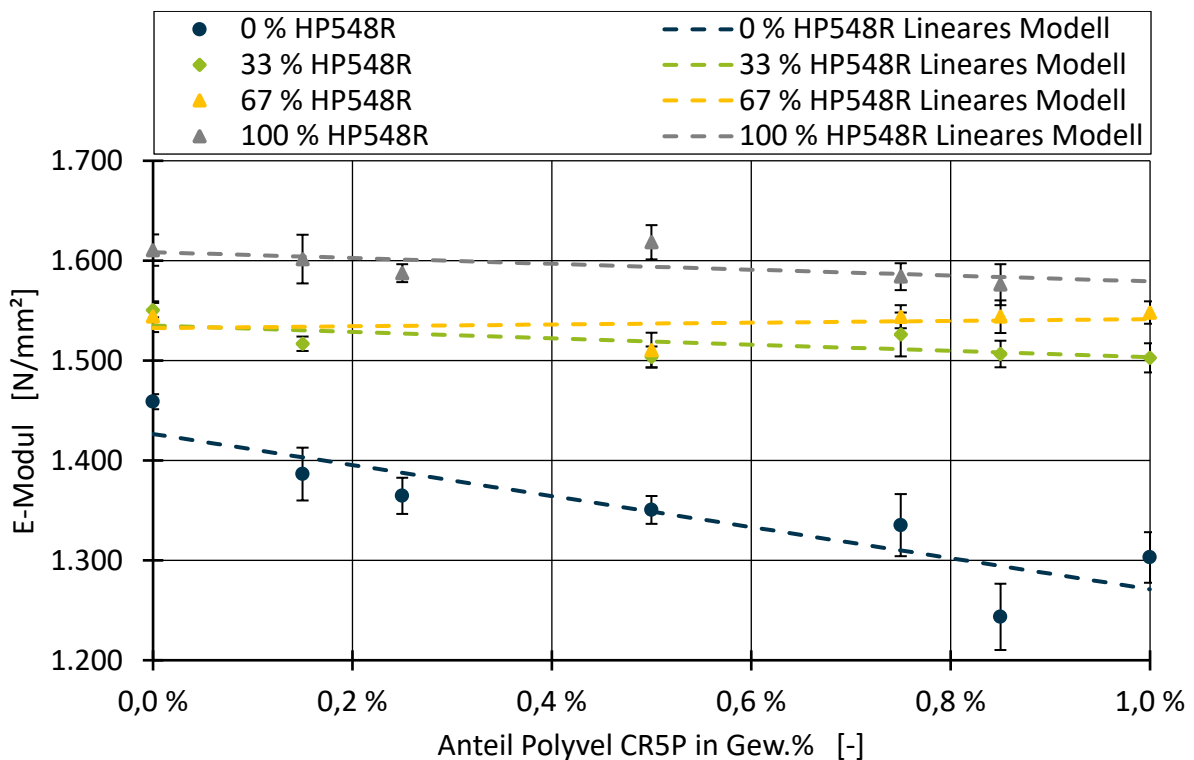


Bild 5.10: Vorhersage des E-Moduls für die Versuchsreihen mit Polyvel CR5P über lineare Modelle [SLH24b].

Fig. 5.10: Prediction of the tensile modulus for the test series with Polyvel CR5P using linear models [SLH24b].

In Tabelle 5.4 sind der Messfehler der Zugprüfung sowie die MAA und der  $R^2$  der vier separat gefitteten linearen Modelle aufgelistet.

Zusammensetzung des Polymerblends	Messfehler	MAA	$R^2$
0 Gew.-% HP548R – 100 Gew.-% 505P	22,2 N/mm <sup>2</sup>	25,8 N/mm <sup>2</sup>	0,774
33 Gew.-% HP548R – 67 Gew.-% 505P	12,5 N/mm <sup>2</sup>	10,4 N/mm <sup>2</sup>	0,473
67 Gew.-% HP548R – 33 Gew.-% 505P	14,4 N/mm <sup>2</sup>	11,1 N/mm <sup>2</sup>	0,020
100 Gew.-% HP548R – 0 Gew.-% 505P	16,7 N/mm <sup>2</sup>	13,8 N/mm <sup>2</sup>	0,555

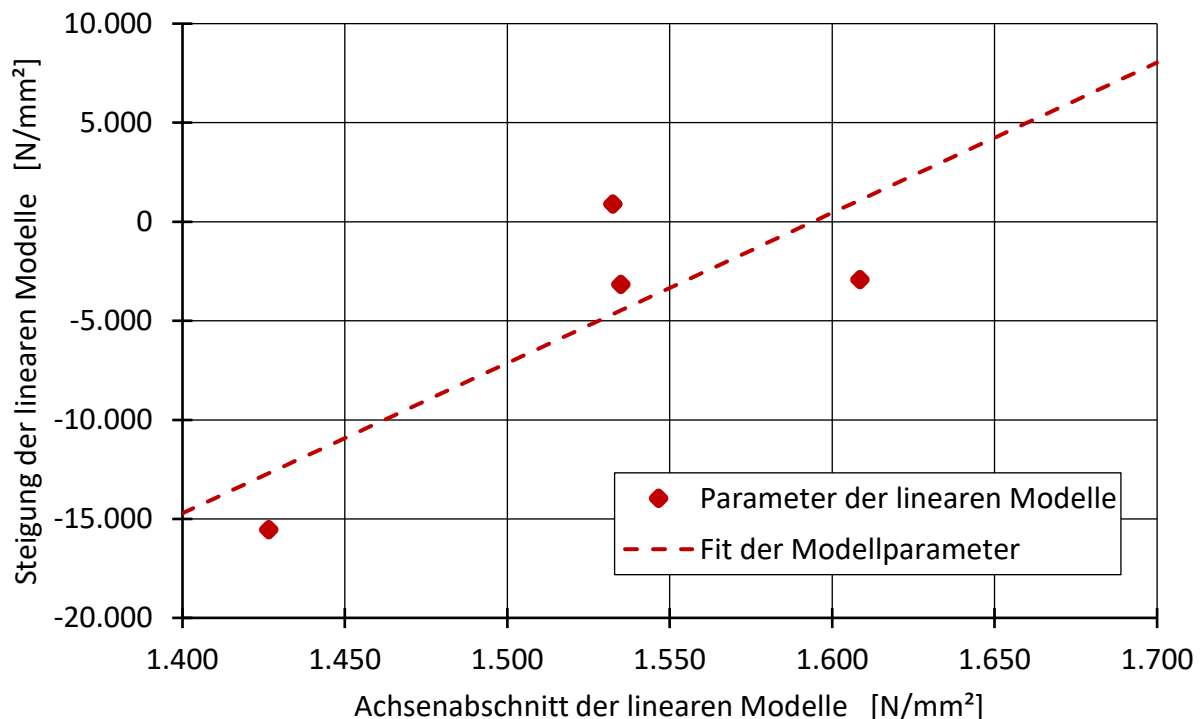
Tabelle 5.4: Auswertung der linearen Beschreibungsmodelle für den Einfluss von Polyvel CR5P auf den E-Modul [SLH24b].

Table 5.4: Evaluation of the linear models for the influence of Polyvel CR5P on the tensile modulus [SLH24b].

Es ist zu erkennen, dass die MAA für alle vier Messreihen in der Größenordnung und mit Ausnahme der Versuchsreihe mit 0 Gew.-% HP548R und 100 Gew.-% 505P auch unterhalb der einfachen Standardabweichung der Zugversuche liegt. Entgegen dieser Beobachtung einer sehr guten Übereinstimmung zwischen linearem Vorhersagemodell und realen Messungen

sind die Werte des Bestimmtheitsmaßes ( $R^2$ ) mit einem Minimalwert von 0,02 für die Reihe mit 67 Gew.-% HP548R vergleichsweise niedrig. Dies kann damit begründet werden, dass der  $R^2$ -Wert insbesondere bei nahezu konstanten Modellverläufen, wie es hier der Fall ist, auf einzelne Ausreißer (z. B. 0,5 Gew.-% CR5P bei 67 Gew.-% HP548R) überreagiert.

Analog zu der Modellierung von Calciumcarbonat in Kapitel 5.2.2 wird untersucht, ob sich die Steigung  $m_{CR5P,E}$  der linearen Modelle in Abhängigkeit des E-Moduls  $E_0$  der reinen Blends ohne die Zugabe von CR5P verallgemeinern lässt, sodass auch das Mischungsmodell für den Peroxideinsatz für beliebige Blends und Additivkonzentrationen anwendbar ist. Diese Zusammenhangsbeschreibung ist in Bild 5.11 dargestellt.



**Bild 5.11:** Zusammenhang der Steigung  $m_{CR5P,E}$  der linearen Beschreibungsmodelle nach Gleichung 5.9 in Abhängigkeit des Achsenabschnitts  $E_0$  [SLH24b].

**Fig. 5.11:** Correlation of the slope  $m_{CR5P,E}$  of the linear models according to equation 5.9 as a function of the axis intercept  $E_0$  [SLH24b].

Es ist ersichtlich, dass eine eindeutige Modellierung der Geradensteigungen in Gleichung 5.9 in Abhängigkeit vom Achsenabschnitt  $E_0$  für die Versuchsreihen mit 33 Gew.-% und 67 Gew.-% HP548R nicht möglich ist, da diese bei nahezu identischen Achsenabschnitten  $E_0$  (1532  $N/mm^2$  und 1535  $N/mm^2$ ) unterschiedliche Steigungen  $m_{CR5P}$  aufweisen. Die einfachste Lösung zur Modellierung der vier Punkte ist auch hier ein lineares Modell, mit dem nur ein  $R^2$  von 0,63 und eine MAA von 3437  $N/mm^2$  für  $m_{CR5P,E}$  erzielbar ist. Zur Steigerung

der Vorhersagegenauigkeit wird untersucht, ob sich  $m_{CR5P,E}$  über eine Abhängigkeit vom Anteil an 505P im Polymerblend abbilden lässt. Dieser Zusammenhang ist in Bild 5.12 dargestellt.

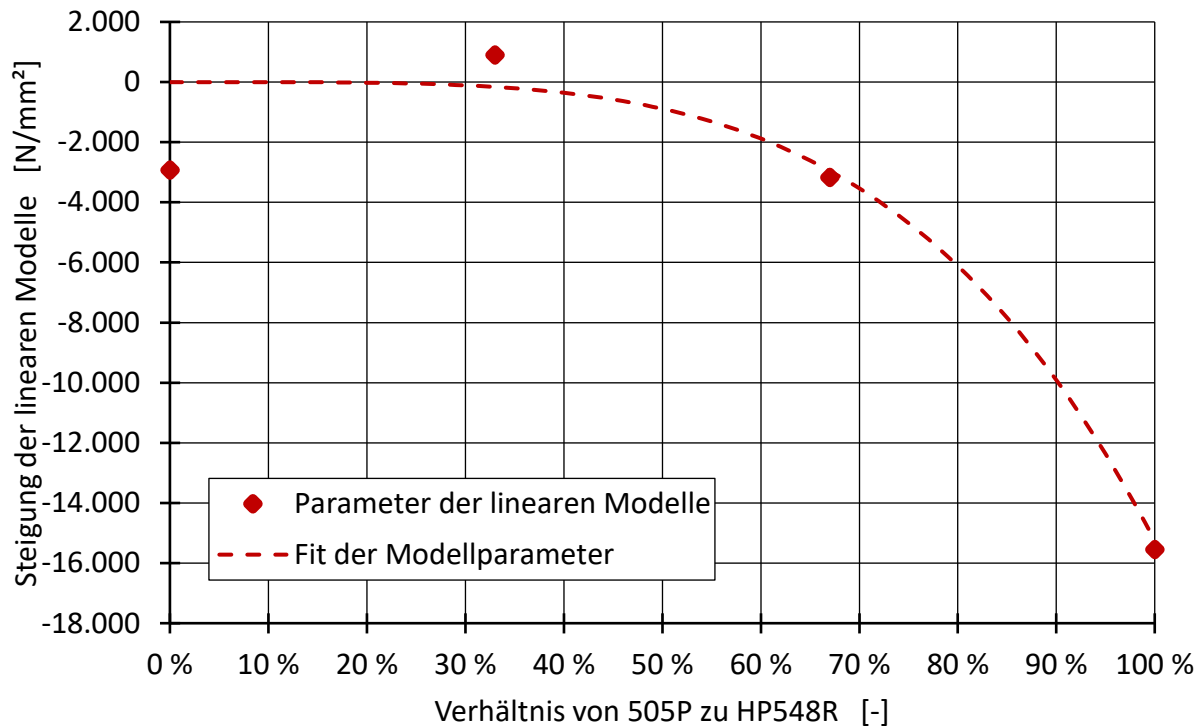


Bild 5.12: Zusammenhang der Steigung  $m_{CR5P}$  der linearen Beschreibungsmodelle nach Gleichung 5.9 in Abhängigkeit des Anteils von 505P im Blend mit HP548R [SLH24b].

Fig. 5.12: Correlation of the slope  $m_{CR5P}$  of the linear models according to equation 5.9 as a function of the share of 505P in the binary blend with HP548R [SLH24b].

Es fällt auf, dass die zuvor identifizierte Problematik identischer Y-Achsenwerte bei nahezu identischen X-Achsenwerten hier nicht auftritt. Ebenso ist zu erkennen, dass die einzelnen Geradensteigungen  $m_{CR5P}$  keinem linearen Verlauf folgen. Zur Abbildung des Einflusses des Anteils von 505P im Blend wird ein Potenzansatz nach Gleichung 5.10 aufgestellt. Hierbei sind  $p_{1,E}$  und  $p_{2,E}$  die Modellparameter des Potenzansatzes und  $x_{505P}$  sowie  $x_{HP548}$  die jeweiligen Anteile der beiden Polymere in der Gesamtrezeptur.

$$E_{CR5P} = E_0 + x_{CR5P} \times p_{1,E} \times \left( \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times 100 \right)^{p_{2,E}} \quad (5.10)$$

Während für die Vorhersage von  $m_{CR5P,E}$  in Abhängigkeit des Achsenabschnitts  $E_0$  lediglich ein  $R^2$  von 0,63 und eine MAA von 3437 N/mm<sup>2</sup> erzielt wurden, liegt der  $R^2$  Wert für die in Bild 5.12 angewandte Modellierung mit Potenzansatz bei 0,94 und die MAA bei 1122 N/mm<sup>2</sup>.

### 5.2.4 Modellierung des Kerbschlagmodifikators

Nach der Modellierung des Einflusses von Calciumcarbonat und Peroxid auf den E-Modul wird nachfolgend der Einfluss des Kerbschlagmodifikators betrachtet. In Bild 5.143 sind die Boxplot-Diagramme der Versuchsreihen mit dem Kerbschlagmodifikator Engage 8200 dargestellt.

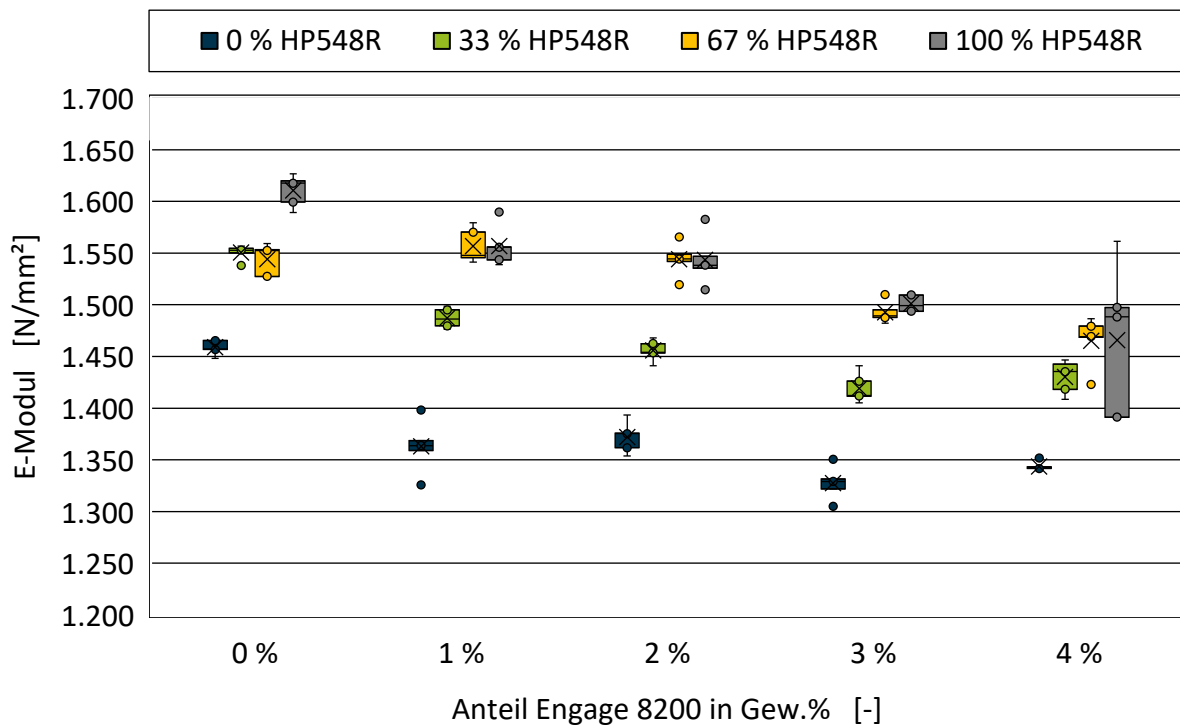


Bild 5.13: Boxplot-Diagramme des E-Moduls in Abhängigkeit des Anteils an Engage 8200 für die verschiedenen Mischungsverhältnisse der Ausgangspolymere [SLH24b].

Fig. 5.13: Boxplot diagrams of the tensile modulus as a function of the share of Engage 8200 for the different mixing ratios of the polymers [SLH24b].

Ähnlich zu den Verläufen des E-Moduls in Abhängigkeit des Calciumcarbonats sowie des Peroxidmasterbatches ist auch hier ein linearer Trend zu beobachten. Folglich wurde für jede Versuchsreihe ein lineares Modell nach Gleichung 5.11 aufgestellt und gefittet.

$$E_{Engage\ 9200} = E_0 + x_{Engage\ 9200} \times m_{Engage\ 9200,E} \quad (5.11)$$

Die gefitteten linearen Modelle sind in Bild 5.14 für die vier verschiedenen Versuchsreihen abgebildet.

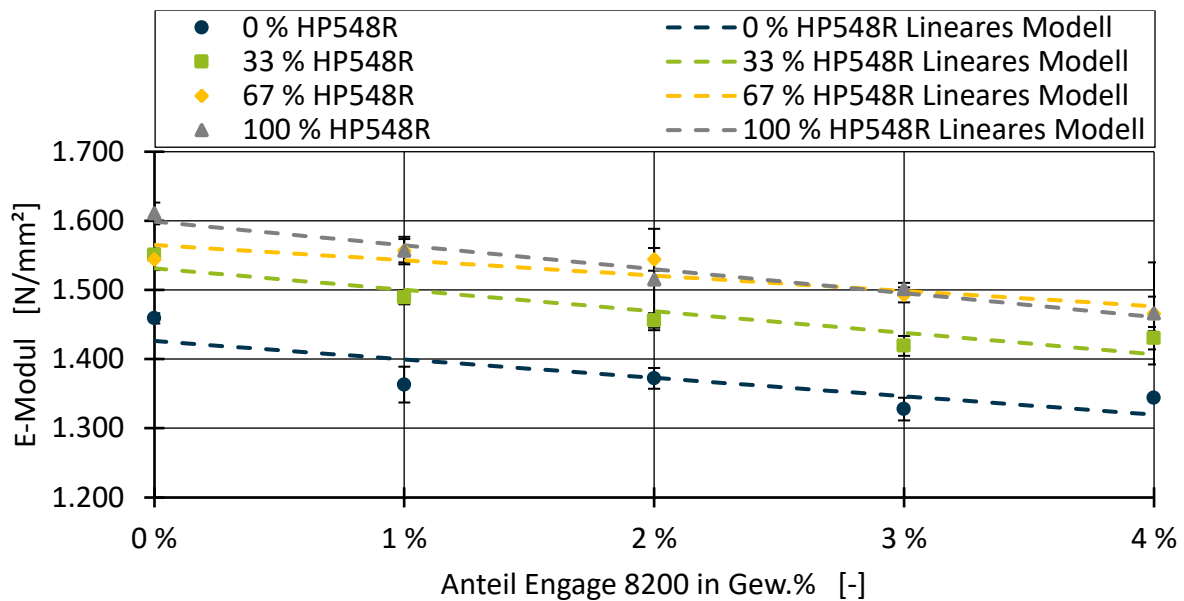


Bild 5.14: Vorhersage des E-Modul für die Versuchsreihen mit Engage 8200 über lineare Modelle für die vier verschiedenen Polymerblends [SLH24b].

Fig. 5.14: Prediction of the tensile modulus for the test series with Engage 8200 using linear models for the four different polymer blends [SLH24b].

In Tabelle 5.5 sind der Messfehler der Zugprüfung sowie die MAA und der  $R^2$  der vier separat gefitteten linearen Modelle aufgelistet.

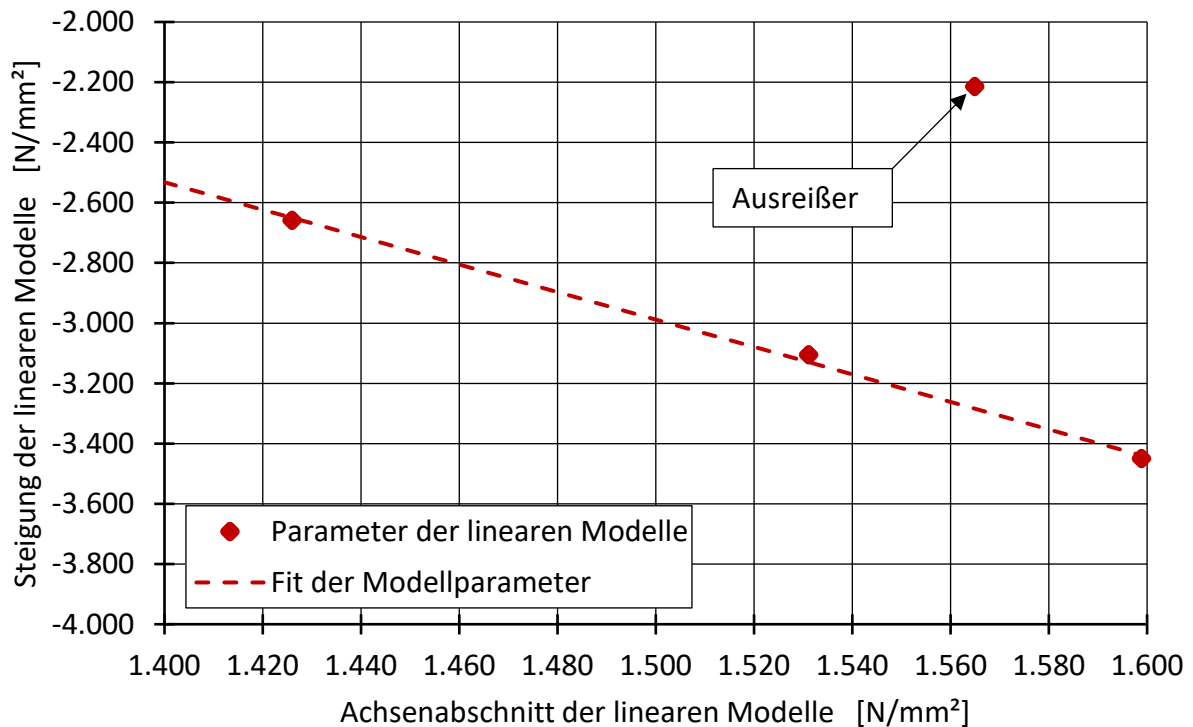
Zusammensetzung des Polymerblends	Messfehler	MAA	$R^2$
0 Gew.-% HP548R – 100 Gew.-% 505P	13,9 N/mm <sup>2</sup>	22,6 N/mm <sup>2</sup>	0,680
33 Gew.-% HP548R – 67 Gew.-% 505P	11,7 N/mm <sup>2</sup>	17,1 N/mm <sup>2</sup>	0,860
67 Gew.-% HP548R – 33 Gew.-% 505P	16,8 N/mm <sup>2</sup>	18,4 N/mm <sup>2</sup>	0,565
100 Gew.-% HP548R – 0 Gew.-% 505P	38,3 N/mm <sup>2</sup>	8,9 N/mm <sup>2</sup>	0,962

Tabelle 5.5: Auswertung der linearen Beschreibungsmodelle für den Einfluss von Engage 8200 auf den E-Modul für die vier untersuchten Blendreihen [SLH24b].

Table 5.5: Evaluation of the linear models for the influence of Engage 8200 on the tensile modulus for the four investigated blend series [SLH24b].

Für die Versuchsreihe mit 100 Gew.-% HP548R liegt hierbei die MAA mit 8,9 N/mm<sup>2</sup> deutlich unterhalb der 38,3 N/mm<sup>2</sup> Standardabweichung der Messungen. Für die Versuchsreihen mit 33 Gew.-% und 67 Gew.-% HP548R liegt die MAA in der Größenordnung des Messfehlers während bei 0 Gew.-% HP548R die MAA mit 22,6 N/mm<sup>2</sup> deutlich höher als der Messfehler von 13,9 N/mm<sup>2</sup> ist. Die teilweise höheren MAA lassen sich hier wie bei den Versuchsreihen mit Peroxid an einzelnen Ausreißerpunkte wie z. B. 1 Gew.-% Engage 8200 bei 0 Gew.-% HP548R ausmachen.

Zur Verallgemeinerung der einzelnen linearen Teilmodelle werden die Geradensteigungen  $m_{Engage\ 9200,E}$  analog zu der Herangehensweise in den vorherigen Kapiteln in Relation zu dem Achsenabschnitt bzw. E-Modul ohne Additivierung  $E_0$  gesetzt. Dieser Zusammenhang ist in Bild 5.15 dargestellt.



**Bild 5.15:** Zusammenhang der Steigung  $m_{Engage\ 9200}$  der linearen Beschreibungsmodelle nach Gleichung 5.11 in Abhängigkeit des Anteils von 505P im Blend mit HP548R [SLH24b].

**Fig. 5.15:** Correlation of the slope  $m_{Engage\ 9200}$  of the linear models according to equation 5.11 as a function of the share of 505P in the binary blend with HP548R [SLH24b].

Die Steigungen der linearen Modelle für die Blendreihen mit 0 Gew.-%, 33 Gew.-% und 100 Gew.-% HP548R lassen sich ebenfalls durch eine lineare Beziehung darstellen. Die Steigung des linearen Modells der Blendreihe mit 67 Gew.-% HP548R weicht deutlich davon ab und wird als Ausreißer betrachtet. Über den linearisierten Zusammenhang in Bild 5.15 ergibt sich aus Gleichung 5.11 die verallgemeinerte Gleichung 5.12 zur Beschreibung des Einflusses von Engage 9200 auf den E-Modul für beliebige Blends.

$$E_{Engage\ 9200} = E_0 + x_{Engage\ 9200,E} \times (I_{Engage\ 9200,E} + E_0 \times s_{Engage\ 9200,E}) \quad (5.12)$$

Hierbei sind  $I_{Engage\ 9200,E}$  der Achsenabschnitt und  $s_{Engage\ 9200,E}$  die Steigung des linearen Zusammenhangs für die Bestimmung der Geradensteigung beliebiger Blendzusammensetzungen.

### 5.2.5 Aggregation zum Gesamtmodell zur Vorhersage des E-Moduls

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die einzelnen Modelle zur Vorhersage des E-Moduls von binären PP-Blends sowie der Einfluss der untersuchten Füllstoffe und Additive entwickelt. Entsprechend dem in Kapitel 5.1 diskutierten Aufbau eines aggregierten Gesamtmodells werden diese nun zusammengeführt. Der E-Modul eines Compounds  $E_{Gesamt}$  mit beliebiger Rezepturzusammensetzung ergibt sich dann nach Gleichung 5.13.

$$E_{Gesamt} = E_{Blend} + \Delta E_{95T} + \Delta E_{50H} + \Delta E_{CR5P} + \Delta E_{Engage\ 9200} \quad (5.13)$$

$E_{Blend}$  berechnet sich nach der in Kapitel 5.2.1 aufgestellten Gleichung 5.6. In den vorherigen Kapiteln zur Beschreibung der Einzeleffekte der verschiedenen Füllstoffe und Additive setzen sich die Beschreibungsgleichungen immer über einen Achsenabschnitt  $E_0$  sowie den spezifischen Additiv- oder Füllstoffeinfluss zusammen. Während  $E_0$  für jede einzelne Versuchsreihe individuell gefittet wurde, ist dies für ein zusammengesetztes Gesamtmodell nicht mehr möglich. Daher wird  $E_0$  mit dem nach Gleichung 5.6 vorhergesagten E-Modul des Blends  $E_{Blend}$  gleichgesetzt. Dadurch ergeben sich die reinen Einzeleinflüsse durch  $\Delta E_{95T}$ ,  $\Delta E_{50H}$ ,  $\Delta E_{CR5P}$  und  $\Delta E_{Engage\ 9200}$  nach den Gleichungen 5.14 bis 5.17.

$$\Delta E_{95T} = x_{95T} \times (I_{95T,E} + E_{Blend} \times S_{95T,E}) \quad (5.14)$$

$$\Delta E_{50H} = x_{50H} \times (I_{50H,E} + E_{Blend} \times S_{50H,E}) \quad (5.15)$$

$$\Delta E_{CR5P} = x_{CR5P} \times (p_{1,E} \times \left( \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times 100 \right)^{p_{2,E}}) \quad (5.16)$$

$$\Delta E_{Engage\ 9200} = x_{Engage\ 9200} \times (I_{Engage\ 9200,E} + E_{Blend} \times S_{Engage\ 9200,E}) \quad (5.17)$$

## 5.3 Analytisches Beschreibungsmodell der Scherviskosität

Im Folgenden wird analog zu Kapitel 5.2 ein analytisches Modell zur Vorhersage der Scherviskosität entwickelt. In Kapitel 5.3.1 wird zunächst auf die Modellierung der Scherviskositätskurve und in Kapitel 5.3.2 auf die Mischungsmodelle für Blends eingegangen. In den Kapiteln 5.2.2 bis 5.2.4 werden die Teilmodelle der einzelnen Füllstoffe und Additive abgeleitet bevor in Kapitel 5.2.5 das Gesamtmodell aggregiert wird. Die Auswertung der Vorhersagegenauigkeit des AM erfolgt in Kapitel 6.1. Die Inhalte dieses Kapitels wurden bereits in dem Journal Polymers veröffentlicht [SLH25a].

### 5.3.1 Modellierung der Scherviskositätskurve

Die Scherviskosität wird im Hochdruck-Kapillarrheometer nur für diskrete vorgegebene Scherraten bestimmt. Für die Interpolation einer beliebigen Scherviskosität für eine gegebene Scherrate ist eine Modellierung der Scherviskosität zwischen den Messungen erforderlich. In vorangegangenen Untersuchungen wurden verschiedene in der Literatur bekannte Mischungsmodelle wie der Potenzansatz oder das Carreau-Modell zur Modellierung der Scherviskosität für verschiedene PP-Typen und Blends untersucht [SLH24a]. Dabei konnten mit dem Carreau-Modell die geringsten Abweichungen zu den Messungen ermittelt werden [SLH24a]. Der Carreau-Ansatz ist dabei nach Gleichung 5.18 definiert.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{A}{(1 + B\dot{\gamma})^c} \quad (5.18)$$

Die Scherviskosität  $\eta$  für eine gegebene Scherrate  $\dot{\gamma}$  ist abhängig von den drei Parametern  $A$  (Nullviskosität),  $B$  (Übergang zwischen Newtonschem und strukturviskosem Materialverhalten) und  $C$  (Steigung der Viskositätskurve im strukturviskosen Bereich). In Bild 5.16 sind die Messungen sowie die mit dem Carreau-Modell nach Gleichung 5.18 modellierten Scherviskositätskurven für die vier Polymerblends abgebildet.

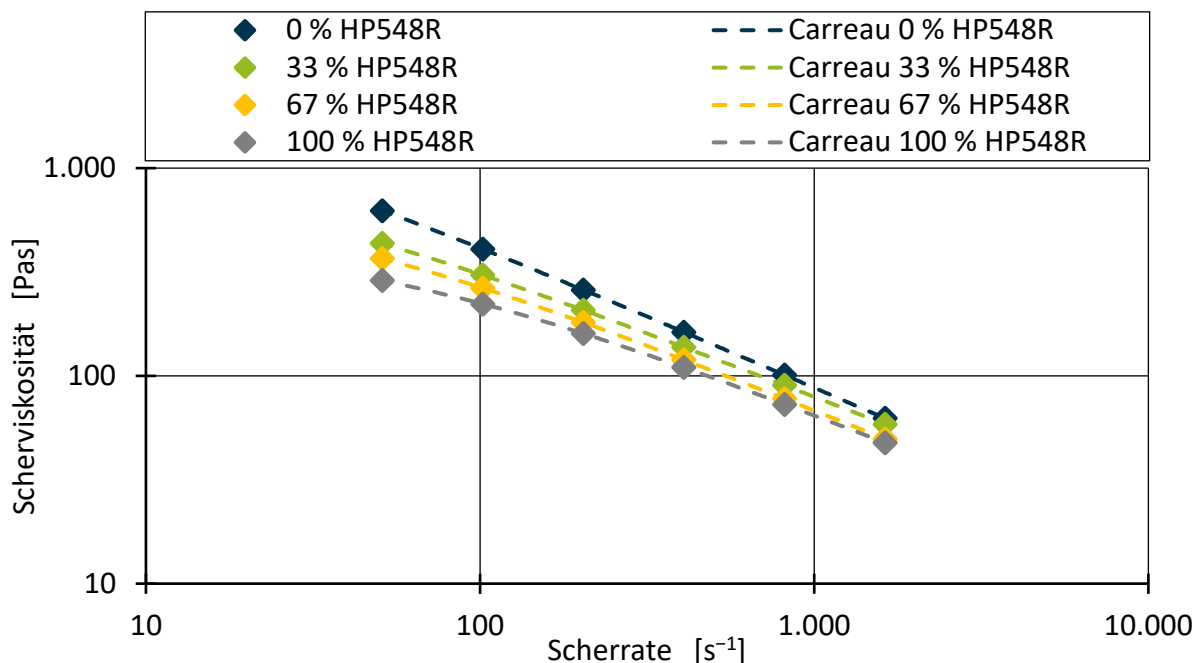


Bild 5.16: Messungen der Scherviskosität und Modellierung der Scherviskositätskurve mit dem Carreau Modell für die vier Ausgangsblends [SLH25a].

Fig. 5.16: Shear viscosity measurements and modeling of the shear viscosity curve with the Carreau model for the four base blends [SLH25a].

Die Parameter des Carreau-Modells wurden für jeden Blend einzeln angepasst. Während für dieses Fitting bei allen Modellen aus Kapitel 5.2 die MQA minimiert wurde, wird in diesem Kapitel die MPA minimiert. Die Scherviskositäten umspannen für alle Messungen der untersuchten Compounds fast zwei Größenordnungen über den gemessenen Scherratenbereich mit einem Maximalwert von 762 Pas bei  $51 \text{ s}^{-1}$  und einem Minimalwert von 30 Pas bei  $1630 \text{ s}^{-1}$ . Bei einem Parameterfitting mit MQA würden die Modelle aufgrund der generell höheren Werte für die niedrigen Scherratenbereiche deutlich besser angepasst als für die hohen Scherratenbereiche. Für eine gleichmäßige Anpassung über den gesamten Scherratenbereich werden daher die prozentualen Abweichungen zwischen Modellvorhersage und Messung (MPA) für alle Modelle in Kapitel 5.3 minimiert.

### 5.3.2 Modellierung des Blendeinflusses

In einer vorherigen Arbeit wurden Mischungsregeln zur Vorhersage der Scherviskosität von PP-Blends untersucht. Dabei wurde das lineare Mischungsmodell nach Gleichung 5.19 als das beste zur Vorhersage der Scherviskosität von Blends identifiziert [SLH24a]. Dieses wird allein durch die Viskositäten der Ausgangspolymere bei gegebenen Scherraten und den Polymeranteilen im Blend bestimmt. Die einzelnen Messungen sowie die Vorhersagen mit dem Modell aus Gleichung 5.19 sind in Bild 5.17 dargestellt.

$$\eta_{Blend} = x_{505P}\eta_{505P} + x_{HP548R}\eta_{HP548R} \quad (5.19)$$

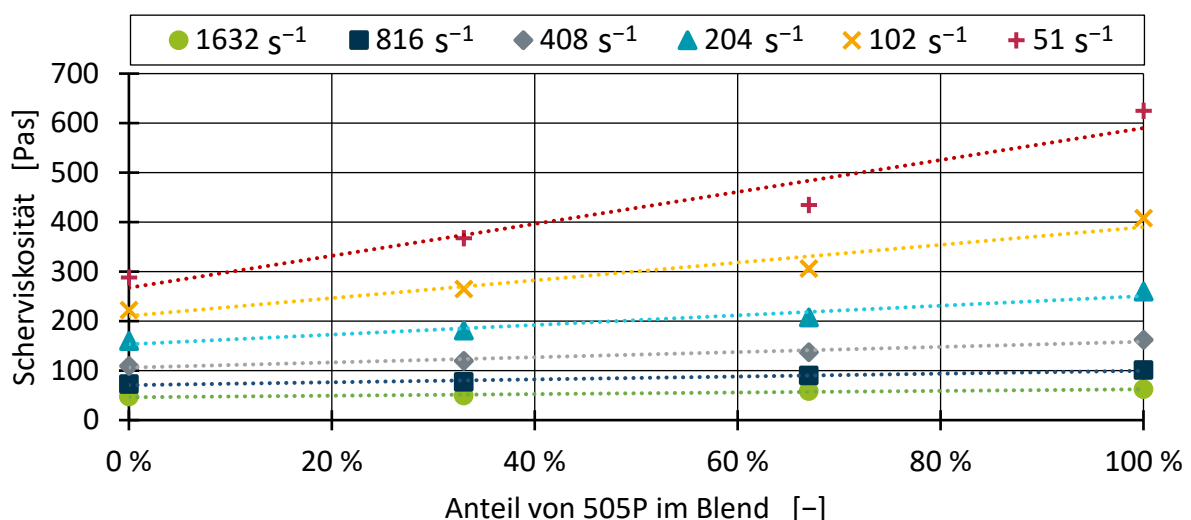


Bild 5.17: Messungen der Scherviskosität für die vier Polymerblends und Vorhersagen der Scherviskosität mittels linearem Mischungsmodell [SLH25a].

Fig. 5.17: Measurements of shear viscosity for the four polymer blends and predictions of shear viscosity using a linear mixture model [SLH25a].

Die  $R^2$ -Werte und MPA der linearen Modelle zur Beschreibung des Blendeinflusses auf die Scherviskosität sind in Tabelle 5.6 dargestellt. Für alle Scherraten und Blendverhältnisse stimmen die Vorhersagen der Modelle mit den Messungen nahezu ideal überein.

Scherrate	1.632 s <sup>-1</sup>	816 s <sup>-1</sup>	408 s <sup>-1</sup>	204 s <sup>-1</sup>	102 s <sup>-1</sup>	51 s <sup>-1</sup>
$R^2$	1,0000	1,0000	0,9994	0,9996	0,9978	0,9989
MPA	0,003 %	0,002 %	0,373 %	0,355 %	0,978 %	0,807 %

*Tabelle 5.6:  $R^2$  und MPA für das lineare Mischungsmodell zur Beschreibung der Scherviskosität in Abhängigkeit von Scherrate und Blendzusammensetzung [SLH25a].*

*Table 5.6.  $R^2$  and MPE for the linear mixture model to describe the shear viscosity as a function of shear rate and blend composition [SLH25a].*

Während die MPA und der  $R^2$ -Wert für hohe Scherraten von 1632 s<sup>-1</sup> und 816 s<sup>-1</sup> das Optimum von 1 bzw. 0 % MPA erreichen, steigt der Modellfehler für die niedrigen Scherraten an und ist bei den kleinsten Scherraten von 51 s<sup>-1</sup> und 102 s<sup>-1</sup> maximal. Dies kann darauf zurückzuführen sein, dass gerade bei den niedrigen Scherraten ein unterschiedliches Viskositätsverhalten auftritt. Anhand der Viskositätsverläufe in Bild 5.16 ist ersichtlich, dass sich das PP 505P über den gesamten gemessenen Scherratenbereich strukturviskos verhält und die Steigung in der doppellogarithmischen Darstellung konstant ist. Bei 100 Gew.-% HP548R hingegen ist ein Abflachen der Scherviskositätskurve bei 51 s<sup>-1</sup> und 102 s<sup>-1</sup> ersichtlich. In diesem Scherratenbereich ist das Materialverhalten nicht mehr rein strukturviskos, sondern eine Mischung aus newtonschem Fließverhalten und Strukturviskosität. Dies kann erklären, warum die Vorhersagen des Mischungsmodells für hohe Scherraten genauer sind als für niedrige Scherraten. Insgesamt weist eine MPA von <1 % auf eine genaue Abbildung der Zusammenhänge hin.

### 5.3.3 Modellierung von Calciumcarbonat

In Bild 5.18 sind die Scherviskositäten des Blends mit 0 Gew.-% HP548R und 100 Gew.-% 505P sowie variierendem Anteil and Omyalite 95 T als Füllstoff abgebildet. Bei maximalem Füllstoffanteil von 30 Gew.-% ist der Einfluss auf die Scherviskosität mit einer Erhöhung der Viskosität um ca. 22 % verhältnismäßig gering. Der Einfluss des Füllstoffs auf die Scherviskosität deckt sich dabei mit den aus der Literatur bekannten Erkenntnissen [KHDK17, MM17].

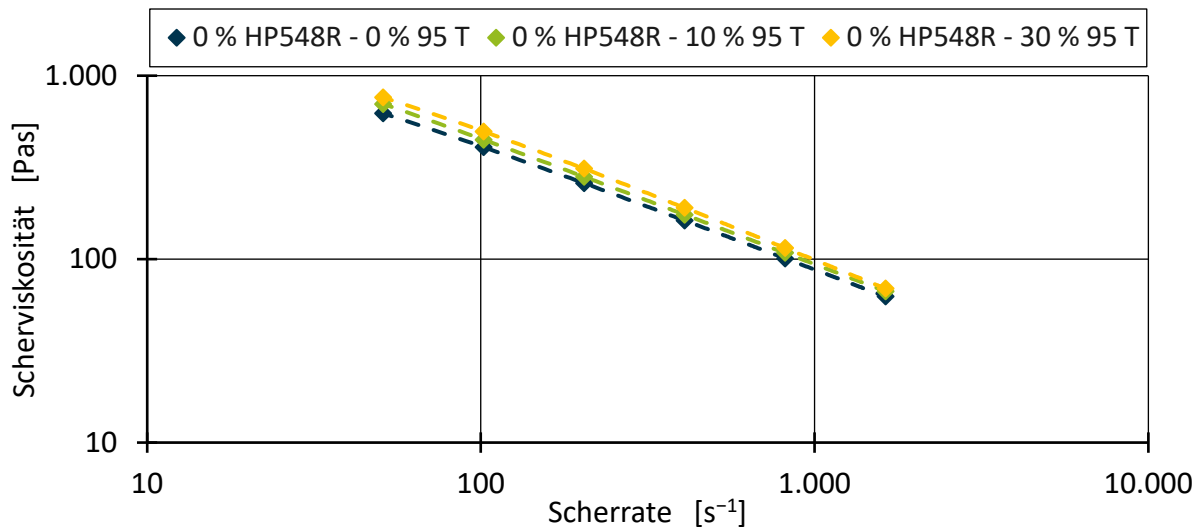


Bild 5.18: Messungen der Scherviskosität am Beispiel des Blends mit 0 % HP548R und Omyalite 95 T als Füllstoff [SLH25a].

Fig. 5.18: Measurements of the shear viscosity using the example of the blend with 0 % HP548R and Omyalite 95 T as filler [SLH25a].

Zur Quantifizierung des Füllstoffeinflusses in Abhängigkeit der Blendzusammensetzung und Scherrate werden die Messungen der verschiedenen Scherraten zunächst isoliert betrachtet. In Bild 5.19 ist dieser Zusammenhang für die beispielhaft gewählte Scherrate von 102 s<sup>-1</sup> dargestellt.

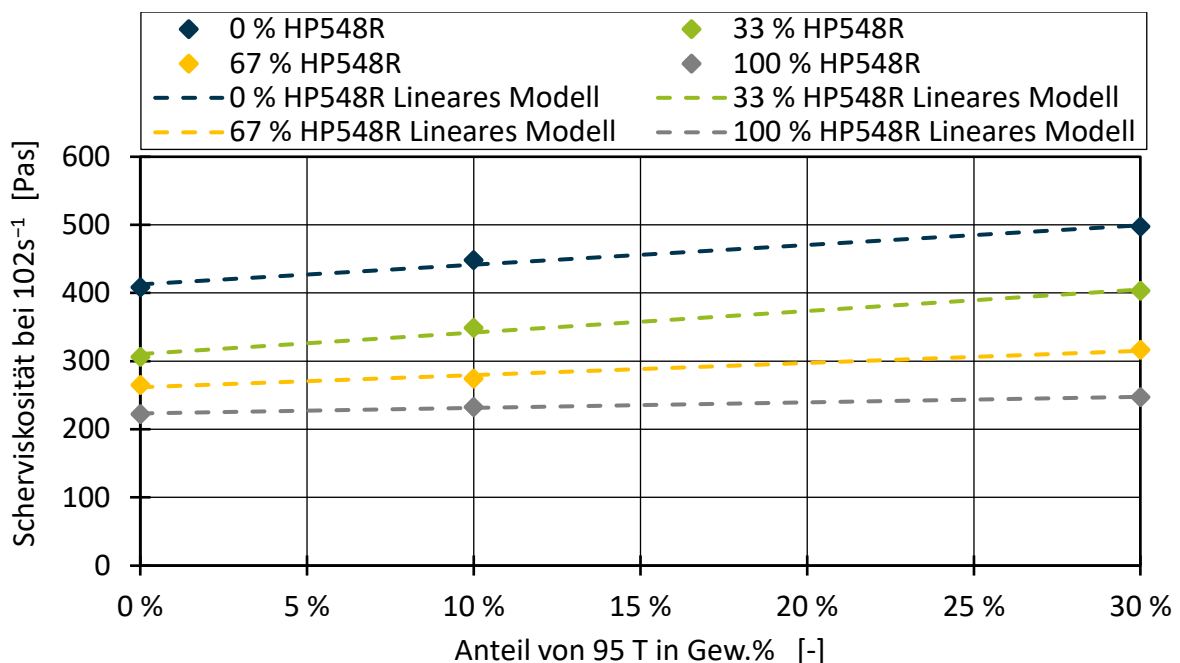


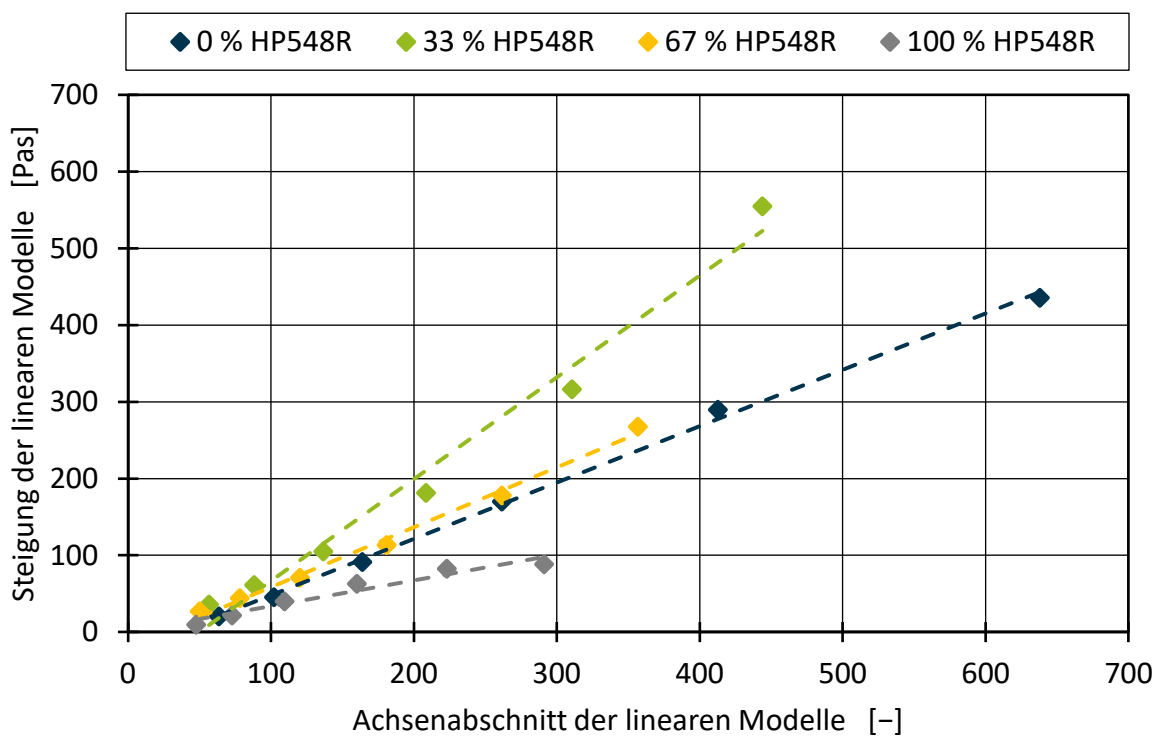
Bild 5.19: Scherviskositäten in Abhängigkeit der Blendzusammensetzung und des Anteils von Omyalite 95 T für die Scherrate von 102 s<sup>-1</sup> [SLH25a].

Fig. 5.19: Shear viscosities as a function of the blend composition and the proportion of Omyalite 95 T for the shear rate of 102 s<sup>-1</sup> [SLH25a].

Hierbei ist ersichtlich, dass der Einfluss des Füllstoffgehalts für die identische Scherrate über ein lineares Modell nach Gleichung 5.20 beschreibbar ist.

$$\eta_{95T} = \eta_0 + x_{95T} \times m_{95T,\eta} \quad (5.20)$$

Dieser lineare Zusammenhang kann nicht nur bei der beispielhaft gezeigten Scherrate von  $102 \text{ s}^{-1}$ , sondern auch bei den anderen fünf Scherraten festgestellt werden. Analog zu dem Vorgehen in 5.2.2 zur Verallgemeinerung der vier einzelnen linearen Modelle wird untersucht, ob sich die individuellen Steigungen  $m_{95T,\eta}$  für die verschiedenen Scherraten in Abhängigkeit der Scherviskosität  $\eta_0$  des Blends ohne Füllstoff oder Additivanteil darstellen lässt. Dieser Zusammenhang ist Bild 5.20 dargestellt. Erneut lässt sich für die verschiedenen Blendzusammensetzungen ein linearer Zusammenhang feststellen.



*Bild 5.20: Zusammenhang zwischen der Steigung  $m_{95T,\eta}$  der linearen Beschreibungsmodelle nach Gleichung 5.20 in Abhängigkeit von deren Achsenabschnitt  $\eta_0$  für alle Blends und Scherraten [SLH25a].*

*Fig. 5.20: Relationship between the slope  $m_{95T,\eta}$  of the linear description models according to equation 5.20 as a function of their intercept  $\eta_0$  for all blends and shear rates [SLH25a].*

Während die Steigung für 0 Gew.-% HP548R und 67 Gew.-% HP548R nahezu identisch ist, unterscheiden sich die Geradensteigungen für 100 Gew.-% HP548R und 33 Gew.-% HP548R. Hier ist kein eindeutiger Zusammenhang zwischen den unterschiedlichen Geradensteigungen

und der Polymerzusammensetzung erkennbar. Da darüber hinaus der Einfluss des Calciumcarbonats auf die Viskosität selbst bei 30 Gew.-% Füllstoffanteil wie zuvor dargestellt nur ca. 22 % beträgt, wird ein pragmatischer Modellierungsansatz gewählt. Dabei wird unabhängig von der Blendzusammensetzung für alle Punkte in Bild 5.20 eine einzelne Geradengleichung für die Beschreibung des Zusammenhangs aus Achsenabschnitt  $\eta_0$  und der Geradensteigung  $m_{95T,\eta}$  ermittelt.

Über die Annahme einer einzelnen Geradengleichung und mit der Gleichsetzung der einzelnen Achsenabschnitte  $\eta_0$  mit der in Gleichung 5.18 aufgestellten Beschreibung der Viskosität für jeden der vier Polymerblends  $\eta_{Blend}(\dot{\gamma})$  ergibt sich aus Gleichung 5.20 das verallgemeinerte Beschreibungsmodell nach Gleichung 5.21.

$$\eta_{95T}(\dot{\gamma}, x_{95T}) = \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) + x_{95T} \times (I_{95T,\eta} + \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) \times s_{95T,\eta}) \quad (5.21)$$

Die Carreau-Parameter  $A$ ,  $B$  und  $C$  der vier verschiedenen Polymerblends sowie der Achsenabschnitt  $I_{95T,\eta}$  und die Geradensteigung  $s_{95T,\eta}$  werden an die Scherviskositätskurven der füllstoffhaltigen Versuchspunkte angepasst.

Die Vorgehensweise für den zweiten Füllstofftyp Omyalite 50 H ist identisch. Gleichung 5.21 wird lediglich durch die Parameter  $I_{50H,\eta}$  und  $s_{50H,\eta}$  ersetzt. Die sich für diese beiden gefitteten Teilmodelle ergebenden Werte für  $R^2$  und MPA können Tabelle 5.7 entnommen werden. Auch hier ist, wie zuvor in Kapitel 5.3.2 für die Polymerblends, der Fehler bei niedrigen Scherraten maximal (> 5 % bei  $51 \text{ s}^{-1}$ ). Dies kann ebenfalls drauf zurückgeführt werden, dass der Füllstoffeinfluss für PP im Übergangsbereich der Viskositätskurve und dem rein strukturviskosen Materialverhalten leicht divergiert.

Füllstoff	Scherrate	$1.632 \text{ s}^{-1}$	$816 \text{ s}^{-1}$	$408 \text{ s}^{-1}$	$204 \text{ s}^{-1}$	$102 \text{ s}^{-1}$	$51 \text{ s}^{-1}$
95 T	$R^2$	0,9147	0,9638	0,9699	0,9656	0,9612	0,9553
	MPA	2,464 %	2,091 %	2,574 %	3,124 %	4,059 %	5,620 %
50 H	$R^2$	0,9578	0,9707	0,9694	0,9679	0,9658	0,9597
	MPA	1,889 %	1,559 %	2,005 %	2,620 %	3,383 %	5,162 %

Tabelle 5.7:  $R^2$  und MPA für das Mischungsmodell nach Gleichung 5.21 zur Beschreibung der Scherviskosität in Abhängigkeit von Scherrate, Blendzusammensetzung und Füllstoffanteil [SLH25a].

Table 5.7.  $R^2$  and MPE for the linear mixture model according to function 5.21 to describe the shear viscosity as a function of shear rate, blend composition and filler content [SLH25a].

### 5.3.4 Modellierung des Peroxideinflusses

In Bild 5.21 sind die Messungen der Scherviskosität am Beispiel von 505P und vier verschiedenen Konzentrationen des Peroxidmasterbatches Polyvel CR5P dargestellt.

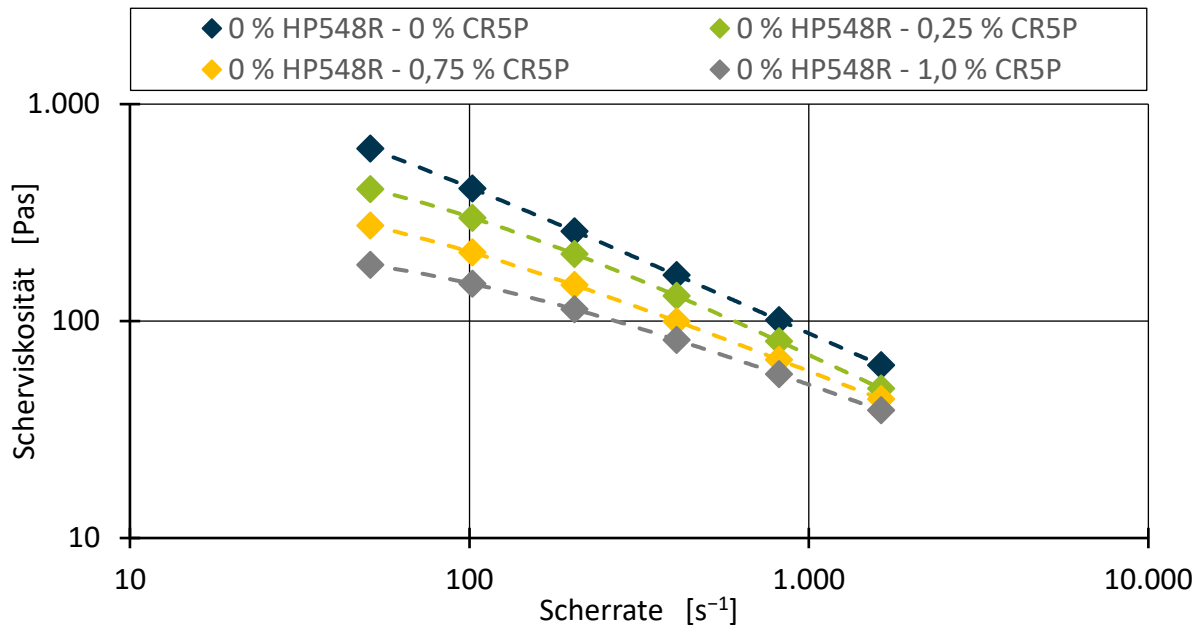


Bild 5.21: Messungen der Scherviskosität am Beispiel des Blends mit 0 % HP548R und Polyvel CR5P als Additiv [SLH25a].

Fig. 5.21: Measurements of shear viscosity using the example of the blend with 0 % HP548R and Polyvel CR5P as additive [SLH25a].

Es ist zu erkennen, dass bereits bei geringen Zugabemengen von CR5P (0,25 Gew.-%) die Scherviskosität über den gesamten Scherratenbereich deutlich abnimmt. Dies ist, wie in Kapitel 2.2.3 beschrieben, auf den kontrollierten Abbau und die damit verbundene Molekulargewichtsabsenkung während der Compoundierung auf der Doppelschnecke zurückzuführen [SGK+20]. Für das konkrete Beispiel in Bild 5.21 führt 0,25 Gew.-% CR5P im Mittel zu einer Abnahme der Scherviskosität um 24,1 % gegenüber dem Versuchspunkt ohne Additiv und Füllstoff. Eine Zugabemenge von 0,75 Gew.-% bzw. 1 Gew.-% CR5P führt zu einer Reduktion um 41,9 % bzw. 53,7 %.

Analog zur Betrachtung des Einflusses von Calciumcarbonat in Kapitel 5.3.3 werden die Scherviskositätskurven zunächst für die verschiedenen Scherraten isoliert betrachtet. Für die beiden exemplarischen Scherraten von  $102 s^{-1}$  (zweitniedrigste Scherrate) und  $816 s^{-1}$  (zweithöchste Scherrate) ist dies in Bild 5.22 dargestellt.

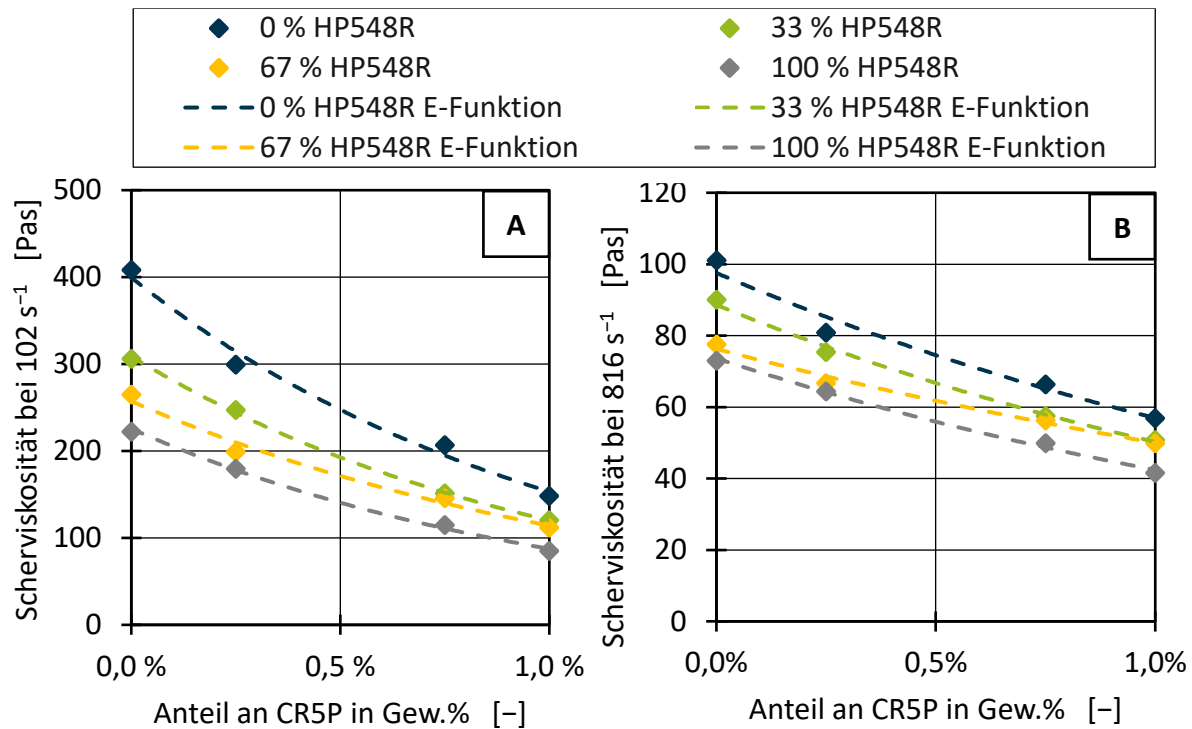


Bild 5.22: Scherviskositäten in Abhängigkeit der Blendzusammensetzung und des Anteils von Polyvel CR5P für die Scherraten von 102 s<sup>-1</sup> (A) und 816 s<sup>-1</sup> (B) [SLH25a].

Fig. 5.22: Shear viscosities as a function of the blend composition and the proportion of Polyvel CR5P for the shear rate of 102 s<sup>-1</sup> (A) and 816 s<sup>-1</sup> (B) [SLH25a]

Bei beiden Schergeschwindigkeiten zeigt sich für alle Mischungen der gleiche degressive Verlauf der Scherviskosität mit zunehmender CR5P-Konzentration. Während der Scherviskositätsabbau bei einer Scherrate von 102 s<sup>-1</sup> mit einer Zugabemenge von 0,25 Gew.-% CR5P maximal ist, ist der Effekt der Erhöhung von 0,75 Gew.-% auf 1,00 Gew.-% CR5P geringer. Insbesondere bei den niedrigen Scherraten von 51 s<sup>-1</sup>, 102 s<sup>-1</sup> und 204 s<sup>-1</sup> ist der beobachtete Effekt des Peroxids bei niedrigen Zugabemengen stärker ausgeprägter als bei hohen Zugabemengen. Ein geeignetes Modell zur Approximation dieses Verhaltens ist die natürliche Exponentialfunktion, die in Gleichung 5.22 dargestellt ist.

$$\eta_{CR5P}(x_{CR5P}) = \eta_0 e^{p_{CR5P} \times x_{CR5P}} \quad (5.22)$$

Diese wird nur durch zwei freie Parameter beschrieben, wobei  $\eta_0$  den Achsenabschnitt für das reine Blend darstellt und  $p_{CR5P}$  den Verlauf der Exponentialfunktion beschreibt. Das Exponentialmodell ist in Bild 5.22 für die beiden Scherraten von 102 s<sup>-1</sup> und 816 s<sup>-1</sup> abgebildet und erfasst den Verlauf über der CR5P-Konzentration qualitativ und quantitativ gut. Der über die vier Blendreihen gemittelte R<sup>2</sup>-Wert beträgt bei 102 s<sup>-1</sup> bei 0,992 und bei 816 s<sup>-1</sup> 0,987. Zur weiteren Verallgemeinerung des Exponentialmodells soll ein einfaches Beschreibungsmodell zur Vorhersage des Exponenten  $p_{CR5P}$  der Exponentialfunktion identifiziert werden. Eine

Übersicht über die gefitteten Exponenten  $p_{CR5P}$  für alle Blends und Scherraten ist in Tabelle 5.8 aufgeführt.

Scherrate	1632 s <sup>-1</sup>	816 s <sup>-1</sup>	408 s <sup>-1</sup>	204 s <sup>-1</sup>	102 s <sup>-1</sup>	51 s <sup>-1</sup>
0 Gew.-% HP548R	-42,9	-53,2	-65,8	-79,6	-95,7	-114,2
33 Gew.-% HP548R	-50,3	-56,7	-65,6	-78,0	-94,4	-113,3
67 Gew.-% HP548R	-32,5	-42,2	-53,2	-66,2	-81,2	-96,9
100 Gew.-% HP548R	-46,9	-55,2	-65,9	-79,3	-94,7	-109,7

*Tabelle 5.8: Exponenten  $p_{CR5P}$  der Exponentialfunktion nach Gleichung 5.22 für alle vier Blendreihen und alle sechs gemessenen Scherraten.*

*Table 5.8: Exponents  $p_{CR5P}$  of the exponential function according to equation 5.22 for all four blend series and all six measured shear rates.*

Es fällt auf, dass die Exponenten der Versuchsreihen mit 0 Gew.-% HP548R, 33 Gew.-% HP548R sowie 100 Gew.-% HP548R für alle Schergeschwindigkeiten sehr ähnlich sind. Bei diesen Reihen beträgt die Standardabweichung des Exponentenwertes maximal 3,7 für 1632 s<sup>-1</sup>. Die Versuchsreihe mit 67 Gew.-% HP548R weicht hiervon deutlich ab. Dies kann auf einzelne Ausreißer in den Versuchen zurückzuführen sein, da das Parameterfitting für diese Reihe nur auf vier gemessenen Scherviskositätskurven basiert. Anhand der Kurven in Bild 5.22 ist beispielsweise zu erkennen, dass die Scherviskosität bei 67 Gew.-% HP548R und 1 Gew.-% CR5P zu hoch und nahezu identisch mit der Viskosität von 33 Gew.-% HP548R und 1 Gew.-% CR5P ist. In diesem Fall kann z. B. bei der Compoundierung zu wenig Additiv zugegeben worden sein oder der Peroxidgehalt im Additiv kann wie in Kapitel 4.1 beschrieben von dem Sollwert von 5 Gew.-% abweichen. Aufgrund des geringen Einflusses von CR5P auf den E-Modul in Kapitel 5.2.3 fiel dieser Messpunkt zuvor nicht auf. Aus diesem Grund wird die Versuchsreihe mit 67 Gew.-% HP548R für die Modellierung der Abhängigkeiten des Exponenten  $p_{CR5P}$  nicht mit einbezogen. Da die Werte des Exponenten der anderen drei Blendreihen bei gleicher Scherrate nahezu identisch sind, kann auch keine Abhängigkeit des Exponenten von dem unterschiedlichen Achsenabschnitt  $\eta_0$  bzw. dem Verhältnis von HP548R und 505P zueinander aufgestellt werden. Daher folgt eine Betrachtung einer möglichen Abhängigkeit des Exponenten von der Scherrate, die in Bild 5.23 dargestellt ist.

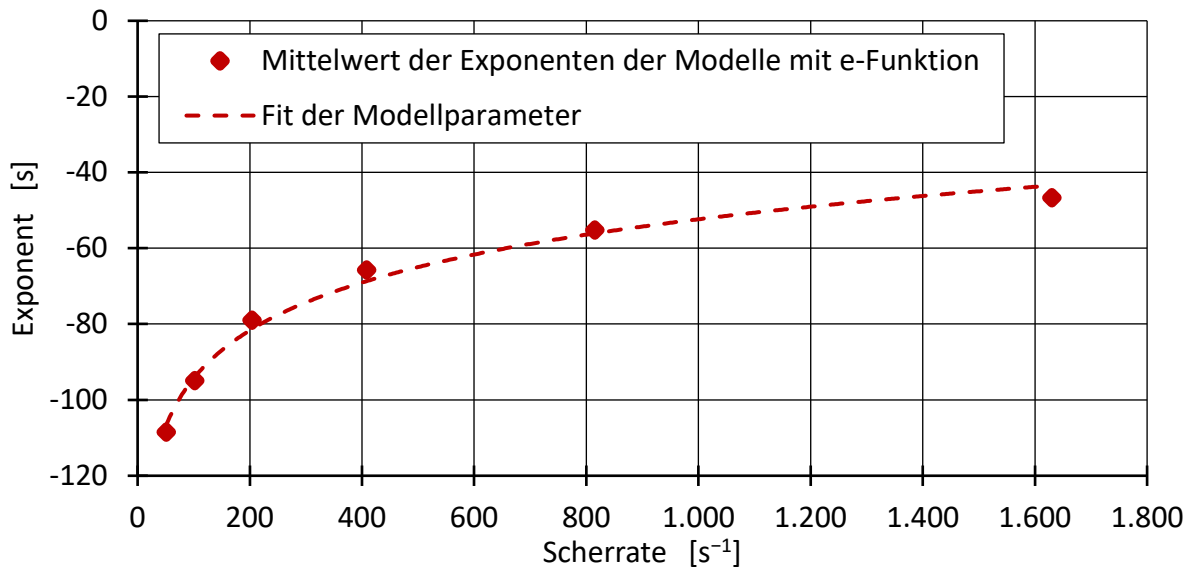


Bild 5.23: Zusammenhang zwischen den Mittelwerten der Exponenten  $p_{CR5P}$  der Exponentialfunktion in Gleichung 5.22 und der Scherrate  $\dot{\gamma}$  [SLH25a].

Fig. 5.23: Relationship between the mean values of the exponents  $p_{CR5P}$  of the exponential function in equation 5.22 and the shear rate  $\dot{\gamma}$  [SLH25a].

Hierbei lässt sich ein klarer Zusammenhang identifizieren, der über ein logarithmisches Modell nach Gleichung 5.23 beschrieben werden kann.

$$p_{CR5P}(\dot{\gamma}) = p_{1,\eta} \times \ln(\dot{\gamma}) + p_{2,\eta} \quad (5.23)$$

Über diesen Zusammenhang und der Annahme, dass  $\eta_0$  für die einzelnen Scherraten mit  $\eta_{Blend}(\dot{\gamma})$  supplementiert werden kann, wird Gleichung 5.22 zu Gleichung 5.24 verallgemeinert.

$$\eta_{CR5P}(x_{CR5P}) = \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) \times e^{x_{CR5P} \times (p_{1,\eta} \times \ln(\dot{\gamma}) + p_{2,\eta})} \quad (5.24)$$

Analog zu der Modellierung des Füllstoffeinflusses in Kapitel 5.3.3 werden die Parameter von Gleichung 5.24 sowie die Carreau-Parameter der vier verschiedenen Blends gefittet und ausgewertet. Die zuvor für die Zusammenhangsbeschreibung nicht betrachteten Versuchspunkte bei 67 Gew.-% HP548R werden hierfür wieder inkludiert. Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.9 aufgeführt. Insgesamt sind die Vorhersagegenauigkeiten dieses Modells verglichen mit dem einfachen linearen Zusammenhang zwischen Füllstoffanteil und Viskosität aus Kapitel 5.3.3 höher. Dennoch ist eine Vorhersagegenauigkeit von im Mittel 5,26 % über alle Blendreihen und Scherraten in Relation zu der geringen Anzahl an Parametern recht niedrig. Analog zu den Mischungsmodellen für den Füllstoffeinfluss sowie für den Blendeinfluss ist die MPA bei den niedrigen Scherraten von  $102 \text{ s}^{-1}$  und  $51 \text{ s}^{-1}$  maximal. Auch

hier kann eine mögliche Ursache der unpräziseren Vorhersage für geringe Scherrate das unterschiedliche Viskositätsverhalten der beiden Ausgangspolymere sein.

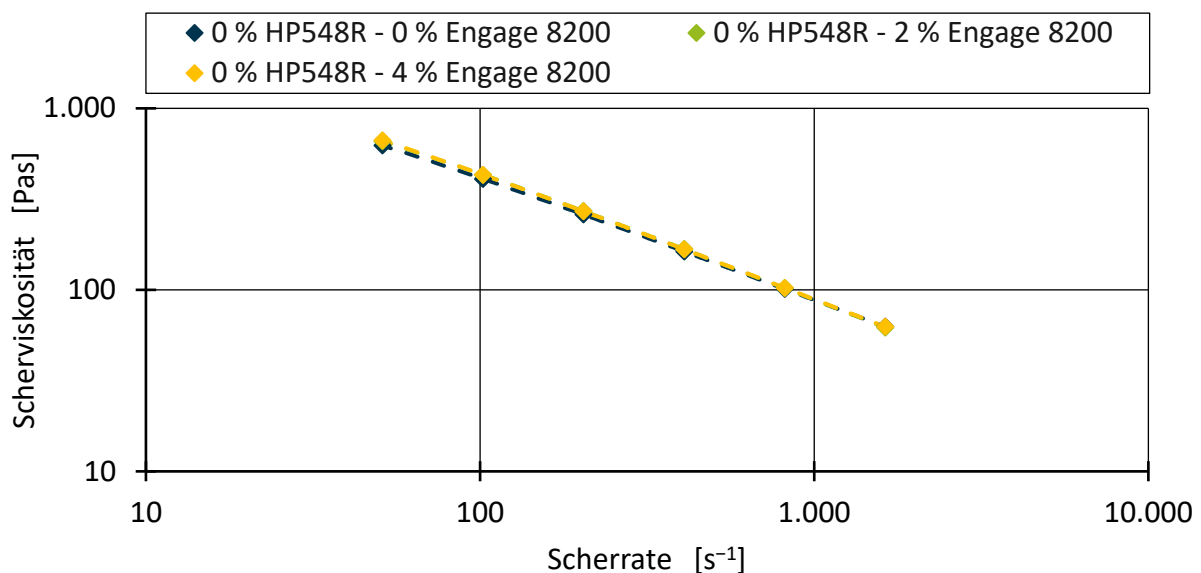
Scherrate	1632 s <sup>-1</sup>	816 s <sup>-1</sup>	408 s <sup>-1</sup>	204 s <sup>-1</sup>	102 s <sup>-1</sup>	51 s <sup>-1</sup>
R <sup>2</sup>	0,9096	0,9711	0,9798	0,9793	0,9706	0,9355
MPA	4,564 %	3,244 %	3,752 %	4,450 %	6,040 %	9,538 %

*Tabelle 5.9: R<sup>2</sup> und MPA für das Mischungsmodell nach Gleichung 5.24 zur Beschreibung der Scherviskosität in Abhängigkeit von Scherrate, Blendzusammensetzung und des Anteils von CR5P [SLH25a].*

*Table 5.9. R<sup>2</sup> and MPE for the linear mixture model according to function 5.24 to describe the shear viscosity as a function of shear rate, blend composition and share of CR5P [SLH25a].*

### 5.3.5 Modellierung des Kerbschlagmodifikators

In Bild 5.24 ist der Einfluss von 2 Gew.-% und 4 Gew.-% Engage 8200 auf die Scherviskosität dargestellt. Die Scherviskositätskurven aller Versuchspunkte sind nahezu identisch und der geringe Unterschied in den Zahlenwerten lässt keine Differenzierung zwischen einem möglichen Effekt des Additivs oder der Messungenauigkeit des HKR zu. Darüber hinaus können auch leicht unterschiedliche Prozessbedingungen bei der Compoundherstellung für die geringfügig unterschiedlichen Messwerte ursächlich sein. Aus diesen Gründen wird für Engage 8200 kein Teilmodell entwickelt und der Einfluss auf die Scherviskosität vernachlässigt.



*Bild 5.24: Messungen der Scherviskosität am Beispiel des Blends mit 0 % HP548R und Engage 8200 als Additiv [SLH25a].*

*Fig. 5.24: Measurements of shear viscosity using the example of the blend with 0 % HP548R and Engage 8200 as additive [SLH25a]*

### 5.3.6 Aggregation zum Gesamtmodell zur Vorhersage der Scherviskosität

Nachdem Teilmodelle für die Beschreibung der Scherviskosität in Abhängigkeit der Blendzusammensetzung, Füllstoff- und Additivanteile sowie Scherraten in den vorherigen Kapiteln entwickelt wurden, werden diese nun zusammengefügt. Analog zu dem vorgestellten Schema in Kapitel 5.1 und dem Modell für das E-Modul in Kapitel 5.2.5 ergibt sich die Scherviskosität eines Compounds  $\eta_{Gesamt}(\dot{\gamma})$  mit beliebiger Rezepturzusammensetzung nach Gleichung 5.25.

$$\eta_{Gesamt}(\dot{\gamma}) = \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) + \Delta\eta_{CR5P}(\dot{\gamma}) + \Delta\eta_{95T}(\dot{\gamma}) + \Delta\eta_{50H}(\dot{\gamma}) \quad (5.25)$$

Zur Berechnung der Blendviskosität  $\eta_{Blend}(\dot{\gamma})$  für beliebige Scherraten wird das in Gleichung 5.19 aufgestellte lineare Mischungsmodelle mit den Carreau-Parametern der beiden Ausgangsmaterialien aus Kapitel 5.3.1 zu Gleichung 5.26 erweitert.

$$\begin{aligned} \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) = & \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times \frac{A_{505P}}{(1 + B_{505P}\dot{\gamma})^{C_{505P}}} \\ & + \frac{x_{HP548R}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times \frac{A_{HP548R}}{(1 + B_{HP548R}\dot{\gamma})^{C_{HP548R}}} \end{aligned} \quad (5.26)$$

Aus den zuvor entwickelten Beschreibungsmodellen der Scherviskosität für die beiden Füllstoffe und Polyvel CR5P ergeben sich die Einflüsse  $\Delta\eta_{95T}(\dot{\gamma})$ ,  $\Delta\eta_{50H}(\dot{\gamma})$  und  $\Delta\eta_{CR5P}(\dot{\gamma})$  aus Gleichungen 5.20 und 5.23 zu den Gleichungen 5.27 bis 5.29.

$$\Delta\eta_{95T}(\dot{\gamma}) = x_{95T} \times (I_{95T,\eta} + \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) \times s_{95T,\eta}) \quad (5.27)$$

$$\Delta\eta_{50H}(\dot{\gamma}) = x_{50H} \times (I_{50H,\eta} + \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) \times s_{50H,\eta}) \quad (5.28)$$

$$\Delta\eta_{CR5P}(x_{CR5P}) = \eta_{Blend}(\dot{\gamma}) \times (e^{x_{CR5P} \times (p_{1,\eta} \times \ln(\dot{\gamma}) + p_{2,\eta})} - 1) \quad (5.29)$$

## 5.4 Analytisches Beschreibungsmodell des MFR

Die Entwicklung eines Gesamtmodells zur Vorhersage des MFR in Abhängigkeit der Rezeptur erfolgt nach dem gleichen Schema wie zuvor in den Kapiteln 5.2 und 5.3. Auch hier wurden ebenfalls zunächst Teilmodelle für das reine Polymerblend abgeleitet und anschließend weitere Teilmodelle für die Additive und Füllstoffe entwickelt. Die Diagramme der einzelnen Verläufe können dem Anhang in Kapitel 13.3 entnommen werden. Das Gesamtmodell für den MFR setzt sich nach Gleichung 5.30 zusammen.

$$MFR_{Gesamt} = MFR_{Blend} + \Delta MFR_{95T} + \Delta MFR_{50H} + \Delta MFR_{CR5P} \quad (5.30)$$

Zur Modellierung von  $MFR_{Blend}$  wurde in vorherigen Arbeiten der Arrhenius-Ansatz nach Gleichung 5.31 als gut geeignet identifiziert [SLH24a].

$$MFR_{Blend} = e^{\frac{x_{HP548R}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times \ln(MFR_{HP548R}) + \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times \ln(MFR_{505P})} \quad (5.31)$$

Der Einfluss der beiden Füllstofftypen  $\Delta MFR_{95T}$  und  $\Delta MFR_{50H}$  kann wie auch bei der Scherviskosität und dem E-Modul über lineare Modelle nach Gleichung 5.32 und 5.33 modelliert werden.

$$\Delta MFR_{95T} = x_{95T} \times (I_{95T,MFR} + MFR_{Blend} \times S_{95T,MFR}) \quad (5.32)$$

$$\Delta MFR_{50H} = x_{50H} \times (I_{50H,MFR} + MFR_{Blend} \times S_{50H,MFR}) \quad (5.33)$$

Der Zusammenhang zwischen MFR und Polyvel CR5P folgt wie bei der Scherviskosität für die einzelnen Scherraten ebenfalls einem Exponentialverlauf nach Gleichung 5.22. Die Abhängigkeit des Exponenten der Exponentialfunktion folgt auch hier einem logarithmischen Verlauf, sodass Gleichung 5.29 zu Gleichung 5.34 abgewandelt wird.

$$\Delta MFR_{CR5P} = MFR_{Blend} \times (e^{x_{CR5P} \times (p_{1,MFR} \times \ln(MFR_{Blend}) + p_{2,MFR})} - 1) \quad (5.34)$$

Der Einfluss von Engage 8200 ist wie auch bei der Scherviskosität selbst bei der Maximalmenge von 4 Gew.-% nicht von den Standardabweichungen der MFR-Messung zu unterscheiden und wird gegenüber den deutlich ausgeprägteren Einflüssen der Füllstoffe und Polyvel CR5P ebenfalls vernachlässigt.

## 5.5 Analytisches Beschreibungsmodell der Kerbschlagzähigkeit

Das Beschreibungsmodell für die Kerbschlagzähigkeit wurde zuvor im Journal Polymers publiziert [SLH25c]. Die Entwicklung dieses Modells in Abhängigkeit der Rezeptur erfolgt nach dem gleichen Schema wie zuvor in den Kapiteln 5.2, 5.3 und 5.4. Die Diagramme der einzelnen Verläufe können dem Anhang in Kapitel 13.4 entnommen werden. Für die Schlagzähigkeitsprüfung streuen die Mittelwerte der Kerbschlagzähigkeit der zehn untersuchten Probekörper verglichen mit dem E-Modul und dem MFR deutlich stärker. Für die 64 zur Modellierung genutzten Versuchspunkte liegt die Standardabweichung im Mittel bei 12,1 % des Messwertes mit einem Maximum von 21,6 %. Daher können für die Bildung der Teilmodelle zur Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit die allgemeinen Wirkungsrichtungen der Füll- und Additive identifiziert werden, aber eine eindeutige Ableitung des idealen Modelles

(z. B. linear, exponentiell etc.) ist nicht möglich. Folglich wird für alle Teilmodelle der einfachste Zusammenhang, d. h. ein linearer Zusammenhang und eine Abhängigkeit vom Polymerblendverhältnis, angenommen, um die Anzahl der Modellparameter zu minimieren. Auf die resultierende Ungenauigkeit dieses Modells und den Vergleich zu den Modellen für den E-Modul, die Scherviskosität und dem MFR wird in Kapitel 6.1 eingegangen.

Das Gesamtmodell für die Beschreibung der Kerbschlagzähigkeit  $W_{Gesamt}$  setzt sich nach Gleichung 5.35 mit den linearen Teilmodellen 5.36 bis 5.40 zusammen.

$$W_{Gesamt} = W_{Blend} + \Delta W_{95 T} + \Delta W_{50 H} + \Delta W_{CR5P} + \Delta W_{Engage 8200} \quad (5.35)$$

$$W_{Blend} = \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times W_{505P} + \frac{x_{HP548R}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times W_{HP548R} \quad (5.36)$$

$$\Delta W_{95 T} = x_{95 T} \times \left( I_{95 T, W} + \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times S_{95 T, W} \right) \quad (5.37)$$

$$\Delta W_{50 H} = x_{50 H} \times \left( I_{50 H, W} + \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times S_{50 H, W} \right) \quad (5.38)$$

$$\Delta W_{CR5P} = x_{CR5P} \times \left( I_{CR5P, W} + \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times S_{CR5P, W} \right) \quad (5.39)$$

$$\begin{aligned} \Delta W_{Engage 8200} &= x_{Engage 8200} \\ &\times \left( I_{Engage 8200, W} + \frac{x_{505P}}{x_{505P} + x_{HP548R}} \times S_{Engage 8200, W} \right) \end{aligned} \quad (5.40)$$

## 5.6 Zwischenfazit und Beantwortung der ersten Forschungsfrage

In Kapitel 5.1 wurde der Aufbau analytischer Modelle zur Beschreibung beliebiger Compouneigenschaften diskutiert und in den folgenden Kapiteln 5.2 bis 5.5 für den E-Modul, die Scherviskosität, den MFR und die Kerbschlagzähigkeit der auf der Laboranlage hergestellten Compounds angewendet. In Tabelle 5.10 sind die für die einzelnen Rezepturbestandteile und Compouneigenschaften aufgestellten Zusammenhänge dargestellt. Für die beiden Calciumcarbonate Omyalite 50 H und 95 T sowie die beiden Additive Polyvel CR5P und Engage 9200 bezieht sich das erste Modell auf den Einfluss der Rezepturkomponente auf die zu prognostizierende Zielgröße des Compounds und das zweite Modell auf die Berücksichtigung der Blendzusammensetzung innerhalb des ersten Modells.

Rezepturbestandteil	Zielgröße für die Vorhersage der Teilmodelle			
	E-Modul	Scherviskosität	MFR	Kerbschlagzähigkeit
Polymerblend	Linear	Linear	Arrhenius	Linear
OMYALITE 50 H und 95 T	Linear / Linear (E-Modul Blend)	Linear / Linear (Scherviskosität Blend)	Linear / Linear (MFR Blend)	Linear / Linear (Anteil 505P)
Polyvel CR5P	Linear / Polynomial (Anteil 505P)	Exponential / Logarithmisch (Scherrate)	Exponential / Logarithmisch (MFR Blend)	Linear / Linear (Anteil 505P)
Engage 9200	Linear / Linear (E-Modul Blend)	-	-	Linear / Linear (Anteil 505P)

*Tabelle 5.10: Zusammenhänge der Teilmodelle für die verschiedenen Rezepturbestandteile und Compouneigenschaften.*

*Table 5.10. Relationships between the submodels for the various recipe components and compound properties.*

Es zeigt sich, dass mit Ausnahme der grundlegenden Wirkung von CR5P auf die Scherviskosität und den MFR der Einfluss aller Füllstoffe und Additive auf die vier betrachteten Compouneigenschaften mit einem linearen Modell abgebildet werden kann. Auch die Beschreibung des Einflusses der Blendzusammensetzung im zweiten Teilmodell zur Verallgemeinerung des ersten Modells kann für die meisten Zielgrößen und Rezepturbestandteile linear abgebildet werden. Somit kann die in Kapitel 3 gestellte Forschungsfrage nach konkreten Mischungsmodellen zur Beschreibung der Compouneigenschaften in Abhängigkeit von den Einzelanteilen der Rezepturkomponenten mit einer minimalen Anzahl von Modellparametern mit den in den Gleichungen 5.13, 5.25, 5.30 und 5.35 identifizierten AM beantwortet werden. Diese einzelnen Beschreibungsmodelle wurden in diesem Kapitel bisher nur aufgestellt, aber noch nicht hinsichtlich ihrer Vorhersagegenauigkeit für den gesamten Labordatensatz evaluiert und bewertet. Vor dem Hintergrund der weitgehend linearen Zusammenhangsbeschreibung stellt sich die Frage, ob die in Kapitel 3 gesetzten Ziele einer MPA < 5 % und eines  $R^2 > 0,95$  für komplexe Rezepturen mit möglichen Wechselwirkungen der Additive und Füllstoffe realisierbar sind. Diese Bewertung erfolgt in Kapitel 6.

## 6 Bewertung und Transfer der analytischen Modelle

Im Folgenden werden die zuvor entwickelten AM hinsichtlich ihrer Vorhersagegenauigkeit zur Beantwortung der in Kapitel 3 aufgestellten zweiten Forschungsfrage bewertet. Dabei wird bewertet, ob für alle vier betrachteten Compouneigenschaften  $R^2$ -Werte  $> 0,95$  und  $MPA < 5\%$  erreicht werden können. Die Bewertung der AM für den Labordatensatz erfolgt in Kapitel 6.1. Die Evaluierung der Übertragbarkeit der AM von der Laboranlage auf die Industrieanlage mit unterschiedlichem Prozessverhalten bei identischen Rezepturen erfolgt in Kapitel 6.2, bevor in Kapitel 6.3 die Auswertung für komplexe Datensätze mit allen Rezepturbestandteilen gleichzeitig erfolgt. Ein abschließendes Fazit zur Modellgenauigkeit der AM und der aufgestellten Forschungsfragen wird in Kapitel 6.4 gezogen.

### 6.1 Erzielte Vorhersagegenauigkeiten für die Laboranlage

Im nachfolgenden werden die zuvor in Kapitel 5 entwickelten AM auf den vollständigen Datensatz der Laborversuche gefittet und hinsichtlich der Vorhersagefehler (MAA und MPA) sowie Modellgüte  $R^2$  bewertet. Für alle Modelle wurde die MPA für das Fitting minimiert, um eine gleichwertige Vorhersagegenauigkeit über alle Versuchspunkte und Rezepturvariationen zu erhalten und einzelne Ausreißer nicht zu stark zu gewichten.

#### Bewertung der Modellgenauigkeit für die Vorhersage des E-Moduls

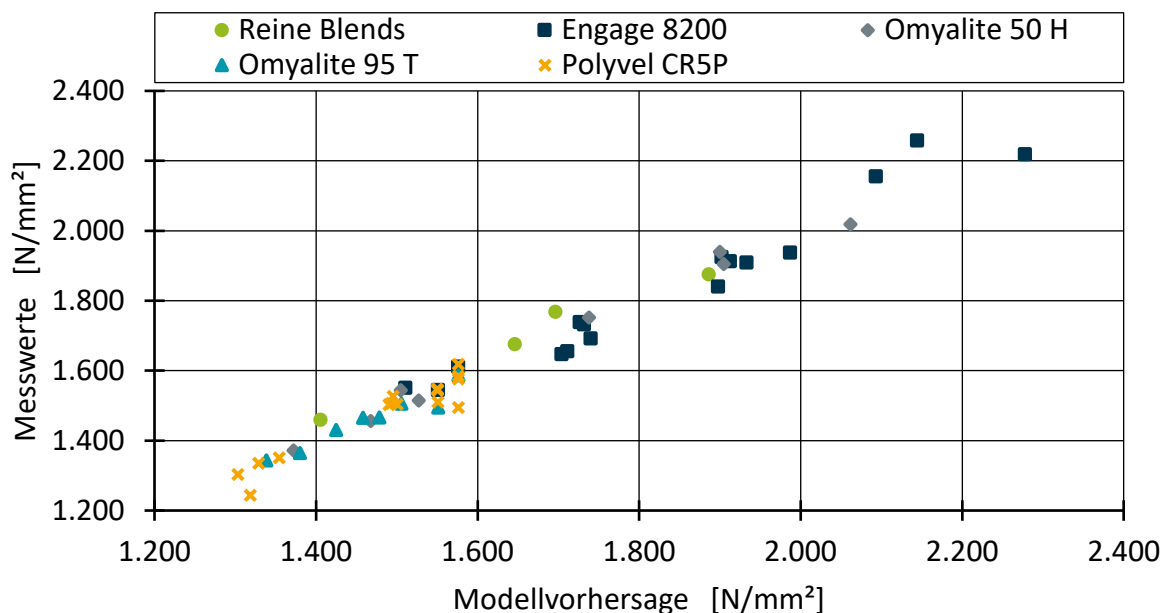
Die Bewertungsmetriken des AM für den E-Modul können Tabelle 6.1 entnommen werden.

Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	$R^2$
Reine Blends	11,48 N/mm <sup>2</sup>	33,68 N/mm <sup>2</sup>	2,2 %	0,516
Engage 8200	22,37 N/mm <sup>2</sup>	13,85 N/mm <sup>2</sup>	1,0 %	0,937
Omyalite 50 H	15,99 N/mm <sup>2</sup>	29,88 N/mm <sup>2</sup>	1,7 %	0,877
Omyalite 95 T	19,50 N/mm <sup>2</sup>	44,61 N/mm <sup>2</sup>	2,3 %	0,917
Polyvel CR5P	32,30 N/mm <sup>2</sup>	26,95 N/mm <sup>2</sup>	1,9 %	0,764
Gesamter Datensatz	24,07 N/mm <sup>2</sup>	27,78 N/mm <sup>2</sup>	1,7 %	0,964

*Tabelle 6.1: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten E-Moduln aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz.*

*Table 6.1: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted tensile moduli listed for the various test series and the entire data set.*

Bei der Betrachtung von Tabelle 6.1 fällt auf, dass die MAA für die vier Versuchspunkte der reinen Blends mit  $33,68 \text{ N/mm}^2$  dem dreifachen Messfehler von  $11,48 \text{ N/mm}^2$  entspricht. Da das Teilmodell zur Vorhersage des E-Moduls der Blends wiederum Bestandteil der Modelle für die Additive und Füllstoffe ist, werden die Parameter für  $E_{HP548R}$  sowie  $E_{505P}$  für den gesamten Datensatz angepasst. Es ist ebenfalls zu erkennen, dass die MAA für die beiden Calciumcarbonat-Typen deutlich über dem jeweiligen Messfehler liegt. Da das Gesamtmodell auf den prozentualen Vorhersagefehler optimiert wurde und die E-Moduln der gefüllten Compounds deutlich höher liegen, ergibt sich eine höhere absolute Abweichung zu den Messungen. Für Polyvel CR5P sowie Engage 8200 liegen die MAA unter der Standardabweichung der Messungen. Bezogen auf alle 64 Compounds liegt die MAA nur geringfügig über dem Messfehler. Eine Darstellung aller Vorhersagen ist in Bild 6.1 dargestellt.



*Bild 6.1: Gegenüberstellung der mit dem gefitteten analytischen Modell vorhergesagten E-Moduln mit den Messwerten.*

*Fig. 6.1: Comparison of the tensile moduli predicted by the fitted analytical model with the measured values.*

Die gestrichelte Linie markiert hierbei eine perfekte Übereinstimmung zwischen Vorhersage und Messung. Hier wird deutlich, dass das AM für die Mehrzahl der Versuchspunkte nahezu perfekte Vorhersagen generiert. Ausnahmen bilden hier die bereits diskutierten Ausreißer der Versuchsreihe mit Polyvel CR5P sowie einzelne Versuchspunkte mit Omyalite 95 T.

Die bei der Modellanpassung ermittelten Parameter sind in Tabelle 13.3 im Anhang aufgeführt. Dort sind der Messfehler des Zugversuchs sowie MAA, MPA und  $R^2$  sowohl für den

gesamten Datensatz als auch für die Entwicklung der Teilmodelle für die betrachteten Einzelversuchsreihen aufgelistet.

#### Bewertung der Modellgenauigkeit für die Vorhersage der Scherviskosität

Die angepassten Modellparameter für das AM zur Beschreibung der Scherviskosität sind in Tabelle 13.4 im Anhang aufgeführt. In Tabelle 6.2 sind MAA, MPA und  $R^2$  für die verschiedenen Scherraten und Versuchsreihen aufgeschlüsselt. Es fällt auf, dass der prozentuale Fehler für die niedrigen Scherraten von  $51 \text{ s}^{-1}$  mit 13,2 % und  $102 \text{ s}^{-1}$  mit 5,4 % deutlich höher ist als die MPA für die hohen Scherraten. Damit spiegelt sich auch im Gesamtmodell die Erkenntnis aus den einzelnen Teilmodellen wider, dass mit dem vereinfachten Modellansatz der Übergangsbereich zwischen newtonschem und strukturviskosem Materialverhalten schlechter abgebildet werden kann.

Versuchsreihe / Scherrate	MAA	MPA	$R^2$
$51 \text{ s}^{-1}$	60,64 Pas	13,2 %	0,7646
$102 \text{ s}^{-1}$	17,51 Pas	5,4 %	0,9390
$204 \text{ s}^{-1}$	6,62 Pas	3,9 %	0,9835
$408 \text{ s}^{-1}$	4,40 Pas	3,9 %	0,9744
$816 \text{ s}^{-1}$	2,13 Pas	2,9 %	0,9783
$1.632 \text{ s}^{-1}$	2,11 Pas	4,0 %	0,9320
Reine Blends	13,37 Pas	4,7 %	0,9480
Engage 8200	20,00 Pas	5,6 %	0,9168
Omyalite 50 H	19,56 Pas	5,6 %	0,9288
Omyalite 95 T	20,74 Pas	5,3 %	0,9202
Polyvel CR5P	7,24 Pas	5,9 %	0,9786
Gesamter Datensatz	15,57 Pas	5,5 %	0,9368

*Tabelle 6.2: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten Scherviskositäten aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen, Scherraten sowie dem gesamten Datensatz.*

*Table 6.2: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted shear viscosity listed for the various test series, shear rates and the entire data set.*

Für die verschiedenen Versuchsreihen liegen die MPA alle auf dem gleichen Niveau von ca. 5 % bis 6 % Vorhersagefehler. Auch die Vorhersagen für das nicht modellierte Kerbschlagzähigkeitsadditiv Engage 8200 liegen auf diesem Niveau. In Bild 6.2 sind alle

Messpunkte und Vorhersagen nach Versuchsreihen und Scherraten gegeneinander aufgetragen.

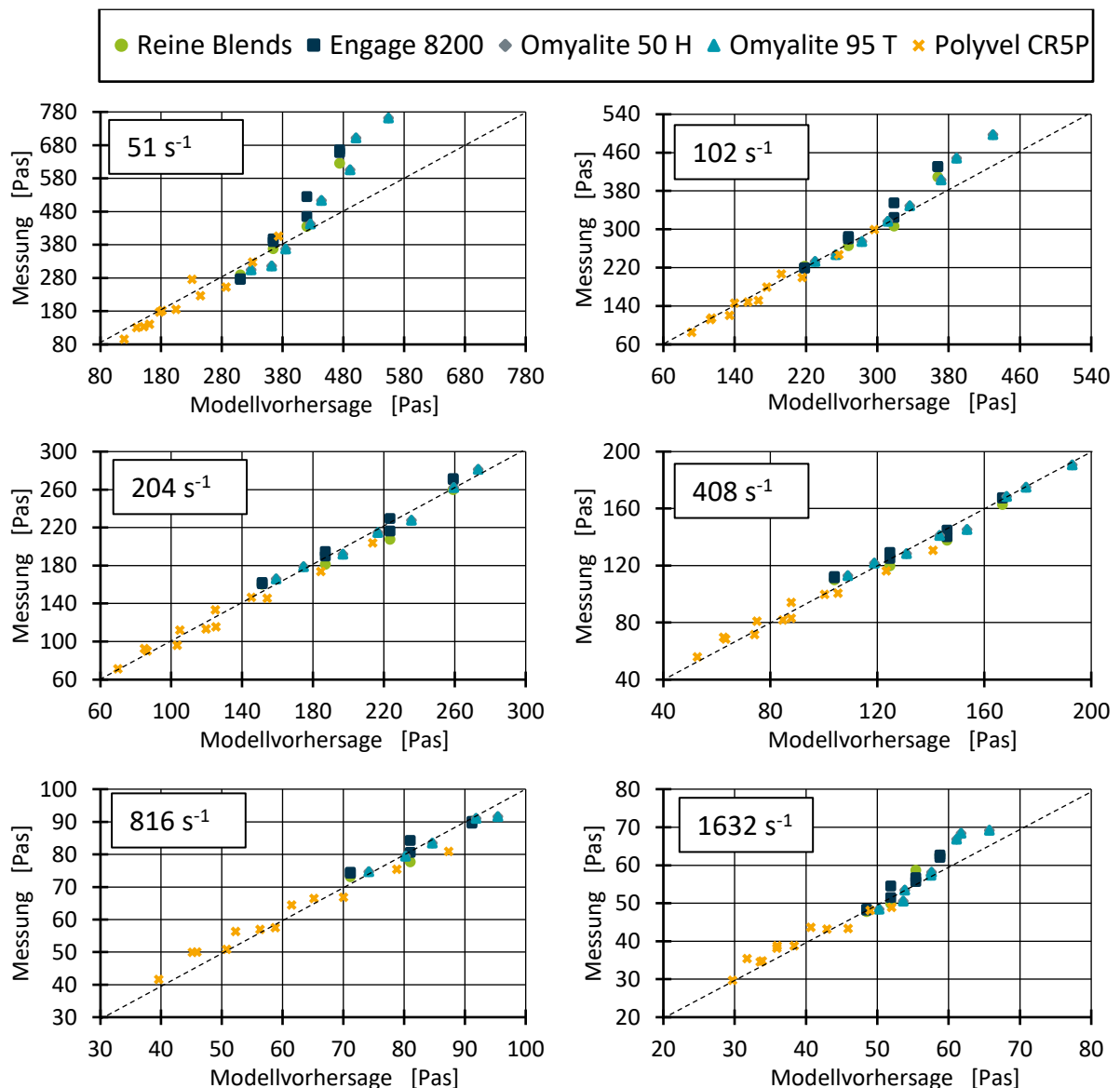


Bild 6.2: Gegenüberstellung der mit dem analytischen Modell vorhergesagten Scherviskositäten mit den Messwerten für die verschiedenen Scherraten.

Fig. 6.2: Comparison of the shear viscosity predicted by the analytical model with the measured values for the tested shear rates.

Die gestrichelte Linie markiert dabei ein perfektes Vorhersagemodell mit  $R^2 = 1$ . Die zuvor beschriebenen Modellgenauigkeiten sind auch hier an der Abweichung von dieser Linie zu erkennen. Insbesondere bei der niedrigen Scherrate von  $51 \text{ s}^{-1}$  weichen vor allem die Messungen für hohe Scherviskositäten deutlich von den Vorhersagen ab. Insgesamt liegt der Vorhersagefehler des AM über den gesamten Datensatz bei 5,5 % mit einer MAA von 15,57 Pas. Ein Vergleich mit dem Messfehler der Scherviskositätsmessung kann hier nicht

direkt durchgeführt werden, da die aus den drei Einzelkapillarmessungen ermittelten Scherviskositäten nur einfach bestimmt wurden. Die zur Berechnung der Scherviskosität aufgezeichneten Druckmessungen des HKR umfassen einen Bereich von 10 bar bis 100 bar für einen im Rheometer verbauten Drucksensor mit 2.000 bar Nenndruck. Für das verwendete Rheometer RHEOGRAPH 75 liegt die Reproduzierbarkeit der Druckmessung nach Herstellerangabe bei 0,012 % des Nenndruckes (0,24 bar) [URL25e]. Gerade bei niedrigen Drücken für geringe Scherraten liegt die prozentuale Abweichung für z. B. 10 bar bereits bei 2,4 %. Hinzu kommen weitere Messunsicherheiten für die eingestellten Temperaturen. Somit liegt der Gesamtfehler des AM mit 5,5 % und den MPA < 4 % für die hohen Scherraten von  $204 \text{ s}^{-1}$  und höher in der Größenordnung des Messfehlers. Für eine fundierte Beurteilung der Messgenauigkeit müssen Mehrfachbestimmungen der Fließkurven durchgeführt werden.

#### Bewertung der Modellgenauigkeit für die Vorhersage der MFR

Die angepassten Modellparameter für das Beschreibungsmodell des MFR können Tabelle 13.5 im Anhang entnommen werden. In Tabelle 6.3 sind MAA, MPA und  $R^2$  für die einzelnen Versuchsreihen aufgeschlüsselt.

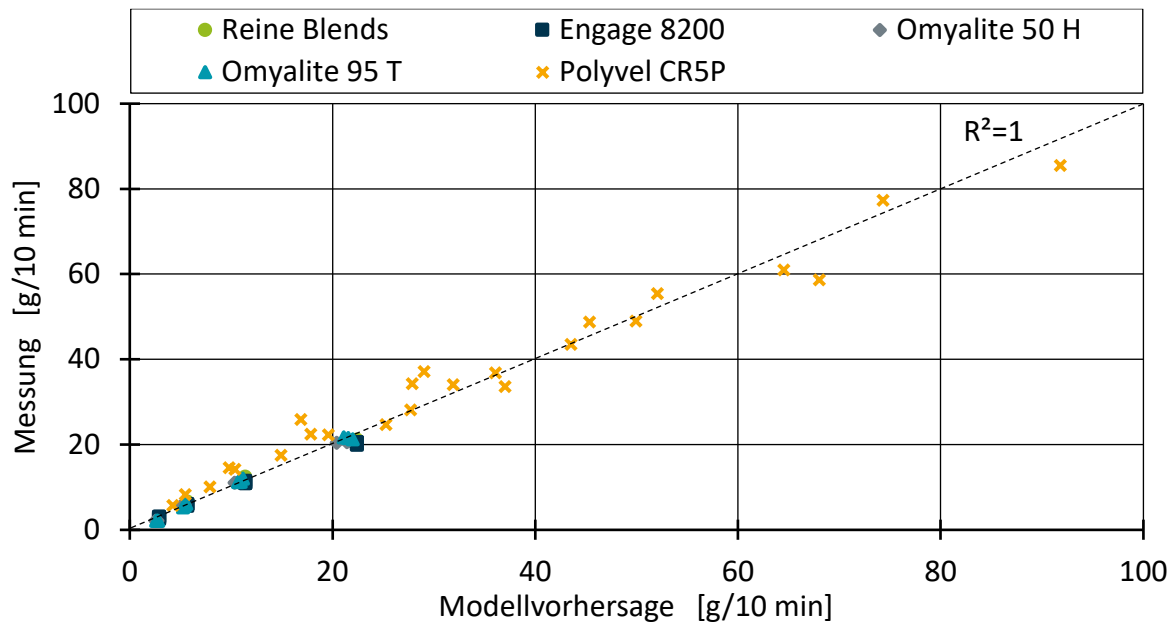
Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	$R^2$
Reine Blends	0,258 g/10 min	0,915 g/10 min	11,9 %	0,9812
Engage 8200	0,118 g/10 min	0,722 g/10 min	6,0 %	0,9723
Omyalite 50 H	0,158 g/10 min	0,512 g/10 min	9,9 %	0,9934
Omyalite 95 T	0,129 g/10 min	0,467 g/10 min	9,6 %	0,9948
Polyvel CR5P	0,449 g/10 min	3,576 g/10 min	13,9 %	0,9559
Gesamter Datensatz	0,258 g/10 min	1,730 g/10 min	10,5 %	0,9774

*Tabelle 6.3: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten MFR Werte aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz.*

*Table 6.3: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted MFR values listed for the various test series and the entire data set.*

Es fällt auf, dass für das analytische Modell, das zum größten Teil aus linearisierten Zusammenhängen besteht, die Vorhersagefehler (MAA) durchweg größer sind als die Messfehler. Die größten Unsicherheiten, sowohl bei der Messung als auch bei der Vorhersage, treten bei den Daten mit dem Additiv Polyvel CR5P auf. Insbesondere bei der Messung von fließfähigen Polymerschmelzen ist der gemessene MFR-Wert fehlerbehafteter, da die bei der Messung in festen Intervallen abgeschnittenen Stränge teilweise von der unmittelbar

nachfließenden Schmelze benetzt werden und somit das Ergebnis bei der Einwaage verfälschen. Der prozentuale Vorhersagefehler für den gesamten Datensatz beträgt 10,5 %. In Bild 6.3 sind alle Messpunkte und Vorhersagen aufgeschlüsselt nach Versuchsreihe gegeneinander aufgetragen.



*Bild 6.3: Gegenüberstellung der mit dem gefitteten analytischen Modell vorhergesagten MFR-Werte mit den Messwerten.*

*Fig. 6.3: Comparison of the MFR predicted by the fitted analytical model with the measured values.*

Es ist zu erkennen, dass die Zugabe von Füllstoffen oder Engage 8200 den MFR der Ausgangsblends nur unwesentlich beeinflusst, während die Zugabe von Peroxiden den MFR teilweise vervierfacht. Analog zu den zuvor beschriebenen Zusammenhängen für die Scherviskosität, wirkt sich die Optimierung hinsichtlich MPA für das Parameterfitting direkt auf die Vorhersagegenauigkeit für die anderen Füllstoffe und Additive aus. Obwohl die MPA mit 6,0 % für Engage 9200 und 9,6 % bzw. 9,9 % für die Füllstoffe relativ hoch ist und auf ein schlechtes Modell schließen lässt, liegen die absoluten Vorhersageunsicherheiten gemessen an der MAA unter 1 g/10 min. Analog zum Modell für die Vorhersage der Scherviskosität führt auch hier der Verzicht auf die Modellierung von Engage 8200 nicht zu einer schlechteren Modellqualität. Der prozentuale Vorhersagefehler für die einzelnen Versuchsreihen ist hier mit 6,0 % hierbei sogar minimal.

### Bewertung der Modellgenauigkeit für die Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit

Abschließend wird das Modell zur Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit bewertet. Die angepassten Modellparameter sind im Anhang in Tabelle 13.6 aufgeführt. In Tabelle 6.4 sind die Messfehler, MAA, MPA und  $R^2$  für den gesamten Datensatz sowie für die einzelnen Versuchsreihen dargestellt.

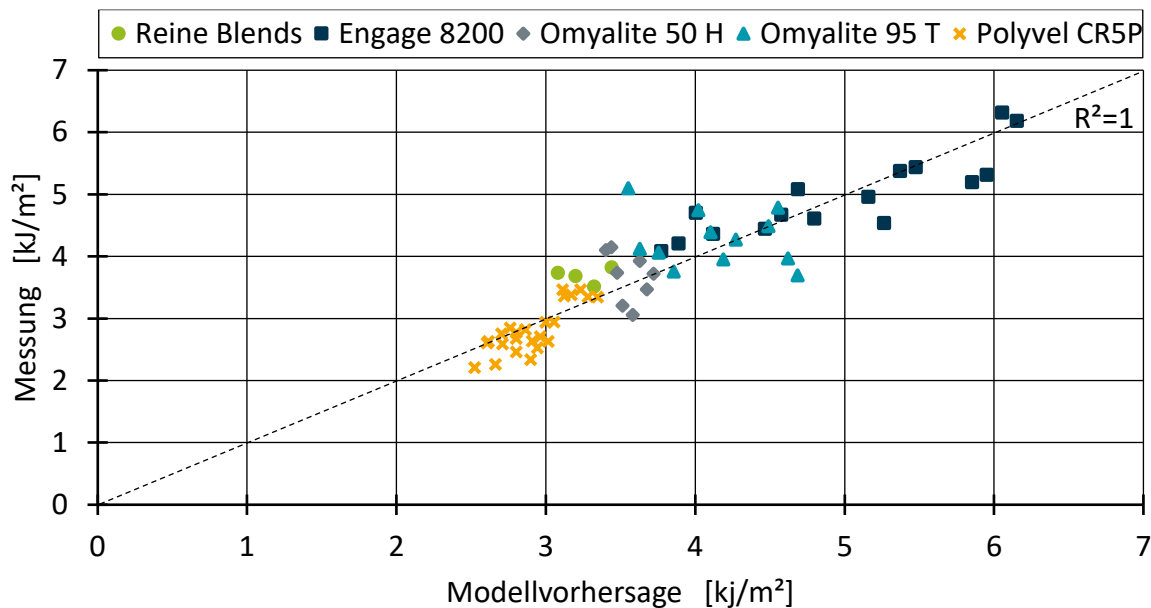
Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	$R^2$
Reine Blends	0,448 kJ/m <sup>2</sup>	0,423 kJ/m <sup>2</sup>	11,4 %	-15,1657
Engage 8200	0,533 kJ/m <sup>2</sup>	0,300 kJ/m <sup>2</sup>	6,2 %	0,6187
Omyalite 50 H	0,518 kJ/m <sup>2</sup>	0,376 kJ/m <sup>2</sup>	10,2 %	-0,4004
Omyalite 95 T	0,400 kJ/m <sup>2</sup>	0,464 kJ/m <sup>2</sup>	10,7 %	-1,3259
Polyvel CR5P	0,385 kJ/m <sup>2</sup>	0,195 kJ/m <sup>2</sup>	7,3 %	0,5616
Gesamter Datensatz	0,445 kJ/m <sup>2</sup>	0,309 kJ/m <sup>2</sup>	8,3 %	0,8158

*Tabelle 6.4: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagte Kerbschlagzähigkeit aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz.*

*Table 6.4: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted impact strength listed for the various test series and the entire data set.*

Hier fällt zunächst auf, dass die MAA bezogen auf den Messfehler mit Ausnahme der Versuchsreihe für Omyalite 95 T etwas geringer ist. Insgesamt sind die absoluten Messfehler der für die Modellierung verwendeten Versuchspunkte im Vergleich zu den Messungen des E-Moduls bzw. des MFR deutlich höher. Über den gesamten Datensatz gemittelt beträgt der Messfehler gegenüber dem Mittelwert der Messung 12,2 %. Im Gegensatz dazu sind die MPA für die einzelnen Versuchsreihen durchweg kleiner als die Messunsicherheiten. Ursächlich für die hohen Standardabweichungen der Messungen ist die Kombination aus den im Allgemeinen stark streuenden Kerbschlagbiegeversuchen, dem geringen Probenquerschnitt der verwendeten Zugprüfkörper sowie der Ablesegenauigkeit der Schlag- und Reibarbeit des Schlagpendels während der Prüfung. Unter der Annahme einer 100 % genauen Bestimmung der Reibarbeit beträgt der Messfehler für die auf zwei Nachkommastellen angezeigte Reibarbeit 0,005 J. Bezieht man diesen Ablese- bzw. Anzeigefehler auf einen exemplarischen Probenquerschnitt von 4 mm mal 8 mm, so ergibt sich bereits eine maximale Unsicherheit für die Kerbschlagzähigkeit von 0,153 kJ/m<sup>2</sup>. Die gleiche maximale Unsicherheit gilt ebenfalls für das Ablesen der erforderlichen Schlagarbeit, so dass ohne die Streuung der Probe selbst bereits eine maximale Abweichung von 0,306 kJ/m<sup>2</sup> auftreten kann. Die Vorhersagen für alle

Versuchspunkte gegenüber den Mittelwerten des Kerbschlagbiegeversuchs sind in Bild 6.4 abgebildet.



Betrachtung für die Übertragung eines Prozesses zwischen zwei Produktionsanlagen kann mit Gleichung 6.1 durchgeführt werden [Koh16].

$$\frac{\dot{V}_{Produktion}}{\dot{V}_{Labor}} = \left( \frac{D_{Produktion}}{D_{Labor}} \right)^q \quad (6.1)$$

Hierbei wird das Verhältnis der Durchsätze sowie der Schneckendurchmesser der beiden Anlagen über den Scale-Up Exponenten  $q$  ins Verhältnis gesetzt. Der Scale-Up Exponent wird in der Praxis oftmals aus Erfahrungswerten in der Literatur gewählt und hängt von Faktoren wie der notwendigen Entgasungsfläche, dem Produktdurchsatz und vielen anderen Einflüssen ab [Koh16]. Für mit dem Produktvolumen skalierende Prozesse wie der Herstellung eines einfachen Compounds mit maximalem Durchsatz liegt der Exponent bei ca. 3 [Koh16]. Für die Übertragung der Versuche auf der 26D Doppelschnecke auf die 42D Doppelschnecke und den Durchsätzen von 15 kg/h sowie 150 kg/h beträgt der Exponent für den in dieser Arbeit durchgeführten Transfer ca. 4,8. Neben dem Scale-Up Koeffizienten unterscheiden sich darüber hinaus ebenfalls die L/D-Verhältnisse der Anlagen mit 40 für die Laboranlage bzw. 56 für die Industrieanlage. Aufgrund dieser Unterschiede zwischen den beiden Prozessen bei identischen Rezepturen stellt sich die Frage, ob die für die Laboranlage entwickelten Modelle ähnliche Vorhersagegenauigkeiten auf der größeren Anlage erzielen können. Hierzu werden die vier analytischen Modelle analog zu dem Vorgehen in Kapitel 6.1 für die Versuchspunkte des Transferdatensatzes der Industrieanlage angepasst. Die gefitteten Parameter sowie die Modellmetriken für die einzelnen Additive und Füllstoffe für alle Modelle können Kapitel 13.6 im Anhang entnommen werden. Eine Gegenüberstellung der Messfehler, MAA, MPA und  $R^2$ -Werte für die Gesamtdatensätze der Laboranlage aus Kapitel 6.1 sowie den Transferversuchen ist in Tabelle 6.5 dargestellt.

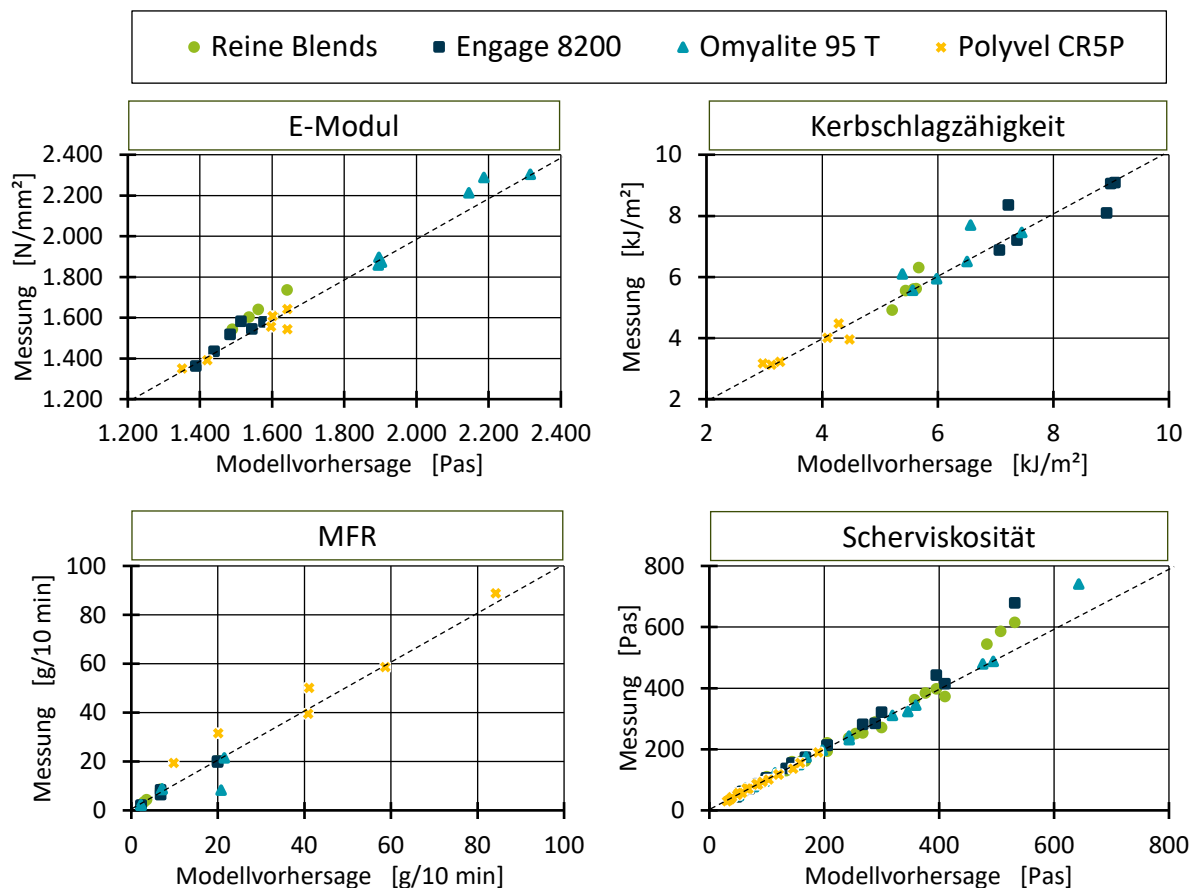
	Zielgröße	Messfehler	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
Labor	E-Modul	24,07 N/mm <sup>2</sup>	27,78 N/mm <sup>2</sup>	1,7 %	0,9640
	Kerbschlagzähigkeit	0,45 kJ/m <sup>2</sup>	0,31 kJ/m <sup>2</sup>	8,3 %	0,8158
	MFR	0,258 g/10 min	1,730 g/10 min	10,5 %	0,9774
	Scherviskosität	-	15,57 Pas	5,5 %	0,9368
Scale-Up	E-Modul	18,30 N/mm <sup>2</sup>	36,58 N/mm <sup>2</sup>	2,1 %	0,9655
	Kerbschlagzähigkeit	0,58 kJ/m <sup>2</sup>	0,28 kJ/m <sup>2</sup>	4,5 %	0,9359
	MFR	0,674 g/10 min	2,517 g/10 min	18,6 %	0,9534
	Scherviskosität	-	11,4 Pas	4,6 %	0,9741

*Tabelle 6.5: Gegenüberstellung der erzielten Modellfehler und R<sup>2</sup>-Werte für die verschiedenen Compouneigenschaften für den Datensatz der Laboranlage und den Transferversuchen im Scale-Up.*

*Table 6.5: Comparison of the model errors and R<sup>2</sup> values obtained for the various compound properties for the data set of the laboratory plant and the transfer tests in the scale-up.*

Für den E-Modul sind die erzielten R<sup>2</sup>-Werte und MPA für die Transferversuche nahezu identisch mit den Ergebnissen der Laboranlage. Für die Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit ist die MPA sogar geringer und der R<sup>2</sup>-Wert mit 0,9359 gegenüber 0,8158 gesteigert. Bei der Vorhersage des MFR liegt die MPA mit 18,6 % gegenüber den Labordatensätzen mit 10,5 % deutlich höher. Neben einem Ausreißer mit Omyalite 95 T wird vor allem der Einfluss von Polyvel CR5P bei der geringeren Zugabemenge von 0,5 Gew.-% unterschätzt. Hier weicht die Vorhersage für alle drei Blends mit 0,5 Gew.-% Polyvel CR5P um ca. 10 g/10 min ab, so dass MPA und MAA gegenüber dem Gesamtdatensatz deutlich erhöht sind. Eine mögliche Erklärung hierfür ist, dass die veränderten Prozessbedingungen die Reaktionskinetik des peroxidischen Abbaus und damit die Molekulargewichtsverteilung beeinflussen. Diese Erklärung kann ausgeschlossen werden, da derartige Abweichungen für die Vorhersage der Scherviskosität nicht zu beobachten sind. Hier sind die Vorhersagen im Vergleich zu den Labordatensätzen, auch isoliert betrachtet für die Versuchspunkte mit Polyvel CR5P, mit geringeren MAA und MPA präziser. Wahrscheinlicher ist es, dass das Teilmodell für die Beschreibung des Einflusses von Polyvel CR5P aus Gleichung 5.33 ungenau ist. Bei erneuter Betrachtung der für diese Modellierung zugrundeliegenden Verläufe fällt auf, dass gerade die Versuchspunkte mit 0,5 Gew.-% Polyvel CR5P bei dem Labordatensatz für alle vier Blends konsistent unterschätzt werden, während die Versuchspunkte mit geringeren und höheren Konzentrationen gut abgebildet werden. Über eine Linearisierung des Peroxideinflusses

analog zu den Teilmodellen der Füllstoffe für den MFR kann die Genauigkeit des AM für den gesamten Datensatz der Transferversuche auf eine MAE von 1,820 g/10 min, eine MPA von 15,8% und ein  $R^2$  von 0,9767 verbessert werden. Da allerdings die Übertragbarkeit des ursprünglich entwickelten Modells ohne Anpassungen untersucht werden soll, wird auch im Folgenden weiterhin das Teilmodell nach Gleichung 5.33 und nicht der linearisierte Ansatz verwendet. Zur Übersicht sind in Bild 6.5 die Gegenüberstellungen von Messung und Modell für alle Eigenschaften dargestellt.



**Bild 6.5:** Gegenüberstellung der Modellvorhersagen und Messungen für E-Modul (oben links), Kerbschlagzähigkeit (oben rechts), MFR (unten links) und Scherviskosität (unten rechts) für die Transferversuche auf der Industrieanlage.

**Fig. 6.5:** Comparison of model predictions and measurements for modulus of elasticity (top left), notched impact strength (top right), MFR (bottom left) and shear viscosity (bottom right) for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.

Analog zur Auswertung der Scherviskositätsvorhersage der Versuchspunkte des Labordatensatzes ist auch hier für die Scherviskosität (links unten) zu erkennen, dass die hohen Viskositäten für die niedrigen Scherraten im Übergangsbereich zwischen newtonschem und strukturviskosem Verhalten schlechter abgebildet werden können.

Insgesamt ist festzustellen, dass die auf der Laboranlage entwickelten Beschreibungsmodelle für die Compoundeigenschaften durch ein erneutes Parameterfitting für den Transferdatensatz auf der Industrieanlage einfach angepasst werden können und vergleichbare Modellgüten bzw. Modellfehler aufweisen. Dadurch ist es möglich, die im kleinen Maßstab identifizierten Zusammenhänge mit wenig Versuchsaufwand auf den Produktionsmaßstab zu übertragen. Für die untersuchte Compoundrezeptur konnten hierbei trotz unterschiedlicher L/D-Verhältnisse, eines im Vergleich zu üblichen Scale-Up-Koeffizienten hohen Koeffizienten von 4,8 sowie einer zusätzlichen Entgasung keine Einschränkungen festgestellt werden.

### **6.3 Bewertung des Transfers der Modelle auf Datensätze komplexer Rezepturen**

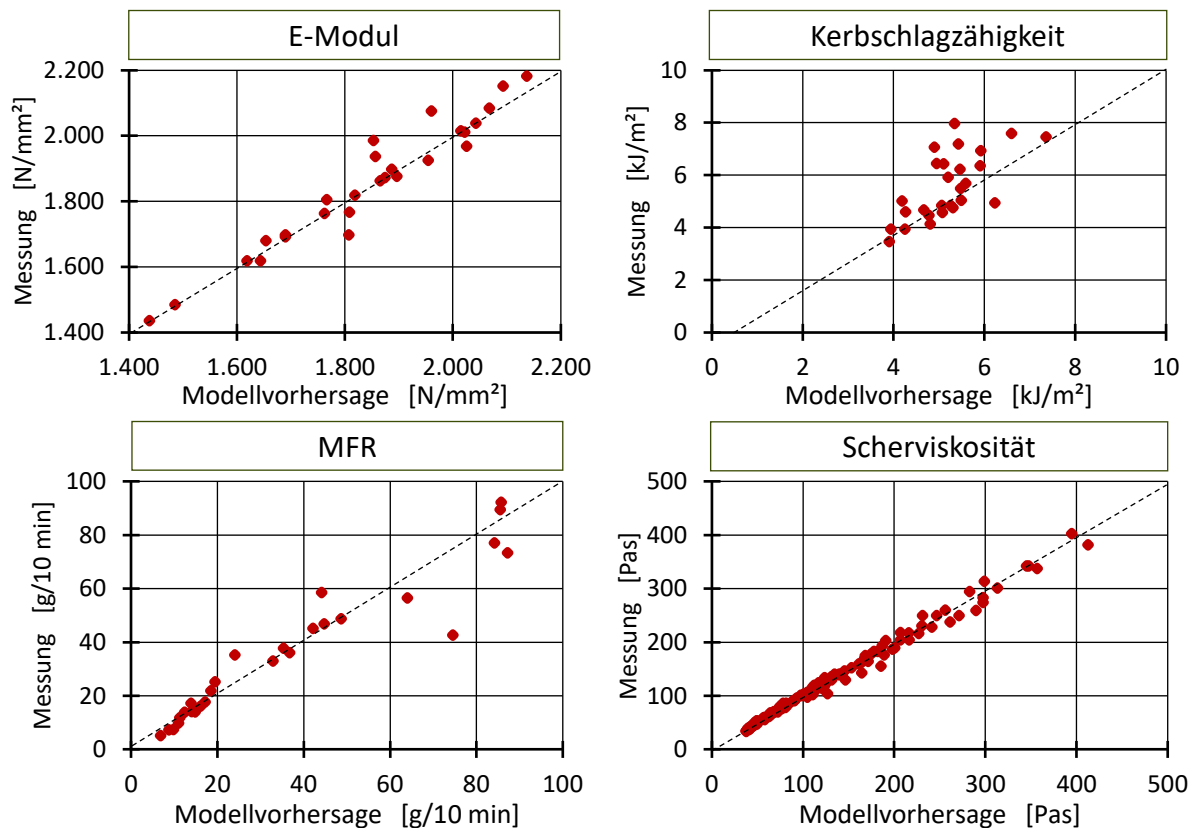
Sowohl die Entwicklung der AM als auch deren Übertragung auf eine größere Industrieanlage erfolgte für Versuchspunkte, in denen maximal beide Polymere und nur ein Füllstoff bzw. Additiv eingesetzt wurden. In der realitätsnahen Anwendung der Rezepturentwicklung müssen, wie im Stand der Forschung beschrieben, mehrere Compoundeigenschaften gleichzeitig erreicht werden, so dass deutlich mehr als drei Komponenten parallel Einsatz finden. Daher wird im Folgenden auch die Übertragbarkeit der AM auf komplexe Rezepturen, in denen alle Rezepturbestandteile gleichzeitig eingesetzt werden, untersucht. Das Fitting der Modellparameter erfolgt dazu analog zur Modellauswertung in Kapitel 6.1 und 6.2. Die angepassten Modellparameter können Kapitel 13.7 im Anhang entnommen werden. In Tabelle 6.6 sind die Modellauswertungen für MAA, MPA und  $R^2$  sowie die Messfehler für die vier untersuchten Compoundeigenschaften für den Datensatz mit max. drei Komponenten aus Kapitel 6.2 sowie den Datensatz der komplexen Rezepturen mit allen Rezepturbestandteilen gleichzeitig dargestellt.

	Zielgröße	Messfehler	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
Scale-Up Konzentrationsreihen	E-Modul	18,30 N/mm <sup>2</sup>	36,58 N/mm <sup>2</sup>	2,1 %	0,9655
	Kerbschlagzähigkeit	0,58 kJ/m <sup>2</sup>	0,28 kJ/m <sup>2</sup>	4,5 %	0,9359
	MFR	0,674 g/10 min	2,517 g/10 min	18,6 %	0,9534
	Scherviskosität	-	11,4 Pas	4,6 %	0,9741
Scale-Up Komplette Rezeptur	E-Modul	19,62 N/mm <sup>2</sup>	31,04 N/mm <sup>2</sup>	1,6 %	0,9340
	Kerbschlagzähigkeit	0,70 kJ/m <sup>2</sup>	0,73 kJ/m <sup>2</sup>	12,3 %	0,3672
	MFR	0,611 g/10 min	4,720 g/10 min	14,2 %	0,8947
	Scherviskosität	-	5,4 Pas	4,0 %	0,9890

*Tabelle 6.6: Gegenüberstellung von Messfehler, MAA, MPA und R<sup>2</sup> für die Compouneigenschaften für den Datensatz aus Kapitel 6.2 sowie kompletter Rezeptur mit allen Bestandteilen gleichzeitig für die Industrieanlage.*

*Table 6.6: Comparison of measurement error, MAE, MPE and R<sup>2</sup> for the compound properties for the data set of chapter 6.2 and complete formulation with all components simultaneously for the industrial twin screw extruder.*

Bei der Betrachtung der Modellergebnisse für die komplexen Rezepturen fällt zunächst auf, dass die Vorhersage des E-Moduls vergleichbar ist mit den Vorhersagen der einzelnen isoliert betrachteten Versuchsreihen. Die gleiche Beobachtung kann für den MFR und die Scherviskosität gemacht werden. Die höhere MAA von 4,720 g/10min für den MFR lässt sich darauf zurückführen, dass im Vergleich zu den zuvor diskutierten Versuchsreihen bei den komplexen Rezepturen in fast jedem Versuchspunkt Polyvel CR5P enthalten ist und damit auch das MFR-Niveau insgesamt ebenfalls deutlich höher liegt. Gleiches gilt für die niedrige MAA von 5,4 Pas für die Scherviskosität, bei der aufgrund der höheren Fließfähigkeit das Niveau der Scherviskositäten insgesamt niedriger liegt. Während die MPA der Modelle für E-Modul, MFR sowie Scherviskosität bei den komplexen Rezepturen entgegen den Erwartungen geringer ausfallen, sind die Vorhersagen für die Kerbschlagzähigkeit auffallend schlechter. Hier sind sowohl die MAA mit 0,73 kJ/m<sup>2</sup> gegenüber 0,28 kJ/m<sup>2</sup> als auch die MPA mit 12,3 % gegenüber 4,5 % um mehrere Faktoren schlechter. Auch der R<sup>2</sup> Wert ist mit 0,3672 gegenüber 0,9359 deutlich schlechter. In Bild 6.6 sind die Vorhersagen und Messungen für alle vier Compouneigenschaften gegeneinander aufgetragen.



*Bild 6.6: Gegenüberstellung der Modellvorhersagen und Messungen für E-Modul (oben links), Kerbschlagzähigkeit (oben rechts), MFR (unten links) und Scherviskosität (unten rechts) für die Transferversuche auf der Industrieanlage mit allen Rezepturbestandteilen.*

*Fig. 6.6: Comparison of model predictions and measurements for modulus of elasticity (top left), notched impact strength (top right), MFR (bottom left) and shear viscosity (bottom right) for the trials on the industrial twin screw extruder with all recipe components.*

Auch hier zeigt sich, dass die Kerbschlagzähigkeit durch das Modell schlechter vorhergesagt wird. Eine Ursache hierfür kann die Wechselwirkung zwischen Engage 8200 und Polyvel CR5P sowie den beiden PP-Typen sein. Im Stand der Forschung in Kapitel 2.2.3 wurde der kontrollierte Abbau von PP mit Peroxid diskutiert. Während bei PP die  $\beta$ -Spaltung gegenüber der Langkettenverzweigung dominiert, führt die Zugabe von PE zu einer gezielten Vernetzung, die in einer erhöhten Kerbschlagzähigkeit resultiert. Da es sich bei dem eingesetzten Kerbschlagmodifikator Engage 8200 um ein Ethylen-Octen-Copolymer handelt, ist es denkbar, dass in Rezepturen, in denen sowohl Engage 8200 als auch Polyvel CR5P eingesetzt werden, eine vermehrte Langkettenverzweigung der beiden PP-Typen mit dem Ethylen-Octen-Copolymer stattfindet. Aufgrund der Annahmen für den Aufbau der AM in Kapitel 5.1 werden solche Wechselwirkungen gegenüber den Einzeleffekten der Rezepturkomponenten vernachlässigt, so dass sich für dieses konkrete Beispiel höhere Vorhersageunsicherheiten

ergeben. Auch wenn MAA und MPA für die Vorhersage des E-Moduls geringer ausfallen, so ist auch für das  $R^2$  des E-Moduls mit 0,9340 festzustellen, dass die allgemeine Modellgüte gegenüber den Versuchspunkten mit einzelnen Additiven und Füllstoffen um 0,0315 schlechter ist. Ursache hierfür kann wie bei der Kerbschlagzähigkeit die teilweise Vernetzung als Wechselwirkung zwischen Engage 8200 und Polyvel CR5P sein, die beim E-Modul weniger zum Vorschein tritt. Während die beiden mechanischen Kennwerte davon beeinflusst werden, scheint die Teilvernetzung bei den rheologischen Kennwerten vernachlässigbar zu sein.

#### **6.4 Fazit zur Modellqualität und dem Transfer auf andere Datensätze**

In Kapitel 6 wurde die Forschungsfrage beantwortet, ob mit den AM für den E-Modul, die Kerbschlagzähigkeit, den MFR und die Scherviskosität der Compounds eine MPA < 5 % sowie ein  $R^2 > 0,95$  erreicht werden kann. Basierend auf Versuchsdaten an der Laboranlage konnte in Kapitel 6.1 gezeigt werden, dass diese Modellgüte nur für die AM zur Vorhersage des E-Moduls erreicht werden kann. Für die Vorhersage der Scherviskosität kann ein MPA < 5 % und ein  $R^2 > 0,95$  nicht für den gesamten Scherratenbereich erreicht werden, sondern nur für hohe Scherraten, in denen ausschließlich strukturviskoses Materialverhalten vorliegt. Für die Kerbschlagzähigkeit und den MFR konnten diese Vorhersagegenauigkeiten nicht erreicht werden.

Die Übertragbarkeit der auf der Laboranlage entwickelten AM auf eine Industrieanlage mit anderem Prozessverhalten in Kapitel 6.2 stellt für den Modellierungsansatz keine Herausforderung dar. Für den E-Modul und die Scherviskosität können die in der Forschungsfrage gestellten Vorhersagegenauigkeiten erreicht werden, während auch hier die AM für die Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit und der MFR zu ungenau sind.

Ungeachtet der Tatsache, dass die AM aufgrund ihres Aufbaus keine Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Komponenten berücksichtigen können, kann auch bei Anwendung der AM auf einen Datensatz mit Rezepturen, in denen alle Komponenten gleichzeitig eingesetzt werden, eine maximale MPA von 5 % und ein minimaler  $R^2$ -Wert von 0,95 für den E-Modul und die Scherviskosität erreicht werden, während dies für den MFR und die Kerbschlagzähigkeit nicht möglich ist. Als Hauptgrund für die deutlich verschlechterte Vorhersagegenauigkeit der Kerbschlagzähigkeit wird die fehlende Möglichkeit der Berücksichtigung von Wechselwirkungen im Modellansatz identifiziert.

## 7 Vergleich der analytischen Modelle mit Künstlichen Neuronalen Netzen

Im vorangegangenen Kapitel wurden die AM an die Datensätze der Labor- und Industrieanlage angepasst und hinsichtlich ihrer Vorhersagegenauigkeit bewertet. Damit konnten die Forschungsfragen aus Kapitel 3 hinsichtlich der erzielbaren Modellgenauigkeiten beantwortet werden. Für eine abschließende Bewertung der AM und eine Bestätigung ihrer Einordnung zwischen Mischungsregeln und KNN für die Rezepturenentwicklung fehlt bisher der Vergleich mit den mittels KNN erzielbaren Vorhersagen. Hierzu wird im Folgenden zunächst die Vorgehensweise zur Modellbildung und Auswertung mit KNN in Kapitel 7.1 beschrieben. Der direkte Vergleich der Modelle mit den AM aus Kapitel 6 erfolgt in Kapitel 7.2, bevor in Kapitel 7.3 ein abschließendes Fazit gezogen wird.

### 7.1 Referenzmodellierung mit KNN

Eine umfassende Hyperparameter-Optimierung wird durchgeführt, um für jeden Datensatz das am besten geeignete KNN zu trainieren. Für jeden Datensatz und jede Zieleigenschaft werden dabei separate Modelle trainiert. Bei der Hyperparameteroptimierung werden die Netzarchitektur (Anzahl der Neuronen und Anzahl der inneren Schichten), die Aktivierungs- und Optimierungsfunktionen, die Gewichtsinitialisierung, die Batchgröße sowie die Lernrate und der Gewichtsverlust (engl. weight decay) während der Trainingsiterationen variiert. Die Hyperparameteroptimierung wird mit dem TPE-Optimierungsalgorithmus des *Optuna*-Frameworks für jeweils 100 Optimierungsschritte durchgeführt. Wie in Kapitel 2.3.5 beschrieben, werden die Datensätze während des Modelltrainings in eine Trainings- und eine Test- bzw. Validierungspartition aufgeteilt. Während die Anpassung der Neuronengewichte nur anhand des Vorhersagefehlers der Trainingspartition erfolgt, dient die Auswertung des Vorhersagefehlers der Testpartition dazu, eine mögliche Überanpassung (Overfitting) zu erkennen. Für alle Modelltrainings wird daher ein vorzeitiger Abbruch implementiert, bei dem nach 25 konsekutiv ansteigenden Vorhersagefehlern des Testdatensatzes das Modelltraining abgebrochen wird. Die Aufteilung der Datensätze der Labor- und Industrieanlage erfolgte in 80 % Trainingspartition und 20 % Testpartition. Die maximale Trainingszeit beträgt 1000 Epochen. Zur Vermeidung eines möglichen Trainingsbias (siehe Kapitel 2.3.5) wird eine 10-fache Kreuzvalidierung der Datensätze untersucht. Zusätzlich erfolgt eine Skalierung der

Rezepturanteile und der Compoundeigenschaften auf das Intervall  $[-1;1]$ . Der Ablauf der Datenaufbereitung ist exemplarisch am Beispiel des MFR-Wertes als Zielgröße in Bild 7.1 dargestellt.

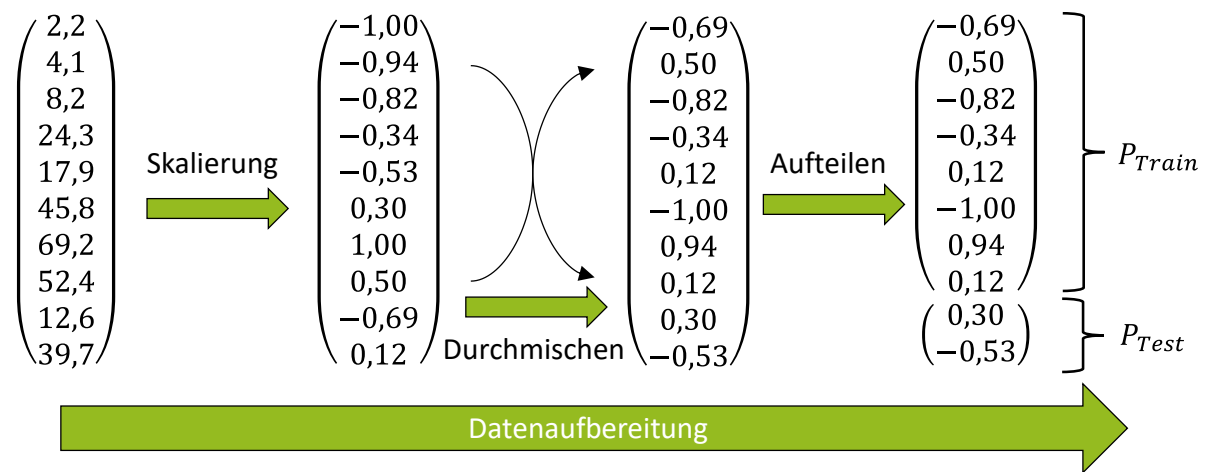


Bild 7.1: Schematischer Ablauf der Datenaufbereitung für das Training der KNN [SH24].

Fig. 7.1: Schematic process of data preparation for training the ANN [SH24].

Neben der Skalierung und dem Mischen und Splitten der Datensätze kann auch die Initialisierung der Gewichte die erreichbaren Modellgenauigkeiten beeinflussen. Daher werden für jede untersuchte Aufteilung der Kreuzvalidierung insgesamt zehn neu initialisierte Modelle trainiert. Insgesamt werden somit für jede untersuchte Kombination der Hyperparameter 100 KNN trainiert und deren einzelne Modellfehler zu einem repräsentativen Mittelwert aggregiert. Für das Training und die Hyperparameteroptimierung wurde die MQA als zu minimierende Fehlerfunktion gewählt. Mit der Hyperparameterkombination, die zur geringsten MQA führt, werden wiederum insgesamt 100 KNN trainiert und das bezüglich der geringsten MPA genaueste Modell für den Vergleich mit der AM ausgewählt. Da die AM immer für alle verfügbaren Daten ohne Aufteilung in Trainings- und Testdatenpartitionen gefittet wurden, erfolgt die Auswahl des besten Modells auch für die geringste MPA des gesamten Datensatzes (Test- und Trainingspartitionen zusammen).

## 7.2 Vergleich der Vorhersagen zwischen KNN und AM

Im Folgenden werden die nach dem Verfahren in Kapitel 7.1 trainierten KNN mit den in Kapitel 6 angepassten AM verglichen. In Kapitel 7.2.1 erfolgt der Vergleich für den Datensatz der Laboranlage und in Kapitel 7.2.2 für den Datensatz der komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage. Ein zusätzlicher Vergleich des Transferdatensatzes auf der Industrieanlage

mit identischem Versuchsplan der Laboranlage wird hier nicht betrachtet, da bereits in Kapitel 6.2 für die AM festgestellt wurde, dass die Ergebnisse für beide Anlagen vergleichbar sind. Ein Teil der Ergebnisse dieses Kapitels zum Vergleich der Modelle für die Vorhersage der Scherviskosität wurde bereits in dem Tagungsband der SPE Annual Technical Conference (ANTEC) 2025 veröffentlicht [SLH25b].

### 7.2.1 Vergleich von AM und KNN für den Datensatz der Laboranlage

Die identifizierten Hyperparameter für die vier Modelle zur Vorhersage der Compoundeigenschaften für den Datensatz der Laboranlage sind in Tabelle 13.20 im Anhang aufgeführt. Der direkte Vergleich von MAA, MPA,  $R^2$  und der freien Parameter des Trainings bzw. der Fittings für die Modelle zur Vorhersage von E-Modul, Kerbschlagzähigkeit, MFR und Scherviskosität für das AM und KNN ist in Tabelle 7.1 dargestellt.

	Zielgröße	MAA	MPA	$R^2$	Parameter
AM	E-Modul	27,78 N/mm <sup>2</sup>	1,7 %	0,9640	14
	Kerbschlagzähigkeit	0,31 kJ/m <sup>2</sup>	8,3 %	0,8158	10
	MFR	1,730 g/10 min	10,5 %	0,9774	8
	Scherviskosität	15,57 Pas	5,5 %	0,9368	12
KNN	E-Modul	24,24 N/mm <sup>2</sup>	1,6 %	0,9762	1.049
	Kerbschlagzähigkeit	0,17 kJ/m <sup>2</sup>	4,9 %	0,9510	29.219
	MFR	1,239 g/10 min	7,7 %	0,9797	1.873
	Scherviskosität	14,85 Pas	9,4 %	0,9721	4.488

*Tabelle 7.1: Gegenüberstellung der erzielten Modellfehler,  $R^2$ -Werte und Parameter für die verschiedenen Compoundeigenschaften von AM und KNN für den Labordatensatz.*

*Table 7.1: Comparison of the model errors,  $R^2$  values and parameters obtained for the various compound properties of AM and ANN for the laboratory data set.*

Für den Datensatz der Laboranlage kann festgestellt werden, dass zunächst die  $R^2$ -Werte der KNN für alle vier Zielgrößen höher und der Vorhersagefehler gemessen am MAA niedriger sind als bei den AM. Auch die MPA der KNN ist für alle Zielgrößen mit Ausnahme der Scherviskosität niedriger. Der höhere Wert bei der Scherviskosität für die MPA mit 9,4 % gegenüber 5,5 % kann damit begründet werden, dass die Vorhersagegüte im Vergleich zum AM für die hohen Scherraten bei niedrigerer Scherviskosität etwas höher und damit prozentual schlechter ist. Demgegenüber stehen die besseren Vorhersagen für kleine Scherraten im Übergangsbereich

der Scherviskosität, so dass die MAA mit 14,85 Pas etwas niedriger ausfällt. Trotz der leichten Verbesserungen in der Vorhersagegenauigkeit sind die Fehler der Modelle für E-Modul, MFR und Scherviskosität vergleichbar. Lediglich für die Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit können mit dem KNN signifikante Verbesserungen erzielt werden. Insgesamt erfordert die Modellierung mit dem KNN eine deutlich größere Anzahl an trainierbaren Parametern. Während die AM maximal 14 freie Parameter benötigen, sind für äquivalente KNN mehrere tausend Parameter erforderlich.

### 7.2.2 Vergleich von AM und KNN für die komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage

Die identifizierten Hyperparameter für die vier Modelle zur Vorhersage der Compoundeigenschaften für den komplexen Datensatz der Industrieanlage sind in Tabelle 13.21 im Anhang aufgeführt. Für die KNN und AM sind MAA, MPA,  $R^2$  und die Anzahl der trainierten bzw. angepassten Parameter in Tabelle 7.2 dargestellt.

	Zielgröße	MAA	MPA	$R^2$	Parameter
AM	E-Modul	31,04 N/mm <sup>2</sup>	1,6 %	0,9340	12
	Kerbschlagzähigkeit	0,73 kJ/m <sup>2</sup>	12,3 %	0,3672	8
	MFR	4,720 g/10 min	14,2 %	0,8947	6
	Scherviskosität	5,4 Pas	4,0 %	0,9890	10
KNN	E-Modul	34,85 N/mm <sup>2</sup>	1,9 %	0,9391	15.349
	Kerbschlagzähigkeit	0,35 kJ/m <sup>2</sup>	6,4 %	0,8692	92
	MFR	1,062 g/10 min	4,0 %	0,9954	5.967
	Scherviskosität	10,0 Pas	6,6 %	0,9531	3.922

*Tabelle 7.2: Gegenüberstellung der erzielten Modellfehler und  $R^2$ -Werte für die verschiedenen Compoundeigenschaften von AM und KNN für den komplexen Datensatz der Industrieanlage.*

*Table 7.2: Comparison of the model errors and  $R^2$  values obtained for the various compound properties of AM and ANN for the complex data set of the industrial scale twin screw extruder.*

Während für den Labordatensatz, der aus einzelnen Konzentrationsreihen besteht, die durch umfangreiche Hyperparameteroptimierung angepassten KNN für alle vier Zielgrößen geringere Vorhersagefehler aufweisen, ist dies für die Rezepturen mit allen Komponenten gleichzeitig nicht der Fall. Für E-Modul und Scherviskosität sind MAA und MPA der AM sogar geringer. Für MFR und Kerbschlagzähigkeit sind die KNN dagegen deutlich genauer.

Insbesondere für die Kerbschlagzähigkeit ist es wahrscheinlich, dass das KNN auch die Wechselwirkung zwischen Polyvel CR5P und Engage 8200 berücksichtigen kann, die das AM nicht berücksichtigt. Insgesamt ist auch hier die Anzahl der trainierten Parameter des KNN um bis zu drei Größenordnungen höher als beim AM, um diese Vorhersagegüte zu erreichen.

### 7.3 Bewertung der Vorhersagen von KNN und AM im direkten Vergleich

Zur Identifikation des bestmöglichen KNN für die jeweiligen Datensätze und einen fairen Vergleich mit den AM wurde eine umfangreiche Hyperparameteroptimierung durchgeführt und das hinsichtlich der Vorhersagegenauigkeit genaueste KNN ausgewählt. Für die Vorhersage des E-Moduls sind KNN und AM hinsichtlich MAA, MPA und  $R^2$  nahezu identisch. Während das KNN für den Labordatensatz etwas genauer ist, ist das AM für den komplexen Datensatz besser geeignet. Dies ist insbesondere vor dem Hintergrund der Generalisierbarkeit und der Möglichkeit, Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Rezepturbestandteilen zu berücksichtigen, überraschend. Für die Vorhersage der Scherviskosität ergibt sich das gleiche Bild. Auch hier können mit dem KNN für den Labordatensatz etwas genauere Vorhersagen getroffen werden, ist das AM, auch für die Vorhersage der Scherviskosität bei geringen Scherraten im Übergangsbereich zwischen newtonschem und strukturviskosem Materialverhalten, genauer. Für die Kerbschlagzähigkeit und den MFR ergibt sich ein anderes Bild. Hier ist die Vorhersagegenauigkeit des KNN für beide Datensätze deutlich besser. Für den Labordatensatz sind die MPA der KNN um ca. 3 % niedriger und für die komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage sind die MPA der KNN für die Kerbschlagzähigkeit mit 6,4 % gegenüber 12,3 % der AM und für den MFR mit 4,0 % gegenüber 14,2 % deutlich überlegen. Insbesondere bei den Wechselwirkungen des Kerbschlagmodifikators und der Peroxidmasterbatches auf die Kerbschlagzähigkeit sind die KNN besser geeignet als die AM, die diese Wechselwirkungen nicht berücksichtigen können. Die Ergebnisse müssen auch in Bezug zu den für die Modellierung erforderlichen freien Parametern gesetzt werden.

Während die AM für ihre hervorragende Vorhersagegenauigkeit nur maximal 14 Parameter benötigen, sind es bei den KNN bis zu ca. 30.000 Parameter. Dies wirkt sich letztlich auch auf die Übertragbarkeit der Modelle auf andere Rezepturen oder Prozesse mit geringer Datenverfügbarkeit aus. Erste Untersuchungen zur Übertragbarkeit von AM und KNN zur Vorhersage der Scherviskosität zeigen bereits, dass für die Anpassung von AM an andere Anlagen und Prozesse weniger Datenpunkte benötigt werden [SLH25b].

## 8 Rezepturentwicklung mit AM und Genetischen Algorithmen

In den vorherigen Kapiteln wurde die Vorhersagegenauigkeit der AM umfangreich bewertet und mit KNN verglichen. Im Folgenden werden die AM für ein konkretes Anwendungsbeispiel einer Rezepturentwicklung angewendet. In Kapitel 8.1 wird zunächst das Lastenheft des Zielmaterials definiert, bevor in Kapitel 8.2 der Entwicklungsprozess von Rezepturen über die Kopplung von genetischen Algorithmen und AM beschrieben wird. In Kapitel 8.3 erfolgt die Auswertung der hergestellten Rezepturen und die Bewertung hinsichtlich der Erfüllung des zuvor definierten Lastenheftes, bevor der Rezepturentwicklungsprozess abschließend in Kapitel 8.4 zusammengefasst wird. Alle Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in der Zeitschrift *Polymers* veröffentlicht [SLH25c].

### 8.1 Referenzmaterial

Für den Einsatz der AM in der Rezepturentwicklung kann entweder ein beliebiges Lastenheft verschiedener Compouneigenschaften vorgegeben werden, um ein grundlegend neues Compound zu entwickeln, oder ein bestehendes Lastenheft eines bereits am Markt verfügbaren Compounds gewählt werden, um alternative Rezepturen für identische Zieleigenschaften zu entwickeln. Im Folgenden wird für die Rezepturentwicklung der zweite Ansatz gewählt und das Lastenheft eines bereits existierenden Compounds mit einer alternativen Rezeptur nachgebildet. Dabei wird als Zielmaterial für die Entwicklung neuer Rezepturen ein bestehendes und am Markt verfügbares Compound der SÜDPACK Verpackungen GmbH, Ochsenhausen, Deutschland, des Typs StarBlend® PP 012-01 R T20 N ausgewählt. Dieses wird im Spritzguss eingesetzt, besteht aus biobasiertem PP als Polymerkomponente, enthält Talkum als Füllstoff und wurde zusätzlich hinsichtlich der Schlagzähigkeit modifiziert. Damit ist es von der Grundrezeptur für den zur Verfügung stehenden Materialbaukasten aus Füllstoff mit Omyalite 50 H, Schlagzähmodifikator mit Engage 8200 und den beiden Polymeren HP548R sowie 505P und Polyvel CR5P zur gezielten Viskositätseinstellung ideal geeignet.

Als nachzustellende Compouneigenschaften werden der E-Modul, die Kerbschlagzähigkeit und die Scherviskosität gewählt. Auf die Nachbildung des MFR wird verzichtet, da die Scherviskosität für die Verarbeitung im Spritzgießprozess relevanter ist als der MFR und das AM für die Scherviskosität wesentlich genauer sind als das AM für den MFR. Die

Charakterisierung der Compouneigenschaften des Zielmaterials erfolgt analog zu den für die ursprüngliche Modellierung verwendeten Materialien. Die vorgegebenen Zielkennwerte sind in Tabelle 8.1 dargestellt.

Materialkennwert	Mittelwert				Standardabweichung	
E-Modul	2492,7 N/mm <sup>2</sup>				24,08 N/mm <sup>2</sup>	
Kerbschlagzähigkeit (23°C, 1eA)	4,45 kJ/m <sup>2</sup>				0,24 kJ/m <sup>2</sup>	
Scherrate	<b>1.632 s<sup>-1</sup></b>	<b>816 s<sup>-1</sup></b>	<b>408 s<sup>-1</sup></b>	<b>204 s<sup>-1</sup></b>	<b>102 s<sup>-1</sup></b>	<b>51 s<sup>-1</sup></b>
Scherviskosität	52,6 Pas	79,7 Pas	120,7 Pas	182,6 Pas	275,6 Pas	413,7 Pas

Tabelle 8.1: E-Modul, Kerbschlagzähigkeit und Scherviskositäten des Zielmaterials für die Rezepturentwicklung [SLH25c].

Table 8.1: Tensile modulus, impact strength and shear viscosities of the target material for compound recipe development [SLH25c].

## 8.2 Generierung neuer Rezepturen mittels genetischer Algorithmen

Die Generierung neuer Rezepturen, mit denen die Zielgrößen aus Tabelle 8.1 abgebildet werden können, und deren Herstellung für die praktische Validierung erfolgt auf der Laboranlage im Technikum des IKV. Daher werden die in Kapitel 6.1 evaluierten AM auf Basis des Datensatzes der Laboranlage verwendet. Da im Technikum nur ein Pulverdosierer für das Calciumcarbonat zur Verfügung steht, wird für die Rezepturentwicklung lediglich Omyalite 50 H verwendet, um Rezepturen mit einer Mischung beider Calciumcarbonattypen zu vermeiden.

Die AM sind in der Lage, aus vorgegebenen Rezepturen die resultierenden mechanischen und rheologischen Eigenschaften vorherzusagen. Zur Ableitung möglicher Rezepturen für vorgegebene mechanische und rheologische Zielwerte müssen die einzelnen Rezepturbestandteile systematisch variiert werden, um geeignete Rezepturen zur Reproduktion der Zielwerte zu erhalten. Hierfür stehen verschiedene Optimierungsalgorithmen zur Verfügung. Im Rahmen der in dieser Arbeit durchgeführten Versuche werden hierfür Genetische Algorithmen (GA) eingesetzt. Die ausführliche Beschreibung der Funktionsweise von GA im Kontext der Rezepturentwicklung, deren Implementierung und die detaillierte Aufschlüsselung der verwendeten Hyperparameter können der Veröffentlichung zu diesem Thema entnommen werden [SLH25c].

Grundsätzlich erfolgt die Identifikation neuer Rezepturen mittels GA und AM analog zum Training des KNN in mehreren Iterationen bzw. Epochen. Für eine Kombination der einzelnen Rezepturbestandteile werden mit den drei zuvor entwickelten AM der Elastizitätsmodul, die Kerbschlagzähigkeit sowie die Scherviskosität prognostiziert und mit den Zielwerten verglichen. Für diesen Vergleich wird mit Hilfe einer Bewertungsfunktion die Eignung dieser Rezeptur bestimmt. Durch die verschiedenen Iterationen des GA ist es das Ziel, diese sog. Fitness zu maximieren, bis entweder die maximal vorgegebene Anzahl an Iterationen erreicht ist oder ein bestimmter vorgegebener Wert für die Fitness erzielt wird. Die Bestimmung der Fitness erfolgt gemäß Gleichung 8.1 und stellt den Kehrwert der prozentualen Abweichung zwischen den Zielwerten und den mittels AM vorhergesagten Werten dar.

$$Fitness = \frac{1}{\sum PA + 10^{-6}} \quad (8.1)$$

Die Konstante von  $10^{-6}$  dient der Vermeidung einer potenziellen Division durch Null. Als maximal möglicher Rezepturanteil von Omyalite 50 H, Polyvel CR5P und Engage 8200 werden die in den Versuchsreihen des Labordatensatzes verwendeten Maximalmengen gewählt, da eine Extrapolation der AM darüber hinaus nicht untersucht wurde.

Unter Anwendung dieser Randbedingungen, der Zielgrößen aus Tabelle 8.1 sowie der Bewertungsfunktion aus Gleichung 8.1 werden drei Rezepturen für die praktische Validierung identifiziert. Dabei fällt zunächst auf, dass alle identifizierten Rezepturen den maximalen Anteil von 30 Gew.-% Omyalite 50 H verwenden. Nach den Vorhersagen des AM könnte damit nur ein E-Modul von ca. 2200 N/mm<sup>2</sup> und nicht die spezifizierten 2492,7 N/mm<sup>2</sup> erreicht werden. Um dieses Ziel zu erreichen, wäre eine weitere Erhöhung des Calciumcarbonatanteils notwendig, die aber aufgrund der Extrapolation mittels AM einerseits und der möglichen Schwierigkeiten bei der Einarbeitung des Füllstoffes mit der vorhandenen Schneckenkonfiguration andererseits nicht vergleichbar ist. Daher wird nur eine Rezeptur mit 30 Gew.-% Omyalite 50 H ausgewählt und der E-Modul der beiden anderen Rezepturen nicht weiter betrachtet. Die drei ermittelten Rezepturen sind in Bild 8.1 dargestellt.

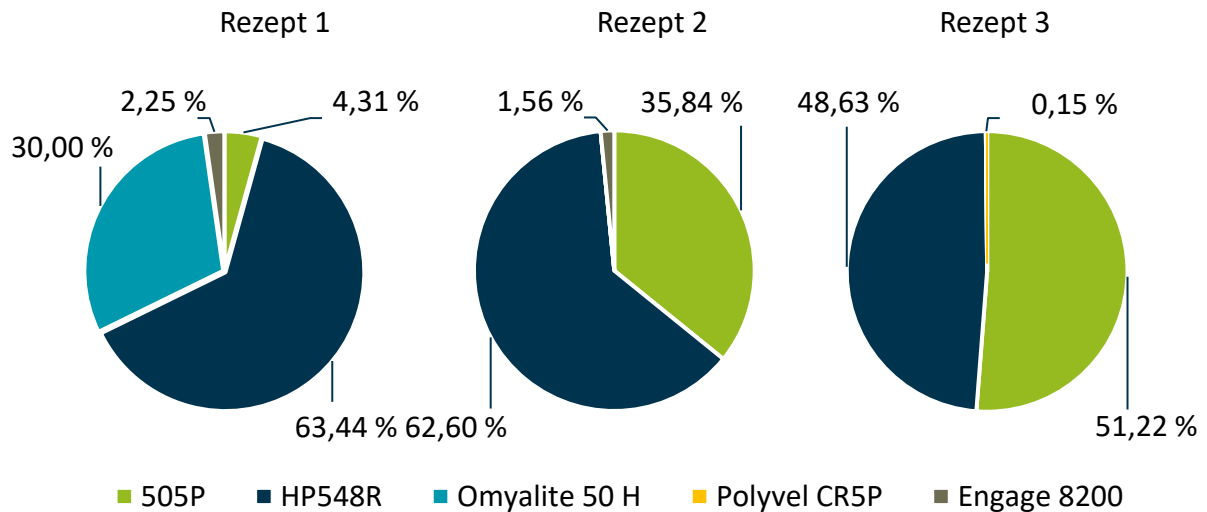


Bild 8.1: Zusammensetzung der drei identifizierten Rezepturen [SLH25c].

Fig. 8.1: Composition of the three identified compound formulations [SLH25c].

### 8.3 Praktische Validierung der identifizierten Rezepturen

Die drei in Kapitel 8.2 identifizierten Rezepturen werden auf der Laboranlage mit identischen Maschineneinstellungen und gleicher Schneckenkonfiguration wie die Versuchspunkte des Labordatensatzes hergestellt. In Bild 8.2 sind die gemessenen Scherviskositäten der identifizierten Rezepturen und des Zielcompounds abgebildet. Die MPA zwischen den einzelnen Rezepturen und der Zielrezeptur sind in Tabelle 8.2 aufgeführt.

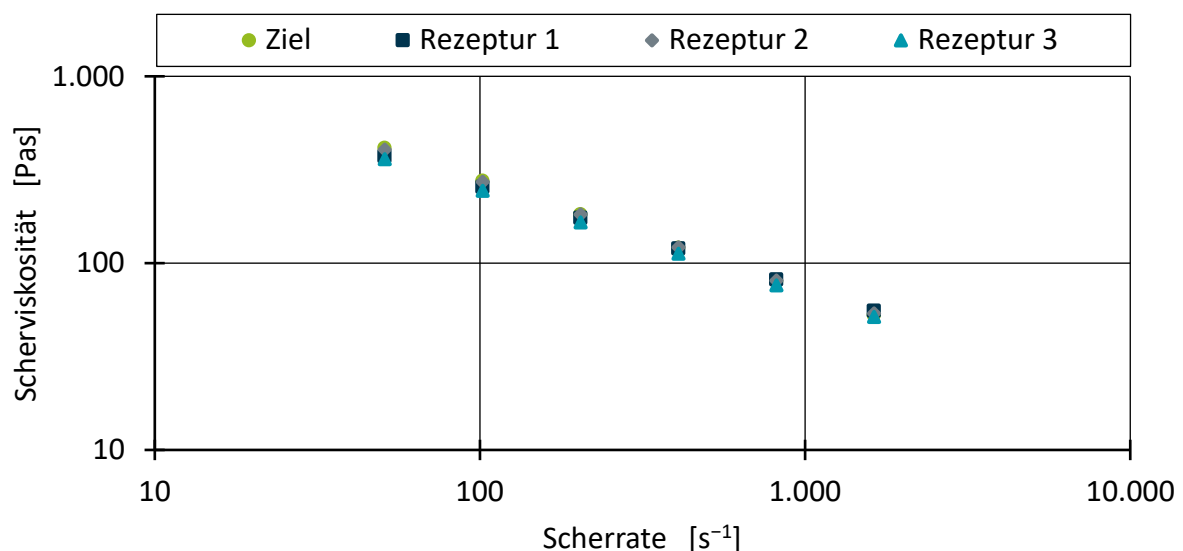


Bild 8.2: Gemessene Scherviskositäten der drei hergestellten Rezepturen und des Zielcompounds [SLH25c].

Fig. 8.2: Measured shear viscosities of the three identified formulations and the target compound [SLH25c].

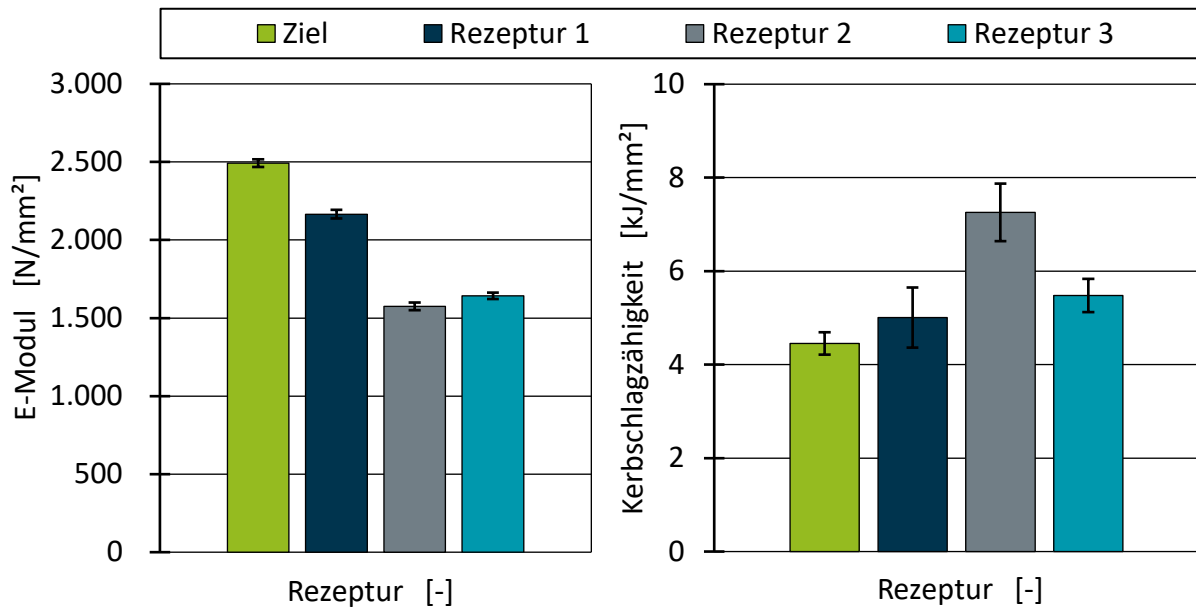
Scherrate	MPA		
	Rezeptur 1	Rezeptur 2	Rezeptur 3
51 s <sup>-1</sup>	9,8 %	1,9 %	12,8 %
102 s <sup>-1</sup>	7,1 %	1,1 %	11,3 %
204 s <sup>-1</sup>	4,1 %	0,3 %	9,3 %
408 s <sup>-1</sup>	1,0 %	0,6 %	7,0 %
816 s <sup>-1</sup>	2,4 %	1,5 %	4,5 %
1632 s <sup>-1</sup>	5,9 %	2,5 %	1,8 %

*Tabelle 8.2: MPA zwischen den Scherviskositäten der drei Rezepturen und der Zielrezeptur für die einzelnen Scherraten [SLH25c].*

*Table 8.2: MPE between the shear viscosities of the three formulations and the target formulation for the individual shear rates [SLH25c].*

Insgesamt stimmen die Scherviskositäten der drei ermittelten Rezepturen sehr gut mit den Zielviskositäten überein. Aus den MPA in Tabelle 8.2 geht hervor, dass insbesondere bei Rezeptur 1 und Rezeptur 3 die prozentualen Abweichungen bei den niedrigen Scherraten (51 s<sup>-1</sup>, 102 s<sup>-1</sup> und 204 s<sup>-1</sup>) größer sind als bei den hohen Scherraten (408 s<sup>-1</sup>, 816 s<sup>-1</sup> und 1632 s<sup>-1</sup>). Diese Beobachtung deckt sich mit den in Kapitel 6 gewonnenen Erkenntnissen, dass der Übergangsbereich vom newtonschen zum strukturviskosen Materialverhalten für die niedrigen Scherraten im betrachteten Messbereich im AM deutlich fehlerbehafteter ist und durch die überwiegend linearen Zusammenhänge im Modell schlechter abgebildet wird. Insgesamt liegt die MPA im Scherratenbereich oberhalb von 408 s<sup>-1</sup> bei max. 5,9 % für Rezeptur 1 und max. 7,0 % für Rezeptur 3. Rezeptur 2 stellt einen Ausreißer dar und entspricht mit einer maximalen Abweichung von 2,5 % nahezu ideal der vorgegebenen Scherviskositätskurve.

E-Modul und Kerbschlagzähigkeit der drei Rezepturen sind in Bild 8.3 dargestellt. Wie zuvor beschrieben, reichen die 30 % Omyalite 50 H in Rezeptur 1 nicht aus, um das Ziel von 2492,7 N/mm<sup>2</sup> zu erreichen. Mit 2165,1 N/mm<sup>2</sup> ist der E-Modul von Rezeptur 1 um 13,1 % niedriger. Der E-Modul von Rezeptur 2 und Rezeptur 3 liegt um 36,9 % bzw. 34,2 % niedriger.



*Bild 8.3: E-Modul und Kerbschlagzähigkeit der drei hergestellten Rezepturen und des Zielcompounds [SLH25c].*

*Fig. 8.3: Measured tensile modulus and impact strength of the three identified formulations and the target compound [SLH25c].*

Bei der Kerbschlagzähigkeit übertreffen alle drei Rezepturen die Zielvorgabe von 4,45 kJ/m<sup>2</sup>. Rezeptur 1 und Rezeptur 3 weichen hiervon um 12,4 % bzw. 23,0 % ab, während Rezeptur 2 mit einer Kerbschlagzähigkeit von 7,26 kJ/m<sup>2</sup> die Zielvorgabe um 63,0 % übertrifft. Diese größere Diskrepanz zwischen den erzielten Kerbschlagzähigkeiten und der Zielvorgabe kann zum Teil auf die größere Vorhersageungenauigkeit der AM bei der Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit zurückgeführt werden. Zum anderen wurde für die praktische Validierung der drei identifizierten Rezepturen eine andere Charge von Engage 8200 verwendet. Insbesondere bei Rezeptur 2, bei der neben den beiden Polymeren HP548R sowie 505P ausschließlich Engage 8200 verwendet wurde, könnte dieser Unterschied zu der Abweichung von 63,0 % geführt haben, da das AM mit der anderen Charge gefittet wurde.

#### 8.4 Bewertung des Einsatzes von AM und GA zur Rezepturentwicklung

Für die drei identifizierten Rezepturen konnte gezeigt werden, dass AM in Kombination mit GA für eine effiziente Rezepturentwicklung eingesetzt werden können. Für die vorgegebenen Scherviskositäten erfüllt Rezeptur 2 die Zielvorgabe der einzelnen Viskositätswerte mit einer maximalen Abweichung von 2,5 %, während Rezeptur 1 und Rezeptur 3 die Zielvorgabe für höhere Scherraten mit einer maximalen Abweichung von 7,0 % erfüllen. Bei der Kerbschlagzähigkeit weichen Rezeptur 1 und Rezeptur 3 um bis zu 23,0 % ab, während

Rezeptur 2 die geforderte Kerbschlagzähigkeit um 63,0 % deutlich übertrifft. Der angestrebte E-Modul von 2492,7 N/mm<sup>2</sup> konnte bei Rezeptur 1 mit 30 Gew.-% Omyalite 50 H aufgrund der Begrenzung des maximalen Füllstoffanteils nicht erreicht werden und wurde um 13,1 % unterschritten.

Für die Bewertung der hergestellten Rezepturen wurden nur die prozentualen Abweichungen von der Zielvorgabe angegeben. Eine konkrete Bewertung, bis zu welcher prozentualen Abweichung die hergestellten Rezepturen die Zielvorgabe erfüllen, muss anwendungsbezogen erfolgen und ist nicht pauschal möglich. So kann beispielsweise ein Brandowner für die Herstellung einer blasgeformten Flasche für Duschgel mit einer Zielvorgabe von 4,45 kJ/m<sup>2</sup> einen Minimalwert vorgeben, den in diesem Beispiel alle drei Rezepturen erfüllen würden. Für andere Anwendungen könnte auch ein Maximalwert vorgegeben werden, so dass keine der Rezepturen die Zielvorgaben erfüllt. Ähnliche Szenarien können sich auch für die Scherviskosität oder den E-Modul ergeben. Daher kann für dieses Beispiel über die prozentualen Abweichungen hinaus keine abschließende Bewertung der Erfüllung der Zielerfordernisse gegeben werden, ohne die Endanwendung des Compounds zu berücksichtigen.

Unabhängig davon belegt dieses praxisnahe Beispiel einer Rezepturentwicklung, dass die Kopplung der AM mit einer Optimierungsmethode wie den GA erfolgreich für eine Rezepturentwicklung eingesetzt werden kann. Am Beispiel des E-Moduls zeigt sich, dass diese Methodik nur dann zum Ziel führen kann, wenn die Zielvorgaben für das Compound innerhalb der Machbarkeitsgrenzen mit den zur Verfügung stehenden Rezepturkomponenten liegen.

## 9 Fazit und Ausblick

Ziel der vorliegenden Untersuchung war die Entwicklung eines neuen Modellierungsansatzes zur Vorhersage der mechanischen und rheologischen Eigenschaften von PP-Compounds in Abhängigkeit von deren Rezepturzusammensetzung. Zu diesem Zweck wurde eine beispielhafte Rezeptur identifiziert, anhand derer der neue Modellierungsansatz getestet wird. Die untersuchten Rezepturbestandteile umfassen zwei homopolymere PP-Typen, zwei Calciumcarbonate unterschiedlicher Feinheit, einen Schlagzähmodifikator sowie ein peroxidhaltiges Masterbatch zur gezielten Modifikation der Fließfähigkeit. Auf einem Labor-Doppelschneckenextruder wurden Compounds mit den beiden PP-Typen und jeweils einem der Füllstoffe bzw. Additive hergestellt. Für eine spätere Übertragung der zu entwickelnden Modelle erfolgten identische Versuche an einer Doppelschnecke im Industriemaßstab. Zur Evaluierung der Modelle in der Praxis wurden auf der Industrieanlage auch Rezepturen hergestellt, bei denen alle Rezepturbestandteile gleichzeitig eingesetzt wurden. Als Zielgrößen für die Modellierung werden der E-Modul, die Kerbschlagzähigkeit, die Scherviskosität sowie der MFR der hergestellten Compounds bestimmt.

Die Methodik zur Ableitung der AM stellt einen neuartigen Modellierungsansatz dar, der sich zwischen etablierten Mischregeln und KNN einordnet und deren individuelle Vorteile kombiniert. In einem ersten Schritt wurde die Rezeptur als Blend der beiden Ausgangspolymere betrachtet, wobei die Compouneigenschaften mittels einer Mischungsregel vorhergesagt wurden. Die weiteren Rezepturbestandteile wurden separat modelliert und ihr Einfluss auf Basis der berechneten Blend-Eigenschaften bestimmt. Schließlich wurden alle Komponenten zusammengeführt, um die endgültige Vorhersage der Compouneigenschaften zu ermöglichen. Dieses Vorgehen wurde für die auf der Laboranlage produzierten Compounds für alle vier Zielgrößen (E-Modul, Kerbschlagzähigkeit, Scherviskosität und MFR) angewandt.

Die Validierung des Modells am Datensatz der Laboranlage zeigt eine hohe Vorhersagegenauigkeit für Scherviskosität und E-Modul, während die Modelle für Kerbschlagzähigkeit und MFR noch Optimierungspotenzial aufweisen. Insbesondere im strukturviskosen Scherratenbereich bei Scherraten größer  $204 \text{ s}^{-1}$  können beispielsweise für die Datensätze der Laboranlage mit Vorhersagefehlern von maximal 4 % genauere Vorhersagen erzielt werden als im Übergangsbereich zwischen newtonschem und

strukturviskosem Materialverhalten unterhalb  $204 \text{ s}^{-1}$  mit Vorhersagefehlern bis zu 13,2 %. Die Übertragung des Modells auf den Datensatz der Industrieanlage erweist sich als erfolgreich, da die Vorhersagegenauigkeiten für beide Anlagen vergleichbar sind. Komplexere Rezepturen, die alle Additive und Füllstoffe kombinieren, führen insbesondere bei der Kerbschlagzähigkeit zu höheren Modellabweichungen, was auf vernachlässigte Wechselwirkungen zurückzuführen ist. Für die Vorhersage der Scherviskosität und des E-Moduls sind die entwickelten Modelle dagegen nur unwesentlich ungenauer.

Die entwickelten Modelle wurden anschließend mit KNN verglichen. Hierbei wurden umfangreiche Hyperparameteroptimierungen durchgeführt, um eine bestmögliche Anpassung der KNN an die Datensätze zu gewährleisten. Während die analytischen Modelle mit maximal 14 freien Parametern eine vergleichbare Genauigkeit für die Vorhersage des E-Moduls und der Scherviskosität erreichen, benötigen die KNN-Modelle bis zu 30.000 Parameter. Dafür liefern die KNN gegenüber den AM mit maximal 7,7 % MPA gegenüber 14,2 % für den MFR bzw. 6,4 % gegenüber 12,3 % Vorhersagefehler für die Kerbschlagzähigkeit präzisere Vorhersagen.

In einem praxisnahen Validierungsschritt wurden die analytischen Modelle in Kombination mit genetischen Algorithmen zur Rezepturentwicklung eingesetzt. Die experimentell verifizierten Rezepturen zeigen, dass die analytischen Modelle erfolgreich zur zielgerichteten Rezepturentwicklung eingesetzt werden können.

Die Ergebnisse dieser Arbeit zeigen, dass der Modellierungsansatz der analytischen Modelle eine sehr gute Alternative zu der Modellierung mit Mischungsregeln oder maschinellen Lernmethoden wie KNN darstellt. Für das untersuchte Beispiel einer PP-Formulierung mit Calciumcarbonat als Füllstoff und den beiden Additiven zur gezielten Modifikation der Fließfähigkeit und Kerbschlagzähigkeit ermöglichen sie eine genaue und nachvollziehbare Vorhersage der mechanischen und rheologischen Eigenschaften. Allerdings zeigen sich gerade bei der Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit die Grenzen dieses pragmatischen Modellierungsansatzes. Wechselwirkungen zwischen einzelnen Rezepturbestandteilen werden im derzeitigen Modellierungsansatz bewusst nicht berücksichtigt und können für das untersuchte Rezepturbeispiel einen relevanten Einfluss haben. Daher sollte der Modellierungsansatz der analytischen Modelle in zukünftigen Untersuchungen durch eine mögliche Integration weiterer Teilmodelle zur Berücksichtigung dieser Wechselwirkungen erweitert werden.

Während in der vorliegenden Arbeit der Fokus auf einer PP-Rezeptur lag, sollte in zukünftigen Arbeiten auch die Anwendbarkeit dieser Methodik für andere Polymerklassen und Rezepturbestandteile evaluiert werden. Insbesondere im Bereich der technischen Thermoplaste können für eine gezielte Rezepturentwicklung, z.B. für eine Anwendung im Automobilbereich, auch andere Kunststoffe sowie Fasern als Verstärkungskomponenten berücksichtigt werden.

Weiterhin kann die Anwendbarkeit des Modellierungsansatzes auch für andere Zieleigenschaften von Compounds untersucht werden. Neben optischen Eigenschaften (z. B. konkrete Farbwerte eines Compounds) sollte auch die Anwendbarkeit für Eigenschaften wie der UV-Stabilisierung eines Compounds oder Flammschutzkennwerte untersucht werden.

## 10 Zusammenfassung und Summary

### 10.1 Zusammenfassung

Die Entwicklung neuer Kunststoffcompounds erfolgt in der industriellen Praxis zumeist empirisch und iterativ. Bestehende modellbasierte Ansätze wie Mischungsmodelle oder maschinelle Lernverfahren sind entweder nur eingeschränkt auf komplexe Rezepturen anwendbar oder erfordern eine große Datenbasis. Ziel dieser Arbeit ist es, einen alternativen Modellierungsansatz zu entwickeln, der auch für komplexe Rezepturen geeignet ist und mit vergleichsweise wenigen experimentellen Daten auskommt.

Anhand einer beispielhaften PP-Rezeptur für eine Verpackungsanwendung wird ein neuartiger analytischer Modellierungsansatz zur Vorhersage des E-Moduls, der Scherviskosität, des MFR sowie der Kerbschlagzähigkeit untersucht. Für diesen Modellierungsansatz werden die Einzeleffekte des Blendens der Ausgangspolymere sowie der Zugabe der weiteren Rezepturbestandteile isoliert voneinander betrachtet, modelliert und anschließend zu einem Gesamtmodell zusammengeführt. Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Rezepturbestandteilen werden hierbei nicht berücksichtigt. Neben der Validierung der entwickelten Modelle anhand hergestellter Rezepturen auf einer Laboranlage wird auch die Übertragbarkeit auf eine industrielle Anlage untersucht. Dabei zeigt sich, dass die Modelle auch im Scale-up ähnliche Vorhersagegenauigkeiten erzielen. Auch für komplexere Rezepturen, bei denen alle Rezepturbestandteile gleichzeitig eingesetzt werden und die vom ursprünglichen Trainingsdatensatz abweichen, erweisen sich die Modelle als geeignet. Lediglich bei der Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit zeigt sich, dass die nicht berücksichtigten Wechselwirkungen zwischen den eingesetzten Additiven zu einer Verschlechterung der Vorhersagegenauigkeit führen.

Schließlich wird das entwickelte Modell anhand eines industriellen Fallbeispiels zur gezielten Rezepturentwicklung eingesetzt. In Kombination mit genetischen Algorithmen können neue PP-Rezepturen vorhergesagt werden, die die gewünschten mechanischen und rheologischen Eigenschaften erfüllen. Die experimentelle Validierung der identifizierten Rezepturen bestätigte die Praxistauglichkeit des Ansatzes.

Zukünftige Arbeiten sollten insbesondere die Erweiterung der Methodik zur Berücksichtigung von Wechselwirkungen zwischen den Rezepturbestandteilen sowie die Anwendbarkeit auf andere Polymertypen und Compouneigenschaften untersuchen.

## 10.2 Summary

In industrial practice, the methodology used to develop new plastic compounds is commonly characterised by an empirical and iterative approach. Existing model-based approaches such as mixture models or machine learning methods are either only applicable to simple formulations with few different formulation components or require a large database. The aim of this work is to develop an alternative modelling approach that is also suitable for complex formulations and requires comparatively little experimental data.

Using an exemplary PP formulation for a packaging application, a novel analytical modelling approach for predicting the modulus of elasticity, shear viscosity, MFR and notched impact strength is investigated. For this modelling approach, the individual effects of the blending of polymers and the addition of the other formulation components are considered in isolation from each other, modelled and then combined to form an overall model. Interactions between the individual formulation components are not taken into account. In addition to validating the developed models using formulations produced on a laboratory plant, the transferability to an industrial plant is analysed. This illustrates that the models achieve similar prediction accuracies even when scaled up. The models also proved to be suitable for more complex formulations where all components are used simultaneously and which differ from the original training data set. It is only when predicting notched impact strength that the unconsidered interactions between the additives used lead to a deterioration in prediction accuracy.

Finally, the developed model is used for targeted formulation development based on an industrial case study. In combination with genetic algorithms, new PP formulations can be predicted that meet the desired mechanical and rheological properties. Experimental validation of the identified formulations confirmed the practical applicability of the approach.

Future work should investigate the extension of the methodology to take into account interactions between formulation components and the applicability to other polymer types and compound properties.

## 11 Abkürzungen, Formelzeichen, Indizes

### 11.1 Abkürzungen

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
AM	Analytisches Modell
DNN	Deep Neural Network
E-Modul	Elastizitätsmodul
EOC	Ethylen-Octen-Copolymer
EPM	Ethylen-Propylen-Copolymer
EPDM	Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuk
GA	Genetische Algorithmen
GNN	Graph Neural Network
GPC	Gelpermeationschromatographie
HDPE	High-Density Polyethylen
HKR	Hochdruckkapillarrheometer
KI	Künstliche Intelligenz
KNN	Künstliches Neuronales Netz
ML	Maschinelle Lernmethode
MAA	Mittlere absolute Abweichung
MPA	Mittlere prozentuale Abweichung
MQA	Mittlere quadratische Abweichung
MLR	Multiple Lineare Regression
OIT	Oxygen-Induction-Time
PE	Polyethylen
PIB	Polyisobutan
PDMS	Polydimethylsiloxan
PP	Polypropylen
PVB	Polyvinylbutyral
PVC	Polyvinylchlorid
PA	Polyamid
RF	Random Forest
RVM	Relevance Vector Machine
MFR	Schmelze-Massefließrate

SEBS	Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymer
SVM	Support Vector Machine
SR	Symbolisches Regressionsmodell
UV	Ultraviolettstrahlung
R <sup>2</sup>	Bestimmtheitsmaß

## 11.2 Formelzeichen

Formelzeichen	Einheit	Bedeutung
<i>A</i>	[-]	Additiv
<i>A</i>	[Pas]	Parameter des Carreau-Modells
<i>B</i>	[s]	Parameter des Carreau-Modells
<i>C</i>	[-]	Parameter des Carreau-Modells
<i>D</i>	[mm]	Durchmesser
<i>E</i>	[N/mm <sup>2</sup> ]	E-Modul
<i>F</i>	[-]	Füllstoff
<i>Fitness</i>	[-]	Bewertungskriterium der genetischen Algorithmen
<i>I</i>	[N/mm <sup>2</sup> ]	Achsenabschnitt
<i>I</i>	[g/10 min]	Achsenabschnitt
<i>I</i>	[Pas]	Achsenabschnitt
<i>I</i>	[kJ/m <sup>2</sup> ]	Achsenabschnitt
<i>L</i>	[g/10 min]	Fehler des Mischungsmodells
<i>MFR</i>	[g/10 min]	Schmelzeflussrate
<i>PA</i>	[-]	Prozentuale Abweichung
<i>W</i>	[kJ/m <sup>2</sup> ]	Kerbschlagzähigkeit
<i>X</i>	[-]	Eingangsdatenvektor
<i>Y</i>	[-]	Ausgangsdatenvektor
<i>Y</i>	[-]	Beliebige Compouneigenschaft
<i>a</i>	[-]	Aktivierungsfunktion
<i>a</i>	[-]	Modellparameter
<i>b</i>	[-]	Bias
<i>b</i>	[-]	Modellparameter
<i>c</i>	[-]	Modellparameter

$d$	[-]	Modellparameter
$\Delta$	[-]	Einfluss eines einzelnen Additivs oder Füllstoffs
$e$	[-]	E-Funktion
$f$	[-]	Mischungsmodell
$\dot{\gamma}$	[s <sup>-1</sup> ]	Scherrate
$i$	[-]	Laufvariable
$\ln$	[-]	Natürlicher Logarithmus
$m$	[N/mm <sup>2</sup> ]	Geradensteigung
$m$	[g/10 min]	Geradensteigung
$m$	[Pas]	Geradensteigung
$m$	[kJ/m <sup>2</sup> ]	Geradensteigung
max	[-]	Maximum
min	[-]	Minimum
$n$	[-]	Exponent
$n$	[-]	Anzahl der Proben in einer Messreihe
$p$	[-]	Modellparameter
$q$	[-]	Koeffizient
$R^2$	[-]	Bestimmtheitsmaß
$s$	[-]	Geradensteigung
$\dot{V}$	[kg/h]	Massendurchsatz
$w$	[-]	Gewichtungsfaktor
$x$	[-]	Gewichtsbezogener Anteil einer Komponente in der Gesamtrezeptur
$y$	[-]	Modellvorhersage
$\hat{y}$	[-]	Messwert
$\bar{y}$	[-]	Mittelwert der Messwerte
$z$	[-]	Output eines Neurons
$\eta$	[Pas]	Scherviskosität
$\phi$	[-]	Volumetrischer Anteil einer Komponente

### 11.3 Indizes

<b>Index</b>	<b>Bedeutung</b>
0	Compouneigenschaft des Blends ohne Füllstoff oder Additiv
1, <i>E</i>	Parameter 1, E-Modul betreffend
1, <i>MFR</i>	Parameter 1, MFR betreffend
1, $\eta$	Parameter 1, Scherviskosität betreffend
2, <i>E</i>	Parameter 2, E-Modul betreffend
2, <i>MFR</i>	Parameter 2, MFR betreffend
2, $\eta$	Parameter 2, Scherviskosität betreffend
50 <i>H</i>	Calciumcarbonat Omyalite 50 H
50 <i>H</i> , <i>MFR</i>	Calciumcarbonat Omyalite 50 H, MFR betreffend
50 <i>H</i> , $\eta$	Calciumcarbonat Omyalite 50 H, Scherviskosität betreffend
50 <i>H</i> , <i>E</i>	Calciumcarbonat Omyalite 50 H, E-Modul betreffend
505 <i>P</i>	Polymer des Typs 505P
95 <i>T</i>	Calciumcarbonat Omyalite 95 T
95 <i>T</i> , <i>MFR</i>	Calciumcarbonat Omyalite 95 T, MFR betreffend
95 <i>T</i> , $\eta$	Calciumcarbonat Omyalite 95 T, Scherviskosität betreffend
95 <i>T</i> , <i>E</i>	Calciumcarbonat Omyalite 95 T, E-Modul betreffend
<i>A</i>	Material A
<i>B</i>	Material B
<i>Blend</i>	Compouneigenschaft des Blends
<i>CR5P</i>	Additiv Polyvel CR5P
<i>CR5P</i> , <i>E</i>	Additiv Polyvel CR5P, E-Modul betreffend
<i>CR5P</i> , <i>MFR</i>	Additiv Polyvel CR5P, MFR betreffend
<i>CR5P</i> , <i>W</i>	Additiv Polyvel CR5P, Kerbschlagzähigkeit betreffend
<i>E</i>	E-Modul
<i>Engage</i> 8200, <i>W</i>	Additiv Engage 9200, Kerbschlagzähigkeit betreffend
<i>Engage</i> 9200	Additiv Engage 9200
<i>Engage</i> 9200, <i>E</i>	Additiv Engage 9200, E-Modul betreffend
<i>Gesamt</i>	Gesamtcompound
<i>HP548R</i>	Polymer des Typs HP548R

---

<i>Labor</i>	Laboranlage
<i>PP 1</i>	Polypropylen 1
<i>PP 2</i>	Polypropylen 2
<i>Produktion</i>	Produktionsanlage
<i>W</i>	Kerbschlagzähigkeit
<i>i</i>	Index einer einzelnen Messung
<i>i</i>	Index eines einzelnen Neurons
<i>j</i>	Index eines einzelnen Neurons

## 12 Literatur

- [AAH18] ALTARAZI, S.; AMMOURI, M.; HIJAZI, A.: Artificial neural network modeling to evaluate polyvinylchloride composites' properties. *Computational Materials Science* 153 (2018), S. 1-9
- [AG04] AZIZI, H.; GHASEMI, I.: Reactive extrusion of polypropylene: production of controlled-rheology polypropylene (CRPP) by peroxide-promoted degradation. *Polymer Testing* 23 (2004) 2, S. 137-143
- [Arr87] ARRHENIUS, S.: Über die innere Reibung verdünnter wässriger Lösungen. *Zeitschrift für Physikalische Chemie* 1U (1887) 1, S. 285-298
- [AS02] ABU-ZAHRA, N.H.; SETH, A.: In-process density control of extruded foam PVC using wavelet packet analysis of ultrasound waves. *Mechatronics* 12 (2002) 9-10, S. 1083-1095
- [ASY+19] AKIBA, T.; SANO, S.; YANASE, T.; OHTA, T.; KOYAMA, M.: Optuna: A Next-generation Hyperparameter Optimization Framework. *Proceedings of the 25th ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery & Data Mining* (2019), S. Anchorage, AK, USA
- [Bab18] BABS, T.: *The Mathematics of Neural Networks*. URL: <https://medium.com/coinmonks/the-mathematics-of-neural-network-60a112dd3e05>, 09.04.2025
- [Bag57] BAGLEY, E.B.: End Corrections in the Capillary Flow of Polyethylene. *Journal of Applied Physics* 28 (1957) 5, S. 624-627
- [Bar13] BARTH, J.: *Kombinatorisches Compoundieren und mechanische Online-Prüfung*. Technische Universität Dresden, Dissertation, 2013
- [BBO+13] BAUR, E.; BRINKMANN, S.; OSSWALD, T.A.; RUDOLPH, N.; SAECHTLING, H.: *Saechting Kunststoff Taschenbuch*. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, 2013
- [Bie24] BIERMANN, L.: *Persönliche Mitteilung*. Krauss Maffei Extrusion GmbH, Laatzen, 20.08.2024
- [Bin14] BINGHAM, E.C.: The Viscosity of Binary Mixtures. *The Journal of Physical Chemistry* 18 (2002) 2, S. 157-165
- [BKK+23] BURLAC, B.; KOMMENDA, M.; KRONBERGER, G.; WINKLER, S.M.; AFFENZELLER, M.: Symbolic Regression in Materials Science: Discovering Interatomic Potentials from Data. In: Springer Nature Singapore (Hrsg.): *Genetic Programming Theory and Practice XIX*, 2023
- [Bon09] BONNET, M.: *Kunststoffe in der Ingenieursanwendung: Verstehen und zuverlässig auswählen*. Wiesbaden: Vieweg & Teubner, 2009
- [Bot18] BOTCHKAREV, A.: Evaluating Performance of Regression Machine Learning Models Using Multiple Error Metrics in Azure Machine Learning Studio. *SSRN Electronic Journal* (2018)
- [BR23] BEZZINA, C.M.; REFALO, P.: Fused Filament Fabrication and Injection Moulding of Plastic Packaging: An Environmental and Financial Comparative Assessment. *Machines* 11 (2023) 634
- [CASM18] CANGUSSÚ, M.E.; AZEREDO, A.P.; SIMANKE, A.G.; MONRABAL, B.: Characterizing Long Chain Branching in Polypropylene. *Conference on Polyolefin Characterization (ICPC 2016)*. Shanghai, China, 2018
- [CNWZ23] CHONG, S.S.; NG, Y.S.; WANG, H.-Q.; ZHENG, J.-C.: Advances of machine learning in materials science: Ideas and techniques. *Frontiers of Physics* 19 (2023) 1, S. 1-40
- [CP76] CORAN, A.Y.; PATEL, R.: Predicting Elastic Moduli of Heterogeneous Polymer Composites. *Journal of Applied Science* 20 (1976), S. 3005-3016
- [Cra33] CRAGOE, C.S.: Changes in the viscosity of liquids with temperature, pressure and composition. *1st World Petroleum Congress*. London, UK, 1933
- [CRN22] CERDA-FLORES, S.C.; ROJAS-PUNZO, A.A.; NÁPOLES-RIVERA, F.: Applications of Multi-Objective Optimization to Industrial Processes: A Literature Review. *Processes* 10 (2022) 1

- [CWC+16] CHI, L.; WANG, J.; CHU, T.; QIAN, Y.; YU, Z.; WU, D.; ZHANG, Z.; JIANG, Z.; LECKIE, J.O.: Modeling and optimizing the performance of PVC/PVB ultrafiltration membranes using supervised learning approaches. *RSC Advances* 6 (2016) 33, S. 28038-28046
- [CWW+22] CAI, R.; WANG, K.; WEN, W.; PENG, Y.; BANASSADI, M.; AHZI, S.: Application of machine learning methods on dynamic strength analysis for additive manufactured polypropylene-based composites. *Polymer Testing* 110 (2022) 107580
- [Dav71] DAVIES, W.E.A.: The theory of elastic composite materials. *Journal of Applied Physics* 4 (1971), S. 1325-1339
- [DHM22] DAHLMANN, R.; HABERSTROH, E.; MENGES, G.: *Menges Werkstoffkunde Kunststoffe*. München: Carl Hanser Verlag, 2022
- [FB14] FAHRANG, L.; BAGHERI, R.: Investigation of Toughening Micro-Mechanisms in Polypropylene/Ethylene-Propylene-Diene Rubber Blends at Crack and Notch Tips. *Materials Performance and Characterization* 3 (2014) 3, S. 1-20
- [FGM+12] FAZILAT, H.; GHATARBAND, M.; MAZINANI, S.; ASADI, Z.A.; SHIRI, M.E.; KALAEI, M.R.: Predicting the mechanical properties of glass fiber reinforced polymers via artificial neural network and adaptive neuro-fuzzy inference system. *Computational Materials Science* 58 (2012), S. 31-37
- [FKG+13] FISCHES, M.K.; KAZMER, D.; GAO, R.; GORDON, G.W.; FAN, Z.; ASADIZNAJANI, N.: Verification of rheological mixing rules to the application of masterbatches. *Proceedings of SPE Annual Technical Conference (ANTEC)*. Cincinnati, Ohio, USA, 2013
- [FP75] FRIEDMAN, E.M.; PORTER, R.S.: Polymer Viscosity-Molecular Weight Distribution Correlations via Blending: For High Molecular Weight Poly(dimethyl Siloxanes) and for Polystyrenes. *Transactions of the Society of Rheology* 19 (1975) 4, S. 493-508
- [Fra23] FRANKEN, S.: *Experimentelle Analyse der mechanischen und rheologischen Eigenschaften von Rezyklat-Neuware-Compounds*. Institut für Kunststoffverarbeitung an der RWTH Aachen, unveröffentlichte Bachelorarbeit, 2023 - Betreuer: L. Seifert
- [FSDB25] FIOSINA, J.; SIEVERS, P.; DRACHE, M.; BEUERMANN, S.: Machine learning supported evolutionary optimization for multi-objective reverse engineering of radical polymerizations. *Computers & Chemical Engineering* (2025)
- [Gad23] GAD, A.F.: PyGAD: an intuitive genetic algorithm Python library. *Multimedia Tools and Applications* 83 (2023), S. 58029-58042
- [GB10] GLOROT, X.; BENGIO, Y.: Understanding the difficulty of training deep forward neural networks. *International Conference on Artificial Intelligence and Statistics*. Chia Laguna, Italien, 2010
- [GBCB16] GOODFELLOW, I.; BENGIO, Y.; COURVILLE, A.; BACH, F.: Optimization for Training Deep Models. In: MIT Press (Hrsg.): *Deep Learning*. Cambridge, Massachusetts, USA, 2016
- [GBI00] GRIZZUTI, N.; BUONOCORE, G.; IORIO, G.: Viscous behavior and mixing rules for an immiscible model polymer blend. *Journal of Rheology* 44 (2000) 1, S. 149-164
- [Gér22] GÉRON, A.: *Hands-On Machine Learning with Scikit-Learn, Keras, and Tensorflow*. Sebastopol, Kailifornien, USA: O'Reilly, 2022
- [GL12] GAO, Y.; LI, K.: New models for calculating the viscosity of mixed oil. *Fuel* 95 (2012), S. 431-437
- [GLF17] GREIF, H.; LIMPER, A.; FATTMAN, G.: *Technologie der Extrusion*. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. Kg, 2017
- [Gre96] GREFENSTEIN, A.: *Reaktive Extrusion und Aufbereitung*. München: Carl Hanser Verlag, 1996
- [HB78] HERRMANN, H.; BURKHARDT, U.: Vergleichende Analyse dichtkämmender Gleich- und Gegendroll-Doppelschnecken. *Österreichische Kunststoff-Zeitschrift, Sonderheft Kunststoffkolloquium Leoben* (1978), S. 11-22

- [HBM94] HOPE, P.S.; BONNER, J.G.; MILES, A.F.: A study of compatibilisers for recovering the mechanical properties of recycled polythylenes. *Plast. Rubber Compos. Process Appl.* 22 (1994) 3, S. 147-158
- [HK76] HALPIN, J.C.; KARDOS, J.L.: The Halpin-Tsai equations: A review. *Polymer Engineering and Science* 16 (1976) 5, S. 344-352
- [HL04] HALEY, J.C.; LODGE, T.P.: A framework for predicting the viscosity of miscible polymer blends. *Journal of Rheology* 463 (2004) 48
- [HM15] HOPMANN, C.; MICHAELI, W.: *Einführung in die Kunststoffverarbeitung*. München: Carl Hanser Verlag & GmbH & Co. KG, 2015
- [HM16] HOPMANN, C.; MICHAELI, W.: *Extrusion Dies for Plastics and Rubber*. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, 2016
- [Höl24] HÖLZEL, M.: *Persönliche Mitteilung*. Coperion GmbH, Stuttgart 24.01.2024
- [HTF09] HASTIE, T.; TIBSHIRANI, R.; FRIEDMAN, J.: *The Elements of Statistical Learning*. New York, USA: Springer, 2009
- [HZRS15] HE, K.; ZHANG, X.; REN, S.; SUN, J.: Delving Deep into Rectifiers: Surpassing Human-Level Performance on ImageNet Classification. *IEEE International Conference on Computer Vision Santiago*. Santiago, Chile, 2015
- [JPK+22] JOO, C.; PARK, H.; KWON, H.; LIM, J.; SHIN, E.; CHO, H.; KIM, J.: Machine Learning Approach to Predict Physical Properties of Polypropylene Composites: Application of MLR, DNN, and Random Forest to Industrial Data. *Polymers* 14 (2022) 17
- [JRRB13] JAYABAL, S.; RAJAMUNESWARAN, S.; RAMPRASATH, R.; BALAJI, N.S.: Artificial Neural Network Modeling of Mechanical Properties of Calcium Carbonate Impregnated Coir-Polyester Composites. *Transactions of the Indian Institute of Metals* 66 (2013) 3, S. 247-255
- [JWHT21] JAMES, G.; WITTEN, D.; HASTIE, T.; TIBSHIRANI, R.: Resampling Methods. In: Springer (Hrsg.): *An Introduction to Statistical Learning*. New York, USA, 2021
- [JXLL12] JIANG, H.; XIAO, Y.; LI, J.; LIU, X.: Prediction of the Melt Index Based on the Relevance Vector Machine with Modified Particle Swarm Optimization. *Chemical Engineering & Technology* 35 (2012) 5, S. 819-826
- [Kai11] KAISER, W.: *Kunststoffchemie für Ingenieure*. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, 2011
- [KB15] KINGMA, D.P.; BA, J.L.: Adam: A Method for Stochastic Optimization. *3rd International Conference on Learning Representations, San Diego, USA, 2015*
- [KB19] KLOZINSKI, A.; BARCZEWSKA, M.: Comparison of off-line, on-line and in-line measuring techniques used for determining the rheological characteristics of polyethylene composites with calcium carbonate. *Polimery* 64 (2019) 2, S. 83-92
- [KBR19] KOHLGRÜBER, K.; BIERDEL, M.; RUST, H.: *Polymer-Aufbereitung und Kunststoff-Compoundierung*. München: Carl Hanser Verlag, 2019
- [KDK+17] KAMLEITNER, F.; DUSCHER, B.; KOCH, T.; KNAUS, S.; ARCHODOULAKI, V.-M.: Long chain branching as an innovative up-cycling process of polypropylene post-consumer waste - Possibilities and limitations. *Waste Management* 68 (2017), S. 32-37
- [KHDK17] KASEEM, M.; HAMAD, K.; DERI, F.; KO, Y.G.: Effect of Wood Fibers on the Rheological and Mechanical Properties of Polystyrene/Wood Composites. *Journal of Wood Chemistry and Technology* 37 (2017) 4, S. 251-260
- [Kin10] MCKINNEY, W.: Data Structures for Statistical Computing in Python. *PROC. OF THE 9th PYTHON IN SCIENCE CONF.* Austin, Texas, USA, 2010
- [KJ18] KLOZINSKI, A.; JAKUBOWSKA, P.: The Application of an Extrusion Slit Die in the Rheological Measurements of Polyethylene Composites with Calcium Carbonate Using an In-line Rheometer. *Polymer Engineering and Science* 59 (2018) 2, S. 16-24

- [KLA+23] KAMARUDIN, S.N.H.; LAU, K.Y.; AHMAD, N.A.; AZRIN, N.A.; GHANI, A.B.A.; ARIFIN, N.A.N.: *Effect of Elastomer Content on AC Breakdown Performance of PP Blends*. IEEE, Putrajaya, Malaysia, 2023
- [Kle11] KLEPPMANN, W.: *Taschenbuch Versuchsplanung - Produkte und Prozesse optimieren*. München: Carl Hanser Verlag, 2011
- [Kle14] KLEIN, B.: *Versuchsplanung - DoE: Einführung in die Taguchi/Shainin-Methodik*. Oldenburg: De Gruyter, 2014
- [KM17] KENDALL, J.; MONROE, K.P.: The Viscosity of Liquids. II. The Viscosity-Composition Curve for Ideal Liquid Mixtures.1. *Journal of the American Chemical Society* 39 (2002) 9, S. 1787-1802
- [Koh16] KOHLGRÜBER, K.: *Der Gleichläufige Doppelschneckenextruder: Grundlagen, Technologie, Anwendungen*. München: Carl Hanser Verlag, 2016
- [Kol97] KOLARIK, J.: Three-Dimensional Models for Predicting the Modulus and Yield Strength of Polymer Blends, Foams, and Particulate Composites. *Polymer Composites* 18 (1997) 4, S. 433-441
- [KSJ+22] KLOZINSKI, A.; SZCZEPANSKA, M.; JAKUBOWSKA, P.; SAMUJILO, B.; BARCZEWSKA, M.; LOTA, G.: The influence of calcium carbonate and its modifications on the extrusion process and selected properties of polypropylene cast films. *Polimery* 67 (2022) 10
- [KWLZ24] KNEIDINGER, C.; WAGNER, E.; LANGAUER, M.; ZITZENBACHER, G.: Estimation of the Shear Viscosity of Mixed-Polymer Materials for Screw Extrusion-Based Recycling Process Modeling. *Polymers (Basel)* 16 (2024) 10
- [LBG+22] LOPEZ-GARCIA, P.; BARRENETXEA, X.; GARCÍA-ARRIETA, S.; SEDANO, I.; PALENZUELA, L.; USATORRE, L.: *Compounding process optimization for recycled materials using machine learning algorithms*. 2022
- [LH21] LOCKNER, Y.; HOPMANN, C.: Induced network-based transfer learning in injection molding for process modelling and optimization with artificial neural networks. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology* 112 (2021) 11-12, S. 3501-3513
- [LHZ22] LOCKNER, Y.; HOPMANN, C.; ZHAO, W.: Transfer learning with artificial neural networks between injection molding processes and different polymer materials. *Journal of Manufacturing Processes* 73 (2022), S. 395-408
- [LKS06] LEE, H.; KIM, D.H.; SON, Y.: Effect of Octene Content in Poly(ethylene-co-1-octene) blends. *Journal of Applied Polymer Science* 103 (2006) 2, S. 1133-1139
- [LM00] LODGE, T.P.; MCLEISH, T.C.B.: Self-concentrations and effective glass transition temperatures in polymer blends. *Macromolecules* 33 (2000), S. 5278-5284
- [LWH02] LIU, C.; WANG, J.; HE, J.: Rheological and thermal properties of m-LLDPE blends with m-HDPE and LDPE. *Polymers* 32 (2002)
- [MBS+23] MERCHANT, A.; BATZNER, S.; SCHOENHOLZ, S.S.; AYKOL, M.; CHEON, G.; CUBUK, E.D.: Scaling deep learning for materials discovery. *Nature* 624 (2023) 7990, S. 80-85
- [Mel24] MELIA, H.: *Wie KI bei der Entwicklung von Rezyklatcompounds unterstützt*. URL: <https://www.plastverarbeiter.de/verarbeitungsverfahren/kunststoffrecycling/wie-ki-bei-der-entwicklung-von-rezyklatcompounds-unterstuetzt-956.html>, 09.01.2025
- [MM17] MAZZANTI, V.; MOLLIKA, F.: In-Process Measurements of Flow Characteristics of Wood Plastic Composites. *Journal of Polymers and the Environment* 25 (2017), S. 1044-1050
- [MPNO24] MILLER, C.; PORTLOCK, T.; NYAGA, D.M.; O'SULLIVAN, J.M.: A review of model evaluation metrics for machine learning in genetics and genomics. *Front Bioinform* 4 (2024)
- [MS13] MOOSAVI, M.; SOLTANI, N.: Prediction of the specific volume of polymeric systems using the artificial neural network-group contribution method. *Fluid Phase Equilibria* 356 (2013), S. 176-184
- [MS16] MAIER, R.D.; SCHILLER, M.: *Handbuch Kunststoff Additive*. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, 2016
- [Nie74] NIELSEN, N.F.: *Mechanical Properties of Polymers and Composites*. New York, USA: Marcel Dekker, 1974

- [NN04] N.N.: Impact modifiers: how to make your compound tougher. *Plastics, Additives and Compounding* 6 (2004) 3, S. 46-49
- [NN07] N.N.: *Erster Fortschrittsbericht zur Hightech-Strategie für Deutschland*. Deutscher Bundestag, Berlin: H. Heenemann GmbH & Co. KG, 29.10.2007
- [NN11] N.N.: *ENGAGE 8200*. Technical Data Sheet, DOW, Midland, USA, 2011
- [NN12] N.N.: *Determination of the Melt Mass-Flow Rate (MFR) and Melt Volume-Flow Rate (MVR) of Thermo-plastics: Part 1: Standard Method (ISO 1133-1:2011)*. Beuth Verlag, Berlin, 2012
- [NN22] N.N.: *OMYALITE 50 H - OM*. Datenblatt, OMYA GmbH, Oftringen, Schweiz, 2022
- [NN23] N.N.: *Plastics – Determination of Charpy impact properties – Part 1: Non-instrumented impact test (ISO 179-1:2023); German version EN ISO 179-1:2023*. Beuth Verlag, Berlin, 2023
- [NN24a] N.N.: *Verordnung (EU) 2025/40 des Europäischen Parlaments und des Rates vom 19. Dezember 2024 über Verpackungen und Verpackungsabfälle*. Europäisches Parlament, Luxemburg: Amt für Veröffentlichungen der Europäischen Union
- [NN24b] N.N.: *PP 505P*. Datenblatt, Sabic AG, Riad, Saudi Arabien, 2024
- [NN24c] N.N.: *Moplen HP548R*. Datenblatt, LyondellBasell, Rotterdam, Niederlande, 2024
- [NN24d] N.N.: *OMYALITE 95 T - OM*. Datenblatt, OMYA GmbH, Oftringen, Schweiz, 2024
- [NN24e] N.N.: *Polyvel CR5P*. Datenblatt, Polyvel Europe GmbH, Jork, 2024
- [NN24f] N.N.: *Polyvel CR5P Sicherheitsdatenblatt*. Sicherheitsdatenblatt, Polyvel Europe GmbH, Jork, 2024
- [OM98] ORR, G.B.; MÜLLER, K.R.: *Neural Networks: Tricks of the Trade*. Berlin, Heidelberg: Springer, 1998
- [PGM+19] PASZKE, A.; GROSS, S.; MASSA, F.; LERER, A.; BRADBURY, J.; CHANAN, G.; KILLEEN, T.; LIN, Z.; GIMELSHEIN, N.; ANTIGA, L.; DESMAISON, A.; KÖPF, A.; YANG, E.; DEVITO, Z.; RAISON, M.; TEJANI, A.; CHILAMKURTHY, S.; STEINER, B.; FANG, L.; CHINTALA, S.: *PyTorch: An Imperative Style, High-Performance Deep Learning Library*, 2019
- [PMVW21] PENG, Y.; MUSAH, M.; VIA, B.; WANG, X.: Calcium Carbonate Particles Filled Homopolymer Polypropylene at Different Loading Levels: Mechanical Properties Characterization and Materials Failure Analysis. *Journal of Composites Science* 5 (2021) 11
- [PVG+11] PEDREGOSA, F.; VAROQUAX, G.; GRAMFORT, A.; MICHEL, V.; THIRION, B.; GRISEL, O.; BLONDEL, M.; PRETTENHOFER, P.; WEISS, R.; DUBOURG, V.: Scikit-learn: Machine learning in Python. *Journal of machine learning research* 12 (2011) Oct, S. 2825-2830
- [RGP14] RAHMANI, M.; GHASEMI, F.A.; PAYGANEH, G.: Effect of surface modification of calcium carbonate nanoparticles and their dispersion in the polypropylene matrix using stearic acid. *Mechanics & Industry* 15 (2014) 1, S. 63-67
- [RGR+24] RAJAEI, P.; GHASEMI, F.A.; RABIEE, A.H.; FASIHI, M.; KAKEH, B.; SADEGHI, A.: Predicting tensile and fracture parameters in polypropylene-based nanocomposites using machine learning with sensitivity analysis and feature impact evaluation. *Composites Part C: Open Access* 15 (2024)
- [Ris20] RISSI, G.O.: Fillers for Packaging Applications. In: IntechOpen, 2020
- [RMKD05] ROSENSTEIN, M.T.; MARX, Z.; KAEHLING, L.P.; DIETTERICH, T.G.: *To transfer or not to transfer*. Whistler, Canada, 2005
- [RTK24] RAINIO, O.; TEUHO, J.; KLEN, R.: Evaluation metrics and statistical tests for machine learning. *Sci Rep* 14 (2024) 1
- [RTL09] REFAELZADEH, P.; TANG, L.; LIU, H.: Cross-Validation. In: Springer (Hrsg.): *Encyclopedia of Database Systems*. Boston, Massachusetts, USA, 2009
- [Rud17] RUDER, S.: An overview of gradient descent optimization algorithms. *arXiv: 1609.04747* (2017)

- [Rud21] RUDOLF, M.: *Recent achievements in polyamide compound development using Artificial Intelligence*. Sofitel München Bayernpost, München, 2021
- [Sch24] SCHLEEF, H.: *Analyse der Eigenschaftsveränderung von Polypropylen-Rezyklaten durch Blending und Additivierung*. Institut für Kunststoffverarbeitung an der RWTH Aachen University, unveröffentlichte Masterarbeit, 2024 - Betreuer: L. Seifert
- [Seb22] SEBBEL, A.: Peroxid-Masterbatches ermöglichen die Verarbeitung von Polypropylen-Rezyklaten in unterschiedlichen Anwendungen. *Extrusion* 27 (2022) 1, S. 22-23
- [SGK+20] STANIC, S.; GOTTLIEB, G.; KOCH, T.; GÖPPERL, L.; SCHMID, K.; KNAUS, S.; ARCHODOULAKI, V.-M.: Influence of Different Types of Peroxides on the Long-Chain Branching of PP via Reactive Extrusion. *Polymers* 12 (2020) 886
- [SGS+23] SAFONOVA, A.; GHAZARYAN, G.; STILLER, S.; MAIN-KNORN, M.; NENDEL, C.; RYO, M.: Ten deep learning techniques to address small data problems with remote sensing. *International Journal of Applied Earth Observation and Geoinformation* 125 (2023)
- [SH24] SEIFERT, L.; HOPMANN, C.: Investigations on suitable design of experiments for predicting compound properties. *Umdruck zum 32. Internationalen Kolloquium Kunststofftechnik*. Düren: Shaker Verlag GmbH, 2024
- [SHK+14] SRIVASTAVA, N.; HINTON, G.; KRIZHEVSKY, A.; SUTSKEVER, I.; SALAKHUTDINOV, R.: Dropout: A Simple Way to Prevent Neural Networks from Overfitting. *Journal of Machine Learning Research* 15 (2014), S. 1929-1958
- [SLH24a] SEIFERT, L.; LEUCHTENBERGER-ENGEL, L.; HOPMANN, C.: Enhancing the Quality of Polypropylene Recyclates: Predictive Modelling of the Melt Flow Rate and Shear Viscosity. *Polymers* 16 (2024) 16
- [SLH24b] SEIFERT, L.; LEUCHTENBERGER-ENGEL, L.; HOPMANN, C.: Development of an Analytical Model for Predicting the Tensile Modulus of Complex Polypropylene Compounds: A Comparative Study with Artificial Neural Networks. *Polymers* 16 (2024) 23
- [SLH25a] SEIFERT, L.; LEUCHTENBERGER-ENGEL, L.; HOPMANN, C.: Development of an Analytical Model for Predicting the Shear Viscosity of Polypropylene Compounds. *Polymers* 17 (2025) 2
- [SLH25b] SEIFERT, L.; LEUCHTENBERGER-ENGEL, L.; HOPMANN, C.: A systematic methodology for developing polypropylene compound recipes: a comparative analysis with AI driven approaches. *Proceedings of SPE Annual Technical Conference (ANTEC)*. Philadelphia, USA, 2025
- [SLH25c] SEIFERT, L.; LEUCHTENBERGER-ENGEL, L.; HOPMANN, C.: Development of Alternative PP-Compound Recipes Using Genetic Algorithms and Analytical Models. *Polymers* 17 (2025) 8
- [ŠP03] ŠVEHLOVÁ, V.; POLOUČEK, E.: Mechanical properties of talc-filled polypropylene. Influence of filler content, filler particle size and quality of dispersion. *Die Angewandte Makromolekulare Chemie* 214 (2003) 1, S. 91-99
- [SS18] SCHIEFER, H.; F., S.: *Statistische Versuchsplanung - Design of Experiments (DoE)*. Berlin: Springer Vieweg, 2018
- [SSNP23] STEWART, K.M.E.; STONECIPHER, E.; NING, H.; PILLAY, S.B.: Mixing rules for high density polyethylene-polypropylene blends. *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 101 (2023) 9, S. 5395-5407
- [Ste05] STEWART, R.: Additives annual: Enhancing performance, versatility and processability of polymers. *Plastics Engineering* 61 (2005) 11, S. 18-28
- [Ste23] STEBANI, J.: *So werden Compounds digital entwickelt*. URL: <https://www.plastverarbeiter.de/roh-und-zusatzstoffe/so-werden-compounds-digital-entwickelt-219.html>, 09.01.2025
- [STS+10] SVOBODA, P.; THERAVALAPPIL, R.; SVOBODOVA, D.; MOKREJS, P.; KOLOMAZNIK, K.; MORI, K.; OUGIZAWA, T.; INOUE, T.: Elastic properties of polypropylene/ethylene-octene copolymer blends. *Polymer Testing* 29 (2010) 6, S. 742-748

- [SVD15] SCHAWÉ, J.E.K.; VERMEULEN, P.A.; VAN DRONGELEN, M.: A new crystallization process in polypropylene highly filled with calcium carbonate. *Colloid and Polymer Science* 293 (2015) 6, S. 1607-1614
- [TKF23] TRAXLER, I.; KAINEDER, H.; FISCHER, J.: Simultaneous Modification of Properties Relevant to the Processing and Application of Virgin and Post-Consumer Polypropylene. *Polymers* 15 (2023) 1717
- [TMF+22] TRAXLER, I.; MARSCHIK, C.; FARTHOFER, M.; LASKE, S.; FISCHER, J.: Application of Mixing Rules For Adjusting The Flowability Of Virgin And Post-Consumer Polypropylene As An Approach For Design From Recycling. *Polymers* 14 (2022) 2699, S. 1-19
- [Tse89] TSENOGLOU, C.: Viscoelasticity and self-difusion in miscible heteropolymer blends. In: Springer (Hrsg.): *New Trends in Physics and Physical Chemistry of Polymers*. Boston, MA, USA, 1989
- [TTKT05] SEYHAN, A.T.R.; TAYFUR, G.; KARAKURT, M.; TANOG'LU, M.: Artificial neural network (ANN) prediction of compressive strength of VARTM processed polymer composites. *Computational Materials Science* 34 (2005) 1, S. 99-105
- [URL24] N.N.: *The Circular Economy for Plastics*. URL: <https://plasticseurope.org/knowledge-hub/the-circular-economy-for-plastics-a-european-analysis-2024/>, 27.11.2024
- [URL25a] N.N.: *Stoffstrombild Kunststoffe in Deutschland 2023*. URL: <https://www.vci.de/ergaenzende-downloads/kurzfassung-stoffstrombild-2023.pdf>, 08.01.2025
- [URL25b] N.N.: *Europe Polypropylene Compounds Market*. URL: <https://www.grandviewresearch.com/horizon/outlook/polypropylene-compounds-market/europe.>, 07.01.2025
- [URL25c] N.N.: *Calcium Carbonate (CaCO<sub>3</sub>) Fillers: Fact Sheet*. URL: <https://www.recoup.org/wp-content/uploads/2023/11/Fillers-Fact-sheet.pdf>, 7.1.2025
- [URL25d] N.N.: *Polypropylene, Homopolymer*. URL: <https://www.lyondellbasell.com/en/products-technology/polymers/resin-type/polypropylene-homopolymer/>, 13.02.2025
- [URL25e] N.N.: *Verbesserung der Druckmessung durch gesteigerte Genauigkeit*. URL: <https://www.goettfert.de/anwendungen-wissen/rheo-info/fuer-kapillarrheometer/verbesserung-der-druckmessung-durch-gesteigerte-genauigkeit>, 29.01.2025
- [URL25f] N.N.: *Polymerisation von Monomeren mit organischen Peroxiden*. URL: <https://www.pergan.com/de/polymerisation.html>, 19.02.2025
- [URL25g] N.N.: *Microsoft CoPilot*. URL: <https://copilot.microsoft.com/>, 20.02.2025
- [URL25h] N.N.: *ChatGPT - Multiple conversations throughout 2024*. URL: <https://chat.openai.com/>, 13.01.2025
- [URL25i] N.N.: *DeepL Translate*. URL: <https://www.deepl.com/translator>, 20.02.2025
- [URL25j] N.N.: *DeepL Write*. URL: <https://www.deepl.com/write>, 20.02.2025
- [URL25k] N. N.: *Corrections of Capillary Rheometer Experiments*. URL: <https://www.goettfert.com/knowledge/rheo-info/for-capillary-rheometer/corrections-of-capillary-rheometer-experiments>, 06.11.2025
- [Utr91] UTRACKI, L.A.: On the viscosity-concentration dependence of immiscible polymer blends. *Journal of Rheology* 35 (1991) 8, S. 1615-1637
- [VBT92] VERGNES, B.; BARRÈS, C.; TAYEB, J.: Computation of residence time and energy distributions in reverse screw elements of twin-screw extrusion-cookers. *Journal of Food Engineering* 16 (1992), S. 215-237
- [VH90] VOLLENBERG, P.H.T.; HEIKENS, D.: The mechanical properties of chalk-filled polypropylene: a preliminary investigation. *Journal of Materials Science* 25 (1990), S. 3089-3095
- [VRF00] VELTEN, K.; REINICKE, R.; FRIEDRICH, K.: Wear volume prediction with artificial neural networks. *Tribology International* 33 (2000) 10, S. 731-736
- [VVL+00] VEENSTRA, H.; VERKOOIJEN, P.C.J.; VAN LENT, B.J.J.; VAN DAM, J.; DE BOER, A.P.; NIJHOF, A.P.H.J.: On the mechanical properties of co-continuous polymeric blends: experimental and modelling. *Polymer* 41 (2000) 5, S. 1817-1826

- [Wal31] WALTHER, C.: The evaluation of viscosity data. *Teer* 7 (1931), S. 382-384
- [WQAR24] WEBB, C.; QI, K.; ANGUILANO, L.; RIVERA, X.S.: Mechanical and environmental evaluation of ground calcium carbonate (CaCO<sub>3</sub>) filled polypropylene composites as a sustainable alternative to virgin polypropylene. *Materials* 22 (2024) 100562
- [WSLB99] WILLEMSE, R.C.; SPEIJER, A.; LANGERAAR, A.E.; DE BOER, A.P.: Tensile moduli of co-continuous blends. *Polymer* 40 (1999), S. 6645-6650
- [WWR19] WANG, Y.; WAGNER, N.; RONDINELLI, J.M.: Symbolic regression in materials science. *MRS Communications* 9 (2019) 3, S. 793-805
- [XG19] XU, X.; GUPTA, N.: Artificial Neural Network Approach to Predict the Elastic Modulus from Dynamic Mechanical Analysis Results. *Advanced Theory and Simulations* 2 (2019) 4
- [YBD15] YADOLLAHI, M.M.; BENLI, A.; DEMIRBOĞA, R.: Prediction of compressive strength of geopolymer composites using an artificial neural network. *Materials Research Innovations* 19 (2015) 6, S. 453-458
- [YKP+17] YOU, Y.J.; KIM, J.J.; PARK, K.T.; SEO, D.W.; LEE, T.H.: Modification of Rule of Mixtures for Tensile Strength Estimation of Circular GFRP Rebars. *Polymers (Basel)* 9 (2017) 12
- [YLQ23] YANG, M.; LIM, M.K.; QU, Y.; LI, X.; NI, D.: Deep neural networks with L1 and L2 regularization for high dimensional corporate credit risk prediction. *Expert Systems with Applications* 213 (2023)
- [YS20] YANG, L.; SHAMI, A.: On Hyperparameter Optimization of Machine Learning Algorithms: Theory and Practice. *Neurocomputing* 415 (2020), S. 295-316
- [YSM04] YIAGOPOULOS, T.; SCHMIDT, C.-U.; MASELLI, E.: Development of a Softsensor for On-Line MFI Monitoring in Reactive Polypropylene Extrusion. *DECHEMA Monographs* 138 (2004)
- [ZF03] ZHANG, Z.; FRIEDRICH, K.: Artificial neural networks applied to polymer composites: a review. *Composites Science and Technology* 63 (2003) 14, S. 2029-2044
- [ZFO2] ZHANG, Z.; FRIEDRICH, K.; VELTEN, K.: Prediction on tribological properties of short fibre composites using artificial neural networks. *Wear* 252 (2002) 7-8, S. 668-675
- [ZLW+23] ZHAO, J.; LIU, P.; WANG, J.; LI, J.; NIU, H.; SUN, Y.; LI, J.; CHEN, X.-Q.: Hardness and fracture toughness models by symbolic regression. *The European Physical Journal Plus* 138 (2023) 7
- [Zwe98] ZWEIFEL, H.: Principles of Oxidative Degradation. In: Springer (Hrsg.): *Stabilization of Polymeric Materials*. Berlin, Heidelberg, 1998
- [ZX21] ZHANG, Y.; XU, X.: Machine learning tensile strength and impact toughness of wheat straw reinforced composites. *Machine Learning with Applications* 6 (2021)

## 13 Anhang

### 13.1 Versuchspläne der Labor- und Industrieanlage

Versuchspunkt	Gew.-% 505P	Gew.-% HP548R	Gew.-% CR5P	Gew.-% 95 T	Gew.-% 50 H	Gew.-% Engage 9200
VL_01	100,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
VL_02	99,85	0,00	0,15	0,00	0,00	0,00
VL_03	99,75	0,00	0,25	0,00	0,00	0,00
VL_04	99,50	0,00	0,50	0,00	0,00	0,00
VL_05	99,25	0,00	0,75	0,00	0,00	0,00
VL_06	99,15	0,00	0,85	0,00	0,00	0,00
VL_07	99,00	0,00	1,00	0,00	0,00	0,00
VL_08	99,00	0,00	0,00	0,00	0,00	1,00
VL_09	98,00	0,00	0,00	0,00	0,00	2,00
VL_10	97,00	0,00	0,00	0,00	0,00	3,00
VL_11	96,00	0,00	0,00	0,00	0,00	4,00
VL_12	67,00	33,00	0,00	0,00	0,00	0,00
VL_13	66,90	32,95	0,15	0,00	0,00	0,00
VL_14	66,83	32,92	0,25	0,00	0,00	0,00
VL_15	66,67	32,84	0,50	0,00	0,00	0,00
VL_16	66,50	32,75	0,75	0,00	0,00	0,00
VL_17	66,43	32,72	0,85	0,00	0,00	0,00
VL_18	66,33	32,67	1,00	0,00	0,00	0,00
VL_19	66,33	32,67	0,00	0,00	0,00	1,00
VL_20	65,66	32,34	0,00	0,00	0,00	2,00
VL_21	64,99	32,01	0,00	0,00	0,00	3,00
VL_22	64,32	31,68	0,00	0,00	0,00	4,00
VL_23	33,00	67,00	0,00	0,00	0,00	0,00
VL_24	32,95	66,90	0,15	0,00	0,00	0,00
VL_25	32,92	66,83	0,25	0,00	0,00	0,00
VL_26	32,84	66,67	0,50	0,00	0,00	0,00
VL_27	32,75	66,50	0,75	0,00	0,00	0,00
VL_28	32,72	66,43	0,85	0,00	0,00	0,00
VL_29	32,67	66,33	1,00	0,00	0,00	0,00
VL_30	32,67	66,33	0,00	0,00	0,00	1,00
VL_31	32,34	65,66	0,00	0,00	0,00	2,00
VL_32	32,01	64,99	0,00	0,00	0,00	3,00
VL_33	31,68	64,32	0,00	0,00	0,00	4,00
VL_34	0,00	100,00	0,00	0,00	0,00	0,00
VL_35	0,00	99,85	0,15	0,00	0,00	0,00
VL_36	0,00	99,75	0,25	0,00	0,00	0,00
VL_37	0,00	99,50	0,50	0,00	0,00	0,00

VL_38	0,00	99,25	0,75	0,00	0,00	0,00
VL_39	0,00	99,15	0,85	0,00	0,00	0,00
VL_40	0,00	99,00	1,00	0,00	0,00	0,00
VL_41	0,00	99,00	0,00	0,00	0,00	1,00
VL_42	0,00	98,00	0,00	0,00	0,00	2,00
VL_43	0,00	97,00	0,00	0,00	0,00	3,00
VL_44	0,00	96,00	0,00	0,00	0,00	4,00
VL_45	29,70	60,30	0,00	10,00	0,00	0,00
VL_46	26,40	53,60	0,00	20,00	0,00	0,00
VL_47	23,10	46,90	0,00	30,00	0,00	0,00
VL_48	0,00	90,00	0,00	10,00	0,00	0,00
VL_49	0,00	80,00	0,00	20,00	0,00	0,00
VL_50	0,00	70,00	0,00	30,00	0,00	0,00
VL_51	60,64	29,87	0,00	9,50	0,00	0,00
VL_52	53,60	26,40	0,00	20,00	0,00	0,00
VL_53	46,90	23,10	0,00	30,00	0,00	0,00
VL_54	90,00	0,00	0,00	10,00	0,00	0,00
VL_55	80,00	0,00	0,00	20,00	0,00	0,00
VL_56	70,00	0,00	0,00	30,00	0,00	0,00
VL_57	90,00	0,00	0,00	0,00	10,00	0,00
VL_58	80,00	0,00	0,00	0,00	20,00	0,00
VL_59	60,30	29,70	0,00	0,00	10,00	0,00
VL_60	53,60	26,40	0,00	0,00	20,00	0,00
VL_61	29,70	60,30	0,00	0,00	10,00	0,00
VL_62	26,40	53,60	0,00	0,00	20,00	0,00
VL_63	0,00	90,00	0,00	0,00	10,00	0,00
VL_64	0,00	80,00	0,00	0,00	20,00	0,00

Tabelle 13.1: Vollständiger Versuchsplan für die Versuche auf der Laboranlage.

Table 13.1: The full test plan for the trials on the laboratory scale twin screw extruder.

Versuchspunkt	Gew.-%	Gew.-%	Gew.-%	Gew.-%	Gew.-%
	505P	HP548R	CR5P	95 T	Engage 9200
VI_01	100,00	0,00	0,00	0,00	0,00
VI_02	90,00	10,00	0,00	0,00	0,00
VI_03	80,00	20,00	0,00	0,00	0,00
VI_04	50,00	50,00	0,00	0,00	0,00
VI_05	0,00	100,00	0,00	0,00	0,00
VI_06	99,50	0,00	0,50	0,00	0,00
VI_07	49,75	49,75	0,50	0,00	0,00
VI_08	0,00	99,50	0,50	0,00	0,00
VI_09	99,00	0,00	1,00	0,00	0,00
VI_10	49,50	49,50	1,00	0,00	0,00
VI_11	0,00	99,00	1,00	0,00	0,00

VI_12	85,00	0,00	0,00	15,00	0,00
VI_13	42,50	42,50	0,00	15,00	0,00
VI_14	0,00	85,00	0,00	15,00	0,00
VI_15	70,00	0,00	0,00	30,00	0,00
VI_16	35,00	35,00	0,00	30,00	0,00
VI_17	0,00	70,00	0,00	30,00	0,00
VI_18	98,00	0,00	0,00	0,00	2,00
VI_19	49,00	49,00	0,00	0,00	2,00
VI_20	0,00	98,00	0,00	0,00	2,00
VI_21	96,00	0,00	0,00	0,00	4,00
VI_22	48,00	48,00	0,00	0,00	4,00
VI_23	0,00	96,00	0,00	0,00	4,00
VI_24	25,07	44,28	0,37	29,69	0,59
VI_25	40,24	24,97	0,91	29,22	4,66
VI_26	20,85	49,93	0,65	27,68	0,89
VI_27	37,47	32,18	0,19	26,21	3,95
VI_28	15,70	52,16	0,99	29,61	1,54
VI_29	52,84	26,10	0,65	18,54	1,87
VI_30	67,90	15,04	0,25	15,03	1,78
VI_31	48,11	20,70	0,74	28,73	1,72
VI_32	31,28	50,63	0,26	17,68	0,15
VI_33	55,20	16,00	0,65	24,16	3,99
VI_34	26,41	48,92	0,67	20,00	4,00
VI_35	22,51	75,49	0,00	0,00	2,00
VI_36	39,40	50,60	0,00	10,00	0,00
VI_37	19,98	66,35	0,67	10,00	3,00
VI_38	61,95	27,38	0,67	10,00	0,00
VI_39	45,33	32,34	0,33	20,00	2,00
VI_40	23,71	43,29	1,00	30,00	2,00
VI_41	65,66	21,01	0,33	10,00	3,00
VI_42	68,05	27,62	0,33	0,00	4,00
VI_43	56,09	42,91	0,00	0,00	1,00
VI_44	19,25	55,75	1,00	20,00	4,00
VI_45	79,56	18,44	1,00	0,00	1,00
VI_46	20,58	47,42	1,00	30,00	1,00
VI_47	22,99	44,01	0,00	30,00	3,00
VI_48	51,16	18,17	0,00	30,00	1,00
VI_49	21,00	66,35	0,00	10,00	3,00
VI_50	45,60	32,34	0,00	20,00	2,00

*Tabelle 13.2: Vollständiger Versuchsplan für die Versuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.2: The full test plan for the trials on the industrial scale twin screw extruder.*

## 13.2 Ergänzende Diagramme zu der Herleitung des Modells für Omyalite 50 H

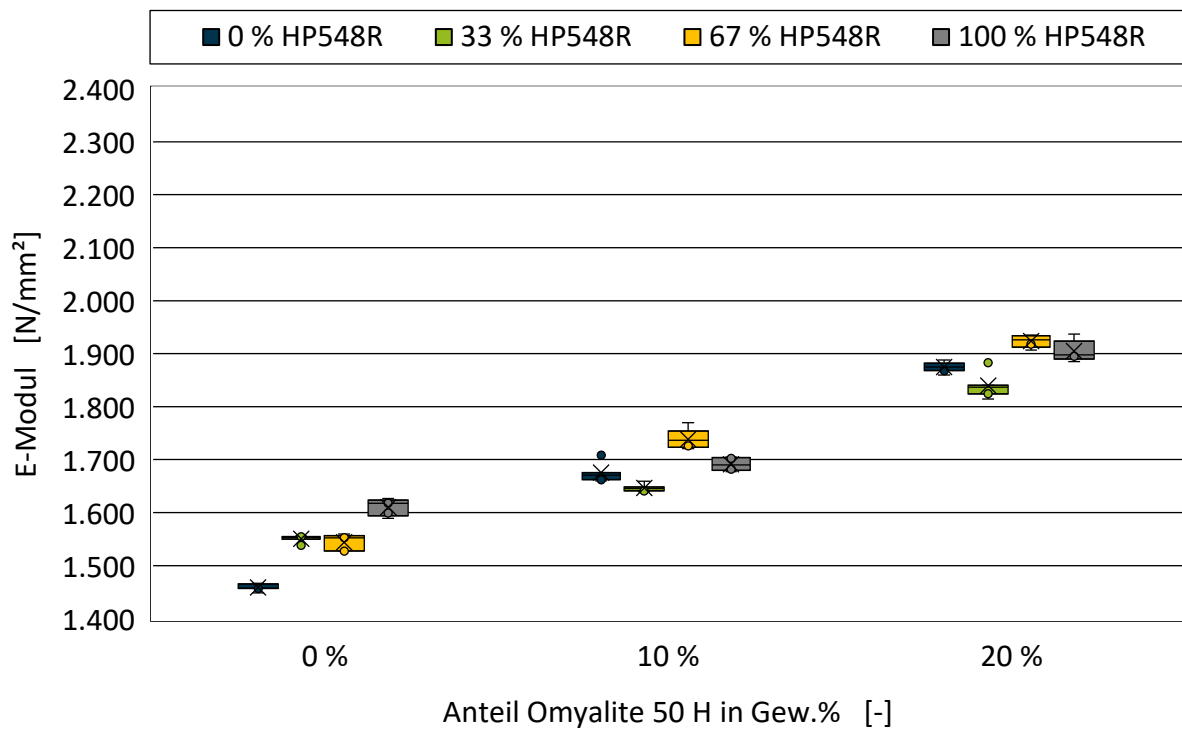


Bild 13.1: Box-Plot Diagramm der Versuchspunkte mit Omyalite 50 H.

Fig. 13.1: Box-plot diagram of the test points with Omyalite 50 H.

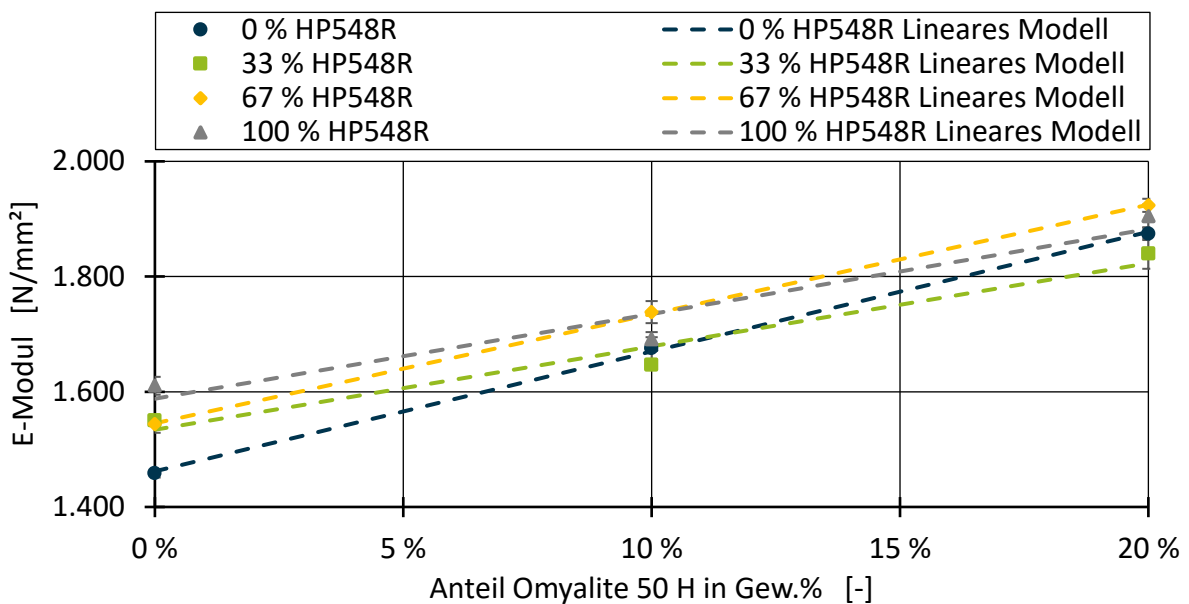


Bild 13.2: Vorhersage des E-Modul für die Versuchsreihe mit Omyalite 50 H über lineare Modelle [SLH24b].

Fig. 13.2: Prediction of the tensile modulus for the test series with Omyalite 50 H using linear models [SLH24b].

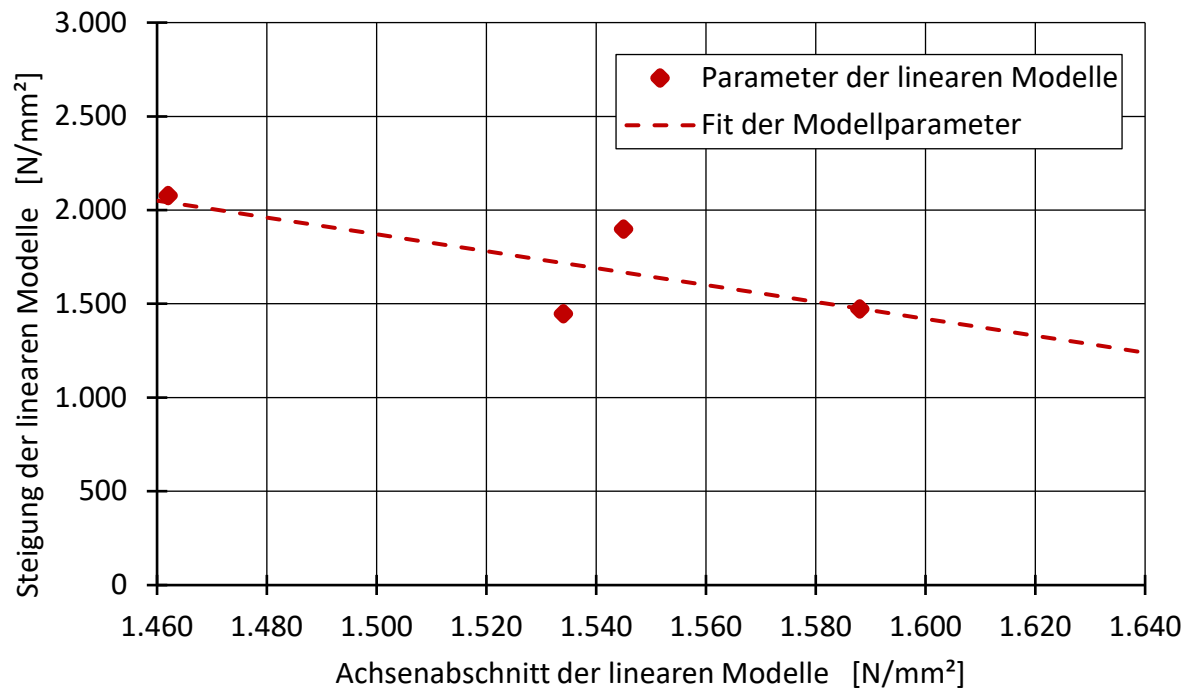


Bild 13.3: Zusammenhang der Steigung  $m_{50 H,E}$  der linearen Beschreibungsmodelle in Abhängigkeit des Achsenabschnitts  $E_0$  [SLH24b]

Fig. 13.3: Correlation of the slope  $m_{50 H,E}$  of the linear models as a function of the axis intercept  $E_0$  [SLH24b].

### 13.3 Ergänzende Diagramme zu dem analytischen Modell für den MFR

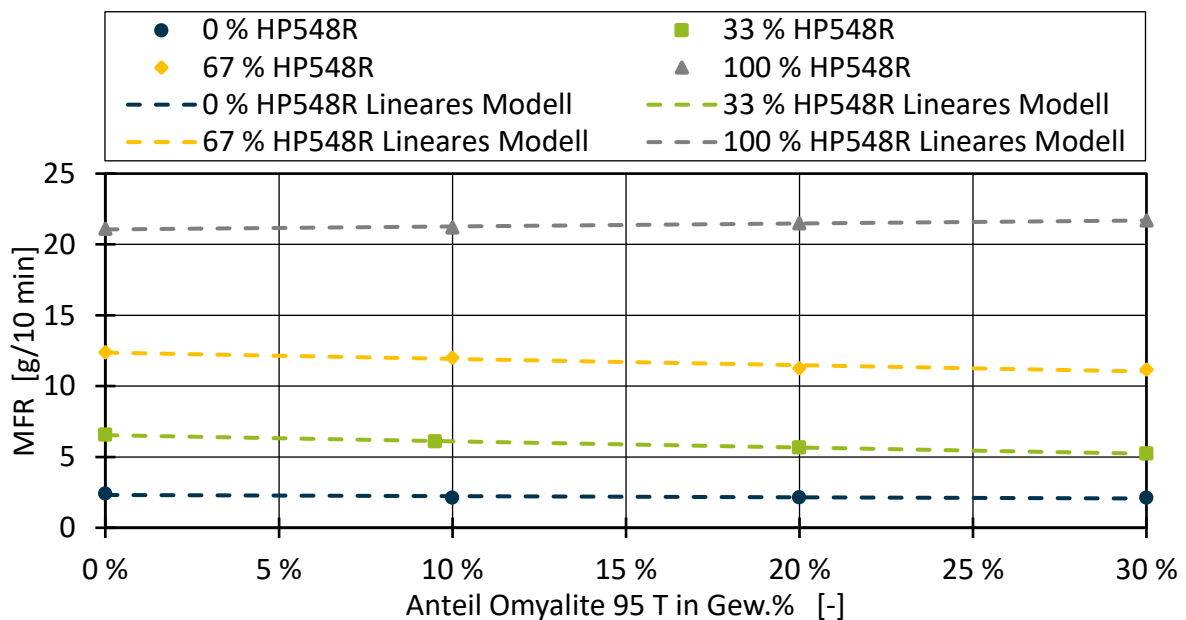


Bild 13.4: Vorhersage des MFR für die Versuchsreihe mit Omyalite 95 T über lineare Modelle.

Fig. 13.4: Prediction of the MFR for the test series with Omyalite 95 T using linear models.

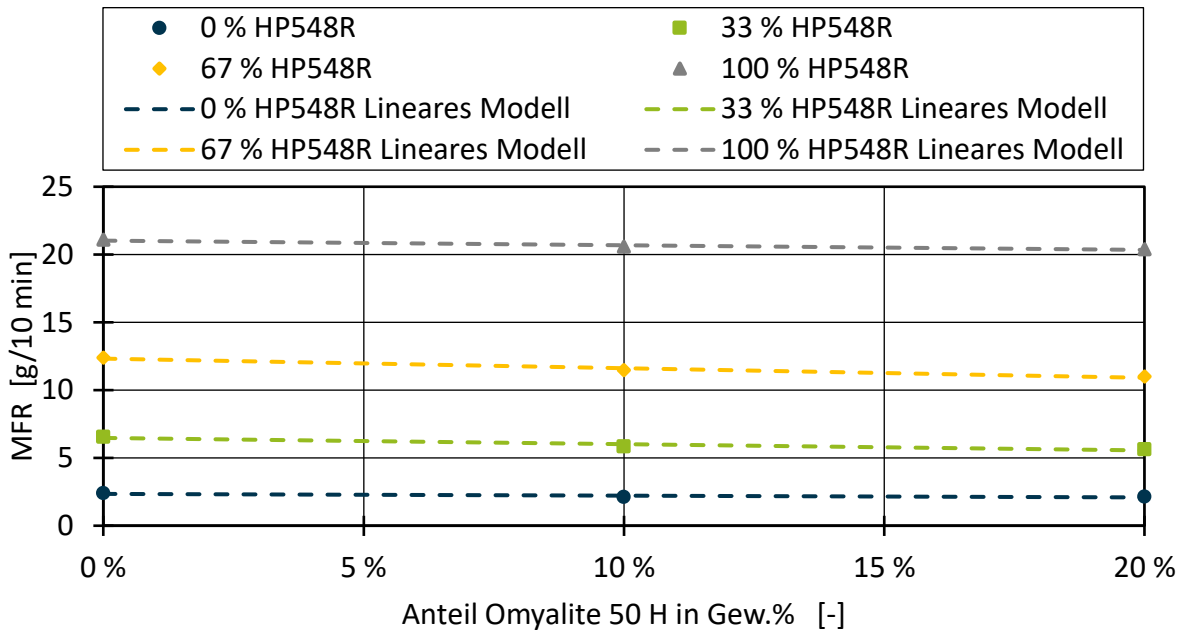


Bild 13.5: Vorhersage des MFR für die Versuchsreihe mit Omyalite 50 H über lineare Modelle.

Fig. 13.5: Prediction of the MFR for the test series with Omyalite 50 H using linear models.

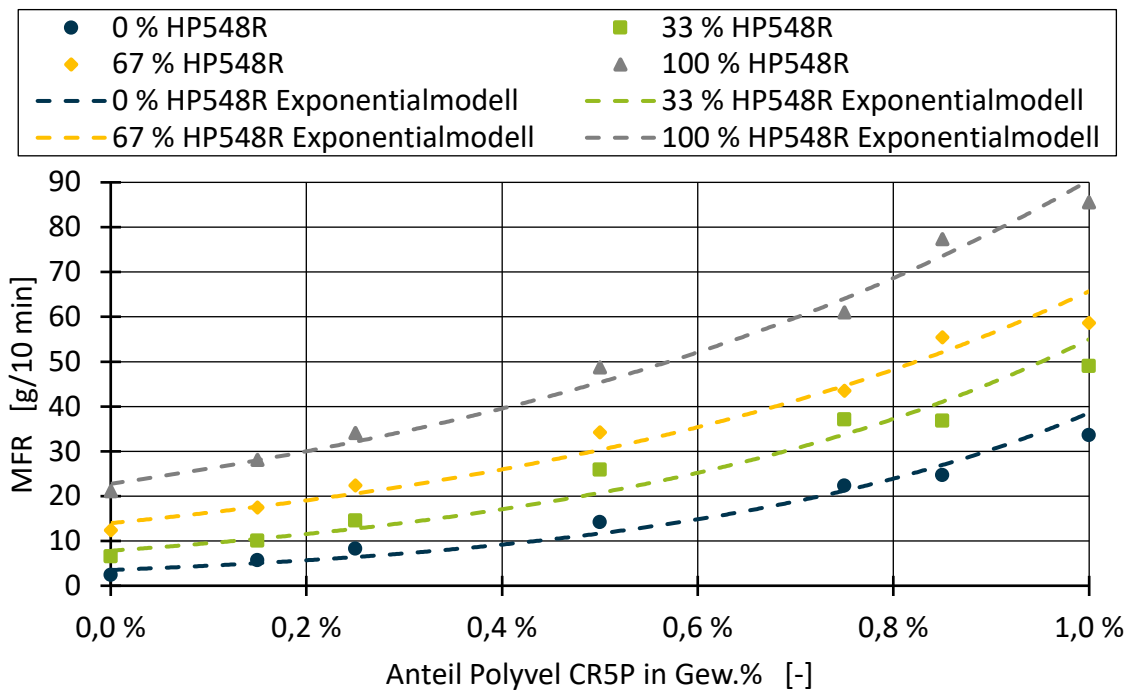


Bild 13.6: Vorhersage des MFR für die Versuchsreihe mit Polyvel CR5P über Exponentialmodelle.

Fig. 13.6: Prediction of the MFR for the test series with Polyvel CR5P using exponential models.

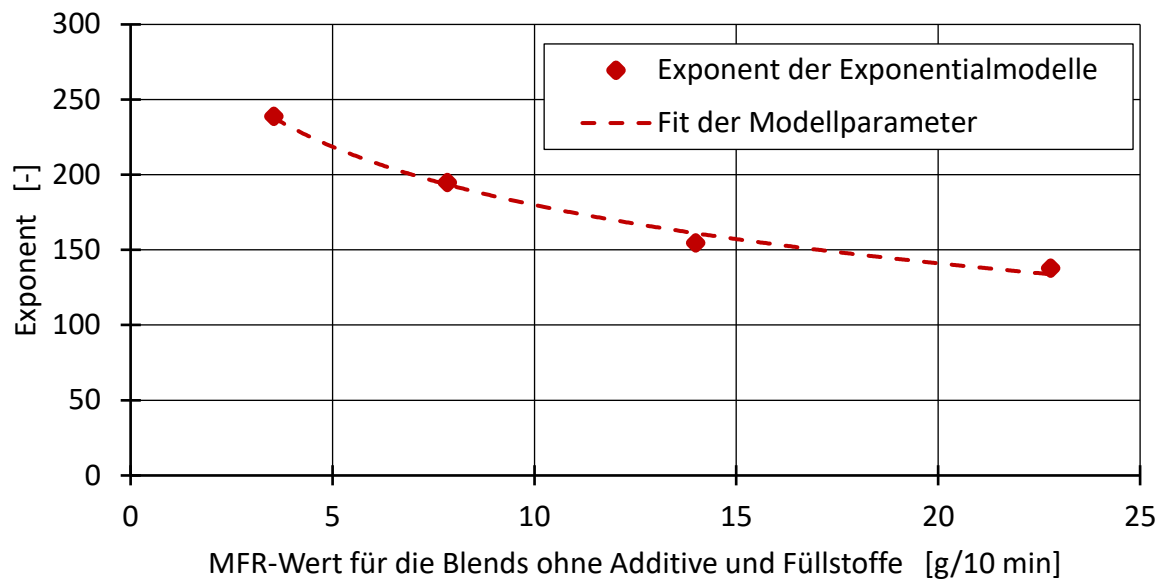


Bild 13.7: Zusammenhang des Exponenten der Exponentialfunktion aus Bild 13.6 mit dem MFR-Wert des Blends ohne Additiv.

Fig. 13.7: Correlation between the exponent of the exponential function from Figure 13.6 and the MFR value of the blend without additive.

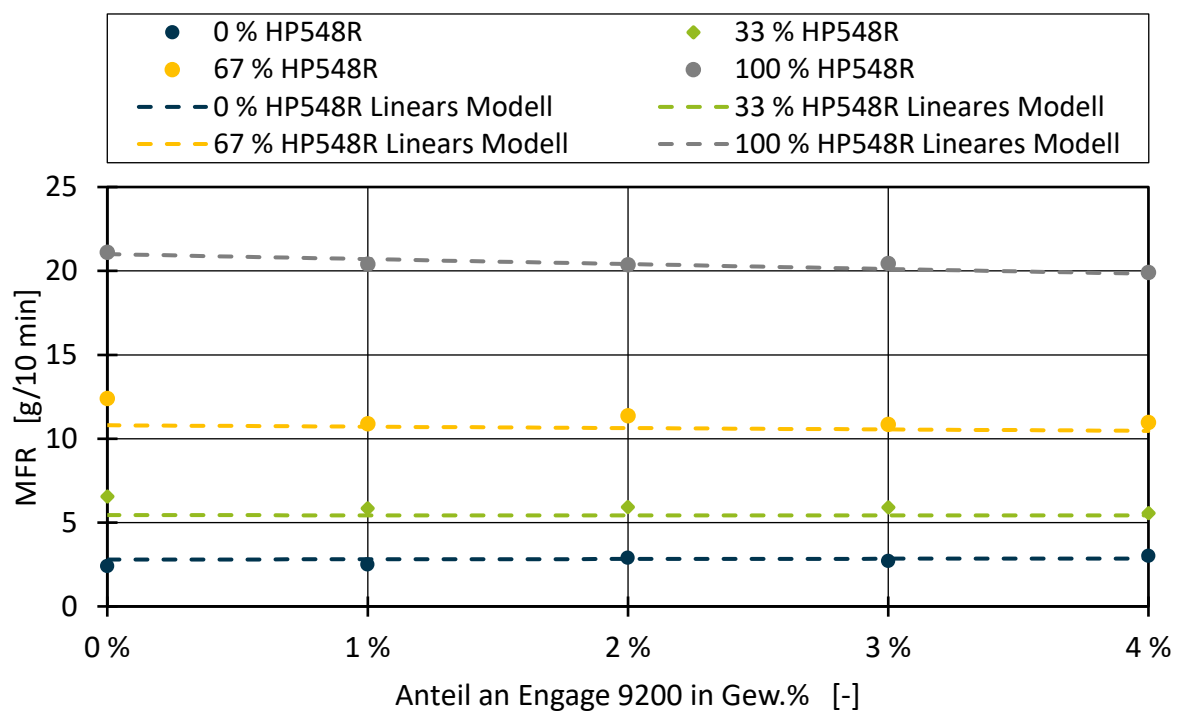


Bild 13.8: MFR-Werte der Versuchsreihen mit Engage 9200.

Fig. 13.8: MFR values of the test series with Engage 9200.

### 13.4 Ergänzende Diagramme zu dem analytischen Modell für die Kerbschlagzähigkeit

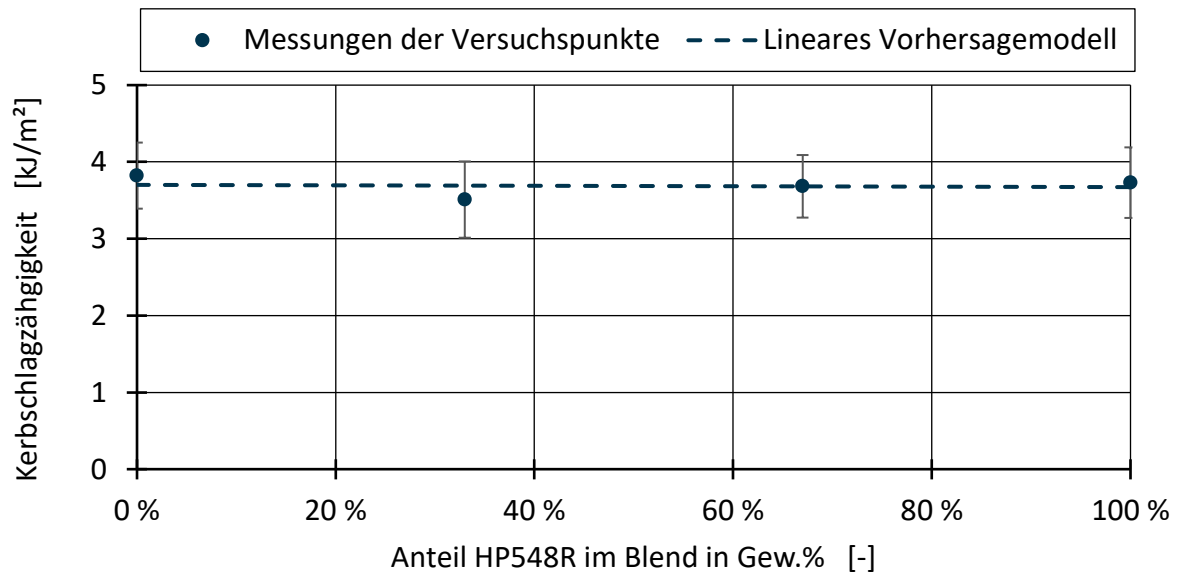


Bild 13.9: Kerbschlagzähigkeiten der Blends ohne Additive und Füllstoffe sowie das lineare Vorhersagemodell.

Fig. 13.9: Notched impact strength of the blends without additives and fillers as well as the linear prediction model.

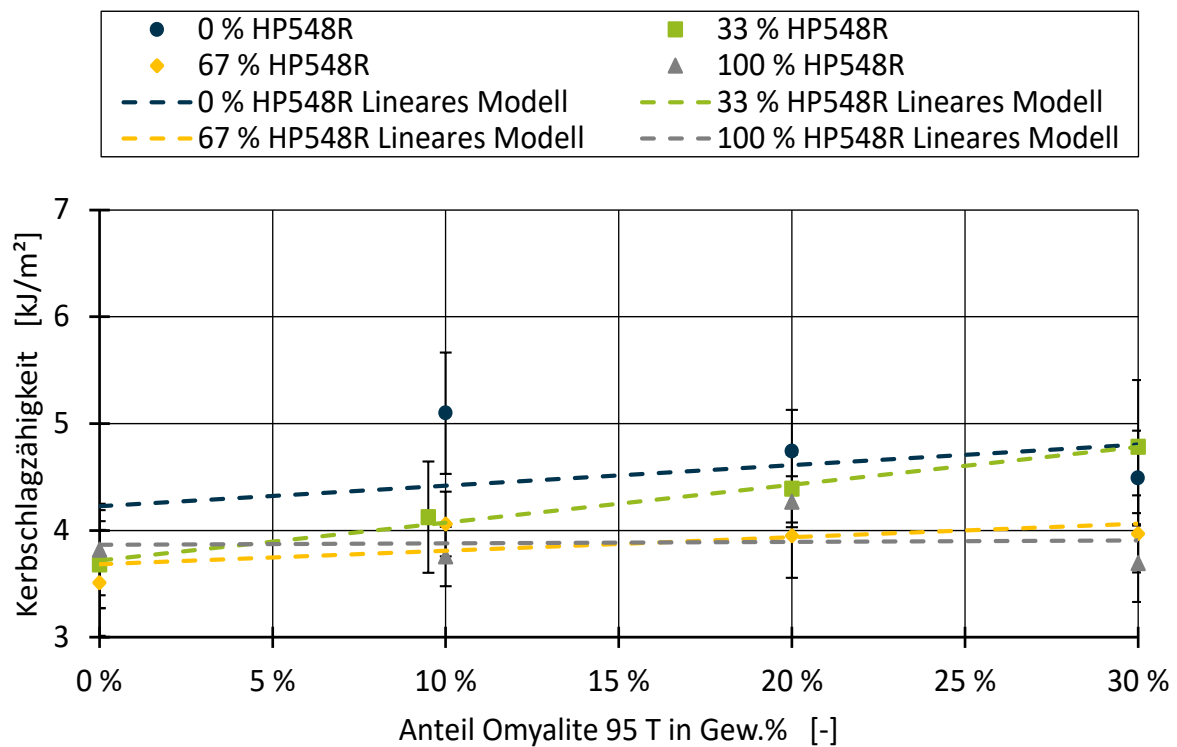


Bild 13.10: Lineare Vorhersagemodelle der Kerbschlagzähigkeit für Omyalite 95 T.

Fig. 13.10: Linear prediction models of impact strength for Omyalite 95 T.

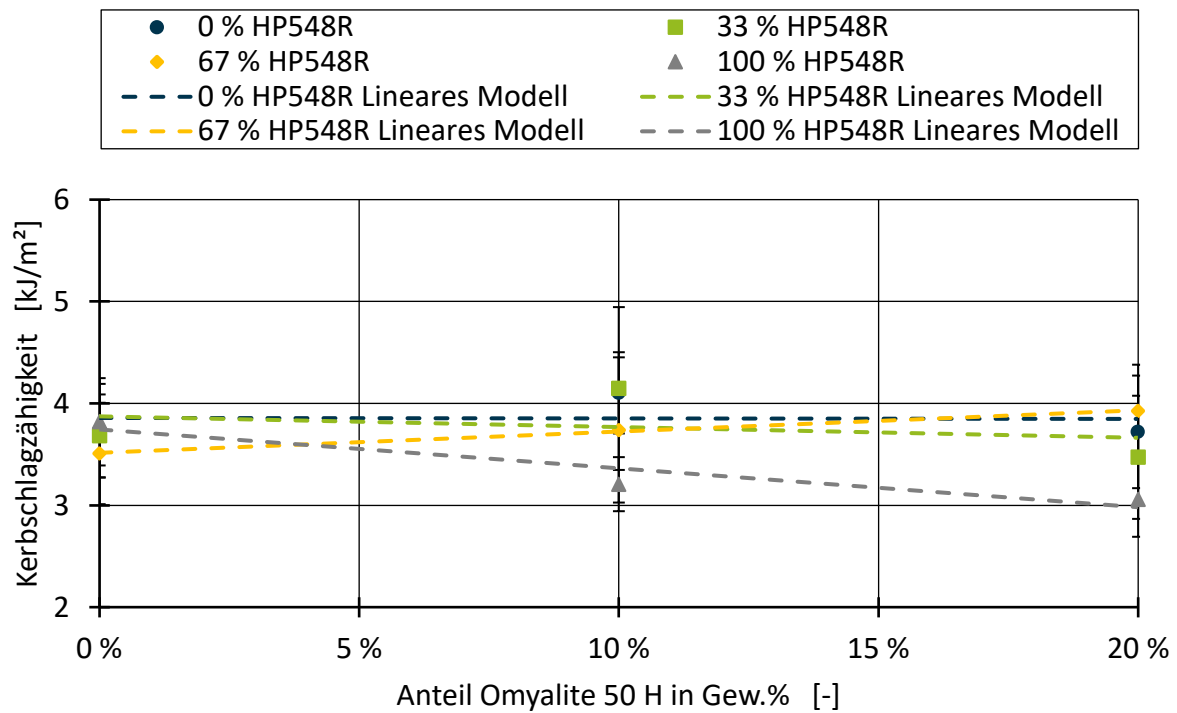


Bild 13.11: Lineare Vorhersagemodelle der Kerbschlagzähigkeit für Omyalite 50 H.

Fig. 13.11: Linear prediction models of impact strength for Omyalite 50 H.

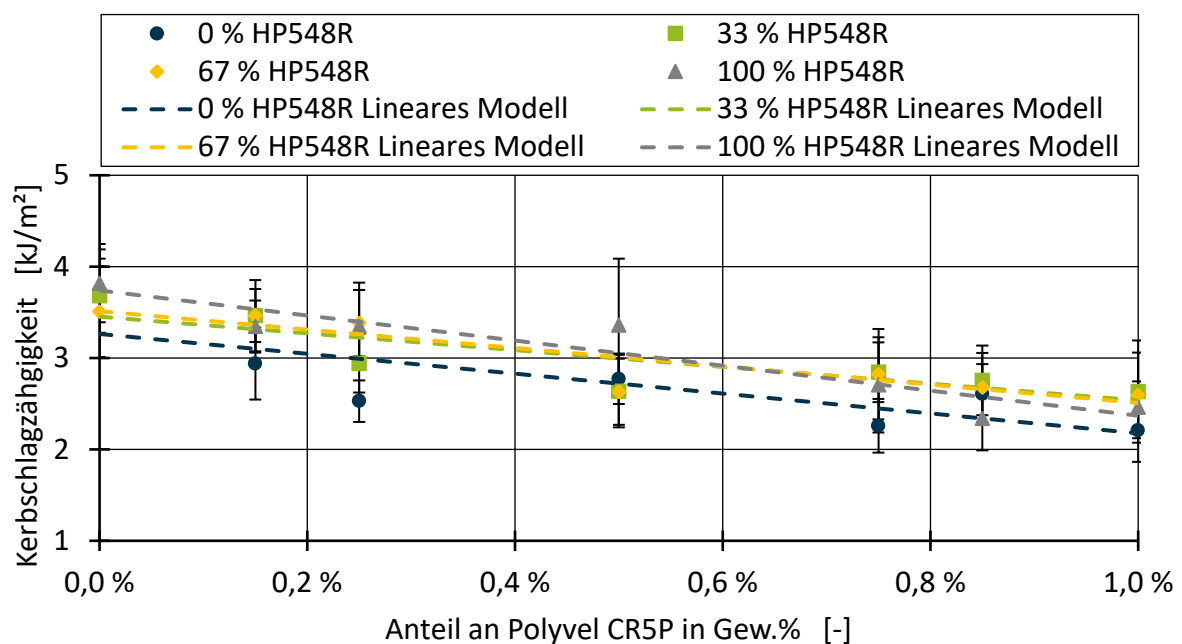


Bild 13.12: Lineare Vorhersagemodelle der Kerbschlagzähigkeit für Polyvel CR5P.

Fig. 13.12: Linear prediction models of impact strength for Polyvel CR5P.

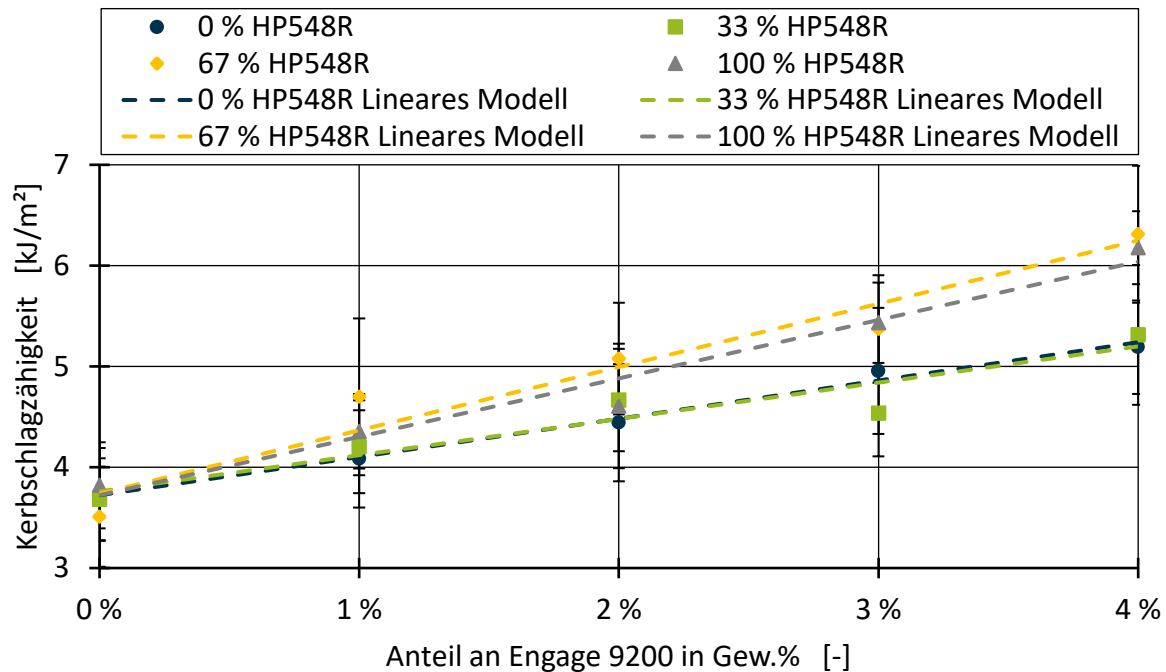


Bild 13.13: Lineare Vorhersagemodelle der Kerbschlagzähigkeit für Engage 9200.

Fig. 13.13: Linear prediction models of impact strength for Engage 9200.

### 13.5 Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Versuche auf der Laboranlage

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$E_{505P}$	1458,86	$I_{95 T,E}$	13.415,550
$E_{HP548R}$	1610,54	$I_{50 H,E}$	8.628,090
$a$	0,38364	$I_{Engage\ 9200,E}$	3.852,150
$b$	7,52671	$S_{95 T,E}$	-7,421
$c$	0,65223	$S_{50 H,E}$	-4,505
$d$	1,01744	$S_{Engage\ 9200,E}$	-4,560
$p_{1,E}$	-0,0000963	$p_{2,E}$	4,100

Tabelle 13.3: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des E-Moduls.

Table 13.3: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the tensile modulus.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$A_{505P}$	680,79	$p_{1,\eta}$	13,495
$B_{505P}$	0,01044	$p_{2,\eta}$	-149,006
$C_{505P}$	0,84647	$I_{95 T,\eta}$	-11,832
$A_{HP548R}$	1032,68	$I_{50 H,\eta}$	-5,377
$B_{HP548R}$	0,01510	$S_{95 T,\eta}$	0,5846
$C_{HP548R}$	0,55475	$S_{50 H,\eta}$	0,4920

Tabelle 13.4: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Scherviskosität.

Table 13.4: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the shear viscosity.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$MFR_{505P}$	2,899	$I_{95 T,MFR}$	-0,550
$MFR_{HP548R}$	22,417	$I_{50 H,MFR}$	-0,596
$p_{1,MFR}$	-55,574	$S_{95 T,MFR}$	-0,169
$p_{2,MFR}$	313,825	$S_{50 H,MFR}$	-0,423

Tabelle 13.5: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des MFR.

Table 13.5: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the MFR.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$W_{505P}$	3,08	$I_{95 T,W}$	9,435
$W_{HP548R}$	3,44	$I_{50 H,W}$	24,490
$I_{Engage 8200,W}$	82,160	$S_{95 T,W}$	-1,539
$S_{Engage 8200 H,W}$	-4,173	$S_{50 H,W}$	-6,911
$I_{Polyvel CR5P,W}$	82,160	$S_{Polyvel CR5P,W}$	-22,786

Tabelle 13.6: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit.

Table 13.6: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the impact strength.

### 13.6 Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Scale-Up Versuche auf der Industrieanlage

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$E_{505P}$	1499,22	$I_{95 T,E}$	13307,82
$E_{HP548R}$	1646,14		
$a$	0,40658	$I_{Engage\ 9200,E}$	3892,88
$b$	7,67958	$S_{95 T,E}$	-7,082
$c$	0,66123		
$d$	1,00712	$S_{Engage\ 9200,E}$	-4,313
$p_{1,E}$	-0,000099	$p_{2,E}$	4,077

Tabelle 13.7: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des E-Moduls für die Transferversuche auf der Industrieanlage.

Table 13.7: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the tensile modulus for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$A_{505P}$	846,84	$p_{1,\eta}$	16,9431
$B_{505P}$	0,0146	$p_{2,\eta}$	-169,738
$C_{505P}$	0,8332	$I_{95 T,\eta}$	-28,2731
$A_{HP548R}$	997,85		
$B_{HP548R}$	0,1828	$S_{95 T,\eta}$	0,7472
$C_{HP548R}$	0,5301		

Tabelle 13.8: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Scherviskosität für die Transferversuche auf der industriellen Anlage.

Table 13.8: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the shear viscosity of the transfer trials on the industrial scale twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$MFR_{505P}$	2,377	$I_{95 T,MFR}$	-1,254
$MFR_{HP548R}$	20,057		
$p_{1,MFR}$	-66,110	$S_{95 T,MFR}$	0,306
$p_{2,MFR}$	341,704		

Tabelle 13.9: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des MFR für die Transferversuche auf der Industrieanlage.

Table 13.9: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the MFR for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$W_{505P}$	5,68	$I_{95 T,W}$	-58,822
$W_{HP548R}$	5,22	$I_{Polyvel CR5P,W}$	-41,490
$I_{Engage 8200,W}$	182,437	$S_{95 T,W}$	10,343
$S_{Engage 8200 H,W}$	-17,172	$S_{Polyvel CR5P,W}$	-35,075

*Tabelle 13.10: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit für die Transferversuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.10: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the impact strength for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.*

Versuchsreihe / Scherrate	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
51 s <sup>-1</sup>	39,2 Pas	7,3 %	0,9083
102 s <sup>-1</sup>	11,2 Pas	3,9 %	0,9790
204 s <sup>-1</sup>	8,7 Pas	4,7 %	0,9802
408 s <sup>-1</sup>	4,3 Pas	3,9 %	0,9834
816 s <sup>-1</sup>	2,2 Pas	2,6 %	0,9778
1632 s <sup>-1</sup>	2,9 Pas	5,2 %	0,8861
Reine Blends	13,8 Pas	4,9 %	0,9742
Engage 8200	16,0 Pas	5,5 %	0,9491
Omyalite 95 T	11,5 Pas	4,3 %	0,9813
Polyvel CR5P	2,7 Pas	3,5 %	0,9926
Gesamter Datensatz	11,4 Pas	4,6 %	0,9741

*Tabelle 13.11: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten Scherviskositäten aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen, Scherraten sowie dem gesamten Datensatz für den Transfer auf die Industrieanlage.*

*Table 13.11: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted shear viscosity listed for the various test series, shear rates and the entire data set for the industrial scale twin screw extruder.*

### 13.7 Angepasste Modellparameter und Bewertungsmetriken für die Validierungsversuche mit komplexen Rezepturen auf der Industrieanlage

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$E_{505P}$	1482,50	$p_{1,E}$	-0,00007
$E_{HP548R}$	1644,01	$I_{95 T,E}$	13888,78
$a$	0,43036	$I_{Engage\ 9200,E}$	3269,33
$b$	7,6994	$S_{95 T,E}$	-7,272
$c$	0,7710	$S_{Engage\ 9200,E}$	-5,186
$d$	1,0749	$p_{2,E}$	4,308

Tabelle 13.12: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des E-Moduls für die Validierungsversuche auf der Industrieanlage.

Table 13.12: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the tensile modulus for the validation trials on the industrial scale twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$A_{505P}$	823,835	$p_{1,\eta}$	27,2396
$B_{505P}$	0,01624	$p_{2,\eta}$	-224,795
$C_{505P}$	0,8385	$I_{95 T,\eta}$	-12,7697
$A_{HP548R}$	1289,872		
$B_{HP548R}$	0,2581	$S_{95 T,\eta}$	0,21521
$C_{HP548R}$	0,5461		

Tabelle 13.13: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Scherviskosität für die Validierungsversuche auf der industriellen Anlage.

Table 13.13: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the shear viscosity of the validation trials on the industrial scale twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$MFR_{505P}$	5,717	$I_{95 T,MFR}$	-0,039
$MFR_{HP548R}$	19,719		
$p_{1,MFR}$	-75,145	$S_{95 T,MFR}$	-0,383
$p_{2,MFR}$	381,998		

Tabelle 13.14: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage des MFR für die Validierungsversuche auf der Industrieanlage.

Table 13.14: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the MFR for the validation trials on the industrial twin screw extruder.

Parameter	Zahlenwert	Parameter	Zahlenwert
$W_{505P}$	4,05	$I_{95 T,W}$	20,564
$W_{HP548R}$	7,85	$I_{Polyvel CR5P,W}$	21,674
$I_{Engage 8200,W}$	31,007	$S_{95 T,W}$	-4,287
$S_{Engage 8200 H,W}$	-1,661	$S_{Polyvel CR5P,W}$	-11,369

*Tabelle 13.15: Gefittete Modellparameter des analytischen Modells zur Vorhersage der Kerbschlagzähigkeit für die Validierungsversuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.15: Fitted model parameters of the analytical model for predicting the impact strength for the validation trials on the industrial twin screw extruder.*

Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
Reine Blends	18,88 N/mm <sup>2</sup>	56,92 N/mm <sup>2</sup>	3,5 %	-0,04890
Engage 8200	9,77 N/mm <sup>2</sup>	22,29 N/mm <sup>2</sup>	1,5 %	0,8377
Omyalite 95 T	25,74 N/mm <sup>2</sup>	41,16 N/mm <sup>2</sup>	1,9 %	0,9271
Polyvel CR5P	18,92 N/mm <sup>2</sup>	29,33 N/mm <sup>2</sup>	1,9 %	0,8209
Gesamter Datensatz	18,30 N/mm <sup>2</sup>	36,58 N/mm <sup>2</sup>	2,1 %	0,9655

*Tabelle 13.16: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten E-Moduln aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz für die Transfersversuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.16: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted tensile moduli listed for the various test series and the entire data set for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.*

Versuchsreihe / Scherrate	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
51 s <sup>-1</sup>	39,2 Pas	7,3 %	0,9083
102 s <sup>-1</sup>	11,2 Pas	3,9 %	0,9790
204 s <sup>-1</sup>	8,7 Pas	4,7 %	0,9802
408 s <sup>-1</sup>	4,3 Pas	3,8 %	0,9834
816 s <sup>-1</sup>	2,2 Pas	2,6 %	0,9777
1632 s <sup>-1</sup>	2,9 Pas	5,2 %	0,8861
Gesamter Datensatz	5,4 Pas	4,0 %	0,9890

*Tabelle 13.17: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten Scherviskositäten aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen, Scherraten sowie dem gesamten Datensatz für die Validierung auf der Industrieanlage.*

*Table 13.17: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted shear viscosity listed for the various test series, shear rates and the entire data set for the validation trials on the industrial scale twin screw extruder.*

Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
Reine Blends	0,581 g/10 min	0,596 g/10 min	11,6 %	0,9838
Engage 8200	0,161 g/10 min	0,509 g/10 min	10,7 %	0,9917
Omyalite 95 T	0,110 g/10 min	2,636 g/10 min	32,1 %	0,3555
Polyvel CR5P	1,829 g/10 min	6,009 g/10 min	18,7 %	0,8878
Gesamter Datensatz	0,674 g/10 min	2,517 g/10 min	18,6 %	0,9534

*Tabelle 13.18: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten MFR-Werte aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz für die Transferversuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.18: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted MFR listed for the various test series and the entire data set for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.*

Versuchsreihe	Messfehler	MAA	MPA	R <sup>2</sup>
Reine Blends	0,49 kJ/m <sup>2</sup>	0,21 kJ/m <sup>2</sup>	3,7 %	0,4984
Engage 8200	0,61 kJ/m <sup>2</sup>	0,40 kJ/m <sup>2</sup>	5,0 %	0,5190
Omyalite 95 T	0,80 kJ/m <sup>2</sup>	0,31 kJ/m <sup>2</sup>	4,5 %	0,5175
Polyvel CR5P	0,40 kJ/m <sup>2</sup>	0,17 kJ/m <sup>2</sup>	4,5 %	0,7772
Gesamter Datensatz	0,58 kJ/m <sup>2</sup>	0,28 kJ/m <sup>2</sup>	4,5 %	0,9359

*Tabelle 13.19: Messfehler und Bewertungsmetriken für die vorhergesagten Kerbschlagzähigkeiten aufgelistet für die verschiedenen Versuchsreihen sowie dem gesamten Datensatz für die Transferversuche auf der Industrieanlage.*

*Table 13.19: Measurement errors and evaluation metrics for the predicted impact strength listed for the various test series and the entire data set for the transfer trials on the industrial twin screw extruder.*

### 13.8 Ergebnis der Hyperparameteroptimierung für das Training der Künstlichen Neuronalen Netze

Hyperparameter	E-Modul	Kerbschlagzähigkeit	MFR	Scherviskosität
Schichten	1	2	1	3
Neuronen	131	142, 196	234	226, 11, 14
Aktivierungsfunktion	Relu	Leaky_Relu	Relu	Sigmoid
Lernrate	0,01627	0,003705	0,01984	0,005866
Gewichtsverlust	0,001072	0,001794	0,0000089	0,000016
Initialisierung	Xavier_normal	Xavier_normal	Xavier_normal	Xavier_normal
Batchgröße	16	16	16	16
Optimierer	Adam	Adam	Adam	Adam

*Tabelle 13.20: Ergebnis der Hyperparameteroptimierung für die vier verschiedenen Zielgrößen für den Labordatensatz.*

*Table 13.20: Result of the hyperparameter optimisation for the four different target properties for the laboratory data set*

Hyperparameter	E-Modul	Kerbschlagzähigkeit	MFR	Scherviskosität
Schichten	2	1	3	3
Neuronen	254, 54	13	250, 16, 25	219, 5, 184
Aktivierungsfunktion	Tanh	Sigmoid	Tanh	Tanh
Lernrate	0,0004606	0,006225	0,0021289	0,001270
Gewichtsverlust	0,000599	0,00000862	0,00000154	0,0000413
Initialisierung	Xavier_uniform	Xavier_uniform	Xavier_uniform	Xavier_normal
Batchgröße	8	4	4	8
Optimierer	Adam	Adam	Adam	Adam

*Tabelle 13.21: Ergebnis der Hyperparameteroptimierung für die vier verschiedenen Zielgrößen für den Datensatz auf der Industrieanlage.*

*Table 13.21: Result of the hyperparameter optimisation for the four different target properties for the industrial scale twin screw extruder data set*

# LEBENS LAUF

## Persönliche Daten

Name Lukas Seifert  
Geburtsdatum 18.05.1996  
Geburtsort Neuwied am Rhein

## Berufserfahrung

10/2025 - heute **Abteilungsleiter**  
*Extrusion und Kautschuktechnologie*  
Institut für Kunststoffverarbeitung (IKV) an der RWTH Aachen

06/2024 – 10/2025 **Gruppenleiter**  
Prozesssimulation Extrusion  
Institut für Kunststoffverarbeitung (IKV) an der RWTH Aachen

08/2021 – 10/2025 **Wissenschaftlicher Mitarbeiter**  
*Datengetriebene Qualitätsregelung*  
Institut für Kunststoffverarbeitung (IKV) an der RWTH Aachen

06/2017 – 06/2021 **Studentische Hilfskraft**  
Institut für Kunststoffverarbeitung (IKV) an der RWTH Aachen

03/2019 – 09/2019 **Praktikant**  
*Research and Development (R+D)*  
RKW Sweden AB, Helsingborg, Schweden

## Ausbildung

08/2021 – 09/2025 **Promotionsstudium**  
RWTH Aachen University

07/2020 – 07/2021 **Master of Science, Kunststoff- und Textiltechnik**  
*Fachrichtung Kunststofftechnik*  
RWTH Aachen University

10/2015 – 07/2020 **Bachelor of Science, Maschinenbau**  
*Fachrichtung Kunststofftechnik*  
RWTH Aachen University

08/2006 – 03/2015 **Allgemeine Hochschulreife**  
Rhein-Wied-Gymnasium, Neuwied am Rhein