

## プラスチック成形品のネック伝ば解析 (2)

### —ポリブチレンテレフタレート成形品のネック挙動のひずみ速度依存性—

山下 勝久<sup>\*1</sup>・丹下 章男<sup>\*1</sup>・野々村 千里<sup>\*1</sup>・仲井 朝美<sup>\*2</sup>・山田 敏郎<sup>\*3</sup>

## Analysis for Neck Propagation of Plastic Molding (2)

### —Necking Behavior of Poly(butylene terephthalate) under Uniaxial Drawing—

Yamashita, Katsuhisa<sup>\*1</sup>/Tange, Akio<sup>\*1</sup>/Nonomura, Chisato<sup>\*1</sup>/Nakai, Asami<sup>\*2</sup>/Yamada, Toshiro<sup>\*3</sup>

The load displacement and deformation behavior along with the accompanying changes in surface temperature during neck formation and propagation under tensile loading were investigated for poly(butylene terephthalate) (PBT). A numerical model for PBT molding was developed and the neck deformation behavior under tensile loadings was analyzed by the finite element method (FEM). Numerical results were compared with experimental ones.

The experimental results showed that neck formation did not occur immediately after the yield, but instead a homogeneous plastic deformation throughout the test piece proceeded the neck formation and propagation. It was observed that an increase in temperature did not occur before the start of the neck formation. The load - displacement behavior obtained by numerical models could well describe the experimental results when an elastic-plastic model under stable temperature conditions was adopted to describe the necking behavior of the PBT sample. Furthermore, the dependency of strain rate on the neck formation was shown to be affected by the instability of plasticity from the numerical results.

**Key words** : Necking behavior/Poly(butylene terephthalate)/Tensile loadings/  
Finite element method

## 1. 緒 言

フィルム成形やブロー成形など高分子材料の大変形の延伸挙動を制御した成形加工は、工業分野で幅広く用いられている。これらの成形加工を対象とした数値解析は、製品設計の最適化や生産性の向上などを目的に、これまで多く

の研究が行われてきた。しかし、プラスチックの成形加工を数値解析により検討する場合において、幾何学的非線形性や材料非線形性などの非線形要因の考慮が必要であり、実際の現象を精度良く再現することが困難な場合が多い。特に、一軸伸長時におけるネッキングやネック伝ばなどの不均一変形の現象は、高分子材料に独特の挙動を示すため複雑な問題であり、延伸工程をとまなう成形加工の数値解析において、重要な研究課題であると思われる。

ネッキングやネック伝ば現象の解明を目的とした数値解析は、Nealeら<sup>1)~4)</sup>、G'Sellら<sup>5),6)</sup>、Fagerら<sup>7)</sup>、Nimmer<sup>8),9)</sup>などによって、今までに多くの研究成果が報告されてきた。著者らは、結晶性の熱可塑性ポリエステル系樹脂であるポリエチレンテレフタレート(以下、PETと略す)フィルム<sup>10)~13)</sup>や、ポリブチレンテレフタレート(以下、PBTと略す)成形品<sup>14),15)</sup>を対象とした変形挙動の数値解析の研究を行い、弾塑性構成則を用いた力学特性のモデル化が、実際のネッキング現象を近似することを示した。しかし、これらの数値解析の前提として等温断熱を仮定しており、そ

\*1 東洋紡績(株) 総合研究所

大津市堅田 2-1-1 (〒520-0292)

TOYOBO Co.,LTD. Research Center

2-1-1, Katata, Otsu 520-0292, Japan

\*2 京都工芸繊維大学大学院先端ファイブ科学専攻

京都市左京区松ヶ崎御所海道町 (〒606-8585)

Division of Advanced Fibro-Science, Kyoto Institute of Technology

Matsugasaki, Sakyo-ku, Kyoto 606-8585, Japan

\*3 金沢大学工学部物質化学工学科

金沢市小立野 2-40-20 (〒920-8667)

Kanazawa University Faculty of Engineering

2-40-2, Kodateno, Kanazawa 920-8667, Japan

2003. 11. 19 受理

の適合範囲は、温度一定が容易に想定できる低ひずみ速度領域を対象としていた。一般に、固体高分子を高速で変形させる場合、作用するひずみ速度に対応して発熱し、材料に温度上昇が発生する。結晶性樹脂の発熱挙動の研究では、Toda<sup>16)</sup>はPETフィルムの自励振動現象を対象にして、オンラインの温度計測によってひずみ速度と温度上昇が対応すること示した。また、温度上昇のひずみ速度依存性をBarenblattモデル<sup>17)</sup>によって理論的に解析している。PET以外の樹脂では、Koenen<sup>18)</sup>らによって、ポリカーボネート(以下、PCと略す)成形品を対象に同様な方法で引張試験時の発熱現象について報告している。また、林ら<sup>19)</sup>は、PC、ポリプロピレン(以下、PPと略す)、6ナイロン成形品の圧縮試験を対象にした発熱現象について考察している。これらの研究で対象としたPET、PC、PPなどの材料は、ネッキングが発生する場合において、降伏直後ないしは、降伏後の比較的小さなひずみ量でネッキングが開始し、また、それらの発熱現象は、降伏前後の力学挙動に対応することが報告されている。

一方、著者らの前報で対象としたPBT成形品<sup>14)</sup>は、室温環境下においてネッキングが降伏直後で起こらず、ひずみ量がある程度増加した時点で発生しており、これらの材料と異なる力学挙動を示す。そこで、著者らは、上記の延伸挙動を持つPBT成形品に対して、発熱現象と力学挙動のひずみ速度依存性を計測し、各々の関係について考察を行った。また、これらの結果から、等温断熱を仮定したネッキング挙動の数値解析について、高速のひずみ速度領域への拡張を検討した。

本報では、射出成形で成形加工されたPBT成形品を対象に、引張試験中の試験片について表面温度と荷重-変位関係を計測した結果、および、 $n$ 乗則の近似化による弾塑性構成則を用いた数値解析について、ネッキング挙動におけるひずみ速度依存性の再現を試みた結果を報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 引張試験片

本研究に使用したPBT樹脂(東洋紡績製:EMC 700-01)は、融点228℃、ガラス転移温度25℃であり、この樹脂を用いて射出成形機(東芝機械製:IS-80C)により、引張試験片を作製した。このときの射出成形の条件を表1に示す。引張試験片は、平行部の長さ80mm、幅10mm、厚さ4mmのダンベル型引張試験片(ISO 3167:1993(E))を使用した。

### 2.2 表面温度の測定

試験中の試験片表面温度は、赤外線放射温度計TH 3102型(NEC三栄製)を用いて、図1に示すようにオンライ

Table 1 Conditions of injection molding

Injection machine	TOSHIBA IS 80 G-2 A	
Melt temperature (°C)	230	
Mold temperature (°C)	23	
Injection pressure (MPa)	9.5	
Packing pressure (MPa)	10.0	
Injection time (s)	8.0	
Cooling time (s)	16.0	

ンで測定した。なお、赤外線放射温度計の測定波長は8~13  $\mu\text{m}$ 、応答時間は0.8秒である。また、試験中の雰囲気温度は、室温(23℃)で一定になるように制御した。引張試験は、インストロン万能試験機4466型(インストロン製)を用い、チャック間距離は114mmとして、クロスヘッドスピード $V$ を1~50 mm/min(初期のひずみ速度に換算すると、 $1.45 \times 10^{-4} \sim 7.25 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ )に変化させ、表2に示す条件で測定を行った。

## 3. 実験結果

### 3.1 試験片の表面温度の変化

チャック間の変位に対する荷重、および、表面温度変化の関係の一例として、 $V=10 \text{ mm/min}$ の結果を図2に示す。同図の温度は、赤外線放射温度計における最大値を示す。試験開始からa点までの荷重は、ほぼ線形的に増加し、a点からb点までの荷重は、わずかに減少する傾向が見ら

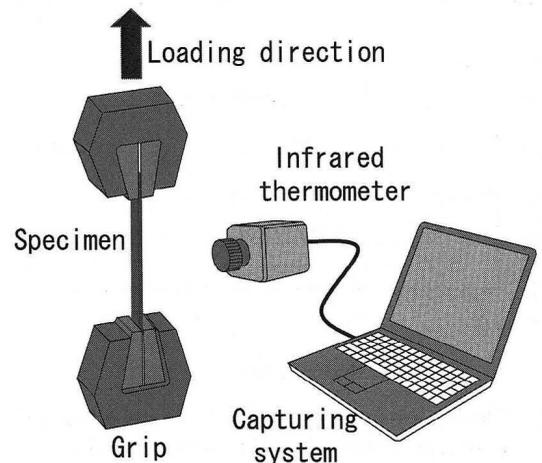


Fig. 1 Apparatus for thermometry in tensile test

Table 2 Test conditions

Test material	PBT	
Shape of test specimen	ISO 3167:1993(E)	
Initial distance between grips (mm)	114	
Temperature (°C)	23 (Constant)	
Crosshead speed $V$ (mm/min)	1, 2, 5, 10, 20, 50	

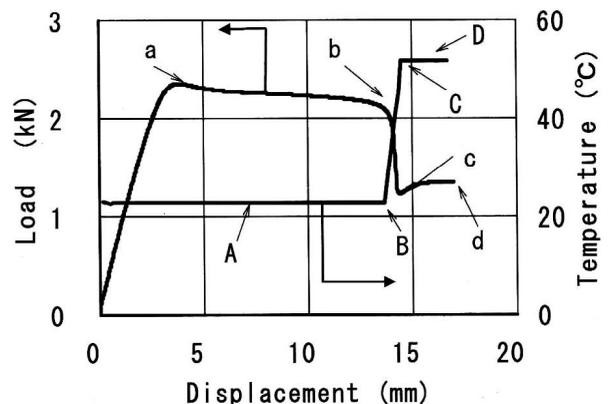


Fig. 2 Experimental results for load-displacement diagram and temperature-displacement diagram at  $V = 10 \text{ mm/min}$

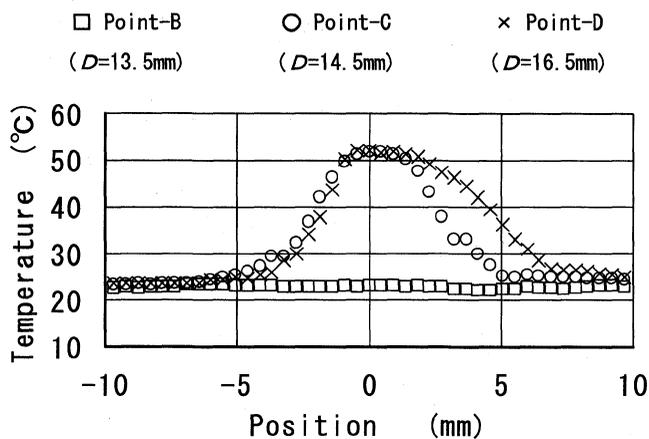


Fig. 3 Changes of temperature near necking point in tensile loading direction. ( $V = 10$  mm/min)

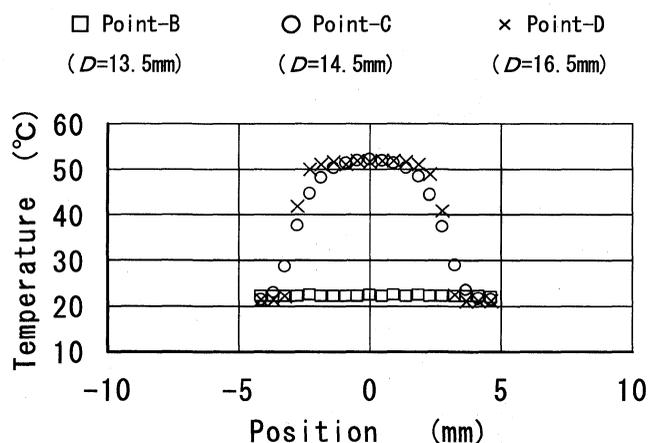


Fig. 4 Changes of temperature near necking point in transverse direction. ( $V = 10$  mm/min)

れた。この間、ネッキングは観察されず、また、試験片表面についても温度上昇が観察されなかった。その後、b点においてネッキングが発生し、b点からc点までは、荷重が著しく低下し、これと同時に急激な温度上昇が観察された。また、d点では、ネック伝ばが発生して荷重が一定となり、試験片表面の温度上昇が発現しなかった。

ネッキング開始直前 (b点)、ネッキング時 (c点)、および、ネック伝ば時 (d点) の状態のネック部における表面温度計の測定結果について、引張方向の変化を図3に、引張方向に対して垂直方向の変化を図4に各々示す。ネッキング前の表面温度は、試験片でほぼ同じ分布を示し、雰囲気温度とほぼ同じ温度である状態が観察された。ネッキング時の表面温度は、試験片のネッキング発生部で約30°Cの局所的な温度上昇が認められ、このときの温度分布が、引張方向と垂直方向の両方ともに対称である状態が観察された。また、ネック伝ば時の温度は、局所的な温度上昇が存在し、試験片のネック部に相当する位置で最も高い温度が観察された。

### 3.2 引張速度依存性

図5に引張試験において引張速度  $V$  を変化した場合 (1~50 mm/min) の荷重-変位関係を示す。見かけ上の降伏荷重は、引張速度の増加にともなって上昇し、このとき

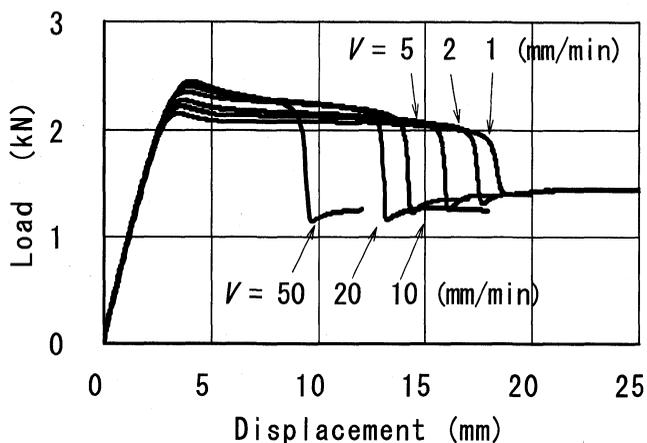


Fig. 5 Experimental results for load-displacement diagrams with varying crosshead speed

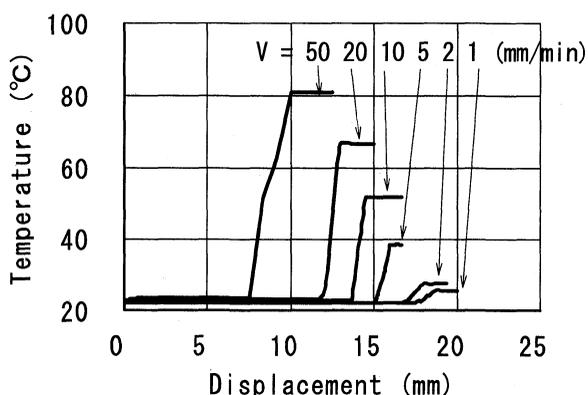


Fig. 6 Relationship between displacement and temperature

の変位も増加することが確認された。ネッキングが開始する変位量は、反対に引張速度の増加にともなって減少する挙動が確認された。また、ネック伝ば時の荷重は、引張速度が大きい場合に減少することが確認された。図6に各引張速度における試験片の表面温度と変位量の関係を示す。試験片の温度上昇は、全ての条件で荷重が低下する変位で開始し、ネッキングにともなって発生することが確認された。温度上昇の最大値は、全ての条件でネッキング時の変位であり、ネッキングとの相関性が確認された。また、ネック伝ば時では、全ての条件でネッキング時の温度上昇が観察されなかった。図7に  $V=1, 10, 100$  mm におけるネッキング時 (c点) の表面温度の等高線図を示す。いずれの試験片においてもネック部の中心が最大温度になり、中心部と対象な温度分布が観察された。また、図8に試験片表面の温度上昇と引張速度との関係を示すが、温度の上昇は引張速度にともなって増加することが確認された。

## 4. 有限要素法による変形解析

### 4.1 解析方法

#### ① モデル化

前項の引張試験から試験開始からネッキング開始までの間は、ほとんど温度変化が観察されないことから、数値解析において等温変化を仮定した数値解析を行った。材料定数は、任意の位置で等方均質性を仮定し、以下に示す構成

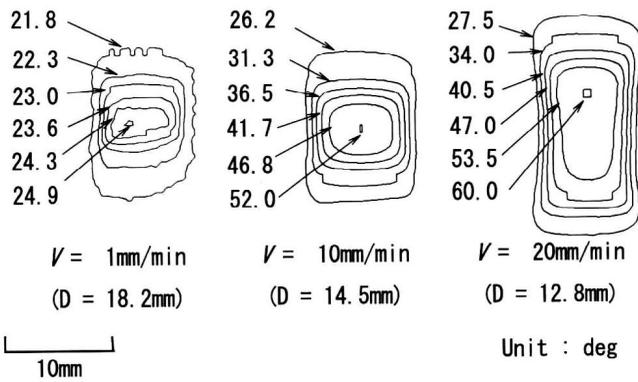


Fig.7 Contour line diagrams of temperature at point-C

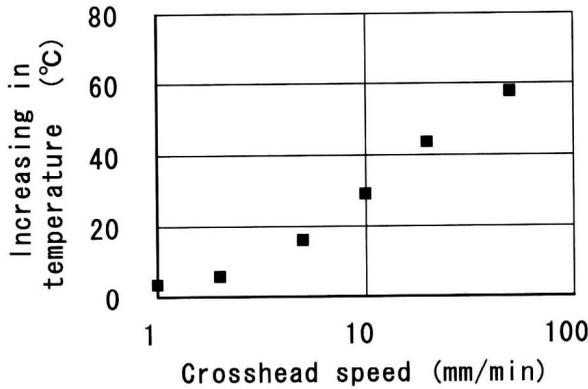


Fig.8 Relationship between increasing in temperature and crosshead speed

則を用いて定義した。なお、数値解析のソフトウェアは、有限要素法による汎用ソフトウェア(MARC 2000, MSC製)を使用して、幾何学的非線形性を考慮した計算を行った。

### ② 構成則

材料の構成則は、前報の解析方法<sup>14)</sup>と同様に弾塑性モデルを適合した。なお、本報においての真応力-対数ひずみ関係は、図9に示すように弾性領域(領域1, A~B点間)、第一塑性変形領域(領域2, B~C点間)、第二塑性変形領域(領域3, C点以降)と分離して定義した。実験結果より見掛け上の降伏荷重が引張速度に依存して変化したことから、領域2までの真応力と対数ひずみの関係は、(1)式に示すn乗硬化則で記述される関係式を用いて、降伏応力 $\sigma_y^*$ が各条件で異なる値になるように定義した。

$$\sigma = \sigma_y^* + K \epsilon^n \quad (1)$$

ここで、 $n$ はひずみ硬化係数、 $K$ は材料定数、 $\epsilon$ 対数ひずみである。また、ヤング率を2.2 GPa、ひずみ硬化係数を $n=0.55$ と同じ値に設定して、(2)式に示す材料定数 $K$ の変化により、塑性変形後のひずみ速度依存性を仮定した。

$$K = (\sigma - \sigma_y^*) / \epsilon^n \quad (2)$$

また、領域3は、ネッキングを局所くびれ<sup>20)</sup>に相当すると仮定して、各条件で $\epsilon = 2n$ と同じ値で定義した。本報で使用した解析条件を表3に示す。

### ③ 要素分割および境界条件

数値解析の範囲は、ダンベル試験片の形状からチャック

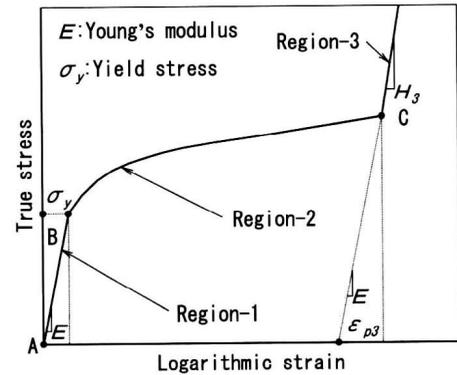


Fig.9 Uniaxial true stress - logarithmic strain curve

Table 3 Conditions of numerical analysis

Young's modulus	$E$ (GPa)	2.2
Poisson's ratio	$\nu$ (-)	0.38
Yield stress	$\sigma_y$ (MPa)	CASE-1 44.0 CASE-2 49.0 CASE-3 53.0
True stress at Point C	$\sigma$ (MPa)	83.0
Strain hardening index	$n$ (-)	0.38
Plastic strain at the beginning of Region 3	$\epsilon_{p3}$ (-)	1.1
Yield criteria		von Mises
Hardening rule		Isotropic hardening

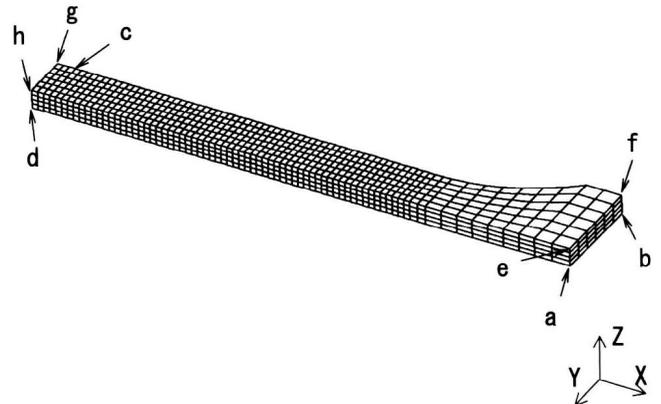


Fig.10 Finite element mesh for test specimen

間距離 114 mm (平行部の長さ 80 mm, 平行部の幅 10 mm, 厚み 4 mm)とした。有限要素法のモデルは、図10に示すように対称性を仮定して、1/8対称モデルとし、X方向に75分割、Y方向に6分割、Z方向に4分割、総要素数を1800、総節点数を2660で要素分割を行った。境界条件は、abcd面の全節点をZ方向に、aehd面の全節点をY方向に、dcgh面の全節点をX方向に拘束し、abfe面にX方向の強制変位を与えた。

### 4.2 数値解析結果

#### ① 変形挙動

Case-2の解析条件における各変位量 $D$ のX-Y平面の変形状態、および、塑性ひずみ線図を図11に示す。 $D=5.0$  mm、および $D=13.0$  mmでは、平行部の変形は、幅方向ではほぼ均一であり、ネッキングが発生しなかった。また、

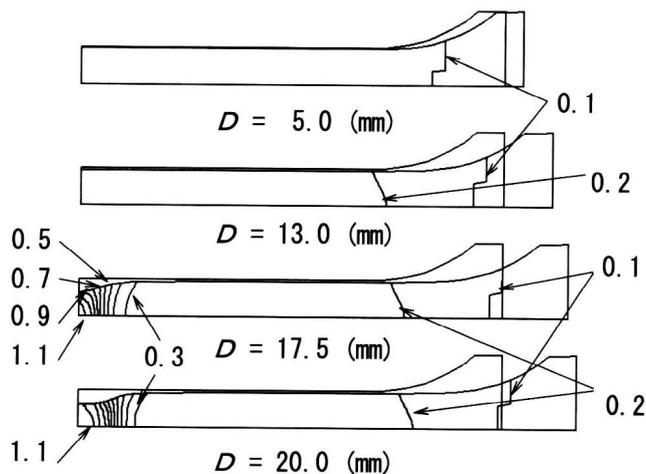


Fig. 11 Contour line diagrams of equivalent plastic strain

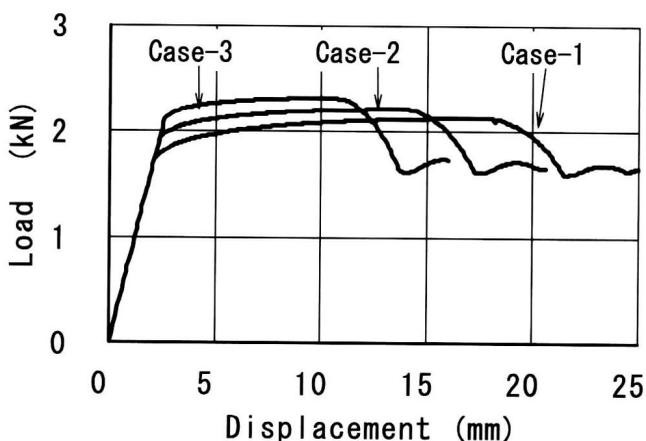


Fig. 12 Numerical results for load-displacement diagrams

平行部の塑性ひずみは、ほぼ同じ値であり、均一に伸長される状態であった。D = 17.5 mm では、塑性ひずみが中央部に集中してネッキングが発生することが確認された。D = 20 mm では、ネック部と非ネック部の境界で塑性ひずみの勾配が大きくなり、ネック伝ばの状態が確認された。

### ② 降伏条件の変化

降伏応力  $\sigma_y^*$  が異なる Case-1, 2, 3 における荷重-変位関係の数値解析結果を図 12 に示す。変形開始後の線形的な荷重増加の領域、その後（見掛け上の降伏点以降）の変位量における荷重変動が少ない領域、ネッキング発生により著しく荷重が減少する領域、ネック伝ばによる荷重変動の少ない領域など一連の荷重-変位関係の挙動、および、変形挙動は、全ての解析条件で実験結果と同様な状態が確認された。見掛け上の降伏点の荷重は、 $\sigma_y^*$  の値が大きい Case-3, Case-2, Case-1 の順に増加し、ネッキングが開始する変位は、反対に Case-3, Case-2, Case-1 の順に減少した。また、ネック伝ば時の荷重は、全ての条件でほぼ同じ値を示した。

### ③ 塑性ひずみの変化

Case-1, 2, 3 における d 点の塑性ひずみと変形量の関係を図 13 に示す。d 点の塑性ひずみは、ネッキング開始

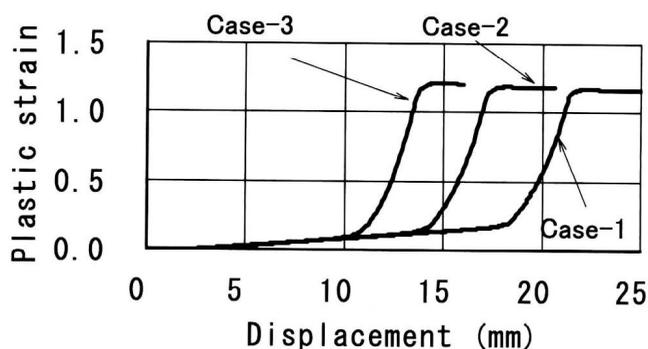


Fig. 13 Numerical results for plastic strain-displacement diagrams

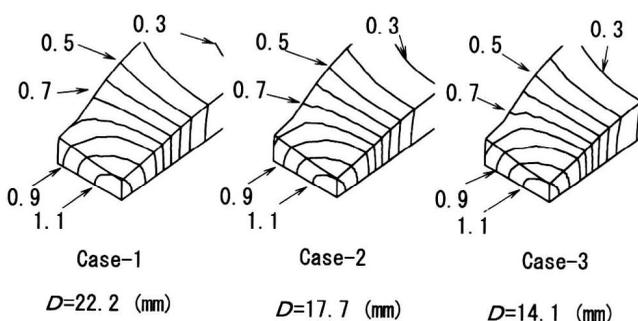


Fig. 14 Contour line diagrams of equivalent plastic strain during necking formation at point-C

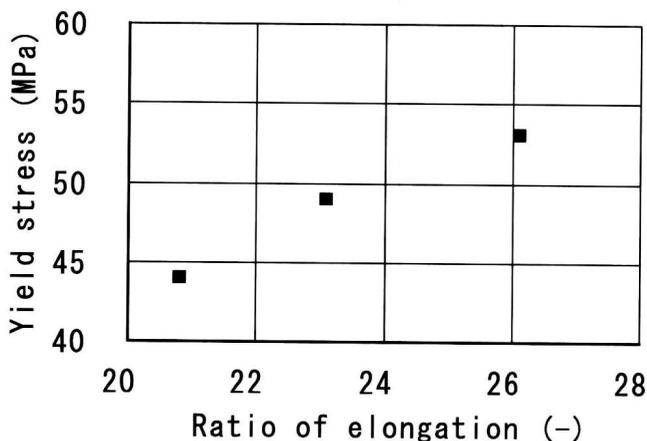


Fig. 15 Relationship between the yield stress and the ratio of the elongation

までにおいて全ての条件でほぼ同じ変化になった。ネッキング以降の塑性ひずみは、Case-1, 2, 3 とともに急激に上昇し、Case-3 において最も大きい変化を示した。その後のネック伝ば中の塑性ひずみは、全ての条件でほぼ値を示した。Case-1, 2, 3 でネッキング開始時の変形量（それぞれ D = 22.2, 17.7, 14.1 mm）の塑性ひずみ分布を図 14 に示す。ネック部の塑性ひずみは、Case-1, 2, 3 の順番に著しく集中することが確認された。また、各条件におけるネック部とひずみ量と系全体のひずみ量の比を図 15 に示すが、降伏応力の増加にともなって、伸長比が増加することが確認された。

## 5. 考 察

### 5.1 温度変化挙動

引張試験中の試験片は、実験結果からネッキングの開始までの間において、温度上昇が発生せず、また、見掛け上の降伏荷重の後にプラトーな荷重領域があることが確認された。PBT樹脂は、 $\alpha$ 型と $\beta$ 型の結晶構造と持ち、その分子配列から応力を受けない場合において $\alpha$ 型の構造であり、応力を受けた場合において $\alpha$ 型より $\beta$ 型に結晶構造に遷移することがTadokoroらのPBTを用いたシート成形品<sup>20)</sup>の研究などで報告されている。本報で用いた試験片は、射出成形で加工されていることから、肉厚方向の層構造<sup>20)</sup>が形成され、スキン層では急冷により非晶部分が、コア層では $\alpha$ 型結晶以外にも冷却過程の残留応力による $\beta$ 型結晶や結晶構造を持たない部分が存在すると推定される。このような内部構造を持つ成形品に見かけ上の降伏荷重以上のひずみ量が与えられた場合には、結晶構造自体の崩壊や $\alpha$ 型結晶の $\beta$ 型結晶への遷移などが想定される。このため、ネッキング以前では、成形品に塑性変形が発生した場合においても、発熱現象が起こらないものと考察される。

### 5.2 ネック時の温度上昇

ネッキングの開始後の温度上昇は、試験片のネック発生部の中心から発熱し、その後のネック伝ばでは、ネック部と非ネック部の境界で発熱することが確認された。一方、数値解析における塑性ひずみは、ネッキング開始時にネック発生部の中央において発生し、その塑性ひずみは、全体の系のひずみ量に対して20倍以上の著しい増加を示した。また、その後のネック伝ばにおいても、ネック部と非ネックの境界で塑性ひずみが著しく増加しており、これらの実験結果と数値解析結果より、PBT樹脂の発熱は、ネッキングが起点となった塑性ひずみの急激な増加の影響を受けることが示唆された。

### 5.3 数値解析によるネッキング挙動の再現

本報では、等温を仮定した弾塑性構成則を用いてネッキング挙動のひずみ速度依存性を再現することを試みた。数値解析で降伏応力の設定を増大させた場合には、荷重-変位関係において見掛け上の降伏以後のプラトーな領域の荷重が増加し、また、ネッキングが開始する変位量が減少する状態が得られた。これらの挙動が実験結果と同様な傾向であり、かつ、試験片の温度上昇がネッキングを起点として発生することから、本報の数値解析は、ネッキング前の変形挙動を擬似化する方法であると考察される。しかし、ネッキング以降の挙動では、ネック伝ば時の荷重が実験結果と数値解析で異なる場合が存在しており、実験結果においては、引張速度が大きい場合で荷重が低下する挙動が認められるが、数値解析においては、荷重の低下が再現されなかった。これらの相違の原因としては、ネッキング時の温度上昇による材料の弾性の低下が影響しており、本報の数値解析では等温を仮定していることに帰着する。ネッキング以降の状態を擬似化するためには、発熱挙動を考慮した構成方程式の検討が必要になると言える。また、見かけ上の降伏荷重の直後は、実験結果では荷重が若干低下しており、その挙動においても引張速度の依存性が認められるが、数

値解析においては再現されなかった。これらの原因として、樹脂の粘弾性挙動や内部構造の変化が影響すると考えられ、数値解析の今後の課題である。しかし、本報の数値解析では、ネッキングの発生を降伏応力の変化により擬似化できる方法であり、ネッキングの判定法として、工業的に有効な方法であると思われる。

## 6. 結 言

PBT成形品を対象に荷重-変位関係と表面温度の計測を行った。さらに、 $n$ 乗硬化則を仮定した弾塑性構成則を用いた有限要素法を行い、実験結果と比較した結果、次に示す結論を得た。

- ①PBT成形品の引張試験において、試験片の温度挙動は、ネッキングが発生しない変位量までは発熱が起こらず、その後、ネッキングを起点にして発熱が開始することを確認した。また、PBT成形品の発熱は、実験、および、数値解析からネッキングによる塑性ひずみの急激な増加が原因であることが示唆された。
- ②ネッキングが開始する変位量は、引張速度の増加によって減少するひずみ速度依存性の挙動があり、このときの温度上昇においても、ひずみ速度依存性を確認した。
- ③等温を仮定した $n$ 乗硬化則による数値解析は、ネッキングが開始するまでの領域において適応が可能である。また、数値解析の降伏応力の定義により、引張試験におけるひずみ速度依存のネッキング挙動を擬似化できることが示唆された。

今後の研究課題として、PBT成形品における結晶化や分子配向などの高次構造や一軸伸長時における発熱挙動の関係の把握、数値解析における温度変化や発熱挙動の考慮が残っており、ネッキング挙動の詳細な解明のためには、これらの分析や数値解析手法の確立が必要であると思われる。

## 参 考 文 献

- 1) Neale, K. W. and Tugcu, P.: *J. Mech. Phys. Solids*, **33**, 323 (1985)
- 2) Tugcu, P. and Neale, K. W.: *Intern. J. Solids Struct.*, **23**, 1063 (1987)
- 3) Tugcu, P. and Neale, K. W.: *Intern. J. Mech. Sci.*, **29**, 793 (1987)
- 4) Tugcu, P. and Neale, K. W.: *J. Eng. Mat. Tech., Trans. ASME*, **110**, 395 (1988)
- 5) Marquez-Lucero, A., G'Sell, C. and Neale, K. W.: *Polymer*, **30**, 636 (1989)
- 6) G'Sell, C. and Marquez-Lucero, A.: *Polymer*, **34**, 2740 (1993)
- 7) Fager, L. O. and Bassani, J. L.: *Intern. J. Solids Struct.*, **22**, 1243 (1986)
- 8) Nimmer, R. P.: *Polym. Eng. Sci.*, **27**, 16 (1987)
- 9) Nimmer, R. P.: *Polym. Eng. and Sci.*, **27**, 263 (1987)
- 10) 野々村千里, 鈴木利武, 石原英昭: 成形加工, **4**(9), 583 (1992)
- 11) 野々村千里, 鈴木利武, 石原英昭: 成形加工, **5**(1), 60 (1993)
- 12) 野々村千里, 福永守高, 鈴木利武, 石原英昭: 成形加

- 工, 7(6), 397 (1995)
- 13) Nonomura, C., Yamashita, K., Ito, K., Suzuki, T., Ishihara, H., Nakai, A., Yokoyama, A. and Yamada, T.: *Plastics, Rubber and Composites*, **30**(10), 468 (2001)
- 14) 野々村千里, 山下勝久, 丹下章男, 上辻靖智, 横山敦士, 山田敏郎: 成形加工, **13**(5), 323 (2001)
- 15) Yamashita, K., Ito, K., Tange, A., Nonomura, C., Watanabe, D., Nakai, A., Yokoyama, A. and Yamada, T.: *Plastics, Rubber and Composites*, **30**(10), 477 (2001)
- 16) Toda, A., Tomita, C., Hikosaka, M., Hibino, Y., Miyaji, H., Nonomura, C., Suzuki, T. and Ishihara, H.: *Polymer*, **43**, 947 (2002)
- 17) Barenblatt, G.I.: *Mech Solids*, **5**, 110 (1970)
- 18) Koenen, J. A.: *Polymer*, **33**, 4732 (1992)
- 19) 林 卓夫, 山村陽茂: 日本機械学会論文集, **A-46**(10), 1096 (1980)
- 20) Boyce, M. C., Montagut, E. L. and Argon, A. S.: *Polym. Eng. Sci.*, **32**, 1073 (1992)
- 21) Yokouchi, M., Sakakibara, Y., Chatani, Y., Tadokoro, H., Tanaka, T. and Yoda, K.: *Macromolecules*, **9**(2), 266 (1976)
- 22) 柴谷未秋, 石原英昭, 山下勝久, 葭原 法, 野々村千里: 成形加工 '03, 45 (2003)
-