論文

カップの後方押出し成形における 3次元局所分岐後の劈開不安定による破断限界予測

斉藤 安治* 佐々木 泰孝*

植村 元** 森 尚達** 伊藤 耿一**

Prediction of Fracture Limit for Backward Extrusion of Cup by Instability Condition to Cleaving Action on Localized Bifurcation Zone

Yasuharu SAITO*, Yasutaka SASAKI*,

Gen UEMURA**, Naomichi MORI** and Koichi ITO**

(Received on December 7, 2016)

We investigated a method of determining the geometry of the die and punch, which are not allowed to fracture in the forming process of backward extrusion of cup. On the basis of the localized bifurcation theory, it is suggested that final fracture, which is recognized as the separation of a continuum material, may occur in the shear band zone with cleavage. A newly proposed instability condition to the cleaving action in the shear band zone is applied to predict the fracture limit on the forming process. Finite element analysis of the forming process is performed to know the stress state, which is required in the theory. The experimental observation using an optical microscope is also conducted to recognize fracture occurrence during the forming process. Results show that the combination of the punch shoulder radius and the die shoulder radius ensures forming without fracture.

Key words: backward extrusion of cup, localized bifurcation theory, instability condition to the cleaving action, Finite element analysis.

1. 緒言

冷間鍛造において割れを問題とするとき、脆性破壊や疲労破壊といった金型の割れを取り上げる場合が少なくない。しかし、被加工材も圧縮応力だけでなく引張応力・せん断応力が誘起され破壊に至る場合があり、生産現場では被加工材自体の割れもしばしば問題となっている。本論文で考察を試みたカップの後方押出しにおける側壁内側の割れもその一例である。

プレス成形過程における被加工材の割れを事前に予測し、対策を検討することは、金型開発のコスト削減およびリードタイム短縮において非常に重要であり、そこで活用されている方法が FEM (Finite Element Method) シミュレーションである。割れの予測という FEM の役割に着目すると、薄板材に関しては、シェル要素の FEM シミュレーションと主ひずみ平面の FLD (Forming Limit Diagram) を比較し、

局所くびれの発生をもって成形限界と評価することが多い¹⁾。ただし、この成形限界線には変形履歴依存性があり、実加工の任意の変形履歴においては判定不可能である。また、平面応力以外の応力状態には適用することができない。一方、本論文で対象としている冷間鍛造に代表されるバルク材の割れに関しては、ソリッド要素または、軸対称・平面ひずみ要素の FEM シミュレーションにボイドの発生・成長と連結に基づく延性破壊条件式を適用することが多い²⁾。しかし、延性破壊条件式は、履歴積分の物理的意味や破壊臨界値の力学的説明がなされていないなど、客観性と適用範囲の一般性に欠けている。特にパラメータの決定は応力比(破壊のモードに則した応力状態)に依存しており、事前に不明で複雑な変形をする一般の加工には適用不可能である。著者らは、このような割れ評価とは別の観点で、Ito-Goya の応力増分依存性構成式を採用した 3 次元局所分岐理論³⁾による一般の応力状態に適用可能な成形限界評価を提案してきた⁴⁾。そこでは、後の 3 章で述べるように成形限界をひずみではなく、その瞬間の σ/h (応力/加工硬化率) で与える。これにより変形履歴の影響を排除した客観的な FLD を用いた成形限界評価が可能となる⁸⁾。さらに、バル

* (株)ウチダソーキ 〒989-2421 宮城県岩沼市下野郷字中野馬場 1-1
UchidaSOKI Co., Ltd., 1-1, Nakanobaba, Shimonogo, Iwanuma, Miyagi, 989-2421, Japan.

** (有)エムアンドエムリサーチ 〒150-0001 東京都渋谷区神宮前 4-15-3
M&M Research, Inc., 4-15-3, Jingumae, Shibuya, Tokyo, 150-0001, Japan.

ク材の特徴である周囲の材料による割れの抑制効果を考慮に入れた劈開不安定条件という指標を用いた評価方法も提案してきた⁵⁾。近年、板鍛造によって付加価値の高い製品を生み出す加工方法が注目されており、その開発には FEM シミュレーションが不可欠となっている。板材のプレス加工に局所的に鍛造加工を取り入れるこの工法においては、薄板材やバルク材、特定の変形履歴や応力成分比等に限定される割れ評価ではなく、より客観的で汎用性のある FEM シミュレーションの割れ評価が必要である。

本研究では、カップの後方押し出しにおける側壁内側の割れを生じさせない金型条件を解析から事前に導くことを目的に、割れの予測に FEM 解析結果に基づいた 3 次元局所分岐条件および劈開不安定条件を適用し、実験による調査と合わせて比較考察を行った結果を報告する。

Fig. 1 Geometry of punch and die used in backward cup extrusion forming

2. カップの後方押し出し加工

Fig. 1 に本研究で用いたカップの後方押し出し金型の概略図を示す。中心のボスにカウンターパンチで一定荷重を与え高さを抑えつつ、中空のパンチでビレットを押し込み材料を流動させ側壁を押し出す冷間鍛造金型である。このようなカップの後方押し出し加工においては、鋭い角のパンチによりカップ側壁内側に割れが生じることが知られている⁶⁾。一方、この割れの発生のタイミングが、パンチ肩半径 R_P とダイ肩半径 R_D の組み合わせの影響を受けることが現場の見知として知られている。

そこで本研究では、パンチ肩半径 $R_P=0.5\text{mm}, 1\text{mm}, 2\text{mm}$ 、ダイ肩半径 $R_D=0\text{mm}, 2\text{mm}, 4\text{mm}$ を選択し、その他の条件はすべて同一のもと、これらパラメータの組み合わせ合計 9 パターンに対し割れの挙動を調査した。

3. 3 次元局所分岐理論による破壊予測

3.1 3 次元局所分岐の発生基準

Hill⁷⁾の一般論に基づき、 $\mathbf{m}$, $\mathbf{n}$ を局所分岐変形モードベクトル、分岐帯界面の法線ベクトルとして

$$I[\mathbf{m}, \mathbf{n}; \sigma] = hH[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s] - \sigma \Sigma[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s] \quad (1)$$

$$H[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s] = \mathbf{m} \cdot \mathbf{n} \cdot \bar{D}(s) \cdot \mathbf{n} \cdot \mathbf{m} \quad (2)$$

$$\Sigma[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s] = \frac{1}{2} [\mathbf{m} \cdot \mathbf{s} \cdot \mathbf{m} + \mathbf{n} \cdot \mathbf{s} \cdot \mathbf{n}] \quad (3)$$

$$\sigma = \alpha s, \quad \sigma = \sqrt{\sigma : \sigma}, \quad s = \sigma / \sigma, \quad h = d\sigma / d\varepsilon^P \quad (4)$$

なる規準汎関数 $I[\mathbf{m}, \mathbf{n}; \sigma]$ を得る⁸⁾。ここに σ と h は現在の応力テンソルの大きさと加工硬化率である。

3 次元局所分岐領域をせん断帯 (shear band) と呼ぶが、せん断帯内部は $\mathbf{L}^b = \mathbf{m} \otimes \mathbf{n}$ なる速度勾配テンソルで表される変形をする。式(1)の分岐規準汎関数の第 1 項 $hH[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]$ はこの変形速度を生ずるために材料が要求する仕事速度を表し、第 2 項 $\sigma \Sigma[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]$ はせん断帯に隣接する外部の応力から供給される仕事速度である。一般的に応力レベルが上昇すると材料の加工硬化率 h は低下することを考慮すると要求仕事速度 $hH[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]$ は応力の上昇にともなって低下する一方で供給仕事速度 $\sigma \Sigma[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]$ は増大する。応力レベルが 0 から次第に上昇する過程では、初期に正であった式 (1) の分岐規準汎関数の値は次第に減少し、やがて負値となる。式(1)の値の符号の変わり目の応力がせん断帯発生応力であり次式で与えられる⁸⁾。

$$\left(\frac{\sigma}{h} \right)_{cr} = \min \left(\frac{H[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]}{\Sigma[\mathbf{m}, \mathbf{n}; s]} \right) \quad (5)$$

せん断帯発生後はせん断帯内部の変形仕事速度に対して周囲の応力場による供給仕事速度が過剰となるのでせん断帯内部は不安定的変形が促進されることになる。

板面内の寸法に対して板厚寸法が著しく小さい薄板材ではせん断帯の発生限界応力は破壊限界応力とみなされるが、3 次元的にせん断帯に隣接する材料の拘束が大きいバルク成形ではせん断帯発生後ただちに破壊に至るとは限らない。

(a) Traction acting on shear band (b) Cleavage in shear band zone

Fig. 2 Configurations of traction and cleavage in shear band

3.2 せん断帯への劈開作用の不安定

局所分岐帯を劈開させる変形 (Fig. 2 参照) は分岐界面の法線方向 $\mathbf{n}$ の垂直ひずみ速度 $\dot{\varepsilon}_{nn}$ であり、体積一定の条件を考慮して、次式で定義できる。

$$L^c = \dot{\varepsilon}_{nn} \left(\mathbf{n} \otimes \mathbf{n} - \frac{\mu}{1+\mu} \mathbf{m} \otimes \mathbf{m} - \frac{\mu}{1+\mu} \mathbf{q} \otimes \mathbf{q} \right) \quad (6)$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{n} \times \mathbf{m} \quad (7)$$

ここに μ は任意のスカラーパラメータである。これに分岐モードとしての速度勾配テンソル $\mathbf{L}^b = \mathbf{m} \otimes \mathbf{n}$ を加えた速度勾配 $\mathbf{L} = \mathbf{L}^b + \mathbf{L}^c$ がトラクションによって局所分岐帯 (せん断帯) に発生する変形速度である。そこで、第 1 種の Piola-Kirchhoff 応力テンソル

$$\dot{\mathbf{S}} = \mathbf{D} : \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} + \sigma \text{tr}(\mathbf{L}) + \boldsymbol{\omega} \cdot \boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\sigma} \cdot \boldsymbol{\omega} - \mathbf{L} \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (8)$$

に関連するトラクション速度 $\dot{\mathbf{T}} = \dot{\mathbf{S}}^T \cdot \mathbf{n}$ を定義すると、そのせん断帯界面の法線方向成分 $\dot{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{n}$ が劈開ひずみ速度 $\dot{\varepsilon}_{nn}$ を生み出すので、任意の $\dot{\varepsilon}_{nn}$ に対する $\dot{\mathbf{T}} \cdot \mathbf{n}$ の正值性の喪失条件が最も単純な劈開不安定条件である。

$$\dot{\mathbf{T}}(\boldsymbol{\mu}) \cdot \mathbf{n} = \mathbf{n} \cdot \dot{\mathbf{S}}(\boldsymbol{\mu}) \cdot \mathbf{n} = \dot{\varepsilon}_{nn}(\boldsymbol{\mu}) = 0 \quad \dot{\varepsilon}_{nn} > 0 \quad (9)$$

式(6), (7)を式(9)に代入して

$$I_C \equiv \min[\mathbf{L}^c : \mathbf{D} : \mathbf{L}^c] \quad (10)$$

なる劈開不安定指数を定義すると劈開破断発生条件を得る。

$$I_C = 0 \quad (11)$$

3.3 分岐問題のための塑性構成式

分岐はそれまで継続していたひずみの方向が突然変化する現象であるが、塑性加工解析で広く利用されている法線則はこれを許容しないので分岐解析には適用できない。そこで著者等は以下に示すような塑性ひずみ増分方向が応力増分方向の変化に応じて変化する構成式を提案し局所分岐解析に採用している³⁾。

$$hd\boldsymbol{\varepsilon}^P = K_C d\boldsymbol{\sigma}' + (1 - K_C)(d\boldsymbol{\sigma}' : \mathbf{n}_N) \quad (12)$$

ここに $\mathbf{n}_N$ は比例負荷において生ずる塑性ひずみ増分方向を与える単位テンソルであり、材料パラメータ $0 < K_C < 1$ は塑性ひずみ増分方向の変化の程度を示すもので K_C 値が大きいほど分岐限界点は低下し、一方 $K_C = 0$ では流れ則式(12)は法線則に一致する。

4. 実験

4.1 実験条件

実験は、Fig. 1 の金型を作製し実施した。パンチ肩半径 $R_P = 0.5\text{mm}$, 1mm , 2mm 、ダイ肩半径 $R_D = 2\text{mm}$, 4mm のパンチとダイもそれぞれ作製し、それを差し替えることで各組み合わせパターンの実験を行った。ただし、ダイ肩半径 $R_D = 0\text{mm}$ に関しては、実験効率とカップの実用上の制約（カップ外観角部は切削が必要になる）を考慮し作製しなかった。 $\Phi 25$ 厚さ 10mm のビレットは、丸棒を機械加工で切断した S10C 材で、ボンデ処理されている。

4.2 実験結果

Fig. 3 は、カップ内径の外観と丸棒線内を光学顕微鏡で観察した結果をいくつかのパンチストロークについて、左から加工の進展順に並べた写真である。ボス部は撮影の邪魔になるため回避してカットしている。ダイ肩半径 $R_D = 4\text{mm}$ は共通に、Fig. 3 (a)がパンチ肩半径 $R_P = 0.5\text{mm}$ 、Fig. 3 (b)がパンチ肩半径 $R_P = 1\text{mm}$ であり、パンチ肩半径の影響を比較している。Fig. 3(a)はパンチストローク 7.5mm で目視可能な割れが発生し、Fig. 3(b)では、パンチストローク 7.7mm で発生している。この結果は、同一ダイ肩半径 R_D においては、パンチ肩半径 R_P が小さいほど割れ発生タイミングが早いことを示している。また、この目視可能な割れは、カップ側壁内で斜め下方向に進展しているが、側壁外側まで貫通しているものではなく、表面上に留まっている。

一方、目視可能な割れが発生する前段階から Fig. 3 の光学顕微鏡写真に帯状に白色化した領域が観察できる。この部分をさらに拡大したものが Fig. 4 である。この白色化した領域は、いわゆる肌荒れと呼ばれる状態に対応するもので、表面上に現れた局所変形であることがわかる。この肌荒れの状態が先行して発生し、やがて目視可能な割れへと発展する。

Fig. 3 Appearance of cracks on the inner surface of the cup during forming process observed using a microscope

Fig. 4 Enlarged view of the damaged surface zone ($R_P = 0.5\text{mm}$, $R_D = 4\text{mm}$, punch stroke 6.9mm)

5. 解析

5.1 解析条件と解析手順

FEM 解析には、動的陽解法の汎用コード LS-DYNA を用いた。Fig. 1 をメッシュサイズ 0.2mm の軸対称要素でモデル化し、金型は剛体、被加工材は弾塑性体とした。S10C の変形抵抗はべき乗硬化則 $\sigma = C\varepsilon^n$ を適用し、 $C = 695\text{MPa}$ 、 $n = 0.256$ 、降伏応力 $\sigma_Y = 220\text{MPa}$ を文献データ⁹⁾より参照した。降伏関数は Mises の等方硬化で、ひずみ速度依存性、熱連成は考慮していない。

FEM 解析結果に基づいた割れの解析的評価は以下の手順で行った。

Step1 : FEM 解析結果から得られた成形過程における各瞬

間の σ/h に対し式(5)により 3 次元局所分岐限界の判定を行い、せん断帯の発生時期とせん断帯の方向を同定する。

Step2: Step1 で同定した 3 次元局所分岐限界に達している要素に対し、FEM 解析結果から得られた応力を用いてせん断帯垂直方向に作用するトラクションを導出し、式(10)の劈開不安定条件に適用する。

Step3: 劈開不安定指数 I_C が負値になった瞬間を破壊のタイミングと判断して 3 次元局所分岐後の割れの発生を評価する。

この一連の割れ評価の解析においては、式(12)の材料パラメータ K_C として低炭素鋼の標準値とされる $K_C = 0.2$ を設定している。

Fig. 5 Distribution map of instability factors for the localized bifurcation and the cleaving action

5.2 解析結果

パンチ肩半径 $R_P = 0.5\text{mm}$ 、ダイ肩半径 $R_D = 4\text{mm}$ の解析モデルに対し、式(5)の 3 次元局所分岐条件とさらに式(10)の劈開不安定条件を適用した結果の各分布図を Fig. 5 に比較して示す。Fig. 5 の左図は、3 次元局所分岐限界を超えた要素を濃いグレーで表示している。右図は、3 次元局所分岐限界を超えた要素に対し、さらに劈開不安定指数 I_C を計算しコンター表示している。各図の上段は、パンチストローク 1.6mm の加工初期を、下段はパンチストローク 7.5mm の加工後期の計算結果を示している。上段左図で 3 次元局所分岐限界に達している要素でも、上段右図の劈開不安定指数 I_C は負値になっておらず、割れの危険性が低いと評価できる。下段左図では、広く分布していた 3 次元局所分岐限界を超えた領域が下段右図の劈開不安定指数 I_C の負値領域で評価すると割れの危険部位が側壁内側底面近傍に集中する様子がわかる。これらは、その瞬間の σ/h で評価した 3 次元局所分岐条件からはせん断帯の発生を予測しているものの、バルク材の特性から周囲の応力状態によりせん断帯の劈開作用が抑制される状況にあり、劈開不安定指数 I_C による評価では、割れの危険領域がより限定されたと考えられる。

6. 解析と実験結果の比較考察

Fig. 3 の光学顕微鏡写真に対応する位置に解析による劈開不安定指数 I_C のコンター図を付け足した図を Fig. 6 に示

す。解析結果の劈開不安定指数 I_C が正值の白い領域は、バルク材において割れの危険度は低いと評価できる領域である。負値の場合は、その絶対値が大きいほど、すなわち黒色に近い領域ほどせん断帯劈開作用の不安定度は大きく、割れ発生の危険度が高いことを表している。実験写真に現れている被加工材表面の肌荒れ領域の高さと不安定領域の高さは良く対応しており、パンチ肩半径 $R_P = 0.5\text{mm}$ の方が $R_P = 1\text{mm}$ より肌荒れ領域の発生のタイミングとその成長が速い傾向も表現できている。目視可能な割れの発生は劈開不安定指数 I_C の負の絶対値が大きい黒色領域の拡大に対応して割れ発生の危険性が高いということが定性的には評価できる。

Fig. 6 Negative instability factor distribution and surface appearance

Fig. 7 にパンチ肩半径 R_P とダイ肩半径 R_D の各組み合わせ 9 パターン A~I に対し、本実験の最大パンチストローク $= 8.4\text{mm}$ における側壁内側光学顕微鏡写真および対応する劈開不安定指数 I_C を評価した解析結果を示す。ただし、パターン G と H については、目視可能な割れ発生時点のパンチストロークとなっている。パターン A~C について実験データは無いが、 I_C が負値になる瞬間が全く無いことから、割れの危険性は極めて低いと考えられる。 I_C 負値領域の分布の大きな広がりからダイ肩半径 $R_D = 4\text{mm}$ の段 (パターン G~I) の割れの危険性が相対的に高いと判断できる。その中でさらに I_C 負値領域の絶対値が大きい点からパンチ肩半径 R_P が小さいほど割れの危険が高く、かつパンチストロークの早期に割れの危険が発生すると判断できる。

Fig. 8 は、 I_C の負値の絶対値が全体として最大値をとる傾向にあったパンチ肩半径 R_P の起点から 0.5mm 上方のポイントの要素に対し、パンチストロークの進行とともに I_C の値がどのように変化していくかをいくつかのパンチ肩半径 R_P とダイ肩半径 R_D の組み合わせ間で比較している。このグラフから、割れの危険発生タイミングはパターン G, H, I, D, E の順に早く、パターン A を始めグラフは省略したがパターン B, C, および F も I_C が負値になることが無く、割れの危険性は低いと評価できる。ここで評価された I_C の傾向は Fig. 7 の実験結果と良く合っている。パターン G, H で明確な肌荒れ領域が確認でき、パターン G で最

も早期に目視可能な割れが発生し、パターン F では肌荒れも発生していない。

$R_p \backslash R_d$	0.5 mm	1 mm	2 mm
0 mm	A No experiment	B No experiment	C No experiment
2 mm	D	E	F
4 mm	G	H	I

Fig. 7 Influence of the punch shoulder die radius and the die shoulder radius on fracture initiation [Punch stroke (mm) : A~F and I = 8.4, G = 7.5, H = 7.7]

Fig. 8 Variation of the instability factors of the cleaving action with punch stroke

Fig. 9 Distribution of Y component of nodal velocity at punch stroke of 8.3mm

以上の結果は、ダイ肩半径 R_d が小さいほど、かつパンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d の差が小さいほど割れが発生しにくいことを示唆している。冷間鍛造加工においては一般に、小さい金型 R 部分の材料流動は抑制され、大きい金型 R 部分は材料流動が加速される。パンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d の差が小さいということは、材料流動速度の差が小さいということであり、逆にパンチ肩半径 $R_p = 0.5\text{mm}$ 、ダイ肩半径 $R_d = 4\text{mm}$ のように差が大きい場合には、材料流動速度の差も大きくなり、そこに引張りのせん断応力が発生することにより割れの危険性が増大すると考えられる。

そこで解析結果の節点速度の分布を調査するため、パンチストローク 8.3mm に対し、Fig. 8 のプロットポイントを出発点にパンチ側からダイ側に向かう断面で節点速度の Y 成分をプロットした図を Fig. 9 に示す。パンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d の差が大きく、目視可能な大きな割れの発生したパターン G, H では明らかにパンチ側とダイ側で流動速度の差があることがわかる。パターン D においても平均して緩やかに勾配を持っているが、パターン A においては流動速度にほぼ差はない。これらの傾向は、パンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d の差の大小関係と相関があり、 I_c から評価した割れの危険性とも対応している。

7. 結 言

冷間鍛造によるカップの後方押し出し加工において発生する側壁内側の割れに関し、パンチ肩半径とダイ肩半径をパラメータにその組み合わせが及ぼす影響を実験と数値解析の両面から調査した。以下に今回の調査の結果をまとめる。

- (1) 劈開不安定指数 I_c が負値となるタイミングと分布領域は、後方押し出しカップ側壁表面上に表れた局所変形である肌荒れの発生と領域に適合する。
- (2) 劈開不安定指数 I_c の負値の絶対値が大きく広く分布する場合、目視可能な割れに発展する危険性が高まるため、劈開不安定指数 I_c の値は割れの危険性の度合いを相対的に評価する指標となり得る。
- (3) せん断帯の劈開作用の促進・抑制効果を考慮する劈開不安定指数 I_c による解析は、バルク材の 3 次元局所分岐限界以降の割れの予測に有効である。
- (4) 後方押し出しカップ側壁の割れに関して、ダイ肩半径 R_d が小さいほど、かつパンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d の差が小さいほど、割れ発生の危険は少なくなる。
- (5) 割れのモードに即した特段の破壊試験をすることなく、後方押し出しカップで割れの発生しないパンチ肩半径 R_p とダイ肩半径 R_d が解析で事前予測可能となり、実用性の面で非常に価値ある結果が得られた。

参 考 文 献

- 1) Jpn. Sheet Met. Form. Res. Group(Ed.): Puresu-Seikei-Nani-Handobukku 3rd Ed., (2007), 644-645.
- 2) Jpn. Soc. Technol. Plast.(Ed.): Static FEM—Bulk Forming, (2003), 119-130.
- 3) Ito, K., Satoh, K., Goya, M. & Yoshida, T.: Int. J. Mech. Sci., **42** (2000), 2233-2248.
- 4) Ito, K., Uemura, G. & Mori, N.: Proc. 56th Jpn. Jt. Conf. Technol. Plast., (2005), 45-46.
- 5) Ito, K., Uemura, G. & Mori, N.: Proc. 61st Jpn. Jt. Conf. Technol. Plast., (2010), 403-404.
- 6) Kudo, H.: J. Jpn. Soc. Technol. Plast., **19-207** (1978), 249-253.
- 7) Hill, R.: J. Mech. Phys. Solids, **1**, (1952), 19-30.
- 8) Ito, K., Uemura, G. & Mori, N.: Numisheet08, (2008), 181.
- 9) Higashino, T., Saito, Y. & Kato, K.: J. Jpn. Soc. Technol. Plast., **18-201** (1977), 860-866.