Orientation of Disk-like Particles in a Microcomposite Processing

YASUDA Kazunori*, OHARA Norihiro*, MORI Noriyasu*, CHIBA Kunji**

*Department of Mechanophysics Engineering, Graduate School of Engineering, Osaka University,
2-1 Yamada-Oka, Suita, Osaka, 565-0871 Japan

**Faculty of Education, Shiga University, 2-5-1 Hiratsu, Otsu, Shiga, 520-0862 Japan

Received 23 June 2004; accepted for publication 5 October 2004

Abstract

The objective of this study is to well understand the migration and orientation of thin micro-particles in a suspension flow by means of both experiments and numerical simulations. In this framework, the evolution of the orientation of thin micro-particles such as talc and mica, which were modeled by a disk-like particle, in a flow through a slit channel was analyzed to obtain the knowledge of the processing operations of thin micro-particle reinforced composites.

The thin disk-like particles were subjected by a planar extensional flow in a reservoir, then by a simple shear flow through a slit channel in the experimental apparatus used. The evolution of the orientation of thin disk-like particles was, therefore, studied in both a planar extensional and simple shear flows by numerical calculation of the Jeffery equation: thin disk-like particles aligned in a parallel orientation to upper- and lower-walls of the slit channel in a planar extensional flow through the reservoir, then entered into the inlet of the slit channel. On the other hand, in a simple shear flow through the slit channel, the disk-like particles kept this parallel orientation except the occurrence of a flip-over phenomenon. The period of the flip-over became longer with a decrease in the aspect ratio of the disk-like particles.

Furthermore, the measurements of the orientation of the talc particles in a suspension flow through the slit channel clearly showed that almost the same period of the flip-over was found although the particle size was different. These experimental results arise from complex geometries and no accurate data of the thickness of the talc particles.

Key Words: disk-like particle, talc particle suspension, orientation of thin particle, planar extensional flow, simple shear flow

マイクロコンポジットの成形中におけるディスク状粒子の配向

保田和則*, 小原教弘*, 森 教安*, 千葉訓司**

1. まえがき

最近の技術の進展に伴い、マクロからナノの領域にわたる高機能性複合材料が成形され多くの分野で用いられている。ナノコンポジットの場合には、高分子材料にナノオーダーの粒子を分散させることにより、分子の構造を変えて複合材料の性能を飛躍的に向上させることが目的である。これに対して、強化材としてアラミッド繊維、ガラス繊維や炭素繊維を用いたマクロな繊維強化複合材料は、軽量で高強度、高弾性であるため工業的に広く用

いられており、その特性は繊維の配向状態に大きく依存する。上記の二つの複合材料の中間に位置するものに雲母あるいはタルクなどの無機粒子を強化材として使用したマイクロコンポジットがある。この複合材料では、大きさが10から数10 μm で厚さの薄い鱗片状の粒子を熱可塑性プラスチックへ懸濁して成形することにより、機械的[1-8]、熱的[5,9,10]ならびに電気的特性[11]を改良することが目的である。例えば、シート状のマイクロコンポジットを考えた場合、鱗片状の粒子が材料の厚さ方向の中央に移動してしかも粒子がシート面に平行に配列す

** 連絡先：滋賀大学教育学部 520-0862 大津市平津 2-5-1, E-mail: kchiba@sue.shiga-u.ac.jp, Fax: 077-537-7840

* 大阪大学大学院工学研究科機械物理工学専攻 565-0871 吹田市山田丘 2-1

ると、柔軟かつ熱的、電氣的遮蔽性能の高い材料を成形することが可能となる。

従って、複合材料の用途に応じてマイクロ粒子のマイグレーションと配向をコントロールできれば用途拡大に繋がると考えられる。従来から、紡糸工程、シート押出し工程や射出成形など種々の成形工程により作られた複合材料中における雲母やタルクの配向に関しては研究が行われているが[12]、複合材料の成形に関連した各種の流れ中における鱗片状粒子のマイグレーションと配向に関する基礎的なメカニズムについては、重要ではあるが十分には明らかにされていない。

そこで、この研究では、鱗片状粒子の懸濁液の流れ中における粒子のマイグレーションと配向に関する研究ならびに鱗片状粒子の懸濁液の流れに関する研究に焦点を絞り、実験と数値解析の両面からこの現象を明らかにする。ここでは、研究の第一段階として雲母あるいはタルクなどの鱗片状粒子を円板状粒子でモデル化し、シート状複合材料の成形過程の解析を目的として、スリット流路内での流れ中における円板状粒子の配向について調べる。更に、タルク粒子の懸濁液をスリット流路内で流したときに観察される筋状の模様についても考察する。本報では、2 節で平面伸張流れ中および単純せん断流れ中における円板状粒子の配向の数値解析結果について、3 節でスリット流路内での流れ中におけるタルク粒子の配向の観察結果について述べる。更に、複雑な形状のタルク粒子の配向の変化が Jeffery の方程式を用いて表すことができるかどうかについて考える。

2. 円板状粒子の配向の数値解析

2.1 基礎式

円板状粒子の場合も、細長い粒子の場合と同様にニュートン流体の homogeneous な流れ（一様な速度勾配の流れ）中における配向の変化は次に示す Jeffery の方程式[13]を用いて表すことができる。

$$D\mathbf{p}/Dt = \boldsymbol{\omega} \cdot \mathbf{p} + \lambda(\mathbf{d} - \mathbf{d} : \mathbf{p}\mathbf{p}\mathbf{I}) \cdot \mathbf{p} \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{p}$ は円板状粒子の面に立てた単位法線ベクトルで配向ベクトルと呼ばれる。また、 $\mathbf{d}$ は変形速度テンソル、 $\boldsymbol{\omega}$ は渦度テンソル、 $\mathbf{I}$ は単位テンソルである。 D/Dt は物質微分で

$$D/Dt = \partial/\partial t + \mathbf{v} \cdot \nabla \quad (2)$$

であり、粒子とともに移動している観察者から見ると

(Lagrangian sense)、物質微分は $D/Dt = \partial/\partial t$ となる。更に、 λ は粒子のアスペクト比（厚さ／直径） r_a を用いて次式で表される。

$$\lambda = (r_a^2 - 1)/(r_a^2 + 1) \quad (3)$$

なお、円板状粒子の場合には $-1 < \lambda < 0$ となる。

また、Jeffery の方程式は、厳密には以下に示す仮定の下に成立する。

- (1) 粒子の形状は回転楕円体である。
- (2) 粒子が運動しても流速場は乱されない。
- (3) 粒子間の干渉はない。
- (4) 流れは定常で、少なくとも粒子の大きさの範囲内では homogeneous な流れである。
- (5) 粒子は流体と同一速度で移動する。

次に、Fig.1 に示すような座標系において、 xy 面内の 2 次元流れ中における粒子の 3 次元配向の変化を考えると、Jeffery の方程式は配向角 ϕ と θ を用いて、

$$\begin{aligned} \dot{\phi} &= -\omega_z + \lambda(d_{xy} \cos 2\phi - d_{xx} \sin 2\phi) \\ \dot{\theta} &= (\lambda/2)(d_{xy} \sin 2\phi + d_{xx} \cos 2\phi) \sin 2\theta \end{aligned} \quad (4)$$

と書ける。

Fig.1 Disk-like particle and coordinate system.

2.2 平面伸張流れ中および単純せん断流れ中における円板状粒子の配向の数値解析

スリット流路内における円板状粒子の配向の観察は、Fig.2 に示す流路で行った。スリット流路は大きなリザーバの側面に取付けられている。従って、リザーバからスリット流路へ流れ込む流れは、中央部の広い領域でほぼ平面伸張流れとなることが分かる（例えば、リザーバ内

の一点鎖線で表示した面内の流れ). 更に, 円板状粒子は流線に沿って移動するので, スリット流路内の十分に発達した流れ中では単純せん断流れに曝されることになる. そこで, 平面伸張流れ中と単純せん断流れ中における円板状粒子の配向の変化を調べることにした.

Fig.2 Schematic diagram of the reservoir and slit channel used in the experiment.

2.2.1 平面伸張流れ中における円板状粒子の配向の数値解析

伸張速度を $\dot{\epsilon}$ とすると, 流速ベクトル $\mathbf{v}$, 変形速度テンソル $\mathbf{d}$ および渦度テンソル $\boldsymbol{\omega}$ は

$$\mathbf{v} = (\dot{\epsilon}x, -\dot{\epsilon}y, 0), \quad \mathbf{d} = \begin{bmatrix} \dot{\epsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -\dot{\epsilon} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad \boldsymbol{\omega} = 0 \quad (5)$$

となり, Jeffery の方程式(4)は

$$\begin{aligned} \dot{\phi} &= -\lambda \dot{\epsilon} \sin 2\phi \\ \dot{\theta} &= (\lambda \dot{\epsilon} / 2) \cos 2\phi \sin 2\theta \end{aligned} \quad (6)$$

となる. なお, 流線は x 軸, y 軸を漸近線とする双曲線で表される. (6)式を4次のRunge-Kutta法で数値計算し, 円板状粒子の配向に及ぼすアスペクト比, 初期角度の影響を明らかにした. 計算では, 伸張速度を $\dot{\epsilon} = 1.0 \text{ 1/s}$, 初期位置を $(x_0, y_0) = (20\text{mm}, 20\text{mm})$ として, アスペクト比を $r_a = 0.1, 0.05, 0.02$, 初期角度を $\phi_0 = 15^\circ \sim 60^\circ$, $\theta_0 = 10^\circ \sim 60^\circ$ と変化した.

Fig.3 に円板状粒子の配向の変化を示す. この図は円板を xy 面へ投影したもので, 中心から引かれた線分は配向ベクトルを表している. また, 単純な流れ中における細長い粒子の配向と同様に, 円板状粒子の配向の変化も伸張速度に関わらず伸張ひずみ $\dot{\epsilon}t$ で決まるので, 横軸には

伸張ひずみを採っている. この図から, 初期角度に関わらず円板状粒子はその面が xy 面に垂直でかつ x 軸に平行になるように配向する (配向ベクトルが y 軸方向を向く, 即ち, $\phi = 90^\circ$, $\theta = 90^\circ$) ことが明らかになった. また, Fig.3 には $\theta_0 = 10^\circ$ と 60° の結果のみ示すが, この配向に到達するまでの伸張ひずみは, 初期角度 θ_0 が大きいほど小さくなることも分かった. この結果から, 実験に用いた流路では, 円板状粒子がリザーバからスリット流路へ流入する際に, 平面伸張流れにより円板の面をスリット流路の上下壁面にほぼ平行にして流入することが分かる.

Fig.4 には, 配向角の変化に及ぼす初期角度とアスペクト比の影響を示す. ϕ は単調に増加するが (グレーの曲線), $\phi_0 < 45^\circ$ の場合 θ は一旦減少した後に 90° へ漸近する. また, 初期位置での θ の絶対値は $\theta_0 = 45^\circ$ のとき最大で, ϕ_0 が小さいほど大きくなることも分かる. 一方, $r_a = 0.1, 0.02$ の場合それぞれ $\lambda = -0.9802, -0.9992$ となるが, Fig.4(b)からアスペクト比が小さい方 (記号で表示) が配向角の変化は大きくなるが, その差は極めて小さいことも明らかになった. 即ち, 単純せん断流れ中と異なり, 平面伸張流れ中では配向角の変化はほとんどアスペクト比の影響を受けないことになる.

(a) initial angles $\phi_0 = 15^\circ$, $\theta_0 = 10^\circ$

(b) initial angles $\phi_0 = 15^\circ$, $\theta_0 = 60^\circ$

Fig.3 Evolution of orientation of disk-like particle in a planar extensional flow for stretch rate $\dot{\epsilon} = 1 \text{ s}^{-1}$, aspect ratio $r_a = 0.1$, initial location is (20mm, 20mm).

2.2.2 単純せん断流れ中における円板状粒子の配向の数値解析

せん断速度を $\dot{\gamma}$ とすると, 流速ベクトル $\mathbf{v}$, 変形速度テンソル $\mathbf{d}$ および渦度テンソル $\boldsymbol{\omega}$ は

(a) effect of initial angles

(b) effect of aspect ratio

Fig.4 Evolution of orientation angle of disk-like particle in a planar extensional flow for $\dot{\epsilon}=1\text{ s}^{-1}$; (a) variation of ϕ (grey curve) for $\phi_0=15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$, variation of θ for $\theta_0=10^\circ, \phi_0=15^\circ$ (thick solid curve), 30° (dotted curve), 45° (broken curve), 60° (solid curve) and variation of θ for $\phi_0=15^\circ, \theta_0=30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$ (symbol); (b) $r_a=0.1$ (curve), $r_a=0.02$ (symbol), variation of ϕ (grey curve) for $\phi_0=15^\circ$, variation of θ for $\phi_0=15^\circ, \theta_0=10^\circ, 30^\circ$.

$$\mathbf{v} = (\dot{\gamma}y, 0, 0), \mathbf{d} = \begin{bmatrix} 0 & \dot{\gamma}/2 & 0 \\ \dot{\gamma}/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \omega_z = \dot{\gamma}/2 \quad (7)$$

となり, Jeffery の方程式(4)は

(a) aspect ratio $r_a = 0.1$, initial angles $\phi_0 = 60^\circ, \theta_0 = 10^\circ$ (b) aspect ratio $r_a = 0.1$, initial angles $\phi_0 = 60^\circ, \theta_0 = 80^\circ$ (c) aspect ratio $r_a = 0.02$, initial angles $\phi_0 = 60^\circ, \theta_0 = 80^\circ$

Fig.5 Evolution of orientation of disk-like particle in a simple shear flow for shear rate $\dot{\gamma} = 5\text{ s}^{-1}$.

$$\begin{aligned} \dot{\phi} &= (\dot{\gamma}/2)(\lambda \cos 2\phi - 1) \\ \dot{\theta} &= (\lambda \dot{\gamma}/4) \sin 2\phi \sin 2\theta \end{aligned} \quad (8)$$

となる. 計算では, せん断速度を $\dot{\gamma} = 5.0\text{ 1/s}$, $\phi_0 = 60^\circ$ として, アスペクト比と初期角度を $r_a = 0.1, 0.05, 0.02$, $\theta_0 = 10^\circ \sim 85^\circ$ と変化した.

Fig.5 では, 円板を xy 面および xz 面へ投影した図で円板状粒子の配向の変化を示す. また, 円板の中心から引かれた線分は配向ベクトルを表し, 更に, グレーの円板は裏面が見えることを表している. なお, 前項で説明した理由により横軸にはせん断ひずみを採っている. 円板は周期的に flip-over を起こしており, せん断ひずみの周期は $\dot{\gamma}T = 2\pi(r_a + 1/r_a)$ となる. 例えば, $r_a = 0.1$ では $\dot{\gamma}T = 63.5$ である. Figs.(b), (c)から初期角度 θ_0 が 80° と大きい場合には, y 方向から円板を観察すると (xz 面への投影図) flip-over を起こす瞬間を除き円形に見えることが分かる. 即ち, Fig.2 に示す実験に使用したスリット流路内で, 上方から円板状粒子を観察すると flip-over を起

Fig.6 Evolution of orientation angle of disk-like particle in a simple shear flow for $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$; (a) variation of ϕ (grey solid curve) for $\phi_0 = 60^\circ$, variation of θ for $\phi_0 = 60^\circ$, $\theta_0 = 30^\circ$ (dotted curve), 80° (broken curve), 85° (dot-broken curve); (b) variation of ϕ (grey thick curve) and θ (thin curve), $r_a = 0.1$ (solid curve), $r_a = 0.05$ (dotted curve) and $r_a = 0.02$ (broken curve) for $\phi_0 = 60^\circ$, $\theta_0 = 80^\circ$.

こしている瞬間には楕円に見えるが、ほとんどの時間円形の形状が見られることになる。この傾向は、アスペクト比が小さいほど flip-over の周期が長くなるので、顕著になる (Figs.(b),(c))。

また、配向角の変化に及ぼす初期角度 θ_0 とアスペクト比 r_a の影響を Fig.6 に示す。 θ_0 が小さいほど θ の変動振幅は大きくなることと、 r_a が小さいほど円板状粒子の面が xz 面に平行に保たれる時間が長くなることおよび θ の変動振幅が僅かではあるが大きくなることが分かる。

3. スリット流路内の流れ中におけるタルク粒子の配向の観察

3.1 実験装置および方法

実験にはタルク粒子をグリセリンに 0.01wt% 懸濁した液体を用いた。なお、タルク粒子の形状は様々で、比較的円形に近いものから多角形の複雑な形状のものまである。大きさもまちまちで数 μm ~ 数 $10 \mu\text{m}$ の範囲にある。Fig.7 にタルク粒子の拡大写真を示す。また、厚さは $0.5 \mu\text{m}$ 程度と言われているが確認はできない[12]。なお、タルクの密度は $\rho = 2.82 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ある。

Fig.8 に実験装置概要を示す。流路は厚さ 2 mm、幅 16 mm のスリット流路である。懸濁液はヘッドタンク内でヘッド一定に保たれ、流量はバルブにより調節した。流量は流路の出口で電子天秤により質量流量を測定した。また、スリット流路とバルブの間にリザーバが設けてある。

タルク粒子の大きさは小さいので、透過型顕微鏡を用いて拡大して粒子の配向の変化を CCD ビデオカメラに記録した。観察位置は、流路の幅方向の中央付近で、厚さ方向については壁面から中央部にかけて変化させた。

Fig.7 Microscopic view of talc particles.

Fig.8 Schematic diagram of the experimental apparatus.

なお、厚さ方向の位置は顕微鏡の焦点を合わせた位置から正確に測定できる。この位置でのせん断速度は、矩形流路内における十分に発達した流速分布の結果から計算する。更に、タルクの形状は様々であるが、等価な円（面積の等しい円）に換算して、タルク粒子のアスペクト比の計算に用いることにした。このアスペクト比の値が分かると、Jeffery の方程式から得られる粒子の flip-over の周期 $T = (2\pi/\dot{\gamma})(r_a + 1/r_a)$ が求まり、実験結果と比較することができる。

3.2 タルク粒子の配向の変化

Fig.9(a)~(c)に、比較的円形に近い形状から複雑な形状まで3種類のタルク粒子の回転の様子を示す。これらのビデオ画像は、flip-over している粒子の半周期の運動を表している。

図から分かるように、大きさが大きくなるにつれて周期が長くなるのは Jeffery の方程式から容易に想像できる。また、数値解析結果 (Fig.5) と同様に、実験においてもタルク粒子は flip-over を起こしている瞬間を除き、ほとんどの時間スリット流路の上下壁面に平行に配列していることが分かる。しかし形状の違いによる周期性の違いも認められる。更に、粒子の大きさが異なるのに周期がほぼ同じになる場合もあった。理由としては、複雑な形

状の扁平な粒子の場合には、円板状粒子の回転運動と大きく異なる運動を行うことになり、形状の違いが大きく影響することと、タルク粒子の厚さが実際には一定ではなく、粒子の大きさにより異なることなどが考えられる。しかし実際にタルクの厚さを測ることは困難であるため、確認はできない。

また、Fig.10 には、flip-over の測定周期 T_m とタルク粒子の厚さを粒子の大きさに関わらず一定の $0.5 \mu\text{m}$ としたときの Jeffery の方程式から計算できる周期 T_j の関係を示す。なお、 T_j の値を計算する際には、タルク粒子の形状を等価な円に換算しその直径（図中の d ）を用いている。粒子の大きさが増加するにつれて測定周期のばらつきが拡大する。上述したように、これは粒子の厚さや形状のばらつきが原因であると考えられる。なお、この図から $T_j/T_m \approx 10$ となることが分かる。従って、Jeffery の方程式が適用できることを確認するためには、既知の厚さの円板を作成して配向の変化を測定することが必要であり、これは、今後の研究で実施する予定である。

なお、ここには図示しないが、タルク粒子の大きさに関わらずアスペクト比を $r_a = 1/15$ と一定にした場合には、 T_j/T_m の値は粒子の大きさに関わらず3程度になることも分かった。従って、Fig.10 で T_j/T_m の値が大きくなった第一の原因としては、タルク粒子の厚さを正確に見積れなかったことにあると考えられる。

Fig.9 Evolution of talc particle rotation for (a) nearly circular shaped particle, flow rate $Q = 2.57 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$, distance from the upper-wall $\Delta y = 9.0 \times 10^{-2} \text{ mm}$; (b) elliptic shaped particle, $Q = 2.77 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$, $\Delta y = 2.96 \times 10^{-1} \text{ mm}$; (c) particle with complex geometry, $Q = 2.32 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{s}$, $\Delta y = 2.82 \times 10^{-1} \text{ mm}$.

Fig.10 Relationship between the measured and predicted periods of flip-over of talc particle.

3.3 タルク粒子懸濁液の流れにおいて観察される模様

Fig.11 に示すタルク粒子の懸濁液の流れにおいて観察される 2 種類の筋状の模様について考える。2 節で述べた結果から、リザーバからスリット流路へ流入するとき、タルク粒子は面を上下壁面にほぼ平行に保っている。スリット流路内では、流速は xy 面内で急激に変化するが、壁面近傍を除き流路の大部分の領域で z 方向へはほとんど変化しない。従って、平行平板流路内の流れと考えるとよいことになる。速度勾配は上下壁面に近づくにつれて増大するため、壁面に近い領域を移動しているタルク粒子は頻繁に flip-over を起こすが、流路の中心線の近傍では粒子はほとんど配向を変えないことになる。即ち、流路の中心線の近傍ではタルク粒子は面を上下壁面にほぼ平行に保ち続ける。従って、幅方向の透過光によって観察した写真 Fig.(a)に現れた中心線上の筋状の模様（写真上でははっきりとは見えにくい）は、タルク粒子の配向状態に起因していると考えられる。

また、射出成形の金型内にはピンなどの障害物が存在する場合がよくある。もう一つの実験では、スリット流路の中心線上に円柱を取付けた流路内でタルク粒子懸濁液を流した際に円柱後方に筋状の模様が観察された (Fig.(b))。この場合円柱後方の流れは、Fig.2 に示す座標系で xz 面内の平面伸張流れで近似できる。従って、2.2.1 の平面伸張流れ中における円板状粒子の配向の数値計算結果から分かるように、円柱後方の中心線近傍ではタル

Fig.11 Flow visualizations of talc suspension; (a) side-viewed pattern through a slit channel, (b) top-viewed pattern behind a circular cylinder confined in a slit-channel, diameter of the cylinder is 8mm.

ク粒子は xy 面に平行に配列することになる。このため周辺の領域より幅方向に入射した光を透過しにくくなり、筋状の模様が観察されたと考えられる。

4. まとめ

この研究の目的は、鱗片状粒子の懸濁液の流れ中における粒子のマイグレーションと配向ならびに鱗片状粒子の懸濁液の流れを実験と数値解析の両面から明らかにすることにある。ここでは、研究の第一段階として雲母あるいはタルクなどの鱗片状粒子を円板状粒子でモデル化し、シート状複合材料の成形過程の解析を目的として、スリット流路内の流れ中における円板状粒子の配向について調べた。

ここで用いた実験装置では、リザーバからスリット流路へ流れ込む流れは中央部の広い領域でほぼ平面伸張流れとなる。また、円板状粒子は流線に沿って移動するので、スリット流路内の十分に発達した流れ中では単純せん断流れに曝される。そこで、平面伸張流れ中と単純せん断流れ中における円板状粒子の配向の変化を数値解析により調べた。その結果、実験に用いた流路では、円板状粒子がリザーバからスリット流路へ流入する際に、平面伸張流れにより円板の面をスリット流路の上下壁面にほぼ平行にして流入することが分かった。このような配向状態で流入した円板状粒子は、流路上方から観察する

と flip-over を起こしている瞬間には楕円に見えるが、ほとんどの時間円形の形状が観察されることになる。この傾向はアスペクト比が小さいほど flip-over の周期が長くなるので、顕著になる。

更に、タルク粒子懸濁液のスリット流路内の流れ中における粒子の配向の測定から、粒子の大きさが異なるのに周期がほぼ同じになるという結果も得られた。理由としては、複雑な形状の扁平な粒子の場合には、円板状粒子の回転運動と大きく異なる運動を行い、形状の違いが大きく影響することと、粒子の大きさによりタルク粒子の厚さが異なることなどが考えられる。

References

- [1] Brody, H., Ward, I.M.; Polym. Eng. Sci., **11**, 139 (1971)
- [2] Moghe, S.R.; Rubber Chem. Technol., **47**, 1074 (1974)
- [3] Goettler, L.A., Leib, R.I., Lambright, A.J.; Rubber Chem. Technol., **52**, 838 (1979)
- [4] Oyanagi, Y., Yamaguchi, Y., Kitagawa, M., Terao, K., Mochizuki, M.; Kobunshi Ronbunshu, **38**, 285 (1981)
- [5] Pipes, R.B., McCullough, R.L., Taggart, D.G.; Polym. Composites, **3**, 34 (1982)
- [6] Maiti, S.N., Sharma, K.K.; J. Mater. Sci., **27**, 4605 (1992)
- [7] Karrad, S., Lopez Curesta, J.-M., Crespy, A.; J. Mater. Sci., **33**, 453 (1998)
- [8] McInerney, L.F., Kao, N., Bhattacharya, S.N.; Polym. Eng. Sci., **43**, 1821 (2003)
- [9] Nogai, T.; Sen-i Gakkaishi, **38**, T-413 (1982)
- [10] White, J.L., Knutsson, B.A.; Polym. Eng. Rev., **2**, 71 (1982)
- [11] Martinsson, J., White, J.L.; Polym. Composites, **7**, 302 (1986)
- [12] Lim, S.H., White, J.L.; J. Rheol., **34**, 343 (1990)
- [13] Jeffery, G.B.; Proc. R. Soc., **A102**, 161 (1922)